

IRSN

INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Faire avancer la sûreté nucléaire

Mémoire d'habilitation à diriger des recherches

Origine, comportement et devenir des radionucléides en milieu aquatique continental

Frédérique EYROLLE-BOYER



Collection HDR

Éditorial

En première lecture, les travaux de recherche menés et dirigés par Frédérique EYROLLE-BOYER s'articulent autour d'une démarche fondamentale des sciences, qui est la confrontation répétée et minutieuse entre l'observation et l'analyse, à la lumière des modèles et interprétations à disposition. Bien que cette démarche pourrait passer pour classique, la lecture à laquelle ce manuscrit nous invite, met en lumière qu'il faut se garder d'utiliser abruptement ou trop directement les équations et propriétés physico-chimiques que nous avons sous la main, lorsqu'il s'agit de s'atteler à l'interprétation des situations où se mêlent les traces d'« histoires naturelles » – géologie, mécanismes d'érosion, de lessivages, de transports et de dissolution – et d'apports anthropiques voire semi-anthropiques (rejets d'installations, traces d'essais nucléaires, lâcher de barrages...). Pour construire sa conviction, Frédérique EYROLLE-BOYER a emprunté – et engagé avec elle d'autres scientifiques sur cette voie – un cheminement scientifique qu'elle décrit avec une minutie rare, illustrant l'essence même d'un travail d'orientation de recherche.

Le résultat de ces patientes investigations, à savoir que, dans les milieux aquatiques continentaux, l'origine des radionucléides joue un rôle fondamental sur le comportement d'un élément au fil des ans, pourrait apparaître d'une simplicité désarmante, mais la réelle difficulté ne se cache-t-elle pas souvent dans la recherche de cette simplicité ? Je tiens pour ma part à saluer deux points majeurs : d'une part la volonté de conférer à ce résultat une grande robustesse à la fois en termes de variétés de radionucléides et de situations appréhendés, et d'autre part la légitimité accrue qu'il apporte aux avis de l'IRSN – expert public des risques nucléaires et radiologiques – lorsqu'il évalue une étude d'impact ou est confronté à l'analyse d'observations découlant de rejets d'origines variées. Le cas de l'évolution substantielle du K_D du ^{137}Cs en amont et en aval d'une installation sur le Rhône apparaît pour moi emblématique d'une approximation qui pourrait être faite, dans une analyse trop rapide ou superficielle, en affectant à un même cours d'eau une constante physico-chimique homogène pouvant – selon son mode de calcul – constituer une sur- ou une sous-estimation significative dans une évaluation prospective ou rétrospective.

Enfin, je ne peux que souscrire et appuyer le choix effectué autour de 2012 par Frédérique EYROLLE-BOYER de diriger la trajectoire de ses travaux vers le [tritium](#) et le carbone dans l'environnement. Ce choix nécessitait un certain courage scientifique pour s'attaquer à d'autres cycles bio-géo-chimiques que ceux précédemment investigués, tout en faisant fructifier la démarche de recherche entreprise. L'autre motif

de mon encouragement vient du fait que le [tritium](#) représente, quantitativement, un contributeur souvent majoritaire (en Bq) dans les effluents associés aux installations nucléaires, et qu'il importe de pouvoir apprécier au mieux l'impact de ces rejets sur le moyen et long terme, en ayant en particulier une vision claire de la part de ces rejets susceptibles de se fixer (et partant d'agir) dans les différents compartiments de la biosphère et de la géosphère.

L'habilitation à diriger les recherches (HDR) est un diplôme délivré par un établissement universitaire. Pour un chercheur, elle constitue la consécration d'un cycle – typiquement d'une dizaine d'année – d'activité de recherche remarquable dans son domaine et une double reconnaissance : bien sûr, celle de l'atteinte d'un haut niveau scientifique, mais surtout celle de la capacité à impulser un ensemble cohérent de travaux articulés au service d'un défi scientifique. Cette reconnaissance renforce également l'aptitude à encadrer des étudiants en formation doctorale ou postdoctorale. Elle est précieuse tant pour les chercheurs que pour l'Institut, compte tenu de sa volonté de multiplier les configurations de partenariat où la vision scientifique à moyen terme joue un rôle déterminant.

Ainsi, je suis honoré de présenter, au nom de l'[Institut](#), ce huitième numéro de la [collection HDR](#). Il concrétise la volonté d'une mise en lumière des travaux de recherche de l'Institut, attendue par différentes parties prenantes de la gestion des risques nucléaires et radiologiques et s'adresse plus largement à la communauté académique.

Je remercie donc tout particulièrement Frédérique EYROLLE-BOYER de me donner cette opportunité, à l'occasion de cette étape importante de sa carrière scientifique.

Matthieu Schuler
Directeur de la stratégie, du développement et des partenariats
[Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire](#)
Juin 2016



Université d'Aix-Marseille, faculté des sciences
Habilitation à diriger des recherches
(HDR)

Origine, comportement et devenir des radionucléides en milieu aquatique continental

17 novembre 2015

Frédérique Eyrolle-Boyer
Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire

Composition du jury :

Pr Didier Boulès
Pr Cécile Grosbois

Dr Olivier Radakovitch
Pr Marc Benedetti
Pr Gérard Blanc
DR Michel Meybeck

Dr Sabine Charmasson
Alain Mailliat

CEREGE, université Aix-Marseille
Laboratoire GÉHCO, université de Tours
François Rabelais

CEREGE, université Aix-Marseille
Institut de physique du globe, Paris
Laboratoire EPOC, université de Bordeaux
émérite, SISYPHE, université Pierre et
Marie Curie, Paris 6

IRSN, PRP-ENV/SESURE/LERCM
CLI Cadarache, membre invité

Illustrations en page de couverture : Frédérique Eyrolle-Boyer (géochimiste)
photographiée lors de campagnes de prélèvements.

ISBN 978-2-9545237-5-0

@2016, [IRSN](#). Tous droits réservés

Avant-propos

Les radionucléides présents dans les cours d'eau sont soit d'origine naturelle, soit d'origine artificielle, soit une composante en proportion variable de ces deux termes. Outre les propriétés chimiques propres de l'élément ou les propriétés physico-chimiques du milieu (pH, salinité, charge en suspension), l'origine peut jouer un rôle fondamental sur le comportement de l'élément à un moment donné de son observation ainsi que sur son devenir, c'est-à-dire sa présence dans tel ou tel compartiment au fil des ans. Je tenais, en avant-propos de ce mémoire, à en donner quelques illustrations.

Le premier exemple qui me vient à l'esprit est celui du ^{210}Pb , un élément de filiation de la chaîne de l' ^{238}U , supposé à l'équilibre séculaire au sein de la croûte continentale avec ses autres ascendants ou descendants. En milieu aquatique, le ^{210}Pb observé dans les matières en suspension (MES) provient pour l'essentiel des particules de sols arrachées et entraînées par les processus d'érosion et de ruissellement vers les cours d'eau. Ce ^{210}Pb est alors constitutif de la matière. Intimement lié à la structure cristalline de la particule d'origine, il est le témoin ou l'héritier de cette origine. On parle ainsi, dans ce cas, de plomb « hérité ».

Le ^{210}Pb observé dans les MES des cours d'eau peut également provenir de l'atmosphère. Dans ce dernier cas, on le nomme communément plomb « en excès » ($^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) afin de le distinguer du plomb hérité des sols. Le $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ provient à l'origine des émanations gazeuses de radon (^{222}Rn) depuis le milieu terrestre à partir de la désintégration du ^{226}Ra , élément de filiation de la chaîne de l' ^{238}U . Par désintégration, le ^{222}Rn présent dans l'atmosphère génère à son tour différents radionucléides, dont du ^{210}Pb qui rejoint finalement le compartiment terrestre principalement lors des précipitations. Ce $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ déposé à la surface des sols, est ensuite transféré aux cours d'eau *via* les processus de ruissèlement.

Le ^{210}Pb hérité présente des teneurs généralement variables en fonction de la lithologie des bassins versants. Toutefois, en un point d'observation, il présentera des teneurs constantes au cours du temps (échelle des millénaires). Le $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, après son dépôt à la surface des sols ou accumulés dans les sédiments des rivières, verra sa teneur diminuer progressivement au fil des ans par décroissance radioactive, car contrairement au ^{210}Pb hérité, il ne sera pas régénéré *in situ* par ses ascendants.

Ainsi, alors que le ^{210}Pb hérité présente des concentrations globalement conservées et constantes au cours du temps, le $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ diminue au gré de sa décroissance radioactive ($T_{1/2} = 22,4$ ans). L'origine du ^{210}Pb conditionne ainsi, pour partie, sa teneur dans l'environnement.

Soulignons que cette particularité du plomb en fait un radio chronomètre de choix pour la datation des processus sédimentaires récents, c'est-à-dire effectifs au cours des dernières décennies (de 20 ans à un siècle, soit de 1 à environ 5 périodes de demi-vie). Cet outil sera largement utilisé dans le cadre des travaux de post-doctorat conduits par Emmanuelle Ferrand (2009-2010) et Mathilde Zebracki (2011-2012).

Un autre exemple qui permet d'illustrer le rôle fondamental de l'origine sur les comportements à moyen et long termes est celui du ^{137}Cs .

D'origine artificielle, le ^{137}Cs a été introduit dans l'environnement tout d'abord par les retombées atmosphériques globales des essais nucléaires aériens effectués entre 1945 et 1980, puis en 1986 par les retombées atmosphériques faisant suite à l'[accident de Tchernobyl](#). Ce radionucléide est également produit par l'industrie de l'énergie nucléaire (Centres nucléaire de production d'électricité (CNPE), les centres de retraitement du combustible irradié), et, en France, il est rejeté de manière réglementée dans les fleuves nucléarisés depuis plus de 40 ans.

Dans les eaux des cours d'eau, cet isotope radioactif s'observe soit associé aux matières en suspension (MES) (phase particulaire), soit dans l'eau filtrée (communément, la phase dissoute), comme la grande majorité des éléments stables majeurs et traces présents sur terre. D'une manière générale, et quel que soit l'élément considéré, le rapport des teneurs mesurées dans les MES avec celles enregistrées dans la fraction filtrée de l'eau exprime le coefficient de distribution (K_D) entre les phases dissoute et particulaire.

Ce coefficient dépend au premier ordre des propriétés chimiques de l'élément, et traduit la propension de l'élément à demeurer dans la phase dissoute de l'eau ou bien à se fixer sur les particules en suspension ou sédimentées. Ce coefficient dépend bien entendu également de la valeur des paramètres physico-chimiques du milieu, à savoir, le pH, la force ionique ou la salinité, la charge en suspension, pour les principaux.

La valeur de ce coefficient renseigne de manière remarquable sur le devenir de l'élément. Des valeurs élevées indiqueront une forte affinité de l'élément avec les

particules, et des modes de transfert proches de ceux des masses sédimentaires. Des valeurs faibles témoigneront en revanche d'une moindre affinité pour les supports solides, et un maintien de l'élément en phase dissoute dont le devenir sera alors régit par la dynamique des masses d'eau.

Dans le cas du ^{137}Cs , les valeurs de K_d mesurées, pour des conditions physico-chimiques et hydrologiques similaires, en amont et en aval des rejets liquides du centre de retraitement du combustible irradié de Marcoule sur le Rhône, montrent des différences significatives. Des valeurs élevées du K_d (supérieures à 3×10^5) sont enregistrées à l'amont des rejets industriels alors que des valeurs sensiblement plus basses sont constatées à l'aval (inférieures à 6×10^4).

Cette observation révélée par les travaux de thèse de Benoît Rolland (Rolland, 2006) suggère que, dans ce cas particulier, l'origine du ^{137}Cs a un poids considérable dans le comportement de l'élément, et par conséquent sur son devenir.

En amont du centre de retraitement, le ^{137}Cs provient principalement du drainage des sols du bassin versant marqué par les retombées atmosphériques globales et de l'[accident de Tchernobyl](#). Sa présence dans les eaux du fleuve est le résultat de processus de transfert, depuis les sols vers le fleuve, engagés depuis plusieurs décennies. Si les formes dissoutes et facilement échangeables ont rapidement transité vers le fleuve, les formes peu échangeables (réfractaires) subsistent et constituent à moyen et long termes les formes prépondérantes dans les sols et dans les particules exportées vers les cours d'eau. Ces formes difficilement échangeables représentent très probablement aujourd'hui l'essentiel du ^{137}Cs observé dans les matières en suspension des eaux du Rhône en amont des rejets liquides de Marcoule.

En aval des rejets liquides du centre de retraitement, les valeurs de K_d significativement plus faibles enregistrées expriment la présence de formes plus échangeables qu'en amont du site, en lien avec la proximité spatiale et temporelle des rejets liquides.

Cet exemple souligne qu'en fonction de l'origine, un même radionucléide peut présenter des formes physico-chimiques sensiblement différentes ; en d'autre terme que l'origine influe, si elle ne conditionne entièrement, le devenir de l'élément introduit dans un cours d'eau.

Je citerai encore un exemple, celui illustrant des comportements géochimiques atypiques observés lors d'évènements hydrologiques. De nombreuses années

consacrées à l'enregistrement et à l'étude de ces évènements m'ont conduit à observer que l'origine des matières en suspension transitées lors des crues jouait un rôle majeur dans les niveaux d'activité de certains radionucléides. Outre les travaux d'Emmanuelle Ferrand puis de Mathilde Zebracki qui ont souligné à maintes reprises les signatures isotopiques propres associées à l'origine des crues, il est un exemple atypique et peu exprimé dans la littérature que je souhaite évoquer ici : celui des épisodes hydrologiques semi-anthropiques. Ces épisodes couplent des écoulements naturels de drainage des bassins versants soumis à de fortes précipitations et des flux d'eau et de matière libérés par des actions anthropiques, telles que les opérations de dragages ou les chasses de barrages hydroélectriques.

L'épisode cévenol « extensif » de mai-juin 2008 dans le sud-est de la France a conduit à des crues significatives sur les différents affluents méridionaux du Rhône. Comme instauré en 2005 au sein de la Station observatoire du Rhône en Arles (SORA) à l'issue des travaux de Christelle Antonelli (post-doctorante 2003-2004), des mesures et des collectes d'échantillons réalisées à haute fréquence ont permis d'enregistrer les variations des débits liquides, des charges en suspension et des activités de certains radionucléides tout au long de cet évènement.

Les résultats ont mis en évidence des activités extrêmement faibles en ^{137}Cs et l'absence de cycle d'hystérésis pour les isotopes du plutonium au cours de l'enregistrement, témoignant d'une origine singulière. Ces résultats atypiques ont permis d'identifier des apports solides excédentaires en provenance de la Durance. De par leur signature particulière, ces apports ont pu être associés à la gestion des ouvrages hydro-électriques implantés sur la Durance et ont authentifiés des lâchers de barrage, confirmés par la suite par les gestionnaires du milieu.

Cet évènement semi-anthropique a permis de montrer que pour un débit liquide donné, la charge en suspension pouvait considérablement varier, et s'accroître au-delà des gammes de variabilité communément enregistrées ou modélisées sur la base des processus naturels. Il a aussi permis de montrer qu'en fonction de l'origine des particules, les teneurs en radionucléides pouvaient être considérablement modifiées, ici par des modifications anthropiques des flux solides.

Je terminerai enfin par l'exemple du **tritium**, objet de controverse quant à sa capacité ou non à être bio accumulé par les organismes vivants.

Généralement considéré comme un élément conservatif des masses d'eau, le comportement et le devenir de ce radionucléide au sein de l'environnement m'avait toujours paru réduit à la maîtrise des connaissances relatives au transfert des masses d'eau. Or, je découvrais que le **tritium** pouvait présenter une forme liée à la matière organique : le tritium organiquement lié (TOL).

Les atomes d'hydrogène tritié (T) pouvait à l'instar de l'hydrogène stable (H) se lier aux atomes de carbone selon des liaisons faibles telles que les liaisons hydrogène, ou bien selon des liaisons fortes, en particulier les liaisons covalentes ; les atomes de **tritium** se libérant et s'échangeant facilement des premières liaisons, plus difficilement des secondes. Ces mécanismes conduisaient à la définition conceptuelle du tritium organiquement lié échangeable (TOL-E) et du tritium organiquement lié non échangeable (TOL-NE).

Les atomes de **tritium** devenaient donc des éléments constitutifs à part entière de la matière vivante, et de fait ils intégraient le cycle du carbone. Le tritium ne suivait donc plus exclusivement le cycle de l'eau sous sa forme libre (HTO), mais une fraction devait suivre le cycle de production, de dégradation et de recyclage de la matière organique.

Il me parut alors évident que le comportement et le devenir à moyen et long termes du **tritium** rejeté dans l'environnement à un instant donné t devait dépendre en grande partie des quantités de formes liées produites lors de la photosynthèse au temps t . Je comprenais que les formes liées (TOL-E et TOL-NE) devaient avoir une dynamique de transfert fondamentalement différente de celle du tritium sous sa forme libre, conduisant inéluctablement en un point d'observation à des rapports TOL/HTO potentiellement différents de l'unité et évoluant au cours du temps. Ce faisant, différents observateurs en des lieux et à des instants d'observation distincts pouvaient tirer des conclusions fondamentalement différentes, voire opposées.

Les uns constataient des rapports TOL/HTO non significativement différents de l'unité, arguant sur une mise à l'équilibre quasi instantanée du **tritium** au sein des différentes composantes abiotiques et biologiques de l'environnement ; les autres, moins nombreux, enregistraient des écarts à l'équilibre mettant en avant un fractionnement isotopique lié à des effets cinétiques ou thermodynamiques, un déphasage entre le marquage du compartiment biologique et l'observation, ou encore supputant une bioaccumulation de l'élément dans les organismes, alimentant la controverse.

Force était de constater que de nouveau l'origine semblait pouvoir expliquer les différentes observations antagonistes, et je proposais à Loïc Ducros (thèse 2014 – à ce jour) de travailler sur ce sujet.

Le comportement et le devenir d'un radionucléide dépendraient donc en partie de son origine, remplaçant les grands concepts établis relatifs à la stabilité des propriétés chimiques propres des éléments dans un contexte dynamique : le temps.

Cette conceptualisation repose sur de nombreuses années d'observation des milieux aquatiques à différentes échelles d'espace allant de l'eau, les colloïdes, les particules, les sédiments, les marges alluviales, les bassins versants, les plateaux continentaux jusqu'aux glaciers en marge des plateaux continentaux. Des observations des milieux faites également à différentes échelles de temps allant des grandes tendances révélées par des chroniques enregistrées sur plusieurs décennies à l'évènement de crue incluant la lecture des cycles d'hystérésis intrinsèques.

Naturellement, de par les connaissances acquises, et bien en amont de cette conceptualisation, mes travaux de recherches ont trouvé une application opérationnelle forte au sein de mon Institut que je résumerai en deux mots : études d'impact.

Ces expertises environnementales, destinées à rechercher et surtout à expliquer la présence d'un radionucléide ciblé en un point d'observation donné, m'ont permis d'appliquer de manière opérationnelle les résultats de mes recherches, et parfois d'alimenter ou d'orienter mes propres recherches.

Le travail méthodique d'observation des milieux aquatiques initié en 1990 dans le cadre de mes travaux de thèse a façonné les grandes orientations de mon parcours de recherche ; orientations que je décrirai en introduction de ce mémoire, et qui le structureront.

SOMMAIRE

Chapitre 1	
Introduction : articulation des recherches	15
Chapitre 2	
Résumé des travaux de thèse	23
Chapitre 3	
Résumé des travaux de post-doctorat	27
Chapitre 4	
Origine des radionucléides	31
4.1 Origine naturelle	32
4.2 Origine artificielle	33
4.2.1 Les rejets liquides des installations nucléaires	34
4.2.2 La rémanence des retombées atmosphériques des essais nucléaires de surface et de l'accident de Tchernobyl	37
4.2.3 Les retombées atmosphériques de l'accident de Fukushima (Japon) en France	38
Chapitre 5	
Traçage des origines (post-doctorat de Mathilde Zebracki, 2011-2012)	43
5.1 La variabilité des activités en fonction de la typologie des crues	44
5.2 Les signatures propres des affluents rhodaniens	46
5.2.1 Les radionucléides naturels ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K	46
5.2.2 Les radionucléides artificiels : le rapport d'activité $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$	47
5.3 Le traçage de l'origine des sédiments dans le Rhône aval	48
5.3.1 Le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	48
5.3.2 Le rapport d'activité $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$	49
5.3.3 Les combinaisons statistiques $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}/^{40}\text{K}$	51
chapitre 6	
Chroniques des niveaux d'activité au sein des systèmes aquatiques fluviaux français	55
6.1 Le cas du Rhône	56
6.1.1 La station observatoire du Rhône à Arles (SORA)	56

6.1.2	Les activités mesurées en phase dissoute et en phase particulaire	57
6.2	La synthèse à l'échelle du territoire français métropolitain	61
6.3	Le cas particulier des canaux d'irrigation	65

Chapitre 7

	Comportement et coefficients de distribution solide/solution (K_d)	69
7.1	Le cas du Rhône aval	72
7.2	Le cas des cours d'eau de Fukushima	74

Chapitre 8

	Impact sanitaire : la qualité radiologique des eaux de consommation	81
8.1	L'exposition aux rayonnements et la réglementation	82
8.2	La qualité radiologique des eaux du Rhône et des fleuves côtiers proches	84

Chapitre 9

	Flux de radionucléides vers le milieu marin et les bilans de matière	89
9.1	Le Golfe du Lion	90
9.1.1	Les flux de plutonium	90
9.1.2	Autres flux radioactifs	92
9.2	Les flux délivrés par les cours d'eau contaminés de Fukushima	94
9.3	La partition solide/solution des flux	96

Chapitre 10

	Évènements extrêmes	101
10.1	Les conséquences des crues du Rhône sur les flux de radionucléides délivrés au milieu marin (thèse de Benoît Rolland, 2003-2006).	103
10.2	Le cas particulier de l'épisode de crue extrême de décembre 2003 sur le bas Rhône (post-doctorat de Christelle Antonelli 2003-2004)	106
10.3	Les conséquences radiologiques des inondations : cas des inondations de décembre 2003 en petite Camargue.	109
10.4	Les conséquences des épisodes extrêmes sur le transfert des contaminants : les projets EXTREME et EXTREMA (projet ANR-06-VULN-005-2007-2011)	110

Chapitre 11

Stockages et archives sédimentaires	121
11.1 Les marges alluviales et les archives sédimentaires (post-doctorats de Grégoire Maillet et d'Emmanuelle Ferrand)	123
11.1.1 La sensibilité des berges	123
11.1.2 La reconstruction des niveaux historiques	125

Chapitre 12

Tritium et ^{14}C : vers l'étude des grands cycles	129
12.1 Le comportement du tritium et du ^{14}C dans l'environnement	130
12.2 Les niveaux de référence en tritium et en ^{14}C dans les cours d'eau non anthropisés	132
12.3 Le rôle de la matière organique dans le transfert du tritium organiquement lié et du ^{14}C dans les cours d'eau (thèse de Loïc Ducros, novembre 2014-)	134

Chapitre 13

Perspectives	137
13.1 Conséquences des typhons dans les exports de radioactivité au milieu marin (cas des cours d'eau de Fukushima)	138
13.2 Rôle des particules organiques allogènes dans le transfert de la contamination radioactive (cas des cours d'eau de Fukushima)	139
13.3 Réactivités estuariennes (ANR AMORAD /MARIN/SEDI)	140
13.4 Archives sédimentaires et ligneuses appliquées au tritium organiquement lié	141

Chapitre 14

Présentation personnelle	143
14.1 <i>Curriculum vitae</i>	143
14.2 Publications	159
14.2.1 Articles dans des revues internationales ou nationales à comité de lecture	159
14.2.2 Communications publiques et rapports d'expertise	164
14.2.3 Conférences dans un congrès national ou international	168
14.2.4 Communications dans un congrès international	168
14.2.5 Communications dans un congrès national	176
14.2.6 Ouvrages scientifiques	178
14.2.7 Publications de vulgarisation	179

14.2.8	Autres publications	181
14.2.9	Publications phares	182
	Bibliographie	187

Chapitre 1

Introduction : articulation des recherches

La possibilité qui m'a été donnée en 1990, à l'issue de mon DEA de chimie et microbiologie de l'eau de l'[université de Pau et des Pays de l'Adour](#) sous la responsabilité du professeur Michel Astruc, d'engager une thèse sur la contribution des colloïdes organiques dans les processus d'altération des systèmes latosols/podzols des milieux tropicaux a déterminé l'orientation de mes activités de recherche : une recherche basée sur l'observation et l'analyse du milieu dans son environnement.

Mes travaux de thèse encadrés par le professeur Jean-Yves Benaïm ([université de Toulon et du Var](#)) en collaboration avec le CEREGE ([université d'Aix Marseille III](#)) m'ont conduit à étudier les mécanismes complexes régissant les interfaces, en particulier ceux régissant les interactions des éléments traces avec les substances colloïdales. En préface de mon mémoire de thèse, j'avais inscrit ces quelques lignes qui me semblaient présenter assez bien l'objet d'étude qui m'était confié : "...*To some the*

word "colloidal" conjures up visions of things indefinite in shape, indefinite in chemical composition and physical properties, fickle in chemical deportment, things infiltrable and generally unmanageable..." (Hedges 1931). Trois années consacrées à l'étude des populations colloïdales, incluant plusieurs semaines de terrain en Amazonie sur des bassins versants des Rio Solimoès et Rio Negro encadrées par Marc Benedetti et Yves Noack du [CEREGE](#) ainsi que par Yves Lucas ([ORSTOM Manaus](#)), m'auront permis d'apporter peut-être quelques éléments de réponses, tel qu'il sera résumé en toute première partie de ce mémoire.

C'est en dernière année de thèse, en 1993, que l'[IRSN](#), en la personne de Mireille Arnaud, me contacte afin d'échanger sur un protocole d'extraction des composés organiques macromoléculaires appliqué durant ma thèse. Cet échange me conduira à intégrer en 1995 l'antenne IRSN de la Seyne-sur-Mer en tant que post-doctorante.

Le sujet de post-doctorat qui m'est confié porte sur le rôle des colloïdes dans le transfert des radionucléides véhiculés par le Rhône vers la mer Méditerranée. Je conçois alors un prototype de filtration tangentielle séquentielle inspiré du système utilisé lors de mon travail de thèse et destiné à traiter plusieurs mètres cube d'eau. L'objectif est d'isoler et de concentrer les radionucléides artificiels présents à l'état d'ultra-traces (10^{-9} à 10^{-12} ppm) dans les eaux du Rhône et son embouchure.

Les radionucléides artificiels étaient pour moi à cette époque des substances relativement méconnues, étudiées à l'[IRSN](#) pour leur radio-toxicité, et qu'il convenait de « surveiller » afin de rendre compte de l'impact de leurs rejets dans l'environnement suite à des utilisations militaires, civiles ou industrielles. L'unité de concentration communément employée pour ces éléments était le Bq/L ou le Bq/kg. Elle exprimait un nombre de désintégration par seconde, et non directement une quantité présente dans le milieu, à l'instar des ppm ou ppb classiquement utilisés pour les éléments traces. Je m'apercevais néanmoins que ces substances étaient à l'état d'ultra-ultra-traces dans les différents compartiments de l'environnement.

Dans l'étude qui m'était confiée, je décidais de faire abstraction de ces particularités et de considérer les radionucléides comme des éléments traces dont l'instabilité ne pouvait nuire au maintien des propriétés chimiques ni modifier les comportements géochimiques au sein de l'environnement.

Au cours de mon post-doctorat j'obtenais des résultats qui identifiaient les radionucléides artificiels de forte affinité avec les colloïdes présents dans les eaux

du fleuve (isotopes du plutonium et du cobalt, principalement), et je m'intéressais naturellement aux termes sources de radioactivité et à l'histoire des rejets du nucléaire en France.

J'élargissais également à cette époque mes travaux de recherches aux zones estuariennes et milieux marins côtiers. Grâce à Sabine Charmasson, responsable de mon post-doctorat, je côtoyais régulièrement la communauté scientifique internationale de la radioécologie marine, en particulier lors de conférences et symposium (International Symposium on Marine Pollution, 1999, Monaco ; International Conference on Environmental Radioactivity in the Arctic, 1999, Edinburgh) ou de réunions de programmes européens (REMOTRANS), et je consolidais la publication de mes travaux.

C'est en septembre 2000 qu'un poste de chercheur en radioécologie des milieux aquatiques continentaux s'ouvre au Laboratoire en radioécologie continentale et marine au sein du Service d'études et de recherches radioécologiques dans les milieux naturels (DPRE/SERNAT). Didier Louvat, alors en charge du Laboratoire, me donne carte blanche pour identifier et développer des axes de recherches sur les milieux aquatiques continentaux.

Il s'agissait de comprendre et d'expliquer les niveaux de radioactivité observés ou observables au sein des hydro-systèmes dans le but de consolider les avis d'expertises auprès des gestionnaires du milieu et du public.

Cet enjeu allait guider les choix et le déroulement de mes activités de recherches au sein de l'[IRSN](#).

Après une synthèse des connaissances et une priorisation des besoins, mes efforts se portaient sur le fleuve Rhône. Je m'inscrivais dans la continuité de mes travaux de post-doctorat, et au cours des années qui ont suivi mon arrivée au laboratoire, une grande partie de mes recherches a été consacrée à ce fleuve.

Souvent présenté comme le fleuve le plus nucléarisé au monde, soumis aux pressions anthropiques sur son bassin versant de près de 100 000 km², soit un cinquième du territoire français métropolitain, le Rhône véhicule également des éléments contaminants ou potentiellement contaminants organiques et inorganiques.

Ces éléments ont été introduits dans les eaux du fleuve soit *via* les processus d'érosion et de drainage des sols de son bassin versant, soit par les rejets liquides des installations industrielles rhodaniennes. On retrouve dans la première catégorie de nombreux métaux traces hérités des roches et des sols (fond géochimique). On retrouve également dans cette catégorie des composés organiques hydrophobes tels que les PCB lessivés de sols contaminés par le passé, avant que leur usage soit interdit au début des années 1990. On retrouve enfin les radionucléides issus de la rémanence des retombées atmosphériques globales des essais nucléaires aériens effectués entre 1945 et 1981 et des retombées atmosphériques de l'[accident de Tchernobyl](#) (avril 1986).

La majorité des radionucléides artificiels introduits dans les eaux du Rhône appartiennent à la seconde catégorie, c'est-à-dire celle correspondant à des rejets liquides effectués directement dans les eaux du fleuve.

J'inventoriais ainsi les différentes origines de la radioactivité dans les eaux du Rhône aval et dans les eaux des cours d'eau, d'une manière générale, et je m'intéressais aux concentrations (ou activités) des radionucléides naturels et artificiels, en particulier dans les eaux de la partie terminale du Rhône en transit vers le milieu marin.

Le bassin méditerranéen est un bassin de concentration. Les exports/imports des masses d'eau aux niveaux des détroits sont limités et la régénération des eaux marines méditerranéennes est restreinte. C'est donc un système extrêmement sensible aux sources de contamination et particulièrement vulnérable. Je m'intéressais aux radionucléides prépondérants, aux traceurs des dynamiques sédimentaires (cas des isotopes du plutonium), aux radionucléides artificiels présents à très bas niveau et qu'il était possible de déceler en optimisant les méthodes de prélèvement et de conditionnement des échantillons. J'optimisais alors au cours de l'année 2002, en collaboration avec Olivier Masson, les stratégies de prélèvements et de mesures au sein de la Station observatoire du Rhône à Arles (SORA).

Valorisant ce travail de recherche au sein d'ORME (Observatoire régional méditerranéen de l'environnement, 2001-2009) piloté par Wolfgang Ludwig ([CEFREM](#), Perpignan), je commençais alors la reconstruction de chroniques sur les activités de radionucléides présents en phases dissoute et particulaire. Ces séries permettront de caractériser le principal terme source terrigène de radioactivité artificielle pour la mer Méditerranée, et, quelques années plus tard, de préciser la qualité radiologique des eaux du Rhône utilisées pour la consommation humaine.

Les niveaux de radioactivité contemporains ou historiques des eaux du Rhône aval reconstruits et suivis, je perçus aussi bien la nécessité que la difficulté de quantifier les flux de radioactivité à la mer.

Si les débits liquides (Q) dans la partie terminale du Rhône étaient quantifiés, en particulier par les stations de mesures de la [Compagnie nationale du Rhône \(CNR\)](#), les débits solides semblaient plus délicats à déterminer. Ces derniers variaient avec le débit selon une loi puissance de type aQ^b (avec a et b , 2 constantes) qu'il convenait d'actualiser et surtout de contraindre en fonction de l'origine des crues et de leur chronologie. Quelle était l'évolution des activités massiques en fonction du débit ? Existait-il une loi générale singulière ? Quelles étaient les activités mesurées lors des événements extrêmes, peu appréhendés jusqu'alors ? Ces événements étaient-ils des vecteurs de transfert majeurs vers le milieu marin ? Quelle était l'origine des radionucléides qui transitent lors des crues ? Quel était le poids des reprises sédimentaires marquées par les anciens rejets de l'industrie nucléaire ?

Je confiais cette recherche à Benoît Rolland (thèse 2002-2006) en collaboration avec Didier Bourlès ([CEREGE](#)), et je proposais à Christelle Antonelli (post-doctorat 2003-2004) de s'attacher à optimiser l'enregistrement des flux en transit dans le Rhône aval au niveau de la Station observatoire du Rhône à Arles, en particulier lors des crues.

L'épisode majeur de crue du Rhône survenu en décembre 2003 et les inondations consécutives d'une partie importante de la Petite Camargue me conduisaient à considérer plus encore les régimes de crue et les épisodes extrêmes dans les transferts de matière non seulement vers le milieu marin mais également vers les marges alluviales et les plaines d'inondations. Fin 2003, je réalisais en outre une expertise pour le compte de la [CLI du Gard](#) (commission locale d'information) soutenue d'une saisine de l'ASN ([Autorité de sûreté nucléaire](#)) afin d'évaluer les conséquences radiologiques des inondations de décembre 2003.

En 2005, j'initiais, soutenue par Philippe Renaud alors chef du laboratoire, un projet fédérateur (le [projet EXTREME](#)) ciblant les épisodes extrêmes au sein des différents compartiments (atmosphère, continent, océan) et déposais le [projet EXTREMA](#) en juillet 2006 en réponse à l'appel à projet de l'ANR sur son [programme « Vulnérabilité Milieux et Climat »](#) (VMC) en collaboration avec les équipes du CEFREM ([Centre de formation et de recherche sur les environnements marins](#)), du CEREGE ([Centre européen d'enseignement et de recherche des géosciences de l'environnement](#)), l'IFREMER (centres de Toulon et de Brest) et du [Laboratoire d'aérodynamique du pôle](#)

d'océanographie côtière de Toulouse. Je coordonnais ce projet jusqu'en 2011, enrichissant mes connaissances sur les épisodes de poussières sahariennes, les tempêtes en milieu marin côtier, les épisodes de *cascading* d'eau dense en marge du plateau continental ou encore la modélisation hydro-sédimentaire en mer.

Sur cette période, je focalisais mes propres recherches sur les transferts de matière lors des crues du Rhône, travaillant à différentes échelles d'observation, des flux annuels aux flux événementiels, et étudiant les cycles d'hystérésis régissant les transferts de masse intra événement. Je m'intéressais naturellement de plus en plus aux stockages sédimentaires, à leur formation et à leur mobilité. Ces compartiments jouaient à la fois le rôle de compartiments puits et de compartiments source de contamination pour les eaux du fleuve, en fonction de l'hydrologie et de la morphologie des berges. Je m'investissais alors dans l'apprentissage de la géomorphologie fluviale et je proposais en 2006 à Grégoire Maillet (post-doctorant 2006) de travailler sur la sensibilité radioécologique des berges. J'initiais des études sur des archives sédimentaires du bas Rhône en collaboration avec Mireille Provansal (CEREGE).

Je demandais également à Emmanuelle Ferrand (post-doctorat 2009-2010) de travailler sur la reconstruction des niveaux historiques en radionucléides et éléments traces métalliques à partir d'enregistrements sédimentaires au sein des marges alluviales du Rhône aval et de la Têt. Ce travail allait conduire à une meilleure compréhension de la morphogénèse des marges et de leur dynamique.

Durant cette période, je m'intéressais aux travaux de thèse de Magalie Delmas encadrée par Olivier Cerdan (BRGM Orléans) dédiés à la quantification des flux et participais à la rédaction d'un article de synthèse sur les exports solides terrigènes au domaine marin côtier français. Je m'intéressais de plus aux travaux de Florentina Moatar (université de Tours) et de Michel Meybeck (université Paris VI) relatifs aux calculs des flux et de leurs incertitudes.

Je participais en 2009 en collaboration avec Mireille Provansal, Olivier Radakovitch (CEREGE, Aix-en-Provence), Jean Philippe Bedell (ENTPE, Lyon), Marc Desmet (université de Lyon, à l'époque) et Marina Coquery (IRSTEA, Lyon) à la toute première programmation de l'OSR (Observatoire de sédiments du Rhône), afin de répondre aux attentes des partenaires du plan Rhône. Cet observatoire, rattaché à la ZABR (Zone atelier du bassin rhodanien) en 2011, reconduit actuellement sa quatrième programmation de recherches (OSR4, 2015-2017).

La première programmation de l'OSR allait permettre de positionner la station SORA, déjà rattaché au SOERE MOOSE piloté par Patrick Raimbault (MIO, Marseille), au cœur du réseau de mesure des flux solides et de contaminants associés et de recruter Mathilde Zebracki (post-doctorat 2011-2012) sur la problématique de l'utilisation des radionucléides comme traceurs de l'origine des particules en transit dans le Rhône aval.

Le travail de Mathilde permit une exploitation approfondie des jeux de données acquises dans le cadre de la surveillance des eaux du Rhône et la démonstration, en collaboration avec Olivier Évrard (LSCE, Gif-sur-Yvette), du potentiel de certains éléments pour identifier l'origine des particules en transit dans le Rhône aval et des contaminants qui leurs sont associés.

Cette dynamique aurait pu me conduire à étudier d'autres hydrosystèmes français en exploitant les données de la surveillance de l'IRSN à l'échelle du territoire. Toutefois, en juin 2012, je décidais tout en poursuivant mes actions de recherche sur les transits sédimentaires de m'engager sur une piste qui m'était alors totalement inconnue : l'étude du comportement du tritium et du ^{14}C au sein de l'environnement.

Ces deux radionucléides, composants majoritaires des rejets de l'industrie nucléaire, n'étaient pas gouvernés par les lois régissant le comportement des éléments traces aux interfaces solide/solution, à l'instar des éléments que j'avais côtoyés depuis le début de ma carrière. Ils interagissaient avec les grands cycles de l'eau et du carbone qu'ils intégraient, attisant ma curiosité scientifique.

J'explorais la littérature et les données dont le laboratoire disposait et rédigeais deux articles parus fin 2014 et début 2015. Le premier sur l'origine des formes liées du tritium au sein des hydrosystèmes, le second sur les niveaux de référence en tritium et en ^{14}C dans les cours d'eau non anthropisés (non soumis aux rejets de l'industrie nucléaire).

Afin d'échanger avec la communauté scientifique travaillant sur ces deux radionucléides, je participais en septembre 2014 au 3^e *workshop* international sur le tritium (Ottawa, Canada) où je faisais la connaissance en particulier de Nicolas Baglan (CEA), Élise Fourné (LSCE) et San Bog Kim (AECL, Canada), et je m'impliquais dans le programme BIOPROTA dédié au comportement et au devenir du ^{14}C dans l'environnement terrestre.

Je proposais alors à Loïc Ducros (thèse 2014-2017) de travailler sur le rôle de la qualité de la matière organique sur les niveaux de tritium organiquement lié et de ^{14}C au sein des hydro systèmes continentaux et marins côtiers non anthropisés.

Parallèlement à cet engagement thématique sur le tritium et le ^{14}C , et suite à l'expression de besoins de recherches et d'expertises associés à l'accident de la centrale de Fukushima Daiichi (Japon) survenu en le 11 mars 2011, je participais au projet AMORAD (Amélioration des modèles de prévision de la dispersion et d'évaluation de l'impact des radionucléides au sein de l'environnement), projet ANR-11-RSNR-0002 (2014-2019) porté par l'IRSN (Denis Boulaud), au travers de deux thématiques : l'axe AMORAD/CONTI-ERO et l'axe AMORAD/MARIN-SEDIM. Le premier axe, en collaboration avec Laurent Garcia-Sanchez et Patrick Boyer (IRSN), consistait à acquérir des données à partir d'un monitoring raisonné des bassins versants les plus contaminés de la préfecture de Fukushima. L'objectif principal était de déterminer les valeurs des paramètres de fonctions de transfert modélisant les flux terrigènes à l'océan Pacifique. Le second avait pour enjeu d'évaluer la « conservativité » des flux de radioactivité délivrés en mer par les bassins versants, c'est-à-dire d'évaluer les flux nets entrants dans le domaine marin en sortie de la zone de réactivité estuarienne. Dans ce cadre, je m'associais à Jorg Schaeffer (EPOC, Bordeaux) pour l'encadrement d'un doctorant sur la période 2015-2019.

« Origine, comportement et devenir des radionucléides au sein des milieux aquatiques »

Ces mots me paraissent représenter relativement bien l'ensemble de mes recherches. J'ai donc choisi d'intituler mon mémoire ainsi, et de le structurer selon le cheminement chronologique que je viens de décrire par points thématiques clés qui seront étoffés, au rythme de mes différentes publications.

Je tiens à souligner ici que les chercheurs cités dans cette introduction ont joué, de près ou d'un peu plus loin, à un instant donné ou au fil des années, un rôle crucial dans l'enchaînement et la conduite de mes recherches.

À ce titre, je tiens à exprimer à chacun d'eux une profonde et sincère reconnaissance.

Chapitre 2

Résumé des travaux de thèse

La fraction colloïdale organique dans les processus de transport des métaux dans les eaux de surface : application aux systèmes d'altération en milieu tropical (Brésil).

La présence de matière organique colloïdale semble jouer un rôle fondamental pour le transport des métaux. La voltamétrie par redissolution anodique (DPASV) ainsi que les électrodes sélectives aux ions H^+ et Cu^{2+} (ISE) couplées à l'ultrafiltration en cascade ont été utilisées pour la caractérisation des interactions organométalliques dans les eaux de surface drainant des bassins versants dont la pédologie présente des caractéristiques très spécifiques (sols latéritiques ou podzoliques ainsi que leurs intermédiaires).

Les répartitions en taille de la MOD ($< 0,45 \mu m$) et des éléments métalliques (Ca, Mg, Fe, Si, Al, Cu et Zn) ont été obtenues. La taille des colloïdes isolés a été mesurée par

spectroscopie de corrélation de photons. L'aptitude à fixer le cuivre de plusieurs eaux de surface et de diverses fractions isolées par ultrafiltration a été étudiée.

Les résultats montrent que les fractions colloïdales de taille moyenne variant de 100 000 D (environ 20 nm) à 200 nm présentent les densités de sites complexant les plus élevées. Dans les eaux issues des latérites (Parana) et des roches basaltiques du groupe Vila Nova (serra Do Navio), le COD est essentiellement sous la forme de petites molécules de faible poids moléculaire. Par contre, dans les eaux issues des systèmes latosols-podzols (Amazonie Centrale), le COD est essentiellement présent sous forme colloïdale, les podzols drainant près de 20 fois plus de COD que les latosols. Les éléments Ca, Mg, Cu, Zn et Fe apparaissent fortement associés au COD et présentent une aptitude de fixation particulière avec les colloïdes organiques. Par contre le transport du silicium et de l'aluminium est indépendant de la présence d'agents complexant.

Dans le bassin Amazonien, le rôle fondamental des fractions colloïdales pour le transport des métaux a été mis en évidence : en aval des profils d'altération, 80 % des sites complexant (métaux échangeables) sont exportés par les colloïdes organiques > 3 nm.

Thèse de l'université de Droit, d'Économie et des Sciences d'Aix-Marseille ([Aix-Marseille III](#)) ; discipline : sciences de la terre ; spécialité : chimie analytique ; soutenue le 28 mars 1994 devant la commission d'examen : J. Y. Benaïm, M. Benedetti, J. Boulègue (rapporteur), J. Buffle (rapporteur), B. Hamelin (président).

Bibliographie

Eyrolle F., Février D. et Benaim J. Étude par DPASV de l'aptitude de la matière organique colloïdale à fixer et à transporter les métaux : exemples de bassins versants en zone tropicale, *Environmental Technology*, 14, 701-717, 1993.

Eyrolle F., Benaim J. Y., Benedetti M. et Lucas Y. The distributions of colloidal and dissolved organic carbon, major elements, and trace elements in small tropical catchments, *Geochimica and Cosmochimica Acta*, Vol. 3, n°19, 3643-3656, 1996.

Eyrolle F. and Benaim J. Metal available sites on colloidal organic compounds in surface waters (Brazil), *Water Research*, Vol. 33, N°4, 995-1004, 1999.

Lucas Y., Nahon D., Eyrolle F. and Cornu S. Soil genesis and dynamics in tropical areas, *Compte rendu de l'Académie des Sciences*, Paris, t.322, Série II a, 1-16, 1996.

Patel-Sorrentino N., Lucas Y., Eyrolle F. and Melfi A.J. Fe, Al and Si species and organic matter leached off a ferrallitic and podzolic soil system from Central Amazonia, *Geoderma*, 137, 444-454, 2007.

Chapitre 3

Résumé des travaux de post-doctorat

Rôle des substances colloïdales dans les mécanismes de transfert des radionucléides artificiels drainés par le Rhône vers la mer Méditerranée.

Dans la zone de mélange des eaux douces et des eaux marines, les processus de coagulation, floculation, agrégation et précipitation, dans lesquels des colloïdes sont largement impliqués, conduisent à une accumulation importante des éléments traces au sein des sédiments, en particulier ceux des embouchures micro-tidales. Les stocks de radionucléides dans le pro-delta du Rhône illustrent très probablement en partie ces mécanismes. Par ailleurs, bien que les concentrations de radionucléides artificiels exportés par le Rhône vers la mer Méditerranée soient extrêmement faibles (quelques millièmes de ppb), ces éléments sont observés à des teneurs non négligeables dans certains organismes vivants du milieu marin côtier sous influence des apports rhodanien, en particulier les moules collectées entre l'embouchure et

Banyuls. Les substances colloïdales pouvant être préférentiellement assimilées par les organismes vivants, ces supports sont susceptibles d'intervenir de manière non négligeable dans les mécanismes de transfert vers le compartiment biotique. C'est dans ce contexte que l'étude des populations colloïdales dans les eaux du Rhône aval et son débouché en mer a été réalisée afin de tester ces hypothèses.

Une part conséquente du travail de post-doctorat a été de mettre en œuvre un système de filtration tangentielle séquentielle adaptée aux opérations de terrain et permettant de traiter des grands volumes d'eau (plusieurs m³) tout en préservant les bilans de masse (pertes par adsorption membranaire et contamination par relargage). Les résultats obtenus à partir de la méthodologie déployée montrent que les colloïdes observés dans ces hydro-systèmes sont composés principalement de fer, d'aluminium et de carbone organique. Les populations colloïdales sont plus largement représentées lorsque le débit du fleuve augmente en lien avec l'augmentation de la charge en suspension. La densité de ces populations est toutefois extrêmement variable au niveau de la zone de mélange des eaux douces et des eaux marines, c'est-à-dire dans la zone de réactivité estuarienne. Cette variabilité reflète la présence des différents néphéloïdes de sub-surface et benthiques siégeant au débouché du Rhône. Les transferts de masses au sein des néphéloïdes s'établissent selon un système multi-couches de morphologie et d'expansion variables dans le temps et l'espace. Les données acquises ont notamment permis de souligner la présence d'un fort néphéloïde de fond riche en populations colloïdales. En revanche, en milieu marin hors influence terrigène, il n'y a pas ou peu de supports colloïdaux de quelque nature que ce soit.

Pour ce qui est des radionucléides artificiels détectés au cours de l'étude, les résultats obtenus indiquent que seuls les ⁶⁰Co, ¹⁰⁶Ru et les isotopes du plutonium ont été observés en phase colloïdale dans les eaux du Rhône. Les proportions sont de 25 % pour les ⁶⁰Co et ¹⁰⁶Ru et 10 % pour les isotopes du plutonium. Ces résultats ont été obtenus pour des débits moyens (< 1 700 m³.s⁻¹). Pour des débits plus élevés, l'essentiel des transferts se fait sous forme particulaire. Le ¹³⁷Cs se répartit entre phase dissoute et particulaire en proportions variables en fonction de la charge en suspension et/ou du débit. Le ¹²⁵Sb est observé quant à lui exclusivement sous forme dissoute.

Dans la zone d'interface et en mer, la dilution importante des apports du Rhône et la faible densité des populations colloïdales n'ont pas permis la quantification des radionucléides au sein des phases colloïdales, malgré le traitement de plusieurs m³ d'eau. Les résultats acquis n'ont ainsi pas permis de tester directement les hypothèses

initiales. Ils auront souligné toutefois la complexité méthodologique (très faibles concentrations de colloïdes et de radionucléides artificiels) et la complexité de la zone d'étude (grande variabilité spatio-temporelle des populations). Ils auront permis de montrer que les populations colloïdales peuvent être relativement bien représentées dans la zone d'interface et jouer ainsi un rôle non négligeable dans les processus de transfert des radionucléides vers les sédiments du pro-delta et vers le plateau continental du Golfe du Lion jusqu'aux organismes filtreurs, sans que le poids de ces processus puisse être quantifié.

Bibliographie

Eyrolle F. and Charmasson S. Ultrafiltration of large volumes for the determination of colloiddally bound artificial radionuclides in natural waters, *Applied Radiation and Isotopes*, 52, 927-936, 2000.

Eyrolle F. and Charmasson S. Distribution of organic carbon, selected stable elements and artificial radionuclides among dissolved, colloidal and particulate phases in the Rhône River (France): Preliminary results, *Journal of Environmental Radioactivity*, 55, 145-155, 2001.

Eyrolle F. and Charmasson S. Importance of colloids in the transport within the dissolved phase (< 450 nm) of artificial radionuclides from the Rhône River towards the Gulf of Lions (Mediterranean Sea), *Journal of Environmental Radioactivity*, 72 (3), 273-286, 2004.

Chapitre 4

Origine des radionucléides

Si les principes fondamentaux de la chimie indiquent que les propriétés physico-chimiques des différents isotopes d'un même élément ne diffèrent pas, le comportement et le devenir d'un radionucléide artificiel introduit dans l'environnement peuvent être significativement différents d'un homologue d'origine naturelle, en particulier de l'homologue stable, en équilibre séculaire avec les différentes composantes de l'environnement. Dans ce contexte, l'origine a un rôle crucial sur le devenir à moyen et long termes des radionucléides présents dans l'environnement, comme évoqué en avant-propos de ce mémoire.

Par ailleurs, si les différents radionucléides d'origine naturelle présentent des niveaux d'activité constants au cours du temps, pour le moins à l'échelle humaine, les radionucléides anthropogéniques voient leurs activités décroître au cours du temps

au gré des processus physiques de décroissance radioactive et d'épuisement des stocks formés lors de leur introduction dans l'environnement par l'homme.

Mes activités de recherches m'ont ainsi conduite à identifier et caractériser les différentes origines des éléments que j'allais étudier.

4.1 *Origine naturelle*

La plupart des radionucléides naturels présents dans les eaux des cours d'eau proviennent du drainage des sols de bassins versants. Il s'agit d'éléments de durées de vie (périodes radioactives) très longues, présents sur terre depuis l'origine : l' ^{238}U , l' ^{235}U , le ^{232}Th et le ^{40}K principalement. Les trois premiers radionucléides donnent naissance en se désintégrant à une trentaine de radionucléides de durées de vie très variables : autres isotopes de l'uranium (^{234}U), du thorium (^{232}Th , ^{230}Th , ^{228}Th), isotopes du radium (^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{224}Ra), isotopes radioactifs du plomb (^{210}Pb notamment).

Des radionucléides naturels se forment aussi en permanence dans l'atmosphère sous l'action du rayonnement cosmique : le ^3H , le ^{14}C et le ^7Be , notamment. Ces radionucléides cosmogéniques sont déposés à la surface des sols en particulier par les précipitations puis parviennent au cours d'eau *via* les processus de drainage des sols de bassins versants.

Les diversités géologique et climatique, telles qu'elles sont observées à l'échelle du territoire français ou à l'échelle régionale, conduisent à une importante variabilité spatiale de la radioactivité d'origine naturelle. Les propriétés physico-chimiques du potassium et des éléments des chaînes U-Th étant différentes, certains processus, en particulier l'altération des roches, sont susceptibles d'enrichir ou d'appauvrir en certains isotopes les différents compartiments de l'environnement. Il en résulte ainsi une forte dépendance de la radioactivité naturelle à la géologie et aux conditions environnementales, que ce soit dans les sols, les sédiments ou les eaux naturelles (Le Roux, 2007).

Les familles de l' ^{238}U et du ^{232}Th incluent, respectivement, 14 et 10 nucléides fils, dont le ^{226}Ra et le ^{210}Po pour la première et l' ^{228}Ac pour la seconde. Les différents éléments de filiation ne sont jamais quantifiés simultanément de manière exhaustive, conduisant à évaluer la radioactivité naturelle d'une eau ou d'un sédiment sur l'hypothèse d'équilibre entre deux éléments mesurés au sein d'une même chaîne. La

figure 1 présente sur cette base de calcul une estimation de la somme des activités des radionucléides naturels présents dans les sédiments des principaux cours d'eau français. Les valeurs ainsi calculées montrent par exemple que les sédiments du Rhône présentent des valeurs de radioactivité naturelle de l'ordre de 1 450 Bq/kg, soit des valeurs intermédiaires entre celles de la Loire (1 925 Bq/kg) et de la Seine (730 Bq/kg) (Eyrolle, 2009 ; Eyrolle *et al.*, 2008).

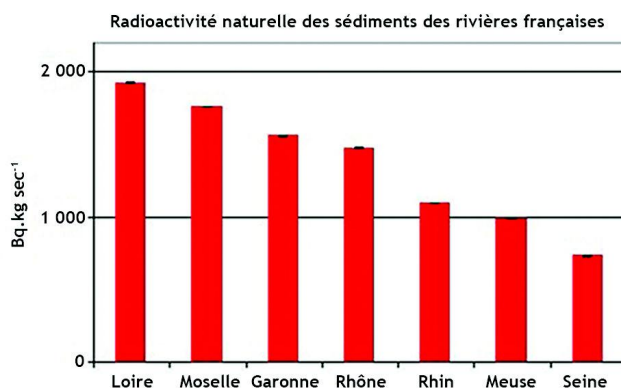


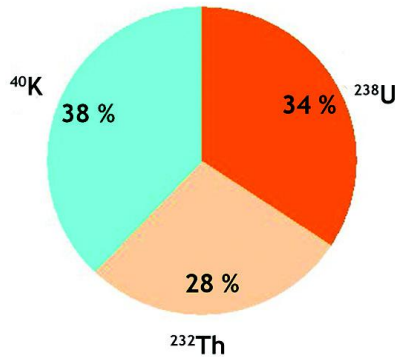
Figure 1. Radioactivité naturelle des sédiments des rivières et fleuves français (moyennes 2004) ; d'après Eyrolle *et al.*, 2008.

À l'échelle du territoire français, la radioactivité naturelle dans les eaux filtrées est de l'ordre de quelques centaines de mBq/L. Globalement, le ⁴⁰K et les familles de l'²³⁸U et du ²³²Th se partagent la radioactivité naturelle des eaux en proportions quasi similaires, que ce soit en phase dissoute (eau potable) ou en phase particulaire (sédiments) (figure 2).

4.2 Origine artificielle

Les radionucléides artificiels présents dans les hydro-systèmes proviennent de trois principaux termes sources : les rejets des installations nucléaires industrielles et militaires ; les rejets des centres hospitaliers qui contiennent des radionucléides de périodes très courtes dont seul l'¹³¹I est régulièrement mesuré dans les eaux des fleuves ; la rémanence des retombées atmosphériques globales des essais nucléaires aériens réalisés entre 1945 et 1980, et celle des retombées de l'[accident de Tchernobyl](#) survenu le 26 avril 1986 dont seul le ¹³⁷Cs est encore régulièrement mesurable aujourd'hui.

Origine de la radioactivité naturelle des sédiments
(moyenne en France)



Origine de la radioactivité naturelle dans l'eau
(eau de boisson, eau de nappe)

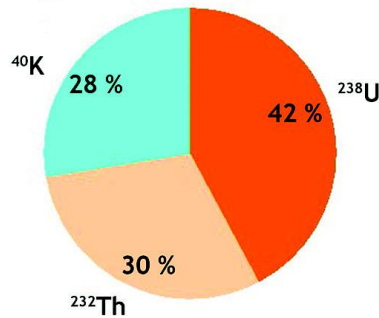


Figure 2. Principaux isotopes de la radioactivité naturelle des eaux continentales (moyenne des cours d'eau français) (d'après Eyrolle et al., 2008).

Outre ces termes sources de radioactivité artificielle, le cas particulier du **tritium** dans les sédiments du bassin versant du haut Rhône (en amont de Lyon) peut être souligné ici. En effet, les activités relativement importantes mesurées au sein du compartiment sédimentaire de ce milieu témoignent encore aujourd'hui des rejets des ateliers d'horlogerie initiés dès le milieu du siècle dernier. Ce radionucléide employé pour ses propriétés luminescentes a succédé aux isotopes du radium utilisés au début du XX^e siècle. Ces stocks sont toutefois sans conséquence détectable dans les eaux du fleuve en aval comme nous le détaillerons dans le chapitre dédié au tritium et au ^{14}C (Eyrolle-Boyer *et al.*, en préparation).

4.2.1 Les rejets liquides des installations nucléaires

Les 19 centres nucléaires de production d'électricité (CNPE) implantés sur le territoire français sont autorisés à rejeter de manière règlementée et contrôlée des effluents

liquides de faible radioactivité dans l'environnement aquatique. Les milieux concernés sont, par ordre de puissance totale implantée décroissant, la Manche (15 800 MWe), la Loire et la Vienne (14 500 MWe), le Rhône (13 400 MWe), la Garonne (6 200 MWe), la Moselle (5 200 MWe), la Meuse (2 900 MWe), la Seine (2 600 MWe) et enfin le Rhin (1 800 MWe) (Eyrolle, 2009 ; Eyrolle *et al.*, 2008). En milieu aquatique continental, outre les CNPE, le centre de retraitement du combustible irradié de Marcoule, en aval du Tricastin, en opération de démantèlement depuis 1997, a contribué au marquage du Rhône sur sa partie terminale depuis 1958.

Au cours des deux dernières décennies, si environ 20 % des rejets liquides en émetteurs gamma émis par les 19 CNPE français ont été déversés en Manche, plus de 60 % des rejets des CNPE se sont faits dans le Rhône (22 %) et la Loire (39 %). La Seine a reçu 1 % des rejets.

Le bilan réalisé souligne que le Rhône a été le réceptacle de près de 65 % des rejets liquides en émetteurs gamma effectués en milieu aquatique continental, toutes installations nucléaires confondues, dont près de 85 % imputables au centre de retraitement de Marcoule (Eyrolle, 2009).

Les quantités rejetées les plus importantes concernent le **tritium**, avec, dans le cas du Rhône, une activité cumulée toutes installations confondues de 295 TBq en 2013. La somme des activités des autres radionucléides émetteurs bêta/gamma (hors ^{14}C) rejetés dans le Rhône (^{58}Co , ^{60}Co , ^{63}Ni , ^{90}Sr , ^{106}Ru , ^{125}Sb , $^{110\text{m}}\text{Ag}$ et ^{137}Cs principalement) est aujourd'hui environ 3 000 fois plus faible que la seule activité du tritium rejetée (92 GBq en 2013). Notons également que les rejets liquides de ^{14}C sont de l'ordre de 12 GBq par an et par réacteur, en moyenne. Ainsi, l'inventaire réalisé en 2013 indique que 167 GBq de ^{14}C ont été rejetés par voie liquide par les différentes industries rhodaniennes (Eyrolle-Boyer *et al.*, 2014). Si le tritium provient en grande partie des centrales électronucléaires, 95 % des activités des autres radionucléides rejetés proviennent de Marcoule.

Les quantités de radionucléides introduites dans les eaux du fleuve ont considérablement diminué au cours des deux dernières décennies (**figure 3** et **figure 4**). Les diminutions les plus marquantes sont observées à partir de 1990 puis de 1997. Elles correspondent respectivement à la mise en place d'une nouvelle station de traitement des effluents liquides émis par le centre de Marcoule puis à l'arrêt du retraitement du combustible utilisé sur ce site.

La composition isotopique des rejets a également sensiblement évolué au cours du temps, en particulier dans le cas du centre de Marcoule et dans une moindre mesure pour les CNPE. La qualité des combustibles retraités et les techniques de traitement des effluents sont principalement à l'origine de ces évolutions.

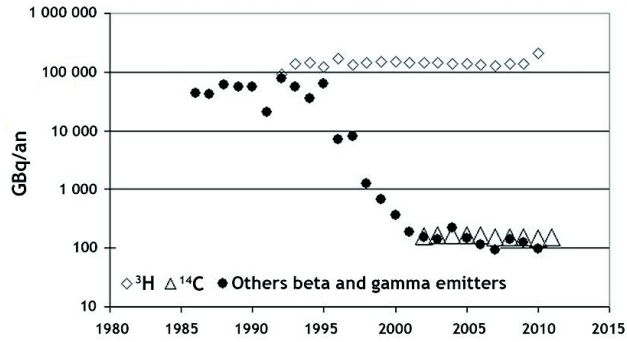


Figure 3. Activités en émetteurs bêta gamma (hors tritium et ^{14}C), en ^{14}C et ^3H rejetées annuellement dans les eaux du Rhône par les CNPE rhodaniens (d'après Eyrolle-Boyer et al., 2015).

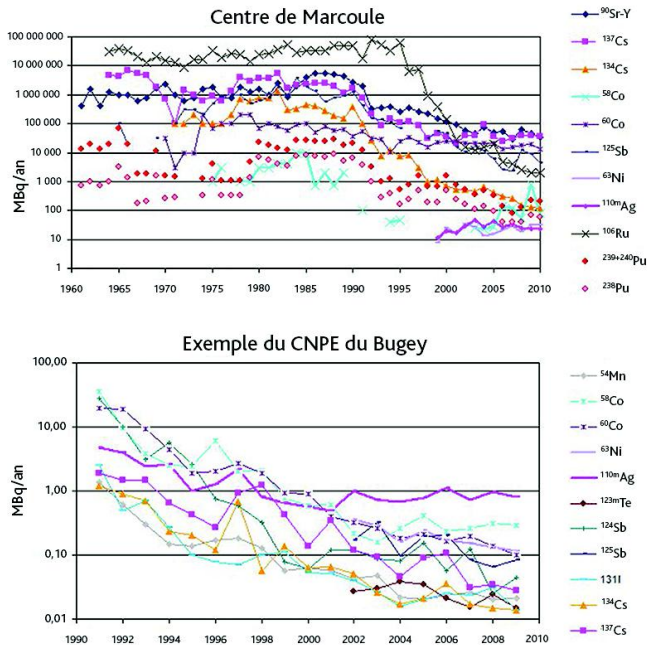


Figure 4. Chroniques des activités rejetées en radionucléides par les installations nucléaires de la vallée du Rhône (actualisé de Eyrolle et al., 2005 et Eyrolle et Renaud, 2012).

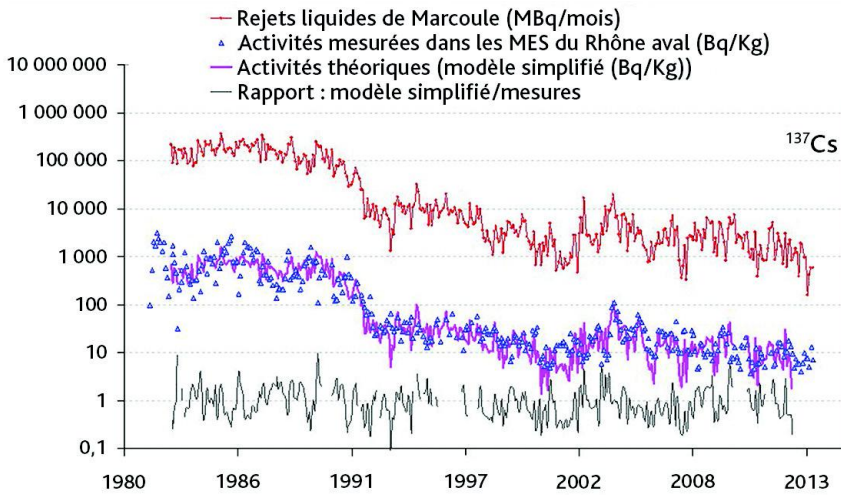
4.2.2 La rémanence des retombées atmosphériques des essais nucléaires de surface et de l'accident de Tchernobyl

Outre les rejets liquides des industries nucléaires, le fleuve est également le réceptacle des eaux de drainage et de ruissellement de son bassin versant marqué par les retombées atmosphériques des essais aériens d'engins nucléaires réalisés entre 1945 et 1980 et par les retombées de l'[accident de Tchernobyl](#). Ces retombées ont généré une radioactivité artificielle dans les sols qui perdure aujourd'hui pour les radionucléides de périodes radioactives supérieures à 20 ans, principalement le ^{90}Sr , le ^{137}Cs , les ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu et ^{241}Pu et l' ^{241}Am (issu du ^{241}Pu). Depuis le début des années 1990 et la diminution drastique des rejets liquides, les apports de radionucléides artificiels au Rhône *via* le bassin versant constituent un terme source non négligeable, et quelquefois prépondérant. C'est le cas notamment du ^{137}Cs et des isotopes du plutonium en période de crue, qui, en l'absence d'autorisation de rejets par les industries, pour des débits liquides supérieurs à 4 000 m³/s proviennent exclusivement des apports du bassin versants et des remaniements sédimentaires (Eyrolle *et al.*, 2006 ; Rolland *et al.*, 2006).

Les derniers bilans réalisés pour le ^{137}Cs , en utilisant un modèle simplifié de dilution des effluents liquides avec les eaux du fleuve, soulignent que les rejets liquides du centre de retraitement du combustible irradié de Marcoule, pourtant en démantèlement depuis 1997, expliquent encore aujourd'hui l'essentiel de l'activité en ^{137}Cs observée dans le Rhône aval ([figure 5](#)).

La contribution du drainage des sols du bassin rhodanien à l'activité en ^{137}Cs des eaux du Rhône aval a donc été négligeable tout au long des dernières décennies, pour le moins depuis la nucléarisation du fleuve dans le milieu des années cinquante.

Dans les hydro-systèmes non anthropisés par l'industrie nucléaire, dans la région Languedoc-Roussillon par exemple, les mesures réalisées sur des enregistrements sédimentaires de la Têt indiquent des teneurs actuelles en ^{137}Cs de l'ordre de 10 Bq/kg dans les sols de surface et les sédiments, soit des valeurs non significativement différentes de celles caractérisant aujourd'hui le bruit de fond global du bassin versant rhodanien (Ferrand, 2010).



Modèle simplifié :

$$A = \frac{M}{\text{MES} \times Q} \times \%_{\text{MES}}$$

A : activité en ^{137}Cs des MES (Bq/Kg sec)
M : rejets liquides de Marcoule (Bq/s)
Q : débit moyen mensuel (m^3/s)
MES : concentration en MES (mg/L)
%MES : proportion de ^{137}Cs fixée sur les particules
Données d'entrée : charge moyenne en MES de 50 mg/L
et 85 % de l'activité transférée associée aux particules
(25 % transite en phase dissoute)

Figure 5. Chroniques des rejets liquides en ^{137}Cs du centre de Marcoule, des activités en ^{137}Cs dans les MES du Rhône à Vallabrègues, des activités théoriques attendues dans le Rhône (modèle simplifié) et rapport activités calculées/activités mesurées (modèle simplifié/mesures) (d'après Eyrolle-Boyer et al., 2014 et Eyrolle-Boyer, 2014a).

4.2.3 Les retombées atmosphériques de l'accident de Fukushima (Japon) en France

On ne peut pas décrire les travaux de recherches en cours dédiés à l'étude des transferts de matière par les fleuves côtiers drainant les territoires contaminés de la préfecture de Fukushima sans rappeler en quelques lignes l'origine de cette catastrophe environnementale et humaine.

► Rappel des événements

Au cours de son histoire, le Japon a subi de très nombreux séismes meurtriers. Le vendredi 11 mars 2011, à 14h46 heure locale, le Japon a été frappé par un puissant séisme de magnitude 9,0. Cet événement est le plus fort qui ait jamais été enregistré au Japon et se place au 4^e rang des plus forts séismes recensés dans le monde depuis le XVIII^e siècle. Ce séisme s'est produit en mer, à 80 km à l'est de l'île de Honshu et à 370 km au nord-est de Tokyo. Il a été rapidement suivi par un tsunami de très grande ampleur (de plusieurs mètres à la dizaine de mètres) qui a frappé sévèrement les côtes orientales de l'île de Honshu, occasionnant un très grand nombre de victimes (officiellement 15 883 morts et 2 654 disparus) et de très importants dommages matériels. Le tsunami a endommagé notamment les équipements de la centrale nucléaire de Fukushima-Daiichi (FDNPP) (Collectif IRSN, 2012).

Peu de jours après, des explosions d'hydrogène successives se sont produites engendrant d'importants rejets de radionucléides dans l'atmosphère (NERH, 2011). Des gaz nobles et des radionucléides volatils tels que l'¹³¹I, le ¹³⁴Cs et le ¹³⁷Cs ont été libérés dans l'atmosphère, principalement pendant la période du 12 au 23 mars 2011.

Les retombées atmosphériques de radionucléides ont contaminé de vastes territoires par dépôt sur le sol, les arbres et les maisons, le territoire principalement affecté s'étendant sur environ 50 km au nord-ouest de la FDNPP (MEXT, 2011). La contamination radioactive a toutefois été dispersée sur de grandes distances et a été observée par les stations de surveillance à travers le monde (e.g., Stohl *et al.*, 2012 ; Bossew *et al.*, 2012 ; Long *et al.*, 2012 ; Paatero *et al.*, 2012). Entre le 1^{er} et le 6 avril 2011 de grandes quantités d'eau fortement contaminée ont également été rejetées dans l'océan près de la centrale endommagée, conduisant à des apports supplémentaires de contamination pour l'environnement marin côtier (e.g., Tsumune *et al.*, 2011).

L'**accident de Fukushima** a été classé en fonction de l'échelle INES (*International Nuclear Event Scale*) au niveau maximum de 7 (NERH, 2011), proche du niveau associé à la centrale nucléaire de Tchernobyl, **accident** survenu le 26 avril 1986 (Tchernobyl Forum, 2005).

Au nord de FDNPP, plusieurs fleuves côtiers de l'océan Pacifique ont été affectés par la contamination radioactive générée par l'**accident** par transfert de matière *via* les processus de lessivage des sols contaminés vers les rivières. Les eaux douces des

cours d'eau représentent dans ces régions une ressource extrêmement importante à des fins agricoles, en particulier la culture du riz, et la production d'eau pour la consommation humaine.

► Les conséquences en France

L'accident de la centrale nucléaire de Fukushima Daiichi au Japon a entraîné, essentiellement entre mi-mars et début mai 2011, des retombées extrêmement faibles sur la France, de l'ordre du millième des retombées de l'accident de Tchernobyl sur le pays. L'analyse de l'impact de l'accident de Fukushima en France à partir des résultats de la surveillance renforcée de la radioactivité de l'environnement est synthétisée dans le rapport IRSN/DEI/2011-01 (Collectif DEI, 2011). Les conséquences de l'accident de Fukushima n'ont pas pu être significativement observées dans les fleuves français, probablement en raison de niveaux trop faibles ou parce qu'elles ont été masquées par les activités résultant des rejets des installations nucléaires (cas des césiums 134 et 137), par la rémanence de l'accident de Tchernobyl (^{137}Cs) ou encore par les rejets hospitaliers, comme c'est le cas pour l' ^{131}I , radionucléide le plus abondant observé dans l'air et dans les denrées suite à cet accident. Par ailleurs, dès la fin du printemps 2011, l' ^{131}I résultant de l'accident de Fukushima avait complètement disparu de toutes les composantes de l'environnement français en raison de sa courte période radioactive (8 jours).

Toutefois, dans le cadre des suivis annuels radio-écologiques réalisés en 2011 (Claval *et al.*, 2012), le ^{134}Cs , disparu de l'environnement depuis plusieurs années, a été détecté, à des niveaux très proches des seuils de quantification, dans plusieurs échantillons de bryophytes terrestres et aquatiques (mousses considérées comme de bons bio-indicateurs).

Plus récemment, à l'occasion du troisième bilan radio-écologique décennal du CNPE du Tricastin (2012), des observations similaires ont été actées pour des échantillons d'herbe de pâturages, d'épinards et de lait de chèvre collectés à proximité du centre (figure 6), confortant les premières observations, même si aucune détection probante n'a été relevée dans les matrices du milieu aquatique (Eyrolle-Boyer, 2014b). En effet, la détection singulière de ^{134}Cs dans l'eau de la nappe alluviale du Rhône collectée à la Croisière Bollène, à proximité du site du Tricastin, ne peut être rattachée avec certitude aux retombées de Fukushima, car elle peut trouver son origine, pour le moins pour partie, dans les rejets des industries implantées en amont. L'absence de détection de ^{137}Cs au sein de cet échantillon anime toutefois le questionnement, tout en excluant la possibilité d'identifier une signature (origine).

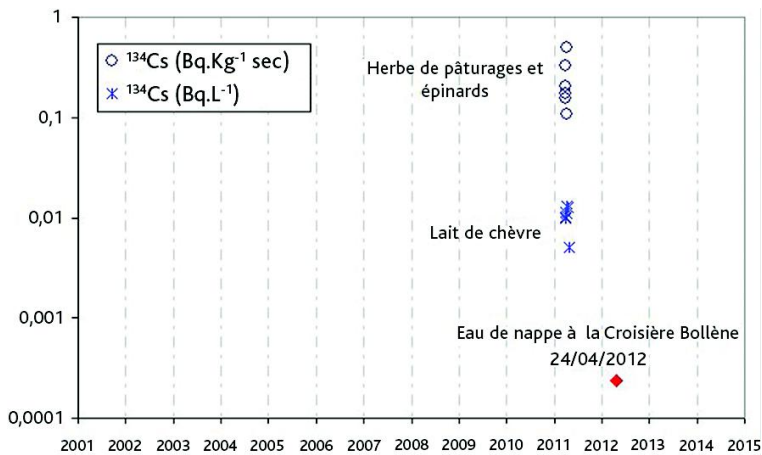


Figure 6. Activités en ^{134}Cs mesurées dans les différentes matrices du milieu terrestre et aquatique de l'environnement du CNPE du Tricastin entre 2002 et 2012 (d'après Eyrolle-Boyer, 2014b).

Bibliographie

Eyrolle F., Louvat D., Métivier J.M. and Rolland B. Origins and levels of artificial radionuclides within the Rhône River waters (France) for the last Forty years: Towards an evaluation of the radioecological sensitivity of river systems, *Radioprotection*, 40, 4, 435-446, 2005.

Eyrolle F., Claval D., Gontier G. and Antonelli C. Radioactivity level in major French rivers: summary of monitoring chronicles acquired over the past thirty years and current status, *Journal of Environmental Monitoring*, 7, 800-811, 2008.

Eyrolle-Boyer F., Renaud P., Le Dore F., Tournieux D., Claval D., Blanchet J. F., Antonelli C., Zebracki M., Cossonnet C., Boulet B., Cagnat X., Devisme A. and Gurriaran R. Radiological characteristics of water transport channels. Example of Rhone Languedoc Roussillon regional network, *Radioprotection*, 49, 2, 123-134, 2014.

Eyrolle-Boyer F., Antonelli C., Renaud Ph., Tournieux D. Origins and trend of radionuclides within the Rhône River over the last decades, *Radioprotection*, 50, 1, 27-34, 2015.

Ferrand E., Eyrolle F., Radakovitch O., Provansal M., Dufour S., Vella C., Raccasi G. and Gurriaran R. Historical levels of heavy metals and artificial radionuclides reconstructed from overbank sediment records in lower Rhône River (South - East France), *Geochemica and Cosmochimica Acta*, special Issue on Environmental Records of Anthropogenic Impacts, 82, 163-182, 2012.

Chapitre 5

Traçage des origines (post-doctorat de Mathilde Zebracki, 2011-2012)

Les flux solides terrigènes vers le milieu marin présentent une importante variabilité en fonction de l'hydrologie et de l'hydrodynamisme des fleuves. Pour le Rhône, comme pour la plupart des autres fleuves méditerranéens, 80 % des flux solides peuvent être transférés en quelques jours lors des épisodes de crue, comme nous verrons dans le [paragraphe 10.1](#).

Le bassin versant du Rhône se caractérise également par une diversité géologique et climatique qui conduit à des typologies de crue variées et à des flux sédimentaires dont l'origine se diversifie vers l'aval du fleuve.

La qualité des matériaux exportés par les fleuves ainsi que les flux en éléments traces potentiellement contaminants sont généralement étroitement liés à l'origine des

masses sédimentaires et à la chronologie des crues. Il est ainsi apparu nécessaire, afin d'expliquer les observations faites en particulier à l'aval du fleuve, de travailler sur les origines des masses sédimentaires et de tenter de tracer leurs origines. Les nombreuses données acquises depuis plus d'une décennie sur le Rhône aval pour les radionucléides naturels et artificiels en transit me parurent constituer de remarquables outils de traçage des origines sédimentaires.

Je décidais alors d'inscrire cette thématique dans l'axe « Caractérisation biophysico-chimique et traçage des sédiments et des polluants associés » de l'OSR 3 ([Observatoire des sédiments du Rhône](#)¹, 2011-2013), et je proposais à Mathilde Zebracki, sur un contrat de post-doctorat, d'explorer les données de la surveillance radiologique des eaux du Rhône aval. Il s'agissait d'extraire de ces jeux de données des traceurs radioactifs naturels ou artificiels susceptibles de renseigner sur la dynamique spatiale des sédiments exportés et sur l'origine des particules en transit dans le Rhône aval.

Après une qualification des crues enregistrées par échantillonnage d'eau à Arles entre 2000 et 2012, l'influence du type de crue sur la variabilité des activités mesurées dans les matières en suspension a été étudiée par des méthodes de traitement statistique (boîtes à moustaches, analyses en composantes principales (ACP)). Différentes méthodes de traçage de l'origine des sédiments ont ensuite été explorées et appliquées.

Les principaux résultats du travail de Mathilde Zebracki sont synthétisés ci-après.

5.1 La variabilité des activités en fonction de la typologie des crues

Le traitement des données indique que les activités de ²³⁸U, ²³²Th et ⁴⁰K mesurées dans les matières en suspension du Rhône aval varient de manière significative en fonction du type de crue ([figure 7](#)). Les crues cévenoles se distinguent des autres crues par des activités en ²³⁸U, ²³²Th et ⁴⁰K plus élevées. Cette distinction suggère une signature spécifique en radionucléides d'origine naturelle liée aux caractéristiques lithologiques propres aux bassins versants. La lecture d'une signature spécifique pour les matières en suspension d'origine cévenole est toutefois probablement liée à des conditions de transfert préférentiel de matière depuis les affluents cévenols vers

1 <http://www.graie.org/osr/>

le fleuve aval (crues de type « éclair » combinées à une courte distance entre les confluences avec le Rhône et le point de prélèvement à Arles).

En comparant les crues méditerranéennes extensives aux crues cévenoles (3 et 2 sur la figure 7), la diminution des activités observée souligne l'influence des affluents préalpins (Durance typiquement). Les activités enregistrées lors des crues océaniques et généralisées sont du même ordre de grandeur et restent comprises dans l'intervalle des valeurs défini par les crues cévenoles et les crues méditerranéennes extensives.

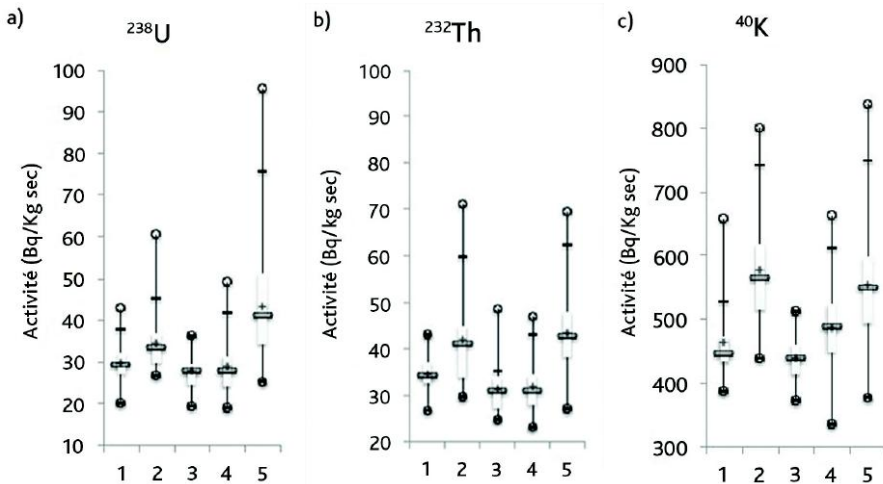


Figure 7. Boîtes à moustaches des activités en Bq/kg sec en Arles de a) ^{238}U , b) ^{232}Th et c) ^{40}K en fonction du type de crue : 1 = océanique ; 2 = cévenole ; 3 = méditerranéenne extensive ; 4 = généralisée et 5 = en régime de basses eaux.

L'analyse en composantes principales (ACP) des données n'a pas permis d'isoler des signatures spécifiques capables de distinguer chaque type de crue. En effet, le traitement des données par ACP n'a pas pu tenir compte de l'origine atmosphérique de certains radionucléides dans le bassin versant rhodanien. Or, dans un système aquatique, les radionucléides ont des origines variées et chaque radionucléide ou famille de radionucléides (primaires, non primaires) est susceptible d'apporter une information différente sur les mécanismes impliqués dans le transport des particules en milieu fluvial. Les radionucléides d'origine atmosphérique (^7Be , ^{137}Cs et ^{210}Pb) permettent d'étudier les modalités de transfert des particules du bassin versant vers le fleuve, tandis que les radionucléides primordiaux (^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K) reflètent les caractéristiques lithologiques du bassin versant.

L'analyse en composantes principales a permis toutefois de souligner certaines particularités : le ^7Be est un axe d'analyse pour les crues cévenoles et le ^{137}Cs pour les crues méditerranéennes extensives.

5.2 Les signatures propres des affluents rhodaniens

5.2.1 Les radionucléides naturels ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K

À partir des analyses réalisées dans les laisses de crue, il est montré que les affluents méridionaux au sud de Valence forment deux groupes distincts avec des valeurs plus élevées en ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K dans les affluents cévenols (Ardèche, Gard, Cèze) que dans les préalpins (Durance, Ouvèze, Aigues).

Les affluents septentrionaux présentent des activités hétérogènes selon l'affluent considéré, avec des valeurs plus élevées pour la Saône que l'Ain (figure 8).

Les résultats obtenus dans les laisses de crue confirment ainsi les tendances observées pour les matières en suspension du Rhône aval et contribuent à mettre en évidence le contraste entre la signature des apports cévenols et préalpins, liée aux caractéristiques lithologiques propres des bassins versants.

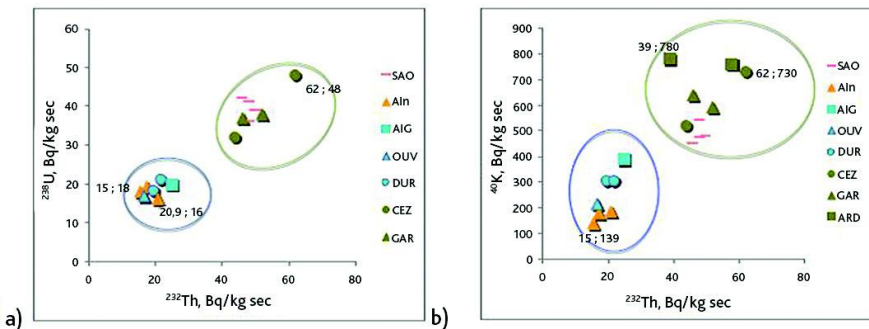


Figure 8. Variations des activités, en Bq/kg sec, de a) ^{238}U et de b) ^{40}K en fonction du ^{232}Th dans les affluents du Rhône : SAO = Saône, AIN ; AIG = Aigues ; OUV = Ouvèze ; DUR = Durance ; CEZ : Cèze ; GAR = Gard ; ARD = Ardèche. Les activités extrêmes sont précisées en gras (X ; Y).

5.2.2 Les radionucléides artificiels : le rapport d'activité $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$

Le rapport d'activité $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les sols et sédiments de l'hémisphère nord caractéristique des retombées atmosphériques globales des essais d'armes nucléaires est compris entre 27 et 42 pour la période 2000-2012 (Cochran *et al.*, 2000 ; Le Roux *et al.*, 2010). Un écart par rapport à cette gamme de valeurs de référence indique une contribution de ^{137}Cs ou de $^{239+240}\text{Pu}$ par une autre source.

Le rapport d'activité $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ a été déterminé dans les affluents à partir des activités de ^{137}Cs et $^{239+240}\text{Pu}$ mesurées dans les laisses de crue, ainsi qu'à partir des retombées théoriques de ^{137}Cs (Roussel-Debet *et al.*, 2007) et de $^{239+240}\text{Pu}$ sur les sols des sous-bassins versants des affluents du Rhône (figure 9). Le rapport d'activité $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ montre des différences selon l'affluent considéré : il est plus élevé dans les affluents préalpins (56 pour la Durance, 79 pour l'Ouvèze, 95 pour l'Aigues) comparés aux cévenols (de 31 à 50 pour le Gard, la Cèze et l'Ardèche), les valeurs des affluents septentrionaux se situant dans l'intervalle.

Les rapports $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ des affluents préalpins et septentrionaux (62-64) sont supérieurs à la valeur caractéristique des retombées des tirs (*i.e.* 27-42), soulignant la contribution en ^{137}Cs associée à l'accident de Tchernobyl. Pour les affluents cévenols, cette contribution est moins marquée (RA $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ entre 31 et 50).

Ces observations restent en accord avec le gradient positif ouest-est observé dans les sols dans la partie méridionale du bassin versant.

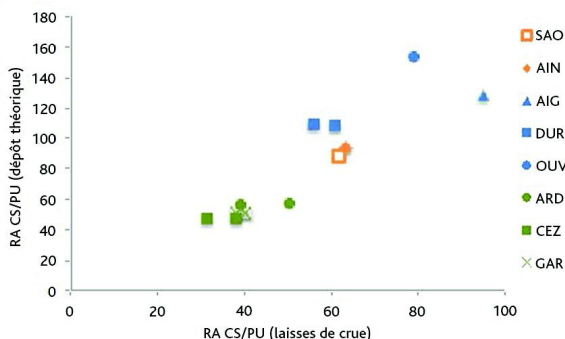


Figure 9. Variation du rapport d'activité $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ théorique des sols des sous-bassins versants des affluents en fonction du rapport d'activité $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ déterminé dans les laisses de crues prélevées dans les affluents : SAO = Saône, Ain ; AIG = Aigues ; OUV = Ouvèze ; DUR = Durance ; CEZ : Cèze ; GAR = Gard ; ARD = Ardèche.

5.3 Le traçage de l'origine des sédiments dans le Rhône aval

5.3.1 Le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$

Dans les matières en suspension en transit dans le Rhône aval durant les crues, les isotopes du plutonium ont deux origines principales qui se caractérisent par des rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ (RA Pu) distincts (Rolland 2006) :

- les sols du bassin versant marqués par les retombées atmosphériques globales des essais d'armes nucléaires, avec un RA Pu égal à $0,036 \pm 0,6$ (Eyrolle *et al.*, 2008) ;
- les effluents liquides rejetés par le centre de retraitement de Marcoule avec un RA Pu théorique de 0,3 (Lansard *et al.*, 2007). Au-delà de $4\,000\text{ m}^3/\text{s}$ à Arles, on considère qu'il n'y a plus de rejets issus de Marcoule (Rolland, 2006).

À l'aval de Marcoule, une fraction des matières en suspension provient de l'érosion des sols du bassin versant (= BV) et une fraction provient de la remise en suspension des sédiments marqués et stockés à l'aval de Marcoule (Thomas, 1997). Pour un RA Pu calculé dans les prélèvements à Arles, l'équation de mélange s'écrit :

$$\frac{{}^{238}\text{Pu}_{\text{Arles}}}{{}^{239+240}\text{Pu}_{\text{Arles}}} = \frac{{}^{238}\text{Pu}_{\text{Marcoule}} + {}^{238}\text{Pu}_{\text{BV}}}{{}^{239+240}\text{Pu}_{\text{Marcoule}} + {}^{239+240}\text{Pu}_{\text{BV}}}$$

La fraction (%) des isotopes de Pu issues de la remise en suspension (RS) des sédiments marqués par Marcoule est donnée par :

$${}^{239+240}\text{Pu}_{\text{RS}} = (\text{RAPu}_{\text{Arles}} - \text{RAPu}_{\text{BV}}) / (\text{RAPu}_{\text{Marcoule}} - \text{RAPu}_{\text{BV}}) \times 100$$

$${}^{238}\text{Pu}_{\text{RS}} = {}^{239+240}\text{Pu}_{\text{RS}} \times \text{RAPu}_{\text{Marcoule}} / \text{RAPu}_{\text{Arles}}$$

Au cours de la dernière décennie, la fraction des isotopes du plutonium issus de la remobilisation sédimentaire a varié entre 26 et 88 % pour le ^{238}Pu , et entre 4 et 47 % pour le $^{239+240}\text{Pu}$ (figure 10). Les matières en suspension collectées lors de l'évènement de mai 2008 sont remarquables, caractérisées par rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ très faibles. Lors de la crue de mai 2008, les apports sédimentaires ont été atypiques en raison de la concomitance d'une crue de l'Isère et d'une ouverture de barrage sur la Durance qui a contribué à préserver dans les MES en transit dans le Rhône aval la signature type de ce bassin versant (Eyrolle *et al.*, 2012).

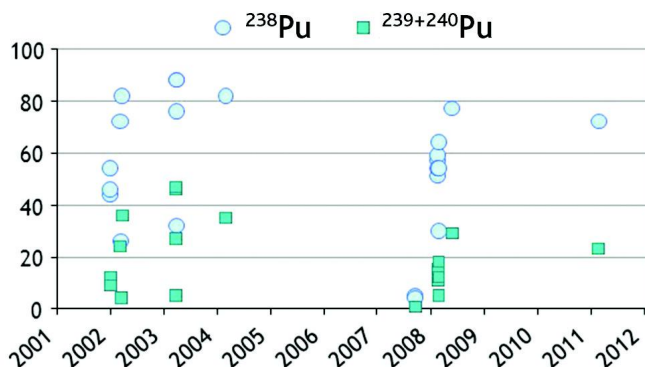


Figure 10. Proportions (%) en isotopes du plutonium issus des reprises sédimentaires au cours de la dernière décennie.

À l'exception près de l'évènement atypique de mai 2008, la remise en suspension des sédiments à l'aval de Marcoule est observée quel que soit le type de crue. Les résultats ne montrent pas de relation entre le type de crue et la quantité de plutonium issue des reprises sédimentaires.

L'origine des masses d'eau n'exerce donc pas comme attendu d'influence sur la fraction de plutonium remobilisée.

Les résultats acquis dénotent une diminution sensible des proportions remobilisées au cours de la dernière décennie, en particulier dans le cas du ^{238}Pu , indiquant que le stock de sédiments marqués par les rejets de centre de retraitement diminue sensiblement au fil des ans.

Il est intéressant de constater que la diminution du marquage des stocks sédimentaires mobilisables lors des crues, observée par le biais des signatures isotopiques du plutonium, est en accord avec la diminution des activités dans les matières en suspension du Rhône aval (cf. [paragraphe 6.1](#)).

5.3.2 Le rapport d'activité $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$

Dans les matières en suspension du Rhône aval, les activités de ^{137}Cs varient entre 3,0 et 35,1 Bq/kg (2002-2012).

La valeur d'activité représentative des matières en suspension issues de l'érosion du bassin versant rhodanien a été estimée à $14,9 \pm 0,4$ Bq/kg (Rolland, 2006 ; Antonelli *et al.*, 2008).

Parmi les matières en suspension prélevées à Arles pendant les crues du Rhône, 10 % présentent des activités de ^{137}Cs supérieures à 15,3 Bq/kg et soulignent un marquage par les rejets liquides des installations nucléaires. Ce marquage de ^{137}Cs par les effluents liquides des installations nucléaires est lié à la remobilisation de sédiments contaminés (cas des matières en suspension prélevées le 03/12/03, avec un débit de $10\,304\text{ m}^3/\text{s}$), même si un apport direct par les installations nucléaires n'est pas exclu lorsque le débit est modéré (*i.e.*, $< 4\,000\text{ m}^3/\text{s}$).

Pour les matières en suspension présentant une activité en ^{137}Cs inférieure ou égale à 15,3 Bq/kg, la relation affine entre le ^{137}Cs et le $^{239+240}\text{Pu}$ traduit un apport concomitant et associé à une source commune, *i.e.* l'érosion du bassin versant (figure 11). Bien que la contribution de ces deux radionucléides par la remobilisation sédimentaire (à l'aval de Marcoule) ne puisse être écartée, elle ne modifie pas de manière significative la signature caractéristique du bassin versant.

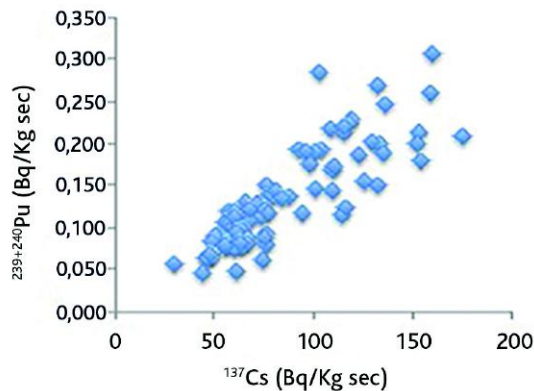


Figure 11. Relation entre les activités massiques du ^{137}Cs et du $^{239+240}\text{Pu}$ dans les matières en suspension du Rhône à Arles toutes crues confondues.

Les résultats montrent également que les matières en suspension exportées à Arles pendant les crues cévenoles se caractérisent par un RA Cs/Pu moyen plus faible (54 ± 6) que celui associé aux crues méditerranéennes extensives (78 ± 10).

Ces résultats sont en accord avec le gradient positif ouest-est observé dans la partie méridionale du bassin versant rhodanien.

Les matières en suspension exportées lors des crues généralisées se caractérisent par un RA Cs/Pu moyen associé à une dispersion plus élevée (71 ± 16) qui s'explique par la multiplicité des sources à l'échelle du bassin versant. Les crues océaniques ne se distinguent pas des autres types de crues avec un RA Cs/Pu moyen (70 ± 17) compris dans l'intervalle de variation des crues cévenoles et méditerranéennes extensives.

Le rapport d'activité $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ des matières solides en transit durant les crues peut ainsi être utilisé pour tracer les apports de bassins versants marqués de manière contrastée par les retombées atmosphériques de l'accident de Tchernobyl.

5.3.3 Les combinaisons statistiques $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}/^{40}\text{K}$

L'étude de l'influence du type de crue sur la variabilité des radionucléides naturels dans les matières en suspension collectées à Arles a mis en évidence le potentiel d'utilisation des radionucléides primaires ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K comme marqueurs dans le traçage de l'origine des sédiments (paragraphe 5).

En distinguant trois termes sources de sédiments à l'échelle du bassin versant (« Amont » = apports de sédiment par le Rhône à l'amont de Valence, « Cévenol » = apports de sédiment par les affluents cévenols, et « Préalpin » = apports de sédiment par les affluents préalpins), et à partir des données acquises dans les prélèvements représentatifs de ces trois termes sources, la composition en ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K pour chaque terme source a été déterminée selon une méthode statistique (Évrard *et al.*, 2011). L'Isère n'a pas été échantillonnée, mais compte tenu de sa lithologie, son signal a été considéré comme proche de celui des affluents préalpins.

À partir de la qualification des crues et de la quantité de sédiment exportée lors des crues dans le Rhône aval entre 2000 et 2011 (*i.e.* estimation basse de 19,5 Mt au total), la quantité de sédiment exportée à Arles a été déterminée pour chaque type de crue. L'on notera ainsi que les crues généralisées, méditerranéennes extensives, cévenoles et océaniques ont apporté respectivement, 11, 6,4, 1,4 et 0,7 Mt de sédiment au cours de la période 2000-2011. Les crues généralisées, en raison de leur plus grande fréquence et de la durée plus longue des événements, conditionnent la quantité de sédiment exporté (56 % de l'apport total).

À partir des données de contribution de chaque terme source dans le mélange des matières en suspension à Arles et de la quantité de sédiment exporté à Arles en

période de crue, la quantité de sédiments exportée a été déterminée pour chaque terme source (« Amont », « Cévenol » et « Préalpin »).

Dans la partie aval du fleuve, on considère ainsi que les termes sources « Préalpin », « Amont » et « Cévenol » ont apporté respectivement, 10,3, 6,8 et 2,2 Mt de sédiments au cours de la période 2000-2011 (figure 12).

En représentant le principal pourvoyeur de sédiment (53 % des apports sédimentaires totaux), les affluents préalpins (en particulier la Durance) exercent un rôle majeur sur le transport solide dans le Rhône Aval.

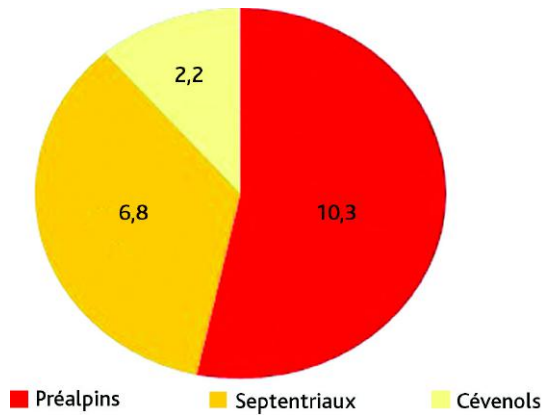


Figure 12. Origines des sédiments exportés vers la mer pendant les crues sur 2000-2011 ($\times 10^6$ tonnes).

Bibliographie

Zebracki M., Eyrolle F., Cagnat X., Antonelli C., De Vismes A., Boullier V. Characterization of naturally occurring radionuclides in the lower Rhône River waters (France), preliminary results from suspended sediments monitoring data and flood deposits, 11th International Conference on Modelling, Monitoring and Management of Water Pollution, 10-12 July, New Forest, UK, 2012.

Zebracki M., Eyrolle-Boyer F., De Vismes-Ott A., Antonelli C., Cagnat X. and Boullier V. Radionuclide contents in suspended sediments in relation to the flood types in the Lower Rhone River, Water Rock Interaction, Symposium of the International Association of Geochemistry, June 9-14, Avignon, France, 2013.

Zebracki M., Eyrolle-Boyer F., Antonelli C., Cagnat X., Thomas S., Boullier V., Gurriaran R. Tracing the origins of sedimentary masses in transit in the Lower Rhone River using activities ratios $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ and $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$, IAHS Conference, assembly, 22-26 July 2013, Gothenburg (Sweden), 2013.

[Zebracki M.](#), Eyrolle-Boyer F., De Vismes-Ott A., Antonelli C., Cagnat X. et Boullier V. Radionuclide contents in suspended sediments in relation to the flood types in the Lower Rhone River, *Procedia Earth and Planetary Science*, 7, 936-939, 2013.

[Zebracki M.](#), Eyrolle F., Cagnat X., Antonelli C., De Vismes-Ott A. and Boullier V. Characterization of naturally occurring radionuclides in the lower Rhône River waters (France), preliminary results from suspended sediments monitoring, Water Resources Management VII, *WIT Transactions on Ecology and the Environment*, Vol. 171, 235-245, 2013.

[Zebracki M.](#), Eyrolle-Boyer F., Évrard O., Claval D., Mourier B., Gairoard S., Cagnat X., Antonelli C. Tracing the origin of suspended sediment in a large Mediterranean river by combining continuous river monitoring and measurement of artificial and natural radionuclides, *Science of the Total Environment*, 502, 122-132, 2014.

Zebracki M. Origine des particules en transit dans le Rhône Aval : les radionucléides sont-ils de bons traceurs ? Rapport PRP-ENV/SESURE-2014-01, 2014.

Chapitre 6

Chroniques des niveaux d'activité au sein des systèmes aquatiques fluviaux français

L'origine de la radioactivité en transit dans les cours d'eau explorée, je m'intéressais ensuite aux chroniques historiques et aux variabilités spatiales inter systèmes.

- Les niveaux de radioactivité étaient-ils moindre aujourd'hui que par le passé ?
- Quelle était la tendance ?
- Les niveaux de radioactivité étaient-ils similaires au sein des différents hydro-systèmes français ?

6.1 Le cas du Rhône

Pour les nombreuses raisons évoquées dans le [chapitre 1](#) « Introduction : articulation des recherches », l'essentiel de mes recherches a été conduit sur l'hydro-système phare qu'est le Rhône. Le suivi des niveaux de radioactivité dans les eaux du Rhône aval a été assuré dès 2002 par l'inauguration, le 21 mars, de « SORA », la « Station observatoire du Rhône à Arles ».

6.1.1 La station observatoire du Rhône à Arles (SORA)

SORA, développée et gérée par l'[IRSN](#), est financée à 50 % par l'[Agence de l'eau Rhône Méditerranée Corse](#). Intégrée à [MOOSE](#)¹, elle représente une plateforme instrumentée unique en France dédiée à l'enregistrement des flux de matière transférés par les fleuves vers les océans. Elle permet la collecte d'eau du Rhône en continu et des prélèvements d'aliquotes à haute fréquence. L'enjeu principal de cette station est l'enregistrement des flux solides, en collaboration avec l'[Institut d'océanologie de Marseille](#) (MIO), et des flux dissous et particuliers de nombreux contaminants. SORA a été rattachée en 2009 à l'[OSR](#) de la [Zone atelier du bassin du Rhône](#) (ZABR).

Elle permet la quantification d'une multitude de radionucléides naturels et artificiels présents dans l'eau en phase particulaire ou en phase dissoute grâce au couplage du traitement de grands volumes d'eau et d'une métrologie bas niveau.

Son fonctionnement a été décrit dans Eyrolle *et al.* (2012) ainsi que lors de plusieurs congrès nationaux ou internationaux (cf. publications associées).

Brièvement, d'après Eyrolle *et al.* (2010) : *"The Rhône River Observatory Station (SORA) was developed by IRSN to register episodic events. The Station is located at Arles on the right bank of the Grand Rhône River, 3.5 km downstream the difffluence between the Grand Rhône and the Petit Rhône and 45 km upstream the River mouth. The Grand Rhône branch exports to the Sea 85 to 90 % of the liquid and solid Rhône river flows.*

Water is collected at a distance of 7 m from the bank and 0.5 m under the surface whatever the discharge and continuously supplies the Station.

1 Moose: *Mediterranean Ocean Observing System on Environment* (<http://www.insu.cnrs.fr/environnement/atmosphere/moose-mediterranean-ocean-observing-system-on-environment>)

High frequency monitoring is displayed into two main modes depending on the liquid flow rate of the River:

- *below 3000 m/s: daily samplings for TSS and particulate and dissolved nutrients analyses result in 16 sub samples of 150 ml automatically collected each 90 minutes. Radionuclides activities within the dissolved and particulate phases are determined onto monthly integrated samples obtained through sub samples of 15 L automatically collected each hour;*
- *above 3000 m/s: samples for TSS analyses are collected each 4 hours resulting in 8 sub samples of 150 ml taken each 30 minutes. Particle bound radionuclides are measured onto samples taken each 8 hours through 24 sub samples of 5 l automatically collected each 20 minutes.*

The threshold flow rate of 3000 m s was chosen on the basis of previous studies: Pont (2002) observed a breakdown in the relation between liquid flow and TSS concentrations corresponding to the beginning of the sediment transport under flood condition. These observations were confirmed by Antonelli (2002) that furthermore observed higher TSS concentrations with depth.

Samples for TSS analysis are poisoned with HgCl and conserved at 5°C until they are filtrated on 1 μm pre conditioned glass fiber filters (dried at 450°C for one hour). Uncertainty on TSS concentrations is estimated to $5 \times 10^{-4} \text{ g.l}^{-1}$. Daily and hourly liquid discharges in Arles are made available by the CNR ([Compagnie nationale du Rhône](#)).

These data sets allow quantifying liquid and solid fluxes associated with each sampling periods and especially with flood events”.

6.1.2 Les activités mesurées en phase dissoute et en phase particulaire

Eyrolle *et al.* (2015) présente une synthèse récente des niveaux de radioactivité mesurés dans les eaux du Rhône aval au cours des dernières décennies que ce soit en phase dissoute ou particulaire qui s’inscrit dans la continuité d’un certain nombre d’articles, communications, chapitres d’ouvrages et synthèses à des fins d’expertises, initiés à partir de 2004 (cf. publications associées).

Cet article de synthèse, tout en rappelant que la diversité géologique et climatique conduit à une variabilité spatiale significative des niveaux naturels de radioactivité que ce soit dans les sols, les sédiments ou les eaux naturelles, indique que le niveau

de radioactivité des matières en suspension et des sédiments du Rhône est de l'ordre de 1 450 Bq/kg (figure 13) et qu'il se situe entre les niveaux observés dans la Loire (1 925 Bq/kg) et de la Seine (730 Bq/kg). L'essentiel (plus de 98 %) de cette radioactivité est d'origine naturelle.

Pour ce qui est de la radioactivité artificielle, les observations confirment que les quantités les plus importantes émises par l'industrie nucléaire rhodanienne concernent le tritium.

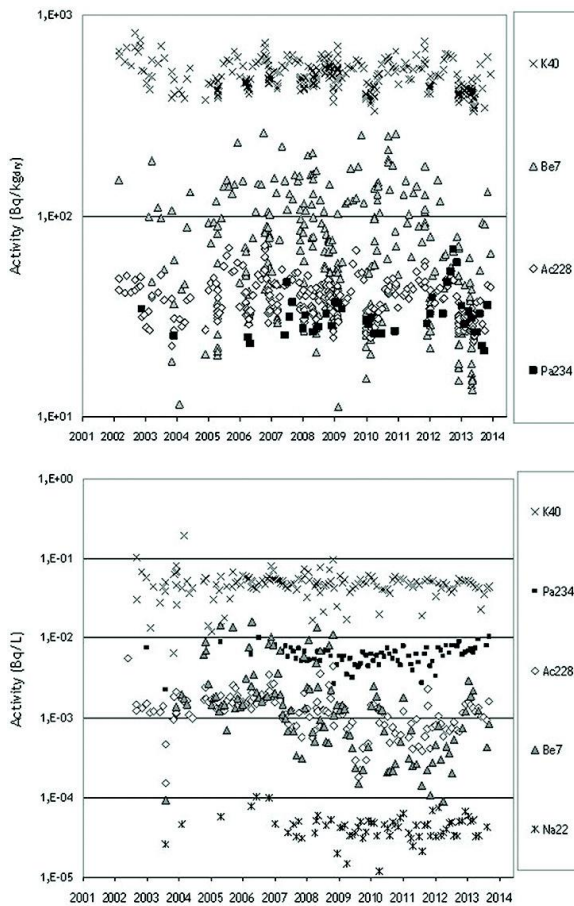


Figure 13. Chroniques des activités des principaux radionucléides d'origine naturelle dans les matières en suspension (en haut) et dans les eaux filtrées (en bas) du Rhône aval, 2002-2012.

En effet, dans les eaux filtrées du Rhône aval, le **tritium** présente les niveaux d'activité les plus importants (1 à 15 Bq/L), supérieurs à ceux du ^{40}K d'origine naturelle (de l'ordre de 0,05 Bq/L) (figures 14 et 15).

À partir des valeurs de référence caractéristiques du bruit de fond, l'on peut considérer que plus de 95 % du **tritium** en transit dans les eaux du Rhône aval est d'origine anthropique.

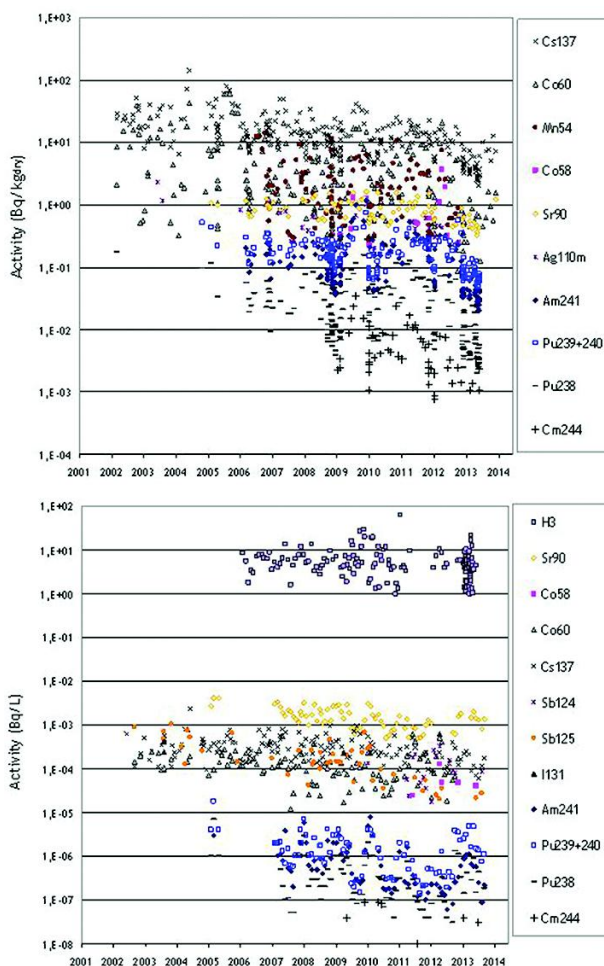


Figure 14. Chroniques des activités des principaux radionucléides d'origine artificielle dans les matières en suspension (en haut) et dans les eaux filtrées (en bas) du Rhône aval, 2002-2012.

Les niveaux en ^{14}C , autre élément prépondérant des rejets industriels, sont de l'ordre de 0,005 Bq/L. Les niveaux des autres radionucléides artificiels (émetteurs bêta/gamma) sont inférieurs à 0,001 Bq/L, voire inférieurs à 0,00001 Bq/L dans le cas des émetteurs alpha ($^{238,239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm).

Pour ce qui concerne les matières en suspension véhiculées dans les eaux du Rhône aval, les données acquises montrent que si l'essentiel de la radioactivité est d'origine naturelle, le ^{14}C présente des niveaux d'activité remarquables, de 150 à 350 Bq/kg C ou bien 20 à 45 Bq/kg sec², soit sensiblement supérieurs à ceux du ^{137}Cs , radionucléide d'origine exclusivement anthropique et prépondérant dans les matières en suspension (figure 15).

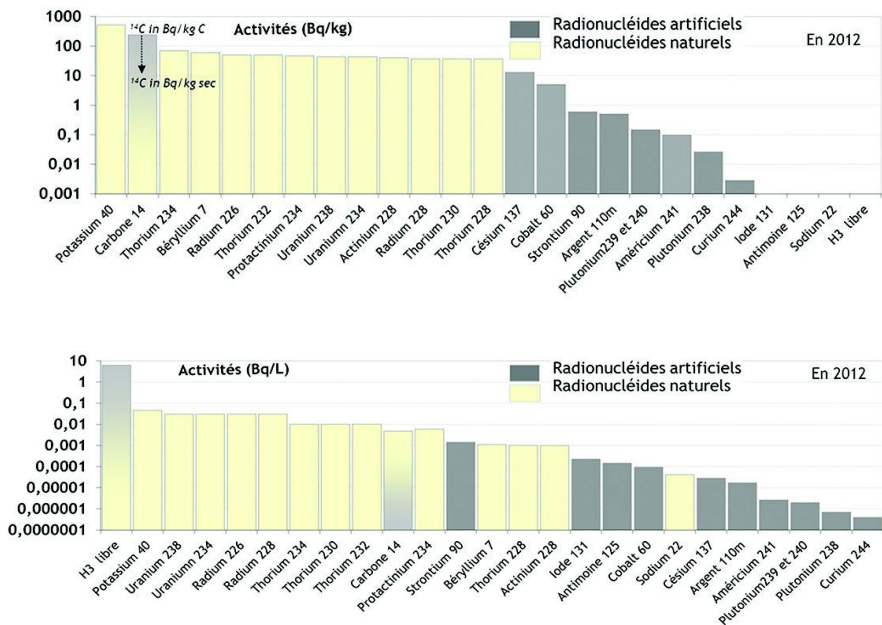


Figure 15. Niveaux d'activité des principaux radionucléides d'origine naturelle (en jaune) et artificielle (en gris) mesurés dans les matières en suspension (en haut) et dans les eaux filtrées (en bas) du Rhône aval (2002-2012) ; tritium, ^{131}I , ^{125}Sb and ^{22}Na sont des éléments qui ne se fixent quasiment pas aux particules.

Les niveaux en ^{14}C sont globalement supérieurs au bruit de fond des sédiments des cours d'eau non anthropisés (95 à 234 Bq/kg C). Ces données permettent d'estimer que 30 à 50 % du ^{14}C véhiculés par le Rhône dans sa partie terminale auraient une

2 La teneur en COP des sédiments du Rhône aval est de l'ordre de 8 %.

origine anthropique. Les niveaux d'activités des autres radionucléides artificiels sont inférieurs de 1 à 5 ordres de grandeur à ces dernières valeurs.

Les chroniques acquises au cours des dernières décennies (voir pour plus de détails Eyrolle-Boyer *et al.*, 2015) montrent que les niveaux d'activité des radionucléides artificiels dans le Rhône, que ce soit dans la phase dissoute ou particulaire, ont décliné, y compris au cours des dix dernières années, en écho à la diminution de la radioactivité des rejets liquides de l'industrie nucléaire rhodanienne. Comme attendu, les niveaux d'activité des radionucléides naturels sont restés stables au cours des dernières décennies.

6.2 La synthèse à l'échelle du territoire français métropolitain

L'article Eyrolle *et al.* (2008) décrivant les niveaux de radioactivité au sein des grands fleuves français nucléarisés constitue une publication de synthèse phare de mes activités de recherches. Comme décrit dans mon *curriculum vitae*, l'article présente « une valorisation interprétative des données acquises par mon laboratoire dans le cadre de ses missions de surveillance des fleuves nucléarisés du territoire français. Il permet de fournir des séries temporelles sur les activités de nombreux radionucléides artificiels au sein de différentes matrices des milieux aquatiques, à savoir les sédiments, les plantes aquatiques et les poissons, en mettant en perspective les zones à l'amont de toute installation nucléaire et avec celles situées en aval des industries. Il donne également les niveaux de radioactivité naturelle des sédiments des différents fleuves français. Ce travail m'a sans aucun doute permis d'élargir le champ de mes observations jusqu'alors axé sur le Rhône. Il initiera très probablement mes réflexions sur les changements d'échelles, les gammes de variabilité et les référentiels (bruit de fond géochimique) ».

L'article rappelle que depuis le début des années 1990 les rejets liquides de radionucléides émetteurs gamma provenant des installations nucléaires françaises ont globalement diminué de près de 85 %. Près de 65 % des effluents liquides émetteurs gamma rejetés dans les eaux douces continentales concernent le Rhône, fleuve pour lequel 85 % de la radioactivité d'origine industrielle a été émise par le centre de retraitement du combustible irradié de Marcoule.

En amont des centrales nucléaires françaises, les radionucléides artificiels toujours détectés par spectrométrie gamma en 2006 comprenaient le ^{137}Cs , l' ^{131}I ainsi que

les ^{60}Co , ^{58}Co et ^{54}Mn dans le cas du Rhin, en raison de l'implantation d'industries nucléaires suisses sur le Rhin amont.

Suite aux retombées atmosphériques de l'accident de Tchernobyl, les ^{134}Cs , ^{103}Ru , $^{106}\text{Rh-Ru}$, $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{141}Ce et ^{129}Te ont été détectés dans les rivières de l'est de la France. Certains de ces radionucléides ont été détectés dans les plantes aquatiques jusqu'en 1989.

Dans l'est de la France, l'activité du ^{137}Cs dans les sédiments des cours d'eau et des mousses est aujourd'hui encore deux à trois fois supérieure à celle observée dans des environnements similaires de l'ouest du territoire.

Le ^{134}Cs apporté par l'accident de Tchernobyl n'est plus détecté dans les rivières françaises depuis 2001.

En aval des centrales nucléaires, les émetteurs gamma d'origine artificielle régulièrement détectés en 2006 dans les rivières étaient les ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{60}Co , ^{58}Co , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{54}Mn , ^{131}I ainsi que l' ^{241}Am en aval de Marcoule sur le Rhône. Ces éléments se retrouvent encore aujourd'hui, en 2015.

Les émetteurs alpha et bêta d'origine artificielle, tels que les isotopes de plutonium et le ^{90}Sr , ont été introduits dans les cours d'eau dès les années cinquante suite au drainage des sols marqués par les retombées atmosphériques globales des essais nucléaires. Ces radionucléides ont également été introduits, dans le cas du Rhône, par les rejets de l'usine de retraitement de Marcoule. Jusqu'au milieu des années 1990, les niveaux d'activités en plutonium (^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$) observés dans le cours inférieur du Rhône étaient de 10 à 1 000 fois supérieurs à ceux observés dans les autres eaux douces françaises.

Les données recueillies pendant près de 30 années d'études radioécologiques dans les hydro-systèmes continentaux du territoire français métropolitain révèlent que les seuls radionucléides détectés dans les muscles de poissons sont les ^{137}Cs , ^{90}Sr , les isotopes du plutonium et l' ^{241}Am .

Elles soulignent également qu'à l'échelle du territoire français, il n'y a pas, depuis le milieu des années 1990, de différence significative entre l'activité du ^{137}Cs observée en aval des installations nucléaires et celle observée en amont, que ce soit dans les sédiments, les mousses et les poissons.

Les travaux indiquent enfin que la radioactivité naturelle des eaux douces de surface du territoire est environ 25 fois supérieure à la radioactivité artificielle des émetteurs gamma, même si d'autres émetteurs libérés par les industries nucléaires, en particulier les émetteurs bêta tels que le [tritium](#), peuvent conduire à des niveaux de radioactivité artificielle dans l'eau des cours d'eau 2 à 20 fois plus élevés que les niveaux naturels.

La concentration des différents éléments émis par les installations nucléaires dans les eaux des cours d'eau dépend en grande partie des quantités rejetées ainsi que du volume du milieu récepteur, c'est-à-dire du débit. Cette propriété a été largement utilisée dans le cadre des études de la capacité radiologique des cours d'eau soumis à rejets demandées par EDF (Hugon *et al.*, 1981).

Les modèles opérationnels évaluant le devenir des rejets liquides dans l'eau utilisés dans ce contexte considèrent des valeurs spatio-temporelles moyennes, généralement annuelles (Beaugelin-Seiller *et al.*, 2002 ; Boyer *et al.*, 2005). Les données d'entrée sont simplifiées en considérant des rejets uniformément répartis sur l'année et un écoulement du fleuve en régime permanent (débit moyen annuel). Ainsi, la plupart des modèles opérationnels néglige les phénomènes de dépôts et de charriage par le fond, considérant qu'il y a, en moyenne annuelle, une compensation entre la remise en suspension et le dépôt. *In fine*, l'essentiel de la radioactivité introduite se retrouve dans l'eau (phase dissoute) et dans les matières en suspension proportionnellement au rejet et inversement proportionnellement au volume de dilution (débit).

La [figure 16](#) présente les gammes de variations de ces deux paramètres pour les différents systèmes continentaux soumis aux rejets des CNPE et du centre de retraitement de Marcoule.

Les résultats obtenus montrent ainsi que sur la période 1991-2003 les quantités cumulées en émetteurs gamma ont varié de 30 GBq pour la Seine à environ 460 GBq pour la Loire et le Rhône en amont du centre de retraitement. Dans le même temps, les rejets cumulés atteignent 2 880 GBq sur le Rhône en aval du centre de Marcoule. La Garonne, la Meuse, la Moselle et le Rhin ont été soumis à des quantités de 60 à 75 GBq. Les débits moyens annuels varient de 100 m³/s pour la Meuse et la Moselle à 1 750 m³/s pour le Rhône.

Ces valeurs de débits sont représentatives de la partie terminale française des cours d'eau, en aval de l'ensemble des points de rejets. Les segments entre les points rouges

et les carrés reportés sur la [figure 16](#) schématisent la capacité de dilution des rejets par les différents cours d'eau. Plus la longueur du segment est grande, plus la dilution est importante et les concentrations théoriques faibles. *A contrario*, plus la distance entre les deux points est courte, plus la capacité de dilution par la rivière est faible et plus les concentrations sont importantes.

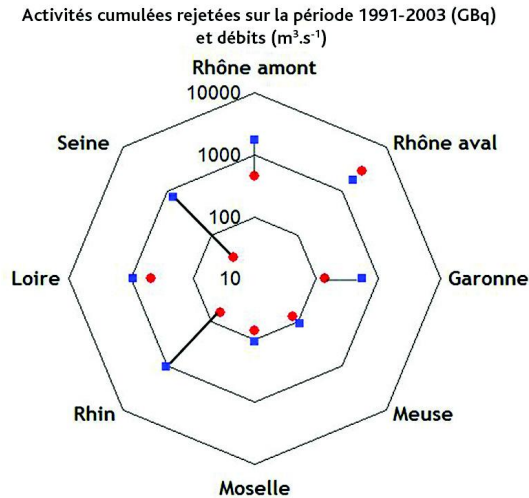


Figure 16. Quantités cumulées en émetteurs gamma rejetées de 1991 à 2003 dans les différents systèmes aquatiques français (points rouges) en GBq et débits moyens annuels des cours d'eau dans leur partie terminale (carrés bleus) en m^3/s . « Rhône amont » et « Rhône aval » font référence à l'amont et l'aval du centre de retraitement de Marcoule (d'après Eyrolle, 2009).

À partir de ces observations, les concentrations théoriques en radionucléides A_f (en $\text{mBq} \cdot \text{l}^{-1}$), tous émetteurs gamma confondus + ^{63}Ni , ont été calculées dans la partie terminale des différentes rivières et fleuves (f) soumis aux rejets des CNPE par la relation [1]. Il s'agit ici de concentrations moyennes sur la période 1991-2003.

$$A_f = \Sigma R_f^a / V \times 10^{-9} \quad [1]$$

Avec R_f^a , somme des activités en émetteurs gamma + ^{63}Ni rejetées dans la rivière ou fleuve f au cours de l'année a , a variant de 1991 à 2003, en GBq, et V , le volume d'eau écoulé sur la période 1991 à 2003 en m^3 .

L'analyse de ces données souligne que les niveaux d'activités les plus importants ont concerné le Rhône en aval du centre de retraitement du combustible irradié de Marcoule, la Meuse, la Moselle et la Loire, avec des concentrations moyennes en

émetteurs gamma supérieures au mBq.l^{-1} (1,2 à 4,0 mBq/L). Des activités en moyenne dix fois inférieures sont attendues dans le Rhin et la Seine ; le Rhône en amont du centre de retraitement et la Garonne présentant des concentrations théoriques intermédiaires (0,6 mBq/L) (figure 17).

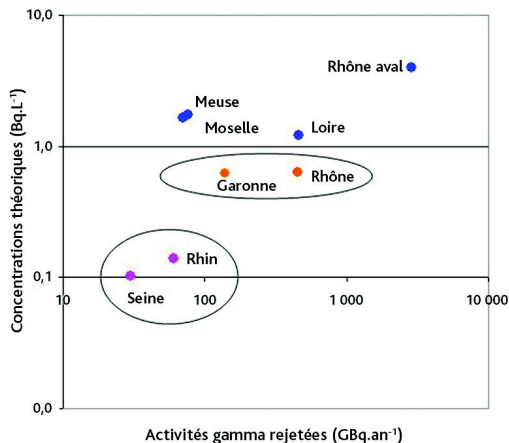


Figure 17. Concentrations théoriques moyennes en émetteurs gamma dans l'eau des fleuves nucléarisés (en mBq/L) tous éléments confondus en fonction des quantités rejetées annuellement entre 1991 et 2003 (en GBq/an) (d'après Eyrolle, 2009).

6.3 Le cas particulier des canaux d'irrigation

En France métropolitaine, près de 40 000 km de canaux servant à la navigation et à l'irrigation sillonnent le paysage. Sur les 8 500 km de voies d'eau navigables, on estime que 4 300 km sont des canaux. Les canaux d'irrigation desservent plusieurs centaines de milliers d'hectares de terrains agricoles dont 80 % sont situés dans le sud-est de la France.

Un canal de transport d'eau présente des différences hydrauliques notables par rapport à une rivière, même canalisée. En effet alors que les dimensions et le débit de la rivière augmentent de l'amont vers l'aval en raison des apports naturels de ses affluents, le canal d'irrigation a un débit et un gabarit qui diminuent de l'amont vers l'aval du fait des prélèvements des divers usagers.

Les canaux sont des hydro-systèmes anthropisés aux caractéristiques propres gouvernées par des conditions hydrologiques atypiques qui peuvent influencer les processus de transfert et le devenir des contaminants classiquement observés au sein des hydro-systèmes naturels.

Depuis 1960, les canaux rhodaniens du Languedoc-Roussillon transfèrent de l'eau du fleuve Rhône vers les départements du Gard et de l'Hérault. L'eau est utilisée aussi bien pour les besoins d'arrosage que pour la production d'eau potable et divers usages industriels, en complément des ressources préexistantes.

En 2011, une étude radioécologique a été menée sur les canaux rhodaniens du réseau hydraulique régional, propriété de la région Languedoc-Roussillon, gérés par BRL, qui transfère de l'eau du fleuve Rhône vers les territoires des départements du Gard et de l'Hérault à des fins d'irrigation et de production d'eau potable (Renaud et Eyrolle, 2011 ; Eyrolle et Renaud, 2012).

Nos résultats ont montré que les activités en radionucléides artificiels au sein des MES et des sédiments sont plus importantes dans la partie terminale du canal relativement à l'entrée (prise d'eau au Rhône), confortant les premières observations de El Ganaoui *et al.* (2001, 2002a, 2002b) sur les sédiments. Elles sont en outre significativement plus élevées qu'au sein des matrices similaires du fleuve (figure 18). *A contrario*, les activités des différents éléments de filiation des chaînes U-Th ainsi que le ^{40}K diminuent de 30 à 50 %, dans la plupart des cas. Ces observations s'expliquent par les différences de texture et de composition des matières solides entre la partie amont du canal et sa partie terminale.

Nos résultats soulignent la ségrégation des particules en suspension selon un gradient longitudinal généré par la décantation préférentielle des matériaux les plus grossiers en amont du système et un enrichissement apparent en particules fines vers l'aval.

Ils montrent également que les teneurs en MO des MES et des sédiments du canal sont plus importantes que celles enregistrées pour des matrices similaires dans le fleuve et qu'elles augmentent de l'amont vers l'aval.

La production primaire favorisée au sein de ces systèmes est très probablement à l'origine de ces observations et pourrait expliquer pour partie les teneurs relativement élevées en certains radionucléides (^{210}Po et tritium organiquement lié).

Dans ces milieux dulçaquicoles particuliers, nos résultats indiquent que les processus biologiques jouent un rôle non négligeable dans le transfert de certains éléments potentiellement contaminants, en particulier le ^{210}Po et le tritium, vers les matières en suspension et vers la chaîne trophique aquatique, mais que ces mécanismes sont toutefois sans incidence sur la qualité des eaux filtrées.

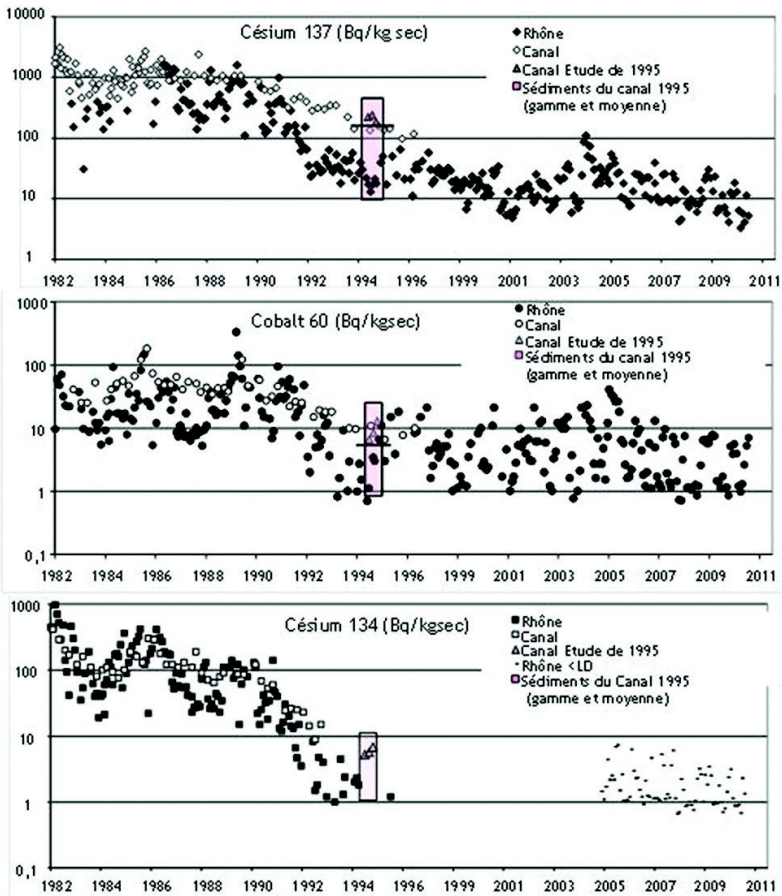


Figure 18. Chroniques des activités massiques en ^{137}Cs , ^{60}Co et ^{134}Cs mesurées dans les matières en suspension et les sédiments du Rhône aval et du canal (d'après Eyrolle-Boyer et al., 2014).

Bibliographie

El Ganaoui O., Boyer P., Eyrolle F., Amielh M. and Anselmet F. Modélisation de l'influence de la dynamique sédimentaire sur les transferts des polluants radioactifs dans les cours d'eau, 4^e congrès international du GRUTTEE, 22-23 novembre 2001, Limoges, France, 2001.

El Ganaoui O., Boyer P., Eyrolle F., Anselmet F., Amielh M., Morello M. Importance of particle classes for radionuclide transfers in rivers: Application to an irrigation canal, Society of Environmental Toxicology and Chemistry, SETAC Europe 12th Annual Meeting, Vienna, Austria, 12-16 May 2002, 2002a.

ElGanaouiO.,BoyerP.andEyrolleF.Modelingandparameterizationofaradioecological water quality model integrating sedimentary dynamics model with several classes of sediments: model presentation and application to the Bas Rhone Languedoc Channel in the low Rhone region, 9th International Symposium on the interaction between sediments and waters, Banff Springs Hotel, Canada, May 5-10, 2002b.

Eyrolle F., Claval D., Gontier G. and Antonelli C. Radioactivity level in major French rivers: summary of monitoring chronicles acquired over the past thirty years and current status, *Journal of Environmental Monitoring*, 7, 800-811, 2008.

Eyrolle F. Chronique des niveaux d'activité au sein des systèmes aquatiques fluviaux français - Radionucléides émetteurs gamma, ⁹⁰Sr et isotopes du plutonium, rapport IRSN/DEI/SESURE 2009-29, 2009.

Eyrolle F. et Renaud P. Qualité radiologique des eaux du canal Bas-Rhône-Languedoc. Synthèse de connaissances, mise en perspective historique et régionale, rapport final, rapport IRSN PRP-ENV/SESURE/2012-07, 2012.

Eyrolle-Boyer F., Renaud P., Le Dore F., Tournieux D., Claval D., Blanchet J. F., Antonelli C., Zebracki M., Cossonnet C., Boulet B., Cagnat X., Devisme A. and Gurriaran R. Radiological characteristics of water transport channels. Example of Rhone Languedoc Roussillon regional network, *Radioprotection*, 49, 2, 123-134, 2014.

Renaud P., Eyrolle F. Synthèse des données disponibles pour l'évaluation de la qualité radiologique des eaux du canal du Bas-Rhône-Languedoc, rapport IRSN/DEI/SESURE/2011-26, 2011.

Chapitre 7

Comportement et coefficients de distribution solide/solution (K_D)

Si la période de décroissance radioactive permet d'apprécier la rémanence physique d'un radionucléide, ses propriétés chimiques permettent de mieux comprendre le comportement de l'élément introduit dans le milieu aquatique et d'évaluer ainsi son devenir dans l'environnement.

Origine et niveaux appréhendés, je travaillais sur le comportement afin d'expliquer et d'anticiper les observations.

Au sein des systèmes aquatiques, les radionucléides artificiels rejetés peuvent être regroupés en deux grandes catégories : les éléments présentant une affinité avec les supports solides, c'est-à-dire les matières en suspension et les sédiments, et les éléments ne présentant pas ou peu d'affinité avec les matières particulaires.

On retrouve dans la première catégorie la majeure partie des contaminants présents à l'état de traces dans l'environnement, notamment les métaux de transition. Les isotopes du cobalt, du nickel, du manganèse, de l'argent se retrouvent ainsi largement associés aux matières solides en suspension ou sédimentées au sein de la plupart des systèmes aquatiques naturels (figure 19). Il en est de même des isotopes du césium, généralement fortement fixés aux argiles de type illite, et des isotopes du plutonium particulièrement associés à la matière organique et aux hydroxydes de fer.

Appartiennent à la seconde catégorie les isotopes de l'antimoine et le tritium, notamment.

Les éléments de la seconde catégorie sont « rapidement » exportés du milieu aquatique continental car ils suivent la dynamique des masses d'eau. Ils sont néanmoins plus facilement bio-assimilables que les éléments de la première catégorie car les espèces dissoutes et colloïdales intègrent généralement plus facilement le milieu biologique que les formes particulaires.

Les éléments du premier groupe présentent en revanche une rémanence plus marquée au sein des systèmes aquatiques continentaux lorsqu'on les compare aux éléments conservatifs des masses d'eau. Ils sont en effet piégés de manière plus ou moins réversible au sein du compartiment sédimentaire. Leur rémanence dans le milieu aquatique dépend alors essentiellement du temps de résidence des masses sédimentaires dans le cours d'eau, les processus de diffusion vers la colonne d'eau d'espèces solubilisées au sein des sédiments par les différents processus biochimiques étant négligeables (Devallois, 2009).

Outre ces deux grandes catégories, certains éléments, notamment l'iode ou encore le tellure, analogue chimique du sélénium, sont indispensables aux organismes vivants et intègrent par conséquent facilement et rapidement les composantes biologiques et la chaîne alimentaire.

Au sein du milieu aquatique continental, les radionucléides rejetés par les installations nucléaires seront d'autant plus rémanents que leur période de désintégration radioactive est longue et que leur affinité avec les supports particulaires est importante (Eyrolle, 2009).

L'affinité d'un élément avec les particules naturellement présentes dans les cours d'eau peut être approchée par la valeur du coefficient de distribution des concentrations entre la phase dissoute et la phase particulaire (K_D).

Le K_D , conventionnellement proportionnel à des L/kg, est le rapport entre la concentration d'un élément en phase particulaire et la concentration en phase dissoute, en un point d'observation et instant donné. Dans l'environnement, il est supposé exprimer une distribution à l'équilibre, au sens thermodynamique du terme. Le K_D dépend, pour un même élément, d'un certain nombre de paramètres dont le pH, la force ionique, la taille et les états de surface des particules.

Mesuré dans l'environnement, il dépend aussi de l'origine de l'élément, c'est-à-dire de son « histoire » géochimique, comme nous allons l'illustrer.

		T1/2 (an)	Rejets moyens 2003 (GBq an-1)
Affinité organismes biologiques	^{131}I	0,02	0,02
	$^{123\text{m}}\text{Te}$	0,33	0,04
Affinité supports solides (MES) ⁽¹⁾	^{58}Co	0,19	0,34
	$^{110\text{m}}\text{Ag}$	0,68	0,33
	^{54}Mn	0,85	0,04
	^{60}Co	5,30	0,28
	^{63}Ni	100,10	0,29
Affinité supports solides (MES) ⁽²⁾	^{134}Cs	2,10	0,08
	^{137}Cs	30,10	0,11
	$^{238}\text{Pu}^*$	87,70	0,09
	$^{239+240}\text{Pu}^*$	>5000	0,30
Pas ou peu d'affinité supports solides (MES)	^{124}Sb	0,16	0,08
	^{125}Sb	2,80	0,09
	^3H	12,30	78400

Figure 19. Caractéristiques de quelques radionucléides artificiels émis par les CNPE et/ou par les centres de retraitement du combustible irradié (*) dans l'environnement aquatique : (1) = métaux de transition ; (2) = autres (d'après Eyrolle, 2009).

7.1 Le cas du Rhône aval

Les données acquises au niveau de la station SORA entre 2002 et 2012 permettent de calculer les K_D pour un certain nombre de radionucléides (figure 20).

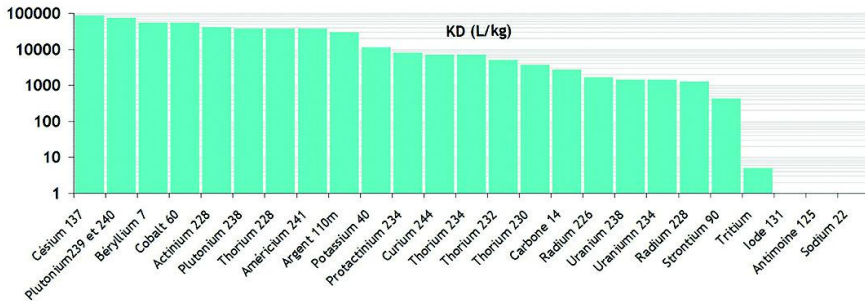


Figure 20. Valeurs moyennes des K_D calculées à partir des données de la surveillance acquises entre 2002 et 2012 dans les eaux du Rhône aval (SORA) ($n = 163$).

Ces valeurs correspondent à des valeurs moyennes reflétant le comportement des éléments d'une manière globale, c'est-à-dire englobant des conditions hydrologiques à la fois de bas débit et de crue. Des actions de recherche sont actuellement en cours de développement afin d'étudier les gammes de variabilité des valeurs de K_D en fonction du débit liquide, de la charge en suspension ou bien encore de la taille des particules mises en jeu.

Les résultats acquis, à ce jour non publiés, indiquent des valeurs de K_D qui varient, exception faite du tritium, de 430 L/kg pour le ^{90}Sr à $8,7 \times 10^4$ pour le ^{137}Cs , pour les métaux de transition et leurs isotopes (^{60}Co , $^{110\text{m}}\text{Ag}$) ainsi que les isotopes du plutonium, ces derniers présentant comme attendu des valeurs élevées ($> 3,0 \times 10^4$ L/kg).

Un coefficient de distribution entre la matière organique particulaire (MOP) et l'eau de l'ordre de 5 (exprimé en L/L d'eau de combustion de la matière organique) est mesuré pour le tritium dans les eaux du Rhône aval.

Ce concept de K_D associé au tritium est ici particulièrement novateur puisque la grande majorité de la communauté scientifique considère que les teneurs en tritium des formes organiques particulières devraient être en équilibre avec les concentrations en tritium du milieu ambiant.

Ces résultats originaux seront développés plus avant dans le chapitre dédié au tritium et au ^{14}C . Notons tout de même qu'un K_D de 5 pour le tritium exprime ici tout simplement un marquage différencié des particules en transit dans la masse d'eau et de l'eau lors de l'observation (l'enregistrement).

Dans le cas du ^{137}Cs , les travaux de Benoît Rolland (2006) soulignent que les coefficients de distribution, déterminés à partir des mesures de ^{137}Cs dissous et particulaires effectuées au cours de sa thèse à partir de prélèvements ponctuels, varient de $4,6 \times 10^4$ L/kg à $1,27 \times 10^5$ L/kg pour une moyenne de $7,7 \times 10^4 \pm 2,3 \times 10^4$ L/kg ($n = 20$), très proche de la valeur obtenue à partir de prélèvements intégrés dans le temps reportée ci-avant.

Les résultats acquis par Benoît Rolland indiquent que ces valeurs de K_D sont toutefois significativement inférieures à la moyenne de $2,8 \times 10^5 \pm 0,5 \times 10^5$ L/kg obtenue en amont du centre de retraitement de Marcoule. Ces différences s'expliquent par les différentes origines du ^{137}Cs en transit dans le Rhône.

Si en amont du centre de retraitement, le ^{137}Cs provient pour l'essentiel du drainage des sols du bassin versant marqué par les retombées atmosphériques (contribution des CNPE négligeable), à l'aval en revanche, une part importante du ^{137}Cs provient des rejets liquides du centre (cf. [paragraphe 4.2.2](#)).

Les différences de K_D entre l'amont et l'aval indiquent ainsi que le ^{137}Cs est fixé de manière plus réversible à l'aval des rejets.

Thomas (1997), déterminant le K_D du ^{137}Cs dans les années 1990 en aval du centre de Marcoule, reporte une valeur encore plus faible ($3,1 \times 10^4 \pm 1,7 \times 10^4$ L/kg) que celle enregistrée par Benoît Rolland en 2005, confortant qu'à cette époque l'essentiel du ^{137}Cs en transit dans le Rhône aval provenait des rejets du centre de retraitement.

Cet exemple illustre que l'origine d'un élément et son histoire au sein de la géosphère peuvent influencer de manière significative sur sa partition solide/solution en un point donné d'observation, que ce soit dans les sols des bassins versants ou dans les cours d'eau.

À moyen et long termes, seules les formes les plus irréversibles du ^{137}Cs demeurent fixées aux particules, conduisant à des valeurs croissantes de K_D au cours du temps ([figure 21](#)).

Ces conclusions reposent toutefois sur l'hypothèse (partiellement vérifiée par le biais de la similitude des débits liquides) que les charges en suspension du Rhône lors des différentes études aient été du même ordre de grandeur. L'exemple qui suit permet d'illustrer ces propos.

7.2 Le cas des cours d'eau de Fukushima

Les K_D calculés pour le ^{137}Cs à partir des analyses faites en 2013 sur les matières en suspension collectées par filtration et les eaux filtrées des hydro-systèmes au nord de la centrale accidentée de Fukushima ont permis d'acquérir les données reportées figure 21.

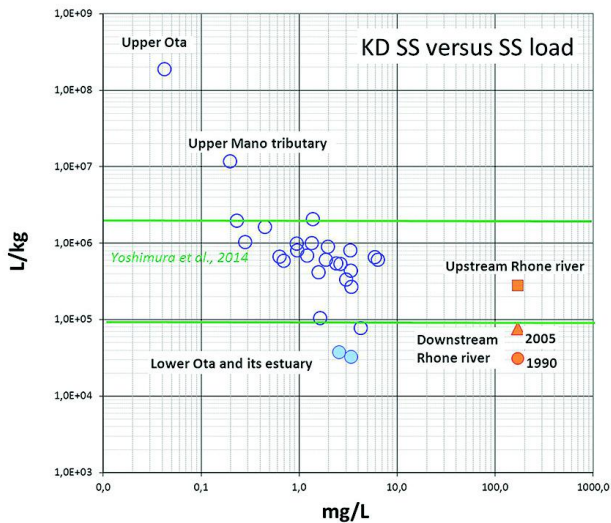


Figure 21. Coefficients de distribution (K_D , en L/kg) du ^{137}Cs enregistrés dans les matières en suspension (SS) des cours d'eau de Fukushima en fonction de la charge en suspension (mg/L) (d'après Eyrolle-Boyer et al., in prep), et comparaison avec le fleuve Rhône.

La majorité des valeurs s'inscrivent dans la partie supérieure de la gamme de valeurs publiées par Yoshimura *et al.* (2014) obtenues à partir de prélèvements de matières en suspension au moyen de trappes à sédiments. Des valeurs de K_D supérieures de près de 2 ordres de grandeur à celles rapportées par Yoshimura *et al.* (2014), sont également mesurées. Ces dernières valeurs correspondent à des points de prélèvements (Upper Ota et Upper Mano tributary) caractérisés par des charges en suspension particulièrement faibles.

Nos résultats fournissent ainsi des données complémentaires à celles déjà publiées et renseignent sur les processus de transfert du ^{137}Cs au sein des cours d'eau pour les particules les plus fines (celles en suspension) et les plus faibles charges (têtes de bassins versants aux exutoires des sols) tout en soulignant le lien entre le K_D et la charge en suspension (figure 21).

Cette exemple illustre en effet particulièrement bien la diminution des valeurs de K_D avec l'augmentation de la charge en suspension qui s'explique de manière théorique par une diminution de la capacité de fixation des espèces dissoutes par les supports solides par compétition de surface (lorsque la concentration des particules augmente et/ou que la taille des grains augmente, la surface développée ou active décroît selon des lois non linéaires en partie inversement proportionnelle au cube du rayon des particules [Cazabat et Veyssie, 1983]).

Les données acquises dans la partie terminale de l'Ota et son estuaire indiquent des valeurs de K_D sensiblement plus basses que l'ensemble des autres valeurs, soulignant dans ce cas les processus de désorption et/ou de coagulation/floculation conduisant à des compétitions ionique et de surface siégeant dans les zones de mélange des eaux douces et des eaux salées.

Il est enfin intéressant de constater que les valeurs de K_D déterminées pour les eaux du fleuve Rhône, dont la charge moyenne est estimée à 170 mg/L, s'inscrivent de manière remarquable dans la relation K_D /charge établie pour les cours d'eau de Fukushima, soulignant le caractère générale de la loi empirique obtenue (figure 22).

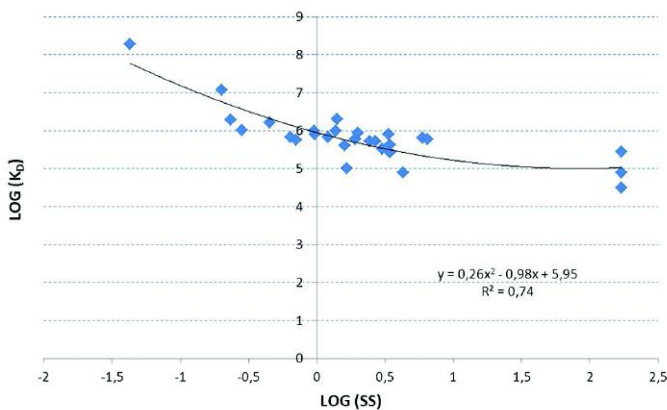


Figure 22. Relation empirique entre le coefficient de distribution (K_D , en L/kg) du ^{137}Cs et la charge en suspension (mg/L) des cours d'eau (non publié).

Bibliographie

Antonelli C., Rolland B. and Eyrolle F. Calibration of the radionuclide fluxes of the Rhône River measured by the Arles Observatory Station (SE France), The 30th Congress of the International Geographical Union "One Earth, Many Worlds", 15-20 August 2004, Glasgow, UK, 2004.

Antonelli C., Eyrolle F., BOULLIER V., Gurriaran R., Cossonnet C. Measurements, quantification and budget recoveries of radionuclide fluxes exported by Rhône River to the Mediterranean Sea, Mesures, estimation et bilan des flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée, I.S. Rivers, 1st international Conference on Integrative Sciences and sustainable development of rivers, 26-28 juin 2012, Lyon, France, book of abstract, p 151, 2012.

Antonelli C., Eyrolle F., Raccasi G. Comment évaluer le transport sédimentaire actuel dans le Rhône aval ? *in*: Le Rhône aval en 21 questions, ouvrage collectif sous la direction de Mireille Provansal, Olivier Radakovitch, François Sabatier et Anne Clémens, ZABR, OSR, Édité par le GRAIE, Lyon, septembre 2012, Q2, 14-15, 2012.

Antonelli C., Zebracki M., ADELL W., Sabatier D., Eyrolle-Boyer F., Gairoard S., Launay M. High frequency measurements of suspended sediment particles in the Rhône River, France, 8^e Conférence Internationale de Géomorphologie de l'AIG - du 27 au 31 août 2013, Paris, France, 2013.

Arnaud M., Charmasson S. et Eyrolle F. Les radionucléides marqueurs des apports solides du Rhône à la mer Méditerranée: Sources, puits et devenir. *in*: Le golfe du lion, un observatoire de l'environnement en Méditerranée. Éditions Quae, Versailles, chapitre 7, 105-119, 2009.

Bresson C., Ansoborlo E., Malard V., Eyrolle F., Fiévet B. *in*: Toxicologie nucléaire environnementale et humaine, Lavoisier 2009, 808 p.- partie 4- chapitre 29 : cobalt, 553-570, 2009.

Eve Sivade E., Raimbault P., Eyrolle F. Quels contaminants le Rhône apporte-t-il à la mer méditerranée ? *in*: Le Rhône aval en 21 questions, ouvrage collectif sous la direction de Mireille Provansal, Olivier Radakovitch, François Sabatier et Anne Clémens, ZABR, OSR. Édité par le GRAIE, Lyon, septembre 2012, Q19, 48-49, 2012.

[Eyrolle F.](#), Louvat D., Métivier J.M. and Rolland B. Origins and levels of artificial radionuclides within the Rhône River waters (France) for the last Forty years: Towards

an evaluation of the radioecological sensitivity of river systems, *Radioprotection*, 40, 4, 435-446, 2005.

Eyrolle F., Rolland B., Antonelli C. and Métivier J.M. Artificial radioactivity within the Rhône River waters – Consequences of floods on activity levels and fluxes toward the Sea, *Environnement Risques et santé*, 5, 2, 83-92, 2006.

Eyrolle F. Des radioéléments artificiels dans les eaux. L'environnement en France – l'état – l'eau, p. 221, Les synthèses de l'IFEN, Édition 2006.

Eyrolle F. Artificial radionuclides, *In: Rivers of Europe, The Rhône River Basin*, chap 7, Olivier J-M., Carrel G., Lamouroux, N., Dole-Olivier M-J., Malard F., Bravard J-P., Amoros C., Academic Press, London, 260-261, 2009.

Eyrolle F. Chronique des niveaux d'activité au sein des systèmes aquatiques fluviaux français - Radionucléides émetteurs gamma, ^{90}Sr et isotopes du plutonium, rapport IRSN/DEI/SESURE 2009-29, 2009.

Eyrolle F., Antonelli C., Raimbault P., Boullier V., Arnaud M. SORA: a high frequency flux monitoring station at the lower Rhône River, proceedings of the 39th CIESM Congress, Venice, Italy, 10-14 May, 2010.

Eyrolle F., Raimbault P., Antonelli C., Ferrand E., Aubert D., Radakovitch O. Suspended Sediment and associated radionuclides transport: 2001-2008 flood monitoring at the lower Rhône river, proceedings of the 39th CIESM Congress, Venice, Italy, 10-14 May 2010.

Eyrolle F., Raimbault P., Antonelli C., Zebracki M., Boullier V., Fournier M., Sivade E. A high frequency flux monitoring station of suspended sediments, nutrients and pollutants at the lower Rhône River (SORA), Station de surveillance et d'enregistrement haute fréquence des flux solides en suspension, des sels nutritifs et des polluants en transit dans les eaux du Rhône aval (Station SORA), I.S. Rivers, 1st international Conference on Integrative Sciences and sustainable development of rivers, 26-28 juin 2012, Lyon, France, book of abstract, 232 p., 2012.

Eyrolle F., Radakovitch O., Raimbault P., Charmasson C., Antonelli C., Ferrand E., Raccasi G., Aubert D. and Gurriaran R. Consequences of hydrological events on suspended sediment and associated radionuclide deliveries from the Rhône River towards the Mediterranean Sea, *Journal of Soils and Sediments*, 12, 1479-1495, 2012.

Eyrolle-Boyer F. Éléments d'information sur la qualité radiologique des eaux du canal du Bas-Rhône-Languedoc. Quoi de neuf depuis les études de 1995-2000 ? Restitution d'une étude auprès de la société du Bas Rhône Languedoc, 22 novembre 2012, Nîmes, 2012.

Eyrolle F. et Renaud P. Qualité radiologique des eaux du canal Bas-Rhône-Languedoc. Synthèse de connaissances, mise en perspective historique et régionale, rapport final, rapport IRSN PRP-ENV/SESURE/2012-07, 2012.

Eyrolle-Boyer F. Éléments d'information sur la qualité radiologique des eaux du canal du Bas-Rhône-Languedoc. Quoi de neuf depuis les études de 1995-2000 ? Note technique IRSN PRP-ENV/SESURE/2013-40, 2013.

Eyrolle-Boyer F. Niveaux de radioactivité dans les eaux du Rhône aval - Bilan annuel 2012, rapport PRP-ENV/SESURE/2013-54, 2013.

Eyrolle F. Le devenir des particules lors des événements climatiques extrêmes dans le Golfe du Lion, ANR EXTREMA (contrat N° ANR-06-VULN-005), Les cahiers de l'ANR, N°7, avril 2013, p. 118, 2013.

Eyrolle-Boyer F. Troisième bilan radioécologique décennal du centre de production d'électricité de Tricastin (2012), rapport PRP-ENV/SESURE/2014-13, 2014.

Eyrolle-Boyer F. Niveaux de radioactivité dans les eaux du Rhône aval - bilan annuel 2013, rapport PRP-ENV/SESURE/2014-36, 2014.

Eyrolle-Boyer F. Flux et bilan des principaux radionucléides d'origine artificielle présents dans le Rhône, Journées Techniques de la SFRP, Eau, Radioactivité et Environnement, 3 et 4 décembre 2014, Paris, 2014.

Eyrolle-Boyer F., Antonelli C., Renaud P., Tournieux D. Origins and trend of radionuclides within the Rhône River over the last decades, *Radioprotection*, 50, 1, 27-34, 2015.

Eyrolle-Boyer F., Antonelli C., Raimbault P. SORA Observatory Station in Arles - Origin and current status of radioactivity levels in the Rhône River, I.S. Rivers, 2^e conférence internationale, 22 au 26 juin 2015, Lyon, FRANCE, 2015.

Gairoard S., Radakovitch O., Eyrolle F., Ludwig W., Cossa D. Flux de matières solides et liquides des bassins versants français à la mer Méditerranée - bilan des connaissances et recommandations pour un suivi optimisé, rapport contractuel pour l'Agence de l'eau RMC, 85 p., 2012.

Maillet G., Eyrolle F. Évolution des flux sédimentaires et des contaminants du Rhône à l'échelle séculaire, *in*: Encyclopédie de Camargue, nature et culture du delta du Rhône, Éditeur Buchet-Chastel (Arles), 352 p., 2013.

Masson O., Eyrolle F., Antonelli C. Flux radioactifs dans le Rhône - Le Rhône est-il pollué par les radionucléides artificiels ? *in*: Le Rhône en 100 questions, ouvrage collectif sous la direction de J.P. Bravard et A. Clemens – ZABR (Zone atelier du Bas Rhône), Édité par le GRAIE, Lyon, juin 2008, 178-181, 2008.

Renaud P., Eyrolle F. Synthèse des données disponibles pour l'évaluation de la qualité radiologique des eaux du canal du Bas-Rhône-Languedoc, rapport IRSN/DEI/SESURE/2011-26, 2011.

Chapitre 8

Impact sanitaire : la qualité radiologique des eaux de consommation

Les radionucléides émettent en se désintégrant des particules alpha, bêta ou du rayonnement gamma. Ces particules et rayonnements conduisent lorsqu'ils traversent ou sont interceptés par les organismes vivants à des effets biologiques plus ou moins marqués à court, moyen et long termes.

Hors expositions médicales, la radioactivité naturelle est la principale source de notre exposition aux rayonnements ionisants.

La ressource en eau est un bien précieux. Préserver sa qualité est un enjeu fondamental soutenu par différentes instances décisionnelles que ce soit à l'échelle régionale, nationale ou européenne.

Unité délaissée un temps, je décidais enfin de m'intéresser au « becquerel », c'est-à-dire à la notion de « radiotoxicité » des radionucléides. Je m'initiais aux calculs de dose afin d'évaluer, dans le cadre d'une expertise, la qualité radiologique des eaux destinées à la consommation humaine.

8.1 L'exposition aux rayonnements et la réglementation

En France, l'exposition aux rayonnements ionisants d'origine naturelle est en moyenne de 2,4 mSv/an. Elle est due principalement au radon présent dans l'air, aux rayonnements telluriques et cosmiques, dont environ seulement 0,2 mSv/an dû à l'ingestion d'aliments et d'eau (figure 23) (IRSN, 2006).

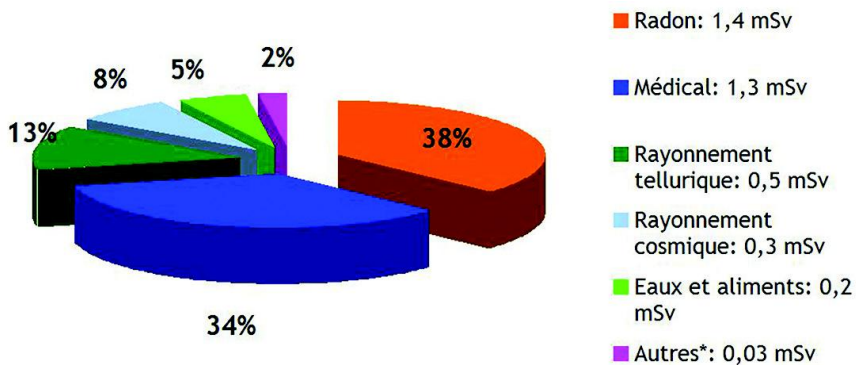


Figure 23. Origine de l'exposition annuelle moyenne de la population française aux rayonnements ionisants (IRSN, 2006) ; * : dont rejets et retombées liés à l'utilisation de l'énergie nucléaire (d'après Eyrolle et Renaud, 2012).

Pour convertir l'activité d'un radionucléide inhalé ou ingéré (becquerel) en une dose efficace (sievert) permettant d'évaluer l'impact sanitaire, on utilise un facteur de dose exprimé en Sv/Bq caractérisant le niveau de radiotoxicité de l'élément. Les facteurs de dose (ou DPUI : dose par unité d'incorporation) tiennent compte notamment du métabolisme des radionucléides dans l'organisme une fois ingérés ou inhalés, de la nature et de l'énergie des rayonnements émis, de la radiosensibilité des tissus, de l'âge de l'individu...

La figure 24 présente les facteurs de dose (DPUI) pour les principaux radionucléides naturels généralement présents dans les eaux douces de surface ou de subsurface.

Cette représentation permet de mettre en perspective la radiotoxicité des principaux radionucléides d'origine artificielle pouvant être présents dans les cours d'eau.

Les quantités respectives de ces différents éléments dans l'eau consommée conditionnent *in fine* la dose totale efficace permettant d'évaluer l'impact sanitaire.

Le ^{210}Pb et les radiums, par exemple, présentent des facteurs de dose plus de 10 000 fois plus élevés que celui du ^3H . Pour atteindre une dose efficace équivalente à celle des radiums, le tritium devra être ainsi en quantité 10 000 fois supérieure.

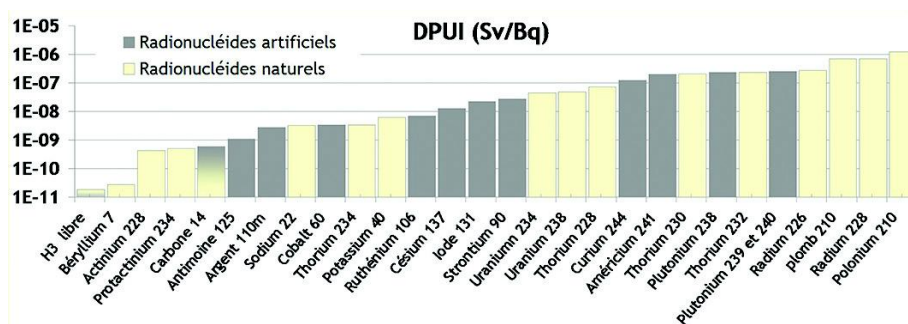


Figure 24. Exemple de facteurs de dose (ou DPUI : dose par unité d'incorporation) efficace engagée en cas d'ingestion par un adulte (CIRP 72, 1996) ; en foncé les radionucléides d'origine artificielle (d'après Eyrolle-Boyer et al., 2014).

Les modalités de contrôle de la qualité radiologique des eaux destinées à la consommation humaine sont fixées par l'[arrêté du 12 mai 2004](#) en application de l'[article R.1321-20](#) du code de la santé publique. Ce décret fixe des indicateurs radiologiques : l'activité alpha globale, l'activité bêta globale, l'activité du tritium et la dose totale indicative (DTI).

La DTI est la dose efficace engagée résultant pour un adulte de l'incorporation de tous les radionucléides naturels et artificiels détectés dans de l'eau de distribution consommée à raison de 2 L/j soit 730 L/an.

Si l'eau distribuée ne dépasse pas 0,1 Bq/L en activité alpha globale, 1 Bq/L en activité bêta globale résiduelle et 100 Bq/L de [tritium](#), la DTI est réputée ne pas dépasser la valeur de référence de 0,1 mSv/an (100 $\mu\text{Sv}/\text{an}$).

Si les activités dépassent ces limites, la DTI est susceptible de dépasser cette valeur de référence et des mesures complémentaires doivent être réalisées pour caractériser les activités des radionucléides en cause et évaluer plus précisément la DTI.

8.2 La qualité radiologique des eaux du Rhône et des fleuves côtiers proches

Nos travaux réalisés sur le Rhône ont permis de souligner qu'au cours des cinquante dernières années, l'activité alpha globale de l'eau filtrée du Rhône aval n'a jamais dépassé 0,1 Bq/L. Les résultats montrent que jusqu'en 1990 l'activité bêta globale était très influencée par les rejets de Marcoule (contribution des ^{106}Ru , ^{90}Sr et ^{125}Sb , notamment) avec une moyenne de 0,3 Bq/L sur la période 1978-1990. L'activité bêta globale résiduelle a diminué en moyenne d'un facteur 2 sur la période 1991-1998 avec l'installation de la nouvelle station de traitement des effluents. Enfin, avec l'arrêt du retraitement du combustible en 1997, cette activité bêta globale résiduelle a encore diminué de moitié avec une moyenne de 0,07 Bq/L depuis 1999.

L'activité du **tritium** dans les eaux du Rhône, comme dans celle du canal, n'a jamais dépassé 100 Bq/L. Ces 10 dernières années, l'activité du tritium observée reste inférieure à 30 Bq/L et le plus souvent inférieure à 10 Bq/L. Ainsi, aucune des limites d'activités alpha globale, bêta globale et en tritium n'a donc été dépassée dans l'eau filtrée du Rhône et du canal au cours des 15 dernières années. La dose totale indicative est donc restée inférieure à 0,1 mSv/an.

Les données disponibles nous ont permis de déterminer plus précisément la DTI à partir des différentes activités mesurées dans les eaux filtrées du Rhône aval. Les DTI calculées sont de l'ordre de 3 fois inférieures à la DTI de référence. Elles sont principalement imputables à la radioactivité naturelle (89 % en 1982 et plus de 99 % en 2008) et notamment aux radiums 226 et 228.

Nos résultats ont également permis de montrer que bien que le **tritium** représente aujourd'hui plus de 98 % de la radioactivité des eaux filtrées du Rhône, il ne contribue qu'à moins de 1 % de la DTI en raison d'une radiotoxicité près de 40 000 fois inférieure à celle du ^{228}Ra par exemple.

Le ^{14}C , autre élément prépondérant des rejets de l'industrie nucléaire ne participe qu'à hauteur de 0,01 % à la DTI liée à la consommation de l'eau de l'un des hydro-systèmes des plus nucléarisés au monde.

À titre de comparaison, nous nous sommes intéressés aux fleuves côtiers régionaux non soumis aux rejets de l'industrie nucléaire, puis aux données acquises à l'échelle nationale. Ainsi, nous avons montré que les DTI associées aux eaux filtrées de l'Hérault et de l'Orb sont de 11,6 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ et 3,5 $\mu\text{Sv}/\text{an}$ sur la base des éléments ayant pu être mesurés. Elles dépendent à plus de 99,99 % des radionucléides d'origine naturelle présents et quantifiés, en particulier le ^{210}Po et les isotopes du radium (226 et 228), du thorium (228, 230, 232 et 234) et de l'uranium (234, 235 et 238) (figure 25).

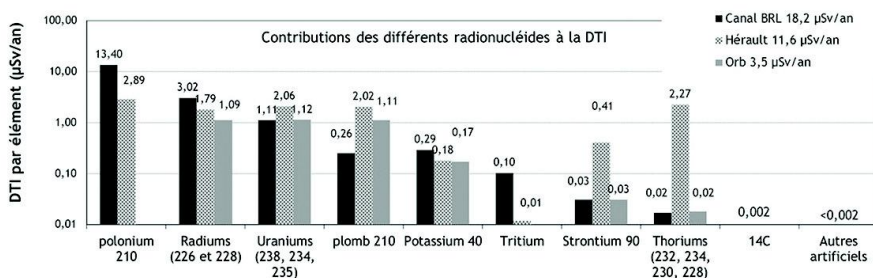


Figure 25. Contributions des différents radionucléides à la DTI lorsqu'ils ont été mesurés en 2011 dans l'eau filtrée du canal, de l'Hérault et de l'Orb (d'après Eyrolle-Boyer et al., 2014 b).

Les valeurs des DTI dépendent fortement des éléments quantifiés, et, par conséquent, ne peuvent pas être directement comparées les unes aux autres. Ainsi, par exemple, le ^{210}Po , élément de filiation de l' ^{238}U de forte radiotoxicité, a été mesuré dans les eaux du canal (Rhône aval) à des niveaux d'activité 5 fois supérieurs à ceux de l'Hérault et n'a pas été détecté dans l'Orb. Cet élément mesuré dans l'eau du canal explique à lui seul l'essentiel de la DTI. L'absence de détection de cet élément dans l'eau de l'Orb explique *a contrario* la faible valeur de DTI obtenue pour l'eau filtrée de ce fleuve.

Nos travaux ont montré que dans tous les cas les DTI sont très inférieures à la valeur de référence de 0,1 mSv/an que ce soit dans le Rhône aval, l'Orb ou l'Hérault, et que la contribution à la DTI des radionucléides artificiels détectés dans ces hydro-systèmes est négligeable (< 0,01 %).

À l'échelle nationale, sur les 3 400 analyses règlementaires de routine réalisées par l'IRSN entre 2004 et 2008, 764 ont dépassé la valeur guide d'activité alpha globale (0,1 Bq/L) et ont donc fait l'objet d'analyses complémentaires destinées à évaluer la DTI. 12 % des DTI évaluées sur la base de ces mesures dépassent la valeur de référence de 0,1 mSv/an et atteignent pour certaines 1 mSv/an (Loyen et Thomassin, 2009 ; Loyen et Brassac A., 2012).

Dans les départements du Gard et de l'Hérault, les DTI correspondant aux analyses faites sur les échantillons d'eau de toutes origines vont de 5 à 176 μ Sv/an, pour une moyenne de 25 μ Sv/an, très proche de la DTI liée à la consommation d'eau du Rhône aval.

Bibliographie

Eyrolle F. et Renaud P. Qualité radiologique des eaux du canal Bas-Rhône-Languedoc. Synthèse de connaissances, mise en perspective historique et régionale, rapport final, rapport IRSN PRP-ENV/SESURE/2012-07, 2012.

Eyrolle-Boyer F., Renaud P., Tournieux D., Zebracki M., Cossonnet C., Cagnat X., Loyen J. Qualité radiologique des eaux filtrées du Rhône aval au cours des dernières décennies, journées de la Société française de radioprotection (SFRP), 11-13 juin 2013, Bordeaux-Lac, France, 2013.

[Eyrolle-Boyer F.](#), Renaud P., Claval D., Tournieux D., Le Dore F., Blanchet J. F., Loyen J., Antonelli C., Cossonnet C. and Cagnat X. Radiological quality Assessment of the Rhône River filtered waters at its lower course in the framework of water production for human consumption with historical and regional perspectives, *Radioprotection*, 49, 3, 183-193, 2014a.

Eyrolle-Boyer F. Flux et bilan des principaux radionucléides d'origine artificielle présents dans le Rhône, Journées Techniques de la SFRP, Eau, Radioactivité et Environnement, 3 et 4 décembre 2014, Paris, 2014b.

Renaud P., Eyrolle F. Synthèse des données disponibles pour l'évaluation de la qualité radiologique des eaux du canal du Bas-Rhône-Languedoc, rapport IRSN/DEI/SESURE/2011-26, 2011.

Chapitre 9

Flux de radionucléides vers le milieu marin et les bilans de matière

La connaissance des flux de radioactivité délivrés au domaine marin par les fleuves est un paramètre fondamental dans le cadre de l'évaluation des risques sanitaires liés à l'utilisation des ressources marines, à court, moyen et long termes.

Outre les apports atmosphériques et les apports d'eau douce *via* les transferts de subsurface, les flux terrigènes délivrés par les continents vers les océans par les écoulements de surface sont des termes sources conséquents d'eau douce, de carbone, de sels nutritifs et de particules pour le milieu marin.

Ils peuvent être également dans certains cas des vecteurs de contaminants organiques, inorganiques, stables ou radioactifs.

Je m'intéressais alors aux flux en transit et aux exports vers les océans.

9.1 Le Golfe du Lion

Le Rhône contribue à près d'un tiers des apports d'eau douce en mer Méditerranée (Ludwig *et al.*, 2009) et représente, avec le Pô, le plus important pourvoyeur de sédiments en suspension (Syvitski et Kettner 2007). Le Rhône fournit plus de 80 % des apports solides entrant dans le Golfe du Lion (Raimbault et Durrieu de Madron 2003) et y exerce une influence majeure en augmentant la production primaire (Bosc *et al.*, 2004).

Outre le Rhône, les petits fleuves côtiers alimentent également le Golfe du Lion en apports terrigènes, principalement lors des crues éclairés les caractérisant. Le plateau continental du Golfe du Lion, l'un des plus vastes de Méditerranée, présente de ce fait une exceptionnelle productivité biologique et contient des ressources halieutiques considérables.

Le Rhône constitue historiquement un terme source considérable de contaminants pour le système côtier du Golfe du Lion, en particulier pour les composés organiques persistants (PCB, Lindane, composés bromés), les éléments traces métalliques (Radakovitch *et al.*, 2008) et bien entendu les radionucléides artificiels.

La Méditerranée est, comme toutes les mers, un bassin de concentration (bassin d'évaporation) aux imports/exports d'eau contraints au niveau des détroits, en particulier celui de Gibraltar pour sa partie nord occidentale. Elle constitue dans ce contexte, un système particulièrement vulnérable aux flux de pollution, en particulier ceux d'origine terrigène.

9.1.1 Les flux de plutonium

Les flux en isotopes du plutonium transférés par le Rhône en Méditerranée présente une double singularité remarquable tant à l'échelle nationale qu'à l'échelle globale.

En France, un centre de retraitement du combustible irradié étant implanté dans la vallée du Rhône, des rejets des isotopes du plutonium sont effectués dans ce fleuve, Ces flux terrigènes de plutonium sont une exception à l'échelle globale car les rejets

des centres de retraitement se font partout ailleurs directement dans le milieu marin (cas de Sellafield ou de La Hague, notamment).

Les isotopes 238 , 239 et 240 du plutonium sont des radionucléides émetteurs alpha à vie longue ($T_{1/2}$ de plusieurs siècles à plusieurs millions d'années) et de forte radiotoxicité ($DPUI > 2 \times 10^{-7}$ Sv/Bq). Ces éléments constituent par ailleurs d'excellents traceurs des dynamiques sédimentaires au débouché du Rhône ou bien même à l'échelle du Golfe du Lion (Charmasson, 1998 ; Arnaud *et al.*, 2009).

Les isotopes du plutonium drainés par les eaux du Rhône proviennent du lessivage du bassin versant soumis aux retombées atmosphériques globales et des rejets liquides de l'usine de retraitement du combustible irradié de Marcoule. Nos travaux ont permis la reconstruction des flux en isotopes du plutonium depuis le milieu du XX^e siècle par interpolation puis extrapolation, tel que décrit dans Eyrolle *et al.* (2004) (figures 26 et 27).

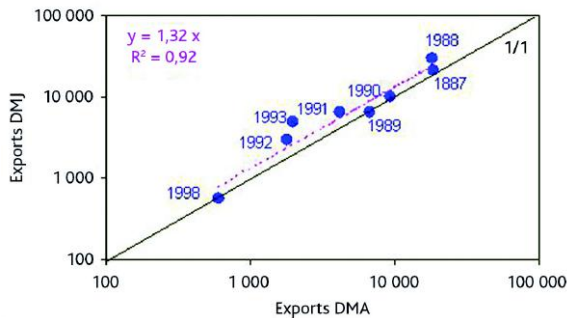


Figure 26. Activités en $^{239+240}\text{Pu}$ exportées (MBq/an) calculées en considérant le débit moyen annuel (DMA) et les débits moyens journaliers (DMJ) disponibles pour plusieurs années entre 1887 et 1998 (d'après Eyrolle *et al.*, 2004).

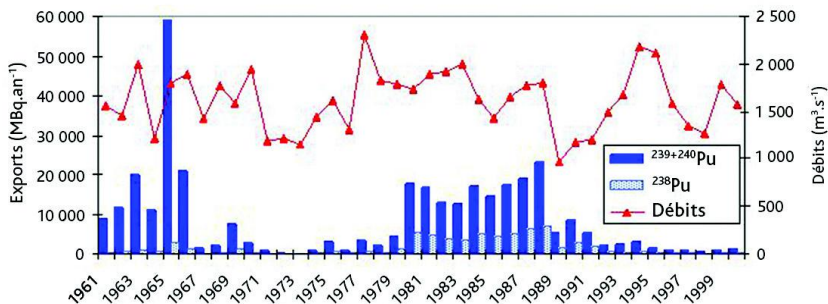


Figure 27. Activités en $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{238}Pu exportées annuellement par le Rhône vers la mer et débits annuels du Rhône en Arles depuis 1961 (en MBq/an) (d'après Eyrolle et Duffa, 2002).

La somme des apports du bassin versant du Rhône et des rejets effectués par l'installation de Marcoule a conduit à la quantification des apports totaux de plutonium au fleuve.

Ainsi, les travaux ont permis d'estimer qu'entre 1945 et 2002, période au cours de laquelle les rejets ont été les plus importants, 537 ± 100 GBq de $^{239+240}\text{Pu}$ et 96 ± 6 GBq de ^{238}Pu ont été introduits dans le fleuve. Près de 90 % sont issus des activités de retraitement des combustibles irradiés réalisées sur le site de Marcoule. Sur la même période, les travaux indiquent que les quantités totales exportées vers le milieu marin ont été de 365 ± 67 GBq pour le $^{239+240}\text{Pu}$ et 67 ± 12 GBq pour le ^{238}Pu .

Outre la mise à disposition de ces chiffres clés pour la communauté scientifique marine, ce travail a permis de mettre en évidence, par bilan de masse, le stockage d'une proportion non négligeable de ces radionucléides dans les sédiments du fleuve aval (figure 28).

Ces conclusions fortes initieront quasiment dix années d'études et de recherches sur les stockages/déstockage de la radioactivité dans les sédiments de la partie terminale du Rhône, et notamment le travail de thèse de Benoît Rolland.

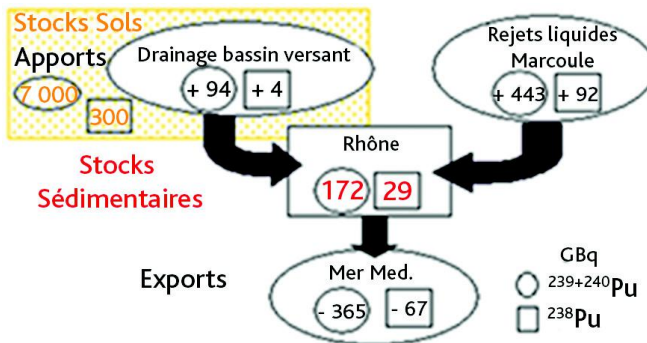


Figure 28. Bilan des stocks et flux de plutonium au sein du système rhodanien de 1945 à 2000 (d'après Eyrolle et al., 2002).

9.1.2 Autres flux radioactifs

Si le plutonium et ses isotopes méritaient à eux seuls une attention particulière, les radionucléides d'origine naturelle ou artificielle, régulièrement mesurés dans les eaux du Rhône aval par la station SORA au fil des années, ont également fait l'objet d'investigations. Les travaux d'Antonelli (2010,2011, 2013, notamment) permettent

de souligner que l'essentiel des flux de radioactivité au milieu marin est d'origine naturelle.

Le ^{40}K représente à lui seul un flux de 2 à 4 TBq/an. Les différents éléments de filiation des chaînes U-Th contribuent individuellement, lorsqu'ils ont pu être quantifiés, à hauteur de 50 à 300 GBq/an, illustrant à nouveau que la radioactivité naturelle des eaux de surface se distribue en France de manière proportionnée entre le ^{40}K et les chaînes de l' ^{238}U et du ^{232}Th .

Les flux de radionucléides artificiels, tous émetteurs confondus, sont dans des gammes de valeurs sensiblement plus basses, de 80 à 130 GBq/an (hors tritium et ^{14}C), l'essentiel (plus de 98 %) étant porté par les ^{137}Cs , ^{90}Sr et ^{60}Co . Les flux de ^{14}C pourraient être de l'ordre de 0,6 à 3 TBq/an (exports solides du Rhône de 2 à 10×10^6 /an), dont la grande majorité (> 99,99 %) transférée au milieu marin sous forme de particules organiques.

Quant aux flux de tritium, ils sont estimés à plus de 100 TBq/an (tritium libre). Les flux de tritium organiquement lié pourraient être de l'ordre de 2 à 10 GBq/an.

Les résultats acquis sur le fleuve indiquent en outre que les bilans matières sont équilibrés (figure 29). Dans la grande majorité des cas, les flux annuels mesurés dans la partie terminale du fleuve sont globalement similaires aux quantités introduites par les industries nucléaires au cours de l'année, à quelques exceptions près.

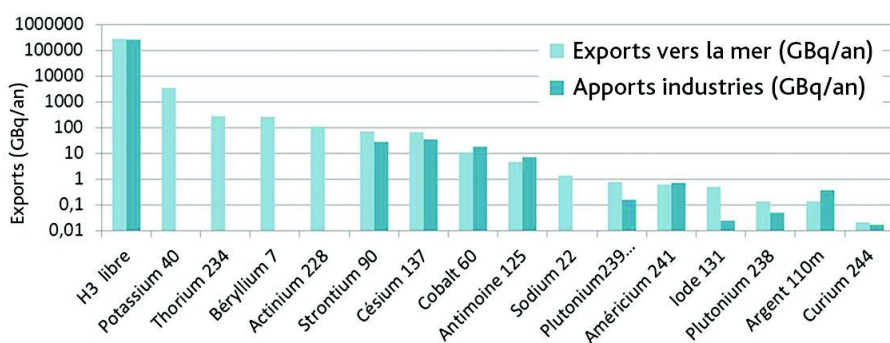


Figure 29. Imports/exports des principaux radionucléides artificiels en transit dans le Rhône aval – moyennes 2008-2011 (d'après Eyrolle-Boyer et al., 2014).

Des bilans exports/importes excédentaires sont enregistrés en particulier pour les ^{137}Cs , ^{90}Sr et les isotopes du plutonium, permettant d'apprécier les apports par lessivage du bassin versant ou issus des reprises sédimentaires. Des bilans excédentaires sont également observés pour l' ^{131}I , identifiant les rejets effectués par les centres hospitaliers.

Ces résultats indiquent qu'à l'échelle de l'année la grande majorité des radionucléides artificiels rejetés par les industries nucléaires rhodaniennes parvient au milieu marin.

9.2 Les flux délivrés par les cours d'eau contaminés de Fukushima

Les bassins versants côtiers touchés par l'accident de FDNPP représentent, pour de nombreuses années encore, un terme source important de contamination radioactive pour le milieu marin, en particulier pour les zones côtières.

Les résultats préliminaires obtenus dans le cadre du projet [NEEDS HAMUSUTA](#) (2013) et de l'[ANR AMORAD](#) (2013-2018) suite à une campagne de terrain réalisée à l'automne 2013 sur les bassins versants contaminés au nord de FDNPP (du nord au sud : Mano, Nitta, Ota, Odaka et Ukedo) soulignent de bonnes corrélations entre les activités mesurées dans les matières en suspension ou les sédiments de fond et les activités surfaciques moyennes estimées dans les sols des bassins versants en amont des points de prélèvement ([figure 30](#)), validant à la fois les mesures de terrain et les estimations faites des dépôts atmosphériques.

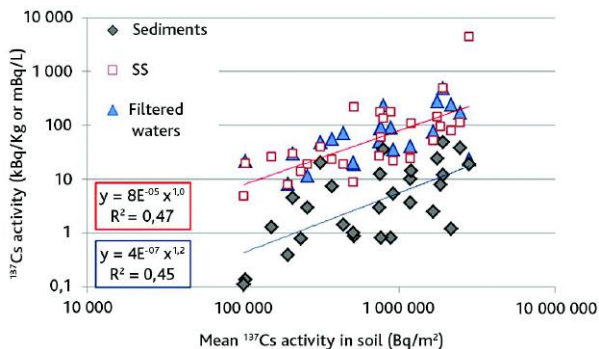


Figure 30. Relations entre les activités en ^{137}Cs mesurées dans les sédiments, les matières en suspension (SS) et les eaux filtrées des petits fleuves côtiers (Mano, Nitta, Ota, Odaka et Ukedo) et les activités surfaciques moyennes dans les sols des sous bassins versants en amont des points de prélèvements (d'après Eyrolle-Boyer et al., submitted).

À partir de ces données acquises pour des conditions hydrologiques proches des moyennes annuelles, on a pu estimer que les flux de ^{137}Cs délivrés au milieu marin sur cette frange littoral seraient de l'ordre de 350 ± 69 GBq/an, en extrapolant les flux instantanés mesurés à l'année (figure 31). Ces flux représenteraient moins de 0,02 % des stocks estimés dans les sols (1 887 TBq) mais ne tiennent bien entendu pas compte des épisodes de typhons.

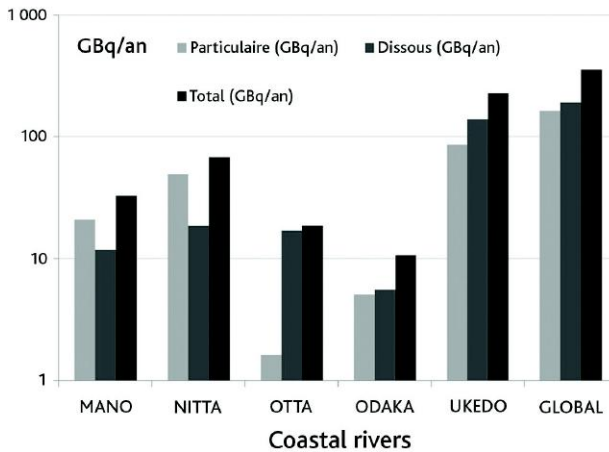


Figure 31. Estimation des flux solides et des flux dissous de ^{137}Cs délivrés annuellement par les cours d'eau au nord de FDNPP en dehors des épisodes de typhons (d'après Eyrolle-Boyer et al., submitted).

Si l'on considère que 70 à 90 % des exports annuels de radio césium se font lors des événements extrêmes, tel qu'observé par Rolland (2006) dans le cas du Rhône, alors le flux annuel global de ^{137}Cs délivré par les 5 bassins versants côtiers étudiés est évalué à 1,2 à 3,5 TBq/an.

Kitamura *et al.* (2014) indique que parmi les 14 bassins versants les plus fortement impactés par les retombées atmosphériques de l'accident, ces 5 bassins versants représentent 48 % des flux de radioactivité délivrés à l'océan Pacifique, l'Abukuma, drainant un bassin orienté vers l'ouest et débouchant plus au nord de notre zone d'étude, représentant à lui seul 38 % des flux.

Nous avons estimé un flux annuel global de ^{137}Cs de 2,5 à 7,3 TBq/an, soit des valeurs très proches des estimations de Kitamura (8,4 TBq/an), ou pour le moins du même ordre de grandeur.

La campagne de terrain de 2014 a été marquée par le passage de deux typhons qui ont permis d'avoir des conditions de débits et de charges nettement différenciées de celles de la campagne de 2013. En particulier, l'échantillonnage des exutoires des cinq bassins versants a été doublé suite au passage du typhon Vongfong le 13 octobre 2014. Les résultats d'analyses permettront de caractériser les flux pour des modes de transferts événementiels produits par le passage des typhons et de les confronter aux premières estimations de flux.

Il est intéressant de souligner, à titre d'illustration, que les flux de ^{137}Cs délivrés au Pacifique par les fleuves côtiers contaminés par les retombées atmosphériques de l'accident de FDNPP (estimés à plusieurs TBq/an, seraient ainsi plus de 500 fois supérieurs à ceux délivrés par le Rhône en Méditerranée (quelques dizaine de GBq/ an), fleuve considéré comme l'un des plus nucléarisés au monde.

9.3 La partition solide/solution des flux

Si les flux terrigènes de radioactivité délivrés aux océans représentent des données d'entrée clés dans le cadre de la protection de l'environnement marin, la connaissance de leur partition entre les phases soluble (et colloïdale) et particulaire est également un enjeu majeur.

Si les flux dissous exportés sont généralement conservés dans les zones d'interface eau douce/eau de mer, les flux particulaires sont à la merci des processus de coagulation, floculation et de désorption par compétition ionique ou compétition de surface.

Il peut en résulter des flux nets, entrants dans le domaine marin, parfois significativement différents des flux bruts, sortants du domaine terrestre (Dabrin, 2009).

Les flux particulaires et flux dissous constitueront en outre des données d'entrée fondamentales pour les modèles hydro-sédimentaires du milieu marin côtier.

Dans le cadre de ces recherches, je citerai deux exemples : la partition des flux au débouché du Rhône et celle observée dans les cours d'eau contaminés de Fukushima.

Les mesures à haute fréquence réalisées par la station SORA sur le Rhône aval ont permis d'acquérir des jeux de données conséquents sur les activités de nombreux radionucléides artificiels et naturels permettant d'évaluer les flux dissous et particulaires de l'évènement à l'année.

Les résultats présentés [figure 32](#) ont été obtenus en moyennant les activités massiques et volumiques acquises au cours de l'année 2013. Ils intègrent ainsi à la fois des épisodes de crue de diverses origines et des périodes de faible débit et sont donc représentatifs des écoulements de l'année dans leur ensemble.

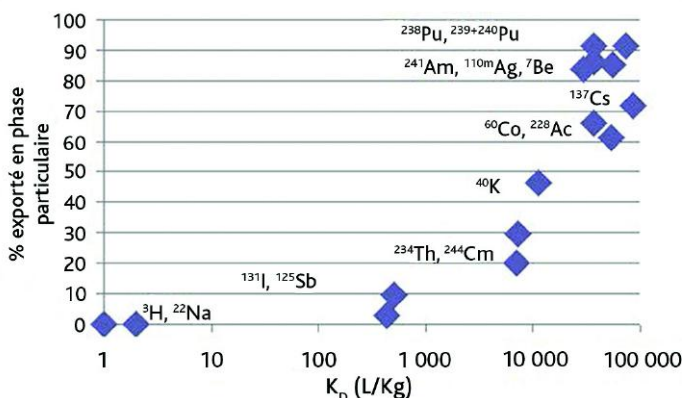


Figure 32. Exports particulaires des différents radionucléides du Rhône vers la mer (%) en fonction de leur coefficient de distribution solide/solution (K_d) (d'après Eyrolle-Boyer et al., 2014).

Ces résultats indiquent que les taux d'export des radionucléides sous forme solide sont extrêmement variables d'un élément à l'autre, en relation avec les coefficients de partition (K_d). Comme attendu, le tritium, l' ^{131}I , le ^{22}Na et le ^{125}Sb , caractérisés par des coefficients de distribution faibles ($< 1\,000$), sont ainsi préférentiellement exportés sous forme dissoute, alors que les isotopes des actinides (^{241}Am et $^{238,239,240}\text{Pu}$) et des métaux de transition ($^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{60}Co), présentant des coefficients plus élevés (jusqu'à $8,7 \times 10^4$ L/kg dans le cas du ^{137}Cs), sont majoritairement transférés associés aux particules.

L'étude de la variabilité des valeurs de K_d en fonction de l'hydrologie permettrait une lecture plus fine des processus, en particulier ceux associés aux reprises sédimentaires (perspectives de recherches).

La partition solide/solution des flux a été étudiée tout naturellement au sein des hydro-systèmes côtiers de la zone contaminée de Fukushima. D'une part afin de cerner les fonctions de transfert associées aux processus de lessivage des sols des bassins versants contaminés, d'autre part afin de fournir des données d'entrée permettant de renseigner les valeurs des paramètres des modèles hydro-sédimentaires développés dans le domaine marin.

Les résultats préliminaires acquis en 2013 ([figure 31](#)) indiquent que pour des conditions hydrologiques représentatives des conditions d'écoulements moyens (hors épisodes extrêmes), les flux dissous de radio-césium exportés par l'ensemble des différents petits fleuves côtiers contaminés au nord de FDNPP sont similaires aux flux solides.

En revanche, la partition solide/solution des flux fluctue d'un bassin versant à l'autre. Si les flux solides de radio-césium sont majoritaires sur les cours d'eau de la Mano et de la Nitta (bassins versants les plus éloignés de la centrale), ils sont en revanche relativement plus faibles que les flux dissous dans le cas de l'Ota et du Takase (bassin les plus proches et les plus contaminés).

Bibliographie

Arnaud M., Charmasson S. et Eyrolle F. Les radionucléides marqueurs des apports solides du Rhône à la mer Méditerranée: sources, puits et devenir. *In*: Le golfe du lion, un observatoire de l'environnement en Méditerranée. Éditions Quae, Versailles, chapitre 7, 105-119, 2009.

Charmasson S., Eyrolle F. and Arnaud M. Les isotopes radioactifs traceurs du Rhône en Méditerranée au cours du temps, Colloque de Synthèse sur le Rhône et la Méditerranée, 5-7 mai 2004, Marseille, France, 2004.

Eyrolle F., Goutelard F. and Calmet D. Pu-239+240 and Pu-238 distribution among dissolved, colloidal and particulate phases in the Rhone River waters (France), Proceedings of an International Symposium on Marine Pollution held in Monaco, 5-9 October 1998, IAEA, July 1999, 466-467, 1999.

Eyrolle F., Arnaud M. and Duffa C. Plutonium fluxes from the Rhône River to the Mediterranean Sea, Proceedings of an International congress on the radioecology-ecotoxicology of continental and estuarine environments (ECORAD), 3-7 September 2001, Aix-en-Provence, France, O4/2 (90), 2001.

Eyrolle F, Duffa C. and Charmasson S. Inputs of plutonium isotopes from the Rhône River to the Gulf of Lion (North Western Mediterranean Sea) over the 1945-1998 period – mass balances, fluxes and predictive trend, proceedings of the International Conference on Radioactivity in the Environment, 1-5 September 2002 in Monaco, 577-581, 2002.

Eyrolle F., Arnaud M., Duffa C. and Renaud P. Plutonium fluxes from the Rhône River to the Mediterranean Sea, *Radioprotection*, 37, C1, 87-92, 2002.

Eyrolle F. et Duffa C. Flux annuels de $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{238}Pu du Rhône à la mer Méditerranée de 1945 à nos jours et stocks continentaux actuels, rapport IPSN/DPRE/SERNAT 2002-32, 2002.

Eyrolle F., Charmasson S. and Louvat D. Plutonium isotopes in the lower reaches of the river Rhône over the period 1945-2000: Fluxes towards the Mediterranean Sea and sedimentary inventories, *Journal of Environmental Radioactivity*, issue 1-3, 74, 127-138, 2004.

Eyrolle-Boyer F. Flux et bilan des principaux radionucléides d'origine artificielle présents dans le Rhône, Journées techniques de la SFRP, Eau, Radioactivité et Environnement, 3 et 4 décembre, Paris, 2014.

Eyrolle-Boyer F., Boyer P., Garcia-Sanchez L., Onda Y., Métivier J. M., De Vismes A., Cagnat X. ^{134}Cs and ^{137}Cs activities in rivers of the Minami-Soma region (Fukushima) in october-november 2013, 2015, 13th international Conference on the biogeochemistry of trace elements, July 12-16, 2015, Fukuoka international Congress Center, Fukuoka, Japan, 2015.

Eyrolle-Boyer F., Boyer P., Métivier J.M., Garcia-Sanchez L., Onda Y., Devisme A., Cagnat X. Activity levels in waters and sediments of coastal rivers contaminated by the Fukushima-Daichï Nuclear Power Plant accident, *Journal of Environmental Radioactivity*, submitted.

IRSN, [Fukushima, un an après](#) - premières analyses de l'accident et de ses conséquences, rapport IRSN/DG/2012-001 du 12 mars 2012. Contribution au chapitre sur les rivières, 2012.

IRSN, [Fukushima 4 ans après](#), rapport IRSN/DG en préparation. Contribution au chapitre dédié aux rivières et au milieu marin, 2015.

Lansard B., Charmasson S., Eyrolle F., Arnaud M. and Grenz C. Plutonium isotopes remobilization from natural sediments (Gulf of Lions, Northwestern Mediterranean Sea): Estimation based on flume experiments, *American Institute of Physics*, 673, 99-101, 2003.

Chapitre 10

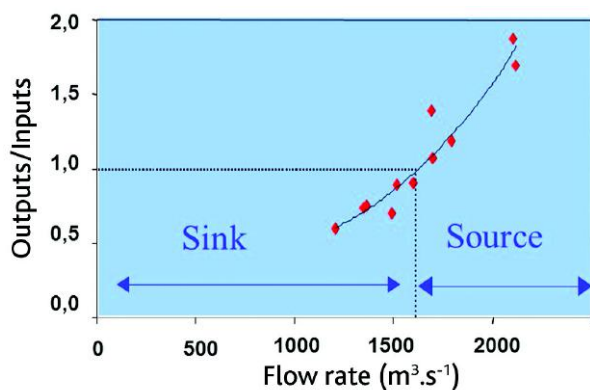
Évènements extrêmes

Les évènements extrêmes sont susceptibles de transférer des quantités de matière particulièrement importantes entre les différents compartiments abiotiques de l'environnement, qu'il s'agisse des compartiments atmosphérique, terrestre, aquatique ou marin.

Dans le cas du compartiment aquatique continental, l'étude des crues m'est apparue nécessaire à la quantification des flux de matière transférés au milieu marin, puisqu'elles étaient susceptibles de transférer, en quelques heures ou quelques jours, l'essentiel des flux solides de l'année (Pont *et al.*, 2002).

Les crues étaient également fortement impliquées dans les processus de déstockage des sédiments et des contaminants associés accumulés lors des périodes de calme

hydrologique, tel que démontré dans le cas des isotopes du plutonium à partir de l'évolution des bilans de masse en fonction du débit (figure 33).



(From Eyrolle *et al.*, 2000)

Figure 33. Rapports exports/imports de ^{238}Pu en fonction du débit - échelle du mois (d'après Eyrolle-Boyer *et al.*, 2000).

Je décidais alors de confier un travail de thèse à Benoît Rolland (2003-2006) sur cet axe de recherche. Je proposais dans le même temps un sujet de post-doctorat à Christelle Antonelli (2003-2004) afin de préciser la distribution et la nature des flux en transit au sein des sections mouillées en fonction de l'hydrodynamisme.

Les crues étant des vecteurs de translocation de limons mais aussi de contaminants vers les plaines d'inondation, je m'intéressais de près aux conséquences radiologiques des inondations de décembre 2003 en Petite Camargue suite à la crue millénaire du Rhône.

Œuvrant sur les événements extrêmes au sein des hydro-systèmes, je réalisais que des forçages similaires gouvernaient également les transferts de masse et les flux au sein des autres compartiments de la géosphère.

Je lançais alors, en 2005, un projet fédérateur au sein du laboratoire sur cette thématique (EXTREME) et déposais, dès l'été 2006, soutenue par des équipes partenaires, le projet EXTREMA en réponse à l'AAP de l'ANR sur son programme VMC (Vulnérabilité, Milieux et Climat).

10.1 Les conséquences des crues du Rhône sur les flux de radionucléides délivrés au milieu marin (thèse de Benoît Rolland, 2003-2006).



Le travail de thèse de Benoît Rolland a essentiellement été dévolue à la dynamique d'exportation des radionucléides artificiels ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ vers la mer Méditerranée, principalement en raison de la forte affinité de ces radionucléides pour les particules et de leur rémanence dans l'environnement ($T_{1/2} > 30$ ans).

Afin de mieux comprendre la dynamique d'exportation des matières solides et des contaminants associés du milieu continental vers le milieu marin, en particulier lors des épisodes extrêmes, plusieurs questions se posaient :

- quels sont les flux actuels de radionucléides artificiels vers la mer Méditerranée depuis la diminution des rejets liquides émis par le centre de retraitement du combustible irradié de Marcoule ?
- quelle est la contribution des crues dans les exports de radionucléides vers la mer Méditerranée ?
- la remobilisation des stocks sédimentaires contaminés par les rejets du centre de Marcoule représente-t-elle aujourd'hui un terme source significatif de radionucléides artificiels pour les eaux du Rhône ? Si oui, quelle est aujourd'hui sa contribution ainsi que celles des autres termes sources ?
- quels sont les temps de résidence des stocks sédimentaires contaminés par les rejets du centre de Marcoule avant leur remobilisation ?
- quelles sont les zones d'accumulation des sédiments contaminés par les rejets du centre de Marcoule à partir desquelles la remobilisation sédimentaire est possible ?

Les résultats de la thèse de Benoît Rolland ont permis d'apporter les éléments de réponses suivants :

Au cours de la période 2002-2004, les flux d'exportation moyens annuels de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ vers la mer Méditerranée ont été respectivement de 140 ± 42 GBq, $0,45 \pm 0,45$ GBq, $2,3 \pm 0,7$ GBq, 389 ± 117 GBq et de 253 ± 76 GBq. La chronique des flux d'exportation des radionucléides artificiels mesurés de manière discontinue au cours du temps par différents auteurs montrent qu'il existe des relations affines significatives entre les flux et les rejets du centre de Marcoule.

Les crues du Rhône se sont avérées jouer un rôle primordial dans le transfert des radionucléides ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ vers la Méditerranée (figure 34).

Sur la période de 2002 à 2004, Benoît Rolland estime que les épisodes de crues ont transféré en moyenne 67 %, 55 %, 68 %, 49 % et 56 % des flux annuels de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, bien qu'elles n'aient représenté que 5 % du temps de la période d'étude.

Floods Sep and Nov 2002 27 days	Solid export (t)	^{137}Cs (GBq)	^7Be (GBq)	$^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ (GBq)
Annual fluxes	$8,5 \cdot 10^4$	194 ± 23	547 ± 71	349 ± 52
Flood fluxes	$7,5 \cdot 10^4$ (88 %)	140 ± 10 (72 %)	313 ± 44 (57 %)	215 ± 54 (62 %)
Floods Dec 2003 7 days	Solid export (t)	^{137}Cs (GBq)	^7Be (GBq)	$^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ (GBq)
Annual fluxes	$6,5 \cdot 10^6$	158 ± 19	366 ± 48	261 ± 39
Flood fluxes	$5,4 \cdot 10^6$ (83 %)	113 ± 7 (71 %)	173 ± 30 (47 %)	154 ± 27 (59 %)

Figure 34. Flux solides et de radionucléides associés (^{137}Cs , ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) exportés en 2002 et 2003 – contribution des crues (d'après Rolland et al., 2005).

Les résultats acquis ont également permis de souligner l'évolution de la contribution des différents termes sources de radioactivité artificielle dans les eaux du Rhône aval au cours des dernières décennies. Avant la fin des années 1990, les rejets du centre représentaient le terme source prépondérant des radionucléides artificiels ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$. Suite à la diminution des rejets, les apports de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ issus d'une part du drainage des sols marqués par les retombées atmosphériques

radioactives sur le bassin versant et, d'autre part de la remobilisation des stocks sédimentaires marqués par les rejets industriels sont devenus majoritaires.

La remobilisation des stocks sédimentaires dans le bief Marcoule-Arles représente un terme source différé de radioactivité artificielle dans les eaux du Rhône, qui contribuait en moyenne au cours de la période étudiée (2002-2004) à 19 %, 44 % et 22 % des flux de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$, respectivement, vers la Méditerranée.

Les apports issus du drainage du bassin versant contribuaient en moyenne au cours de la période étudiée à 65 %, 36 % et 61 % des flux de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$. Les rejets directs émis par le centre de retraitement de Marcoule ne contribuaient en moyenne pour cette même période qu'à hauteur de 16 %, 20 % et 17 % de ces flux.

L'estimation des temps de résidence des stocks sédimentaires contaminés par les rejets du centre de Marcoule avant leur remobilisation lors des crues permet d'évaluer la capacité du Rhône à évacuer ses stocks.

Le travail réalisé dans le cadre de la thèse de Benoît Rolland montre que les crues de périodes de retour supérieures à l'année sont plus à même de remobiliser des stocks anciennement accumulés que les crues de périodes de retour de l'ordre de l'année. Ces dernières semblent capables de remobiliser seulement des stocks accumulés dans l'année précédant la crue.

Durant la période d'étude (2002-2004), seules les crues de l'automne 2002, de périodes de retour comprises entre 10 et 50 ans, et la crue de décembre 2003, de période de retour supérieure à 100 ans, ont été capables de remobiliser des stocks sédimentaires accumulés depuis plusieurs années. Néanmoins, le bilan moyen annuel entre les sources d'apport en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ dans le bief Marcoule-Arles et les flux d'exportation de ces radionucléides vers la Méditerranée a montré une tendance à l'exportation des stocks sédimentaires contaminés par les rejets de Marcoule témoignant de la dynamique d'épuration naturelle du Rhône vis-à-vis de ces stocks.

La méthode appliquée pour l'évaluation des temps nécessaires à la disparition totale des stocks de ^{137}Cs , de ^{238}Pu , et de $^{239+240}\text{Pu}$ accumulés dans les sédiments du bief Marcoule-Arles depuis 1958 indique des périodes de 200 ans, 100 ans et 900 ans pour les stocks de ^{137}Cs , le ^{238}Pu et le $^{239+240}\text{Pu}$, respectivement, en tenant compte de la décroissance radioactive.

Concernant l'identification des zones d'accumulation préférentielle des sédiments contaminés dans le Rhône aval, l'étude bibliographique a souligné le potentiel de stockage de l'amont des ouvrages hydroélectriques en particulier.

Les résultats acquis par ailleurs à partir de carottages effectués dans des berges et des bras mort du fleuve mettent en évidence des stocks de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$, ainsi que d'autres radionucléides artificiels tels que le ^{60}Co et l' ^{241}Am . Ces radionucléides proviennent en majorité du centre de Marcoule, comme en témoignent les valeurs du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ (proches du rapport caractéristique des rejets du centre, soit 0,30).

Dans la partie terminale du fleuve, certaines berges aujourd'hui en érosion représentent donc un terme source potentiel de radioactivité artificielle pour les eaux du Rhône, *a posteriori*.

Les travaux de Benoît Rolland soulignaient enfin que les stocks de radioactivité artificielle accumulés dans le chenal principal du Rhône (lit mineur), notamment en amont des retenues, constituent vraisemblablement des stocks plus facilement remobilisables que ceux constitués dans les berges et les annexes fluviales. Il est ainsi probable que les stocks remobilisés lors des crues les plus fréquentes (périodes de retour de l'ordre de l'année) proviennent préférentiellement de ces zones. Les berges du Rhône représentent quant à elles des milieux de stockage à plus long terme.

Ces observations allaient conduire vers un nouvel axe de recherche, celui dédié aux stockages et archives sédimentaires en lien avec la morphologie des marges alluviales et leur évolution, comme nous le détaillerons dans le paragraphe 11.

10.2 Le cas particulier de l'épisode de crue extrême de décembre 2003 sur le bas Rhône (post-doctorat de Christelle Antonelli 2003-2004)



► Rappel des évènements

Le Rhône en aval de Valence a connu en décembre 2003 une crue exceptionnelle, la plus forte jamais enregistrée sur ce fleuve. Son débit de pointe a dépassé les deux crues historiques les plus importantes de 1840 et de 1856. Dans la soirée du 3 décembre 2003, le Rhône a atteint un débit record de $13\,000\text{ m}^3\cdot\text{s}^{-1}$ à la station de mesure de Beaucaire. La fréquence de retour d'un tel événement est de l'ordre de 350 ans (probabilité de $1/350$ par an d'atteindre ce débit). De plus, la crue de décembre 2003 a été caractérisée par sa rapidité. Entre le 1^{er} et le 2 décembre, le Rhône est passé de $1\,800$ à $8\,000\text{ m}^3\cdot\text{s}^{-1}$ à Viviers et de $2\,400$ à $10\,000\text{ m}^3\cdot\text{s}^{-1}$ à Beaucaire en moins de 30 heures. Cette rapidité est due à un épisode pluvio-orageux intense et généralisé sur le quart sud-est de la France. C'est un phénomène méditerranéen classique lié à une perturbation provenant d'une collision entre des masses d'air froid et de l'air chaud provenant de la Méditerranée, et saturé en humidité. L'évènement météorologique de décembre 2003 a cependant été exceptionnel par :

- son amplitude géographique (20 départements concernés par la mise en vigilance orange par Météo France, soit toute la vallée du Rhône au sud de Lyon) ;
- sa durée de plus de 48 heures. Les phénomènes similaires ne dépassent généralement pas 24 à 36 heures ;
- son arrivée très tardive dans la saison par rapport à de précédentes catastrophes similaires liée à une arrière-saison 2003 très douce et des températures élevées sur la Méditerranée en ce début de décembre.

L'évènement majeur de décembre 2003 permet de quantifier pour la première fois de manière fine (échantillonnage à haute fréquence) les flux exportés lors de ces évènements extrêmes, et de caractériser la nature des particules en transit.

On montrera ainsi que les crues transfèrent vers le milieu marin, en quelques jours par an seulement, plus de 75 % du flux solide annuel de radionucléides.

On démontrera aussi que lors de ces évènements exceptionnels, les exports de sables au sein de la suspension sont restreints et ne contribuent pas de manière significative à la dilution des concentrations en radionucléides ou en métaux enregistrée pour les forts débits (figure 35).

Les données acquises serviront longtemps de référence pour le suivi et l'enregistrement des épisodes de crues qui ont succédé à cette crue majeure, en particulier pour le dimensionnement de la stratégie d'échantillonnage de la station SORA.

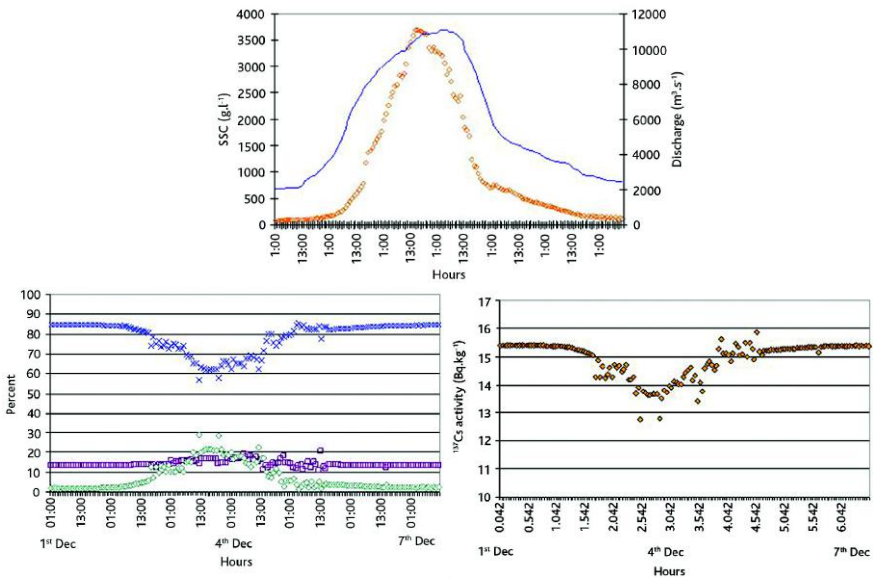


Figure 35. Decreasing of the silty fraction and rising of the sandy fraction (bottom left) with discharge and solid load (top) and consequences on ^{137}Cs activities (bottom right) (d'après Antonelli et al., 2008).

Parallèlement à ces résultats, l'étude de la distribution spatio-temporelle des concentrations en matières en suspension (MES) au droit de la station-observatoire, confiée à Christelle Antonelli, permet de souligner deux organisations-type des flux solides qui semblent dépendre principalement du débit du fleuve : pour les faibles à moyennes eaux, les flux solides sont homogènes à l'échelle du profil transversal du Rhône ; pour les débits les plus forts, les concentrations en MES croissent de la surface vers le fond du chenal (figure 36).

La comparaison de ces observations et des données acquises par la station-observatoire indiquait alors que le flux solide mesuré pouvait être sous-évalué de 13 % pour les débits les plus forts mais restait représentatif pour des débits modaux ($< 2\,500\text{ m}^3\cdot\text{s}^{-1}$). Ces résultats indiquaient toutefois que l'incertitude sur les flux, en particulier ceux transitant lors des crues, associée à la variabilité spatiale des charges en suspension était inférieure à l'incertitude associée aux analyses radiologiques et des charges en suspension (15 à 20 %), et pouvait par conséquent être négligée.

Ces résultats allaient conduire à la conclusion que les flux évalués à partir des prélèvements d'eau de la station SORA étaient corrects relativement à la représentativité de l'échantillonnage, y compris durant les épisodes de crue extrêmes.

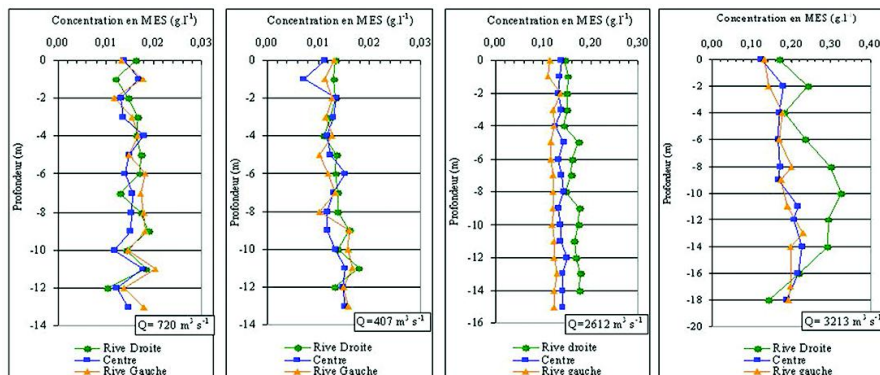


Figure 36. Homogénéité de la charge sédimentaire à l'échelle du profil transversal les 3 juillet 2003 ($Q = 720 \text{ m}^3/\text{s}$), 21 juillet 2003 ($Q = 407 \text{ m}^3/\text{s}$) et 25 novembre 2003 ($Q = 2612 \text{ m}^3/\text{s}$). Hétérogénéité de la charge sédimentaire à l'échelle du profil transversal le 20 janvier 2004 ($Q = 3213 \text{ m}^3/\text{s}$) (d'après Antonelli et al., 2004).

10.3 Les conséquences radiologiques des inondations : cas des inondations de décembre 2003 en petite Camargue.

En conséquence de l'épisode météo-climatique extrême de décembre 2003, la basse vallée du Rhône a subi des inondations par débordement du Rhône et rupture de digues sur une superficie estimée à 500 km^2 . Les zones les plus touchées ont été :

- de Beaucaire à Arles, la ville d'Arles ayant été noyée par 16 millions m^3 d'eau issue du passage des eaux du Rhône par trois trémies¹ situés à environ 10, 7, 5 et 6 km au nord du centre-ville d'Arles ;
- la petite Camargue, notamment en raison de deux ruptures de digue en rive droite du Petit Rhône aux lieux dits « Claire Farine » et « Petite Argence ».

Une expertise a été conduite à la demande de l'ASN, soutenue par la CLI (commission locale d'information) du Gard afin d'évaluer les conséquences radiologiques de ces inondations.

¹ Passages routiers sous voies de chemin de fer construites sur la digue gauche du Rhône dans les années 1980.

Les résultats obtenus ont montré que les sédiments déposés sur les sols de Petite Camargue au lieu-dit « Claire Farine » lors de la crue exceptionnelle du Rhône de décembre 2003 et des inondations consécutives ont pu atteindre localement 1,5 tonnes sec/m² pour les dépôts de nature sableuse et 40 kg sec/m² pour les dépôts fins de nature argilo-limoneuse.

Les mesures de débit de dose réalisées les 15 et 16 janvier 2004 ont permis de vérifier que les dépôts d'inondation n'avaient pas d'impact radiologique significatif du point de vue de l'exposition externe.

Les seuls radionucléides d'origine artificielle détectés par spectrométrie gamma sur les échantillons prélevés étaient les ¹³⁷Cs et ⁶⁰Co, présents à des niveaux similaires à ceux observés dans les sols de la région non soumis aux inondations de 2003.

D'une façon générale, les taux d'enrichissement en ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et ²³⁸Pu des sols cultivés inondés après incorporation des dépôts, étaient inférieurs à 6 %. Dans le cas le plus pénalisant, c'est-à-dire dans le cas d'un dépôt de 2,5 cm de limons secs (maximum observé), les taux d'enrichissement atteignaient 20 % pour les ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, 60 % pour le ¹³⁷Cs et 70 % pour le ²³⁸Pu.

Les niveaux d'activité mesurés dans les cultures maraîchères n'étaient pas significativement différents de ceux mesurés dans des échantillons similaires non soumis aux inondations de décembre 2003. Enfin, les résultats d'analyses chimiques n'indiquaient pas de contamination significative des sols et des cultures maraîchères.

En conclusion, les résultats d'expertise soulignaient que les inondations de décembre 2003 en Petite Camargue au lieu-dit « Claire Farine » n'ont eu aucune conséquence radiologique et chimique significative.

10.4 Les conséquences des épisodes extrêmes sur le transfert des contaminants : les projets EXTREME et EXTREMA (projet ANR-06-VULN-005-2007-2011)

À partir des précédentes observations, je concevais que les forçages d'origine météorologiques, tels que les crues et les inondations sur lesquelles j'avais amplement travaillé, pouvaient conduire à une redistribution conséquente des contaminants au sein des différents compartiments de l'environnement.



Cela était d'autant plus marqué que les rejets radioactifs des industries ou les rejets de certains contaminants émis durant des décennies dans l'environnement étaient aujourd'hui en diminution drastique ou bien même interdits (cas des PCB par exemple).

Les épisodes évènementiels étaient susceptibles de déplacer des masses de matière importantes entre les différents milieux, de générer des activités supérieures à celles attendues à partir de la modélisation des processus de transfert moyen, et de produire des flux souvent équivalents aux flux cumulés sur plusieurs mois, voire plusieurs années.

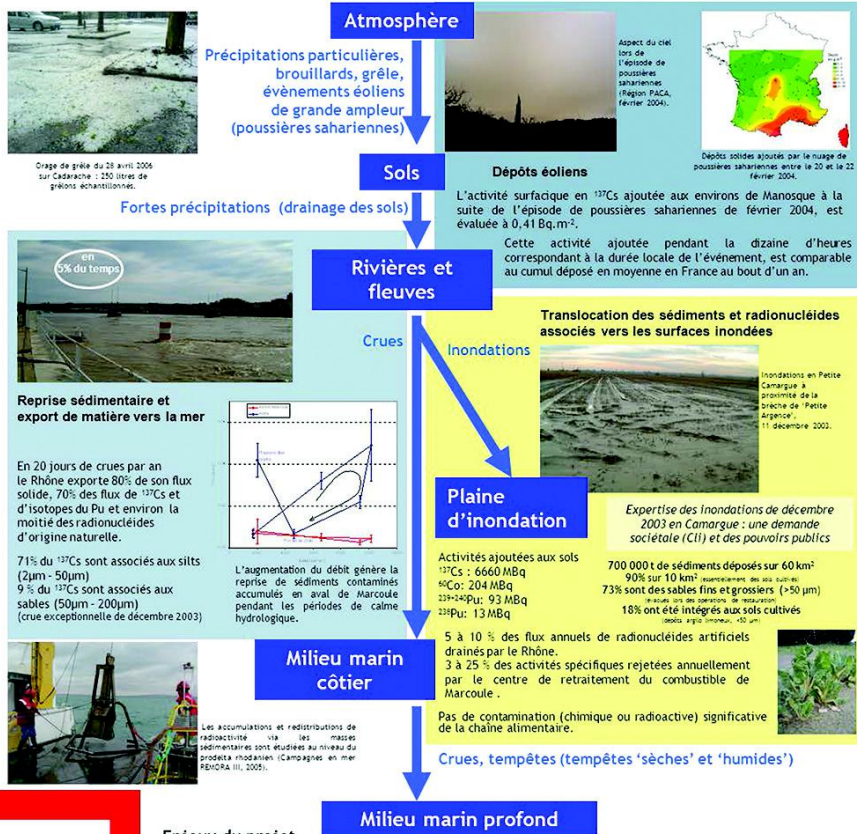
Je décidais alors de m'intéresser aux transferts de matière et de radionucléides associés aux épisodes météo-climatiques exceptionnels comme les fortes précipitations pour les transferts atmosphère-sols ou sols-rivières, les dépôts évènementiels de particules d'origine éolienne, les crues pour les flux des rivières vers le milieu marin ou le compartiment terrestre en cas d'inondation, les crues également pour le transfert du milieu marin côtier vers le domaine marin profond, les tempêtes pour la remise en suspension des sédiments en zone côtière, etc... et initiais au laboratoire un projet fédérateur : le [projet EXTREME](#) (figure 37) (Eyrolle *et al.*, 2005, 2009).

EXTREME était dédié à l'étude des conséquences sur l'environnement, et donc sur l'homme, des processus naturels générateurs de flux et/ou stocks évènementiels de radioactivité d'origine artificielle ou naturelle au sein d'un certain nombre de compartiments environnementaux de la géosphère (atmosphère, sol, rivières et fleuves, milieu marin côtier, milieu marin profond).

Projet EXTREME

L'IRSN a lancé en 2005 un projet relatif à l'impact d'événements météo-climatiques exceptionnels sur les transferts de radioactivité. Ce projet, dénommé EXTREME est né en partie des résultats du projet CAROL (1998-2003) dédié à l'étude de la répartition globale des radionucléides à l'échelle du bassin versant du Rhône. Cette étude avait révélé l'importance des processus de redistribution « extraordinaires » sur les stocks, les flux et la répartition de ces radionucléides, naturels ou artificiels, dans l'environnement.

Coordination: Frédérique Eyrolle DEI/SESURE/LERCM



Enjeux du projet

Les connaissances acquises dans le cadre d'EXTREME alimentent directement les thématiques de gestion des situations post-accidentelles et de la protection de l'environnement. Elles permettent d'apporter des éléments de réponses aux demandes de la société, de plus en plus soucieuse de connaître les expositions réelles de la population, notamment suite à des épisodes climatiques exceptionnels.

Colloque de radiocécologie IRSN-EDF du 23 juin 2006, Maison d'Hôtes de Cadarache

Figure 37. Le projet EXTREME initiateur du projet ANR EXTREMA (2005-2010).

Ce projet interne a été présenté au MEDD le 21 décembre 2006 afin d'illustrer les programmes de recherches de l'IRSN et a fait l'objet d'une évaluation interne à partir de 2007.

Sur cette lancée, en août 2006, je décidais, soutenue par des équipes de recherches proches, de répondre à l'appel à projet de l'ANR sur son [programme Vulnérabilité, Milieux et Climat \(VMC\)](#).

[EXTREMA](#) fût retenu (ANR-06-VULN-005-2007-2011), et je coordonnais alors ce projet jusqu'en juin 2011. Il impliquait les équipes de l'[IRSN](#), du [CEFREM \(Centre de formation et de recherche sur l'environnement marin – UMR5110 CNRS UPVD\)](#), du [CEREGE \(Centre européen de recherche et d'enseignement des géosciences de l'environnement – UMR7330 CNRS Aix Marseille université\)](#), de l'[IFREMER](#) (centres de La Seyne-sur-Mer et Brest) et du [LA \(Laboratoire d'aérologie UMR5560 CNRS Toulouse\)](#). [EXTREMA](#) a été labellisé et soutenu par deux pôles de compétitivité : le pôle « mer Paca » à vocation mondiale ainsi que le pôle « Gestion des risques et vulnérabilité de territoires » à vocation régionale.

[EXTREME](#) et [EXTREMA](#) ont fait l'objet de plus de 12 rapports d'avancements (cf. listes des publications, rapports publiques) et, à ce jour, de plus de 20 publications dans des revues à comité de lecture, d'une quinzaine de communications dans des congrès internationaux et d'une dizaine dans des congrès nationaux.

Seul le résumé consolidé, tel que remis à l'[ANR](#) lors du rapport final (Eyrolle *et al.*, 2011) est reporté ci-après :

« Le [projet EXTREMA](#) coordonné par l'[IRSN](#) a été élaboré en multi-partenariat en réponse à l'AAP de l'[ANR](#) émis en juin 2006 sur son [programme VMC](#) « Vulnérabilité Milieu et Climat ». Il avait pour objectif d'acquérir des données à l'échelle du Golfe du Lion, depuis les bassins versants des fleuves côtiers du pourtour de la Méditerranée nord occidentale jusqu'aux canyons du milieu sous-marin profond en marge du plateau continental, afin d'enregistrer les flux de matières et les flux de contaminants lors d'épisodes météo climatiques de grande ampleur. En effet, les travaux antérieurs des différentes équipes avaient souligné l'importance des événements extrêmes dans le déplacement et le transfert des masses au sein des différents compartiments de la biogéosphère, ainsi que le poids de ces forçages dans les bilans matières réalisés à différentes échelles spatio-temporelles (MERMEX group, 2011).

Le système côtier du Golfe du Lion a été choisi en raison de sa vulnérabilité à la fois aux épisodes météo climatiques de grande amplitude (poussière d'origine saharienne, crues du Rhône, tempêtes, épisodes de coulées d'eau dense (*cascading*) et convection

au large) et aux sources de pollutions (radioactivité d'origine artificielle, métaux traces, composés organiques persistants).

La mise en place et la consolidation d'observatoires en des points stratégiques du Golfe du Lion (figure 38) ont permis d'acquérir des données clés dans la compréhension des processus de transfert associés à ces épisodes extrêmes et pour le développement, la validation et l'utilisation de modèles hydro sédimentaires à différentes échelles d'espace et de temps (pro-deltas/bassin méditerranéen occidental, évènementiel/inter annuel).



Figure 38. EXTREMA - déploiement des observatoires à l'échelle du Golfe du Lion.

Au terme du projet, les transferts de matière et de contaminants associés aux forçages climatiques prédéfinis ou à des forçages anthropiques (lâchers de barrages) ont été évalués. Les différents vecteurs de transfert inter compartiments et les dynamiques des principaux milieux d'accumulation (puits) ou d'alimentation (sources) tels que les poussières atmosphériques, les marges alluviales et dépôts d'inondation, les pro-deltas et les canyons du milieu marin profond ont été caractérisés.

Nos travaux ont permis de mettre en évidence qu'une modification significative à plus ou moins long terme de la distribution des polluants au sein de certains

systemes côtiers pourrait être liée à la réduction du *cascading* et de la convection. Une des conséquences majeures de ce changement abrupt serait une séquestration des polluants au niveau des plateaux continentaux, lieux privilégiés de la production primaire et siège de développement des ressources marines ».

Bibliographie

Antonelli C. Représentativité des flux de radioactivité mesurés par la station-observatoire du Rhône (Station d'Arles – réseau OPERA), rapport IRSN/DEI/SESURE 2004-15, 2004.

Antonelli C., Rolland B. and Eyrolle F. Calibration of the radionuclide fluxes of the Rhône River measured by the Arles Observatory Station (SE France), The 30th Congress of the International Geographical Union "One Earth, Many Worlds", 15-20 August 2004, Glasgow, UK, 2004.

Antonelli C., Eyrolle F., Rolland B., Provansal M. and Sabatier F. Suspended sediment and associated radioactivity fluxes during an exceptional flood. The case of the Rhône River (SE France) in December 2003, "The fluvial system - past and present dynamics and controls", Conference hosted by the Department of Geography, Bonn, Germany, May 16-22, 2005.

Antonelli C., Eyrolle F., Rolland B., Provansal M., Sabatier F. Suspended sediment and associated radioactivity fluxes during an exceptional flood. The case of the Rhone River (SE France) in December 2003, EUROSTRATAFORM-PROMESS Joint Meeting, Salamanca, Spain, 24-27 October 2005.

Antonelli C., Eyrolle F., Rolland B. and Provansal M. et Sabatier F. Suspended sediment and ^{137}Cs fluxes during the exceptional December 2003 flood in the Rhone River, southeast France, *Geomorphology*, 95, 350-360, 2008.

Antonelli C., Eyrolle F., Raccasi G. Comment évaluer le transport sédimentaire actuel dans le Rhône aval ? *in*: Le Rhône aval en 21 questions, ouvrage collectif sous la direction de Mireille Provansal, Olivier Radakovitch, François Sabatier et Anne Clémens, ZABR, OSR, Édité par le GRAIE, Lyon, septembre 2012, Q2, 14-15, 2012.

Aubert D., Sotin C., Eyrolle F., Antonelli C., Gueneugues A., Kerhervé P. Estimation des flux annuels en éléments traces métalliques véhiculés par les MES sur le Rhône. Importance de la prise en compte des événements de crue. Cas de l'année 2008. 23^e Réunion des Sciences de la Terre, Bordeaux, 25-29 octobre 2010, 2010.

Aubert D., Eyrolle F., Sotin C., Antonelli C., Kerhervé P., Gueneugues A. Annual fluxes of potentially harmful elements (PHE's) exported by the Rhône River particulate matter. Influence of flood events, 12th International Symposium on the Interactions between Sediments and Water, June 19-24 2011, Dartington hall, England, 2011.

Eyrolle F., Rolland B. and Louvat D. Radioecological sensitivity indicators within continental aquatic system: An estimation based on a long-term chronological series of ^{137}Cs and ^{134}Cs activities within the Rhône River waters (France), 11th International Congress of the International Radiation Protection Association – 23-28 May 2004, Spain, Madrid, 2004.

Eve Sivade E., Raimbault P., Eyrolle F. Quels contaminants le Rhône apporte-t-il à la mer méditerranée ? in: Le Rhône aval en 21 questions, ouvrage collectif sous la direction de Mireille Provansal, Olivier Radakovitch, François Sabatier et Anne Clémens, ZABR, OSR. Édité par le GRAIE, Lyon, septembre 2012, Q19, 48-49, 2012.

Eyrolle F., Duffa C., Rolland B. and Antonelli C. Translocation of artificial radioactive contaminants from the Rhône River during the large flood of December 2003, Proceedings of the International Conference on Isotopes in Environmental Studies – Aquatic Forum, Monte Carlo, Monaco, 25-29 October 2004, 299-300, 2004.

Eyrolle F., Antonelli C., Duffa C. and Rolland B. The extreme flooding of the Rhône valley in December 2003 (South east France): Consequences on the translocation of sediments and the associated contaminants over the flooded areas, 10th International Symposium on the Interactions between sediments and water, Bled, Slovenia, 28 August-2 Sept 2005.

Eyrolle F., Louvat D., Métivier J.M. and Rolland B. Origins and levels of artificial radionuclides within the Rhône River waters (France) for the last Forty years: Towards an evaluation of the radioecological sensitivity of river systems, *Radioprotection*, 40, 4, 435-446, 2005.

Eyrolle F., Rolland B., Antonelli C. and Métivier J.M. Artificial radioactivity within the Rhône River waters – Consequences of floods on activity levels and fluxes toward the Sea, *Environnement Risques et santé*, 5, 2, 83-92, 2006.

Eyrolle F., Duffa C., Rolland B., Antonelli C. and Leprieur F. Radiological consequences of the extreme flooding of the Rhône valley area (South east France, December 2003), *Science of the Total Environment*, 366, 427-438, 2006.

Eyrolle F., Antonelli C. and Duffa C. Translocation of sediments and associated artificial radionuclides during the flooding of the lower Rhône River in december 2003 (South East France), 2007, Meeting of the “Large Rivers Group” of the IAG, The Rhone River – A large European impacted hydrosystem, June 24th – July 1st 2007, Lyon, Arles, France, 2007.

Eyrolle F., Provansal M., Villiet J., Raccasi G., Radakovitch O., Gurriaran R., Antonelli C. Evidence for delayed source of long lived artificial radionuclides from a managed river banks (Rhône River, Southern France), 11th International Symposium on the Interactions between Sediments and Water, February 17-22 2008, Esperance, Australia, 2008a.

Eyrolle F., Rolland B. and Gurriaran R. Consequences of the Rhône River floods on ^{137}Cs , ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ fluxes towards the Mediterranean Sea, 11th International Symposium on the Interactions between Sediments and Water, February 17-22 2008, Esperance, Australia, 2008b.

Eyrolle F., Masson O., Antonelli C., Arnaud M. and Charmasson S. The EXTREME project - Consequences of paroxystic meteo climatic events on the translocation of contaminants within the geosphere, *Radioprotection*, Vol. 44, N°5, 463-468, 2009.

Eyrolle F., Raimbault P., Antonelli C., Ferrand E., Aubert D., Radakovitch O. Suspended Sediment and associated radionuclides transport: 2001-2008 flood monitoring at the lower Rhône river, proceedings of the 39th CIESM Congress, Venice, Italy, 10-14 May 2010a.

Eyrolle F., Antonelli C., Raimbault P., Boullier V., Arnaud M. SORA: a high frequency flux monitoring station at the lower Rhône River, proceedings of the 39th CIESM Congress, Venice, Italy, 10-14 May, 2010b.

Eyrolle F., Radakovitch O., Raimbault P., Charmasson C., Antonelli C., Ferrand E., Raccasi G., Aubert D. and Gurriaran R. Consequences of hydrological events on suspended sediment and associated radionuclide deliveries from the Rhône River towards the Mediterranean Sea, *Journal of Soils and Sediments*, 12, 1479-1495, 2012.

Eyrolle F. Le devenir des particules lors des évènements climatiques extrêmes dans le Golfe du Lion, ANR EXTREMA (contrat N°ANR-06-VULN-005), Les cahiers de l'ANR, N°7, avril 2013, p. 118, 2013.

Ferrand E., Eyrolle F., Provansal M., Dufour S., Radakovitch O., Raccasi G., Gurriaran R. Heavy metals and artificial radionuclides records in riverbanks sediments of the lower Rhône river (South - East France), 19th V.M. Goldschmidt™ conference, 21-26 June, Davos, Switzerland, 2009.

Ferrand E., Eyrolle F., Radakovitch O., Provansal M., Dufour S., Vella C., Raccasi G. and Gurriaran R. Historical levels of heavy metals and artificial radionuclides reconstructed from overbank sediment records in lower Rhône River (South - East

France), *Geochemica and Cosmochimica Acta*, special Issue on Environmental Records of Anthropogenic Impacts, 82, 163-182, 2012.

Maillet G., Eyrolle F. Évolution des flux sédimentaires et des contaminants du Rhône à l'échelle séculaire, *in*: Encyclopédie de Camargue, nature et culture du delta du Rhône, Éditeur Buchet-Chastel (Arles), 352 p., 2013.

Marion C., Maillet G., Arnaud M., Eyrolle F. Quantifications des flux solides rhodaniens à l'embouchure : apports de la Durance pendant la crue exceptionnelle de mai 2008, *La Houille Blanche*, 5-2010, 72-80, 2010.

Masson O., Eyrolle F., Antonelli C. Le Rhône est-il pollué par les radionucléides artificiels ? La qualité de l'eau du Rhône, *in*: Bravard J-P., Clémens, A. « Le Rhône en 100 questions » Éditions du Graie, 2008.

MERMEX group: Durrieu De Madron X., Guieu C., Sempéré R., Conan P., Cossa D., Rabouille C., Guizien K., Estournel C., Loyé-Pilot M.-D., Charmasson S., Eyrolle F., Merle PL., Thébault H. Marine Ecosystems Responses to climatic and anthropogenic forcings in the Mediterranean, *Progress in Oceanography*, 91, 97-166, 2011.

Provansal M., Desmet M., Babut M., Bravard J.P., Bonté P., Dufours S., Eyrolle F., Ferrand E., Lefèvre I., Persat H., Raccasi G. et Roux G. Dynamique fluviale, stockages sédimentaires et distribution des contaminants dans les dépôts des marges et des annexes fluviales (Observatoire des sédiments du Rhône), Colloque « Les grands fleuves vont à la mer – de la production de connaissance à la gestion durable d'environnements d'exception », ZABR Zone atelier du bas Rhône, 30 novembre et 1^{er} décembre 2009, Lyon, 2009.

Provansal M., Villiet J., Eyrolle F., Raccasi G., Gurriaran R, Antonelli C. High-resolution evaluation of recent bank accretion rate of the managed Rhone: A case study by multi-proxy approach, *Geomorphology*, 117, 287-297, 2010.

Provansal M., Ferrand E., Eyrolle F., Raccasi G. Spatial variability of sedimentation rates and radionuclide storage in alluvial margin of the lower Rhône River, *Aquatic sciences*, special issue, 74, 735-750, 2012.

Rolland B., Eyrolle F. and Boulès D. Removal of sedimentary stocks and associated radioactivity in the lower Rhone River: preliminary results, 26-30 april 2004, EGS Nice, 2004.

Rolland B., Antonelli C. and Eyrolle F. Fluxes of suspended material and associated radionuclides to the sea during flood events of the Rhône River, Proceedings of the ECORAD 2004 international symposium, 6-10 sept. 2004, Aix-en-Provence, France, P3, 35, 2004.

Rolland B., Eyrolle F. and Bourlès D. Removal of Sedimentary Stocks and associated radioactivity in the lower Rhône River (South Eastern France), Proceedings of the International Conference on Isotopes in Environmental Studies – Aquatic Forum, Monte Carlo, Monaco, 25-29 October 2004, 301-302, 2004.

Rolland B., Eyrolle F. and Bourlès D. Significance of floods in the transfer of artificial radionuclides from the Rhône River towards the Mediterranean Sea, 10th International Symposium on the Interactions between sediments and water, Bled, Slovenia, 28 August-2 Sept 2005, 2005.

Rolland B., Antonelli C., Eyrolle F., Arnaud M., Charmasson S., Morello M. and Bouisset P. Suspended sediment fluxes and associated ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be and $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ from the Rhône river towards the Mediterranean Sea over the 2002-2004 period, EUROSTRATAFORM-PROMEES Joint Meeting, Salamanca, Spain, 24-27 October 2005, 2005.

Rolland B., Eyrolle F. et Bourlès D. Transfert des Radionucléides artificiels par voie fluviale : conséquences sur les stocks sédimentaires et les exports vers la Méditerranée, *Radioprotection*, 41, 2, 6-8, 2006.

Diffusion-vulgarisation voir § 14.2.7, chapitre 14.

Chapitre 11

Stockages et archives sédimentaires

L'étude des évènements extrêmes a mis en évidence que si les crues étaient fortement impliquées dans les processus de déstockage des sédiments et des contaminants associés accumulés sur le fond du chenal lors des périodes de calme hydrologique ou bien sur les marges alluviales lors de crues précédentes, elles alimentaient tout autant ces marges au gré de l'hydrodynamisme et de l'évolution de la morphologie des chenaux.

Guidée par Mireille Provansal, je sortais du lit mineur du Rhône et me lançais à la conquête des berges et des marges alluviales afin d'étudier de plus près ces milieux de stockage.

Je confiais alors à Grégoire Maillet (post-doctorant, 2007-2008), puis à Emmanuelle Ferrand (post-doctorante, 2009-2010), deux projets de recherches.



Je confiais à Grégoire Maillet l'étude de la sensibilité radioécologique des berges - apports de la géomorphologie à la détermination des facteurs de sensibilité radioécologique des berges.

Il s'agissait de déterminer la nature et les modalités des interactions entre la charge contaminante des fleuves et les différents domaines de la plaine alluviale (berges, ripisylve, plaine d'inondation, bras morts...) soumis de près ou de loin à l'influence des apports liquides et sédimentaires fluviaux. Il s'agissait d'identifier, en fonction de différents paramètres hydro-morphologiques, les critères caractérisant les zones potentielles de stockage et/ou de concentration de la radioactivité.

Je proposais à Emmanuelle Ferrand de reconstruire les niveaux historiques en radionucléides et éléments trace métalliques à partir d'enregistrements sédimentaires au sein des marges alluviales du Rhône aval et de la Têt afin de compléter les études antérieures portant sur les stocks sédimentaires dans les berges et autres marges fluviales (Rolland, 2006 ; Clerc, 2008 ; Provansal *et al.*, 2010) et d'évaluer, *in fine*, leur contribution au flux global de radionucléides et de métaux trace en transit vers la mer.

Ainsi, des sites de sédimentation, témoins des teneurs passées, ont été recherchés dans les bassins du Rhône et de la Têt (en collaboration avec le [CEFREM](#) et le [CEREGE](#)).

Les analyses ont été ciblées sur les radionucléides (émetteurs gamma, ^{90}Sr et isotopes du plutonium), mais également, en collaboration avec Olivier Radakovitch (CEREGE), sur les éléments traces métalliques (cadmium, cobalt, chrome, mercure, scandium, zinc, plomb, nickel et cuivre) et les éléments majeurs (fer, aluminium, calcium, potassium, magnésium et manganèse).

11.1 Les marges alluviales et les archives sédimentaires (post-doctorats de Grégoire Maillet et d'Emmanuelle Ferrand)

11.1.1 La sensibilité des berges

Le travail de Grégoire Maillet a permis d'analyser de façon simplifiée l'ensemble des processus de création et de transfert du matériel sédimentaire et des radionucléides potentiellement associés, et surtout d'identifier leurs principales sources de variabilité.

L'étude bibliographique effectuée a notamment permis (1) de résumer les connaissances théoriques sur le fonctionnement des plaines alluviales et la répartition des dépôts radioactifs en leur sein, et (2) de recenser l'ensemble des données déjà disponibles pour les renseigner.

À partir de cette revue bibliographique, Grégoire Maillet a proposé une liste des facteurs de la sensibilité radioécologique des milieux rivulaires. Ces facteurs de sensibilité peuvent être de nature contextuelle ou dépendre du radionucléide rejeté.

En terme de priorités d'étude, il a été clairement établi qu'il faudrait d'abord acquérir de la connaissance sur les facteurs de sensibilité contextuels au niveau local, et notamment les relations de géométrie hydraulique et la quantification des valeurs de débit de plein bord (DPB) pour être capables de progresser sur la voie de l'évaluation de la sensibilité radioécologique de façon globale, c'est-à-dire sous la forme d'indice. On peut donc dire que la question de la sensibilité des milieux fluviaux ne se pose que pour le chenal actif tant que le DPB n'est pas dépassé.

Au sein du chenal actif, les particules fines (présentant les teneurs les plus importantes en radionucléides) se déposent loin du chenal (plaine d'inondation distale). Les radionucléides devraient se déposer, lorsque le niveau du régime hydrologique le

permet, selon un gradient qui augmente avec l'éloignement au chenal, comme observé par Walling *et al.* (1997). Or, les plus forts taux de sédimentation étant localisés sur les berges *stricto sensu*, on devrait retrouver les plus grands volumes de radionucléides dans la zone d'équilibre dynamique du fleuve. Au final, il semble que les effets se combinant, la répartition des dépôts chroniques de radioéléments sur les marges fluviales est relativement constante dans l'espace et dans le temps (figure 39).

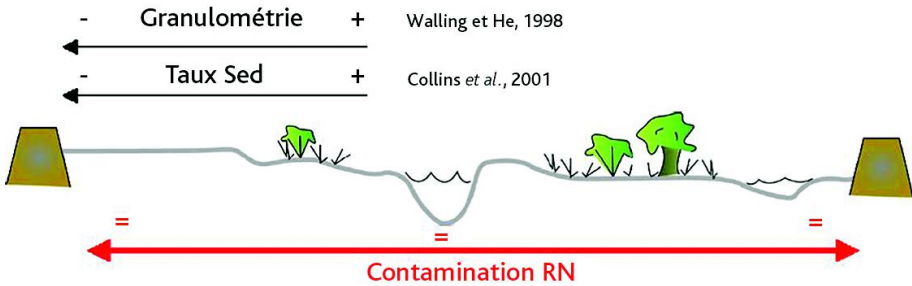


Figure 39. Répartition théorique des contaminants radioactifs sur un profil intra-digue type (d'après Maillet *et al.*, 2007).

En contexte accidentel, on pourra donc considérer que la concomitance d'un rejet accidentel et d'une crue dépassant le DPB (fréquence de retour supérieure à environ 2 ans) repose la question de la sensibilité des berges *stricto sensu*. Pour des niveaux de crues supérieures à la crue décennale, en raison des processus de rétention sédimentaire sur les berges (rôle de la micromorphologie et de la ripisylve), on pourra considérer que toute la plaine alluviale est concernée (figure 40).

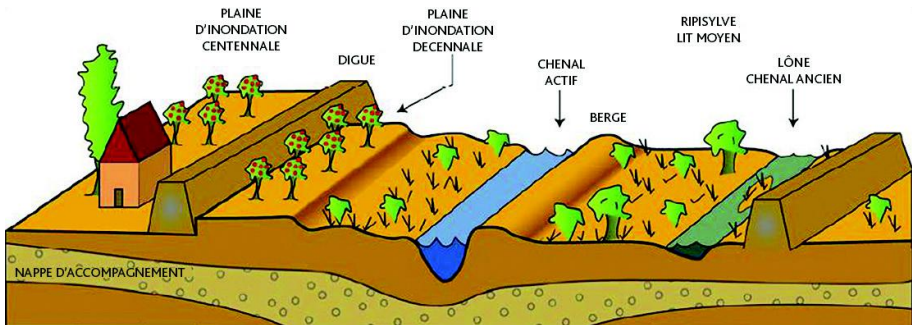




Figure 40. Zonation simplifiée des compartiments rivulaires (d'après Maillet *et al.*, 2007).

11.1.2 La reconstruction des niveaux historiques

		
<p>Sur le site de Petite Argence (Petit Rhône)</p>	<p>En amont de la Lône du Pillet (Rhône)</p>	<p>En amont de la Lône du Pillet (Rhône)</p>

Dans le cadre des travaux d'Emmanuelle Ferrand, des analyses au sein de carottes sédimentaires prélevées dans les marges alluviales du bas Rhône et de la Têt ont été utilisées afin d'évaluer les niveaux historiques en « Éléments trace potentiellement contaminants » (ETPC) transportés et déposés par ces fleuves et témoins des apports anthropiques : les éléments trace métalliques (Cd, Co, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb, Zn and Sc) et les radionucléides artificiels (^{137}Cs , ^{241}Am , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$). Les radionucléides artificiels ou d'origine naturelle, en particulier les ^{137}Cs et ^{210}Pb , ont été également exploités dans cette étude comme outils de datation des profils sédimentaires.

Les taux de sédimentation apparents déterminés dans les enregistrements sédimentaires étudiés présentent une grande variabilité allant de 0,16 à 23,5 cm/an et soulignant l'hétérogénéité des processus d'accumulation et d'érosion sur une zone restreinte spatialement.

Les facteurs d'enrichissement en éléments trace potentiellement contaminants ont été déterminés à partir de valeurs de référence correspondant au bruit de fond géochimique pour les éléments trace métalliques et au bruit de fond anthropique pour les radionucléides artificiels. Pour les « Éléments trace métalliques » (ETM), le bruit de fond géochimique a été recherché dans des échantillons de dépôts sédimentaires de la période pré-protohistorique, soit antérieure à celle de l'utilisation des métaux par l'homme (antérieure à - 4 000 BP). Pour les radionucléides artificiels, le bruit de fond anthropique de référence est celui relatif aux niveaux contemporains observés, les niveaux les plus récents étant d'une manière générale les plus faibles.

Les facteurs d'enrichissement expriment, pour un élément donné, le degré d'anthropisation d'un milieu. De faibles valeurs d'enrichissement obtenues pour le Co, le Cr et le Ni montrent l'origine lithogénique de ces métaux alors que des enrichissements modérés sont mis en évidence pour les autres métaux. Les facteurs d'enrichissement maximums mesurés varient entre 2 (Zn) et 13,5 (Pb) suivant l'ordre croissant : Zn < Cu < Hg < Cd < Pb.

Pour quasiment tous les ETM, les apports d'origine anthropique diminuent à la fin des années 1960, à l'exception du Hg pour lequel la diminution ne s'effectue qu'à partir des années 1980.

La fin de la période de forte industrialisation d'après-guerre puis la mise en œuvre progressive des lois de protection environnementales, dont la [Directive cadre sur l'eau](#) à partir de 2000, sont à l'origine de la réduction des teneurs en métaux au cours des dernières décennies. Les teneurs en métaux mesurés dans les sédiments du bas Rhône et de la Têt des années 1950 à aujourd'hui sont néanmoins modérées, en particulier par rapport à celles rencontrées dans d'autres rivières fortement anthropisées comme la Seine.

Concernant les radionucléides artificiels, les facteurs d'enrichissement les plus importants sont mesurés en profondeur dans les couches de sédiments représentatifs de la période 1960-1990. Cette période correspond à la période de rejets maximums de radionucléides artificiels dans l'environnement par les industries nucléaires, en particulier l'usine de retraitement du combustible irradié de Marcoule.

Cette étude a permis de mettre en évidence des facteurs d'enrichissements significatifs mais néanmoins relativement modérés pour les radionucléides à vie moyenne à longue, c'est-à-dire principalement, le ¹³⁷Cs, l'²⁴¹Am et les isotopes du plutonium, ceux à vie plus courte ayant disparu du milieu environnemental par décroissance radioactive.

Les travaux d'Emmanuelle Ferrand permettent de parvenir aux conclusions suivantes :

Malgré une forte hétérogénéité spatiale, globalement les sédiments stockés dans les marges alluviales du Rhône présentent des facteurs d'enrichissement en métaux trace et radionucléides artificiels faibles à modérés. Ces milieux de stockage temporaires, pouvant être réactivés par des processus naturels tels que les crues de grande ampleur, ou bien par des processus anthropiques tels que les opérations

de dragages ou de restauration, ne semblent donc pas constituer un terme source majeur de contamination pour les eaux du fleuve.

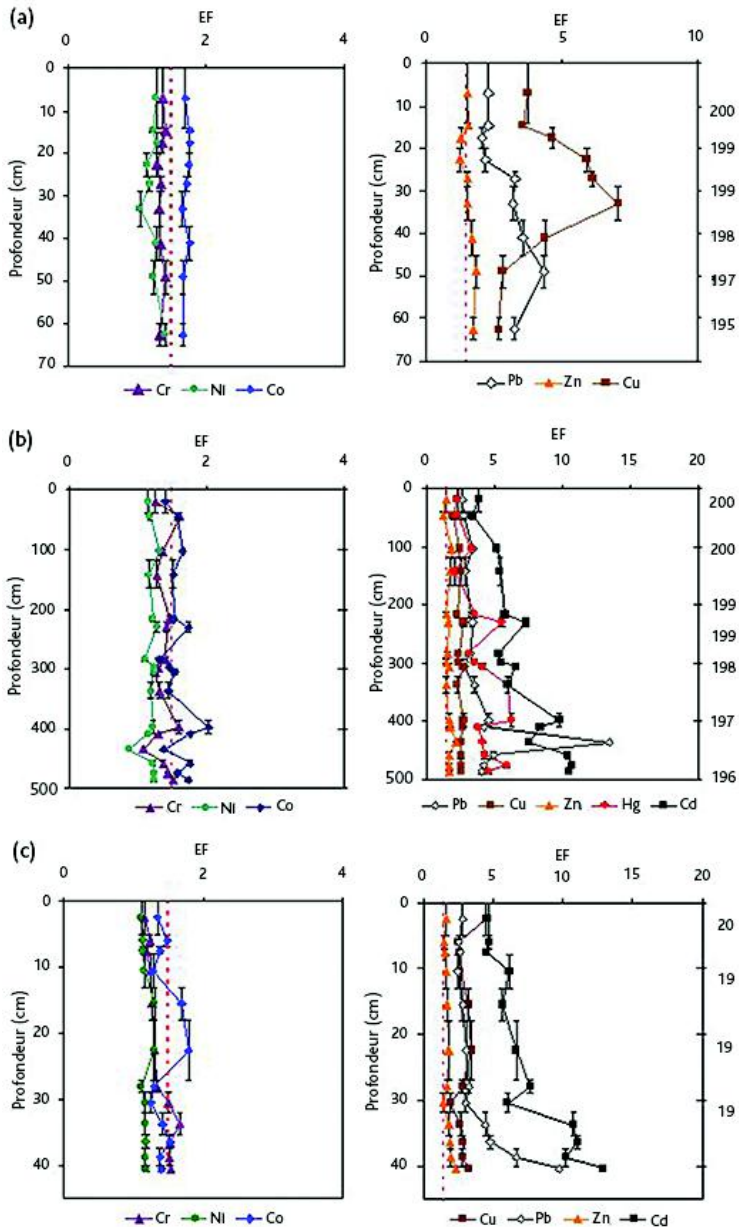


Figure 41. Facteurs d'enrichissement (EF) calculés en fonction de la profondeur (comparaison avec les valeurs en métaux dans le site de référence). (a) Site Mas de l'Aube ; (b) Site Pillet P1 et (c) Site Pillet P2 (d'après Ferrand, 2010).

Bibliographie

Ferrand E., Eyrolle F., Provansal M., Dufour S., Radakovitch O., Raccasi G., Gurriaran R. Heavy metals and artificial radionuclides records in riverbanks sediments of the lower Rhône river (South-East France), 19th V.M. Goldschmidt™ conference, 21-26 June, Davos, Switzerland, 2009.

Ferrand E. Détermination des niveaux historiques en radionucléides et éléments trace métalliques à partir d'enregistrements sédimentaires au sein des marges alluviales du Rhône aval et de la Têt, rapport de post-doctorat, rapport DEI/SESURE 2010-02, 2010.

Ferrand E., Eyrolle F., Radakovitch O., Provansal M., Dufour S., Vella C., Raccasi G. and Gurriaran R. Historical levels of heavy metals and artificial radionuclides reconstructed from overbank sediment records in lower Rhône River (South - East France), *Geochemica and Cosmochimica Acta*, special Issue on Environmental Records of Anthropogenic Impacts, 82, 163-182, 2012.

Maillet G., Eyrolle F. Évolution des flux sédimentaires et des contaminants du Rhône à l'échelle séculaire, *in*: Encyclopédie de Camargue, nature et culture du delta du Rhône, Éditeur Buchet-Chastel (Arles), 352 p., 2013.

Maillet G., Mercat C., Eyrolle F. Sensibilité radioécologique des berges - apports de la géomorphologie à la détermination des facteurs de sensibilité radioécologique des berges, rapport de post-doctorat, rapport IRSN/DEI/SESURE 2007-20, 2007.

Provansal M., Villiet J., Eyrolle F., Raccasi G., Gurriaran R, Antonelli C. High-resolution evaluation of recent bank accretion rate of the managed Rhone: A case study by multi-proxy approach, *Geomorphology*, 117, 287-297, 2010.

Provansal M., Ferrand E., Eyrolle F., Raccasi G. Spatial variability of sedimentation rates and radionuclide storage in alluvial margin of the lower Rhône River, *Aquatic sciences*, special issue, 74, 735-750, 2012.

Chapitre 12

Tritium et ^{14}C : vers l'étude des grands cycles

Contrairement aux éléments présents à l'état de trace dans l'environnement pour lesquels les transferts au sein des différents compartiments de l'environnement sont régis par des équilibres aux interfaces (K_d , coefficient de transfert), le tritium et le ^{14}C intègrent et suivent intimement les cycles de l'eau et du carbone. Le ^{14}C et le tritium sont ainsi présents dans l'environnement sous forme minérale et sous forme organique, de la même manière que le carbone et l'hydrogène stables.

Le tritium ($T_{1/2} = 12,3$ ans) et le ^{14}C ($T_{1/2} = 5\,730$ ans) présentent tous deux un terme source naturel cosmogénique résultant de la capture de neutrons de différentes énergies par les atomes d'azote de l'atmosphère. Ces isotopes radioactifs ont également été introduits artificiellement dans l'environnement lors des essais aériens anciens d'engins nucléaires, et ils sont rejetés par l'industrie nucléaire *via* les effluents gazeux et liquides, conformément à la réglementation.

Les essais nucléaires de surface réalisés de 1945 à 1980 auraient conduit à augmenter les teneurs atmosphériques en tritium de trois ordres de grandeurs (AIEA, 2004) et celles du ^{14}C d'environ un facteur 2 (Levin and Heisshaimer, 2000).

Actuellement, le tritium et le ^{14}C sont en France les radionucléides les plus rejetés par les installations nucléaires (Gontier et Siclet, 2011). Dans les eaux du Rhône aval, par exemple, plus de 80 % de l'activité en H libre proviendraient des rejets de l'industrie nucléaire (Eyrolle-Boyer *et al.*, 2013 ; Eyrolle-Boyer *et al.*, 2015).

Je décidais alors, dans le courant de l'année 2012, de m'intéresser à ces éléments radioactifs, tant en termes d'expertise et de radioprotection qu'en termes de recherches afin d'en préciser les mécanismes de transferts, mécanismes fondamentalement différents de ceux auxquels répondaient les radionucléides que j'avais étudiés jusqu'alors.

Je m'investissais dans les processus, plus complexes qu'il ne pouvait paraître de prime abord, régissant les grands cycles de l'eau et du carbone.

12.1 Le comportement du tritium et du ^{14}C dans l'environnement

Le ^{14}C est pour sa forme minérale intimement associé à la géochimie des carbonates et au cycle de la matière vivante pour sa composante organique. C'est en outre cette dernière propriété qui en a fait un géochronomètre de choix depuis des décennies. L'augmentation des teneurs en CO_2 dans l'atmosphère au cours du 20^e siècle, liée à l'utilisation croissante de combustible fossile dépourvu de ^{14}C , a conduit à une diminution à l'échelle globale du rapport $^{14}\text{C}/\text{C}$ de l'atmosphère (Sundquist, 1993 ; Roussel-Debet *et al.*, 2006).

La matière organique fossile ou bien l'altération des bassins calcaires peut également conduire à différentes échelles de temps et d'espace à une diminution de ce rapport. En milieu terrestre, les données relatives au comportement du carbone sont abondantes, notamment en raison des travaux engagés depuis plusieurs années dans le cadre des recherches sur les gaz à effet de serre, dont le dioxyde de carbone, pour lequel les compartiments sources et puits sont particulièrement étudiés (Roussel-Debet *et al.*, 2014). En milieu aquatique continental, les données sont plus rares et le

comportement particulier du carbone dans les hydro-systèmes rendent ces données encore plus délicates à interpréter.

Le **tritium** se rencontre quant à lui sous forme gazeuse (HT ou hydrogène tritié), sous forme HTO (molécule d'eau tritiée), ou bien associé aux molécules organiques d'origine biologique de manière échangeable (TOL-E ou tritium organique lié échangeable) ou non échangeable (TOL-NE ou tritium organique lié non échangeable) (figure 42). Il peut enfin être observé de manière plus anecdotique sous une forme associée aux molécules organiques de synthèse (résidus de peintures par exemple) ; on parle dans ce dernier cas de tritium technogénique (Croudace *et al.*, 2012).

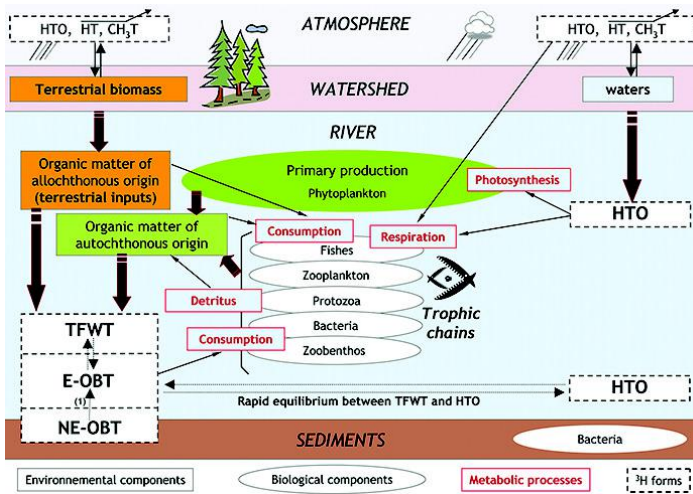


Figure 42. Comportement et formes chimiques du tritium en milieu dulçaquicole (d'après Eyrolle-Boyer *et al.*, 2014).

En milieu terrestre, la forme TOL-E est par exemple celle qui sera échangée lors des processus d'évapotranspiration. La forme TOL-NE est quant à elle initialement générée lors de la photosynthèse et perdue dans l'environnement en suivant le cycle de biodégradation de la matière organique, à l'instar du ¹⁴C comme démontré récemment par Eyrolle-Boyer *et al.*, 2014.

Les formes organiques du **tritium** et du ¹⁴C produites lors de la photosynthèse persistent au sein de la matière organique vivante ou détritique, que ce soit en milieu terrestre ou en milieu aquatique, au gré des processus de croissance et de dégradation de la matière végétale (biomasse).

Si le tritium libre (HTO) et le ^{14}C sous ses formes minérales (associé aux carbonates et hydrogénocarbonates) suivent globalement les dynamiques des masses d'eau, les formes organiques, en particulier le TOL-NE et le ^{14}C intégrés à la matière organique vivante ou détritique, dépendent étroitement des cycles biologiques.

Les formes minérales et organiques sont intimement liées. Les formes minérales participent à la formation de la masse végétale lors de la photosynthèse, puis cette production primaire est consommée par des consommateurs primaires, éléments de la faune et de la microfaune, eux-mêmes consommés par des prédateurs de niveau trophique supérieur (poissons herbivores, omnivores et carnassiers). C'est ainsi que ces deux radionucléides se retrouvent de manière ubiquiste dans les différents compartiments abiotiques et biologiques de l'environnement.

Une synthèse récente des données d'activités en TOL (E et NE confondu) acquises au cours des dernières décennies dans les sédiments et les matières en suspension d'hydro-systèmes continentaux hors influence industrielle tend à souligner le rôle fondamental de l'origine et de la qualité de la matière organique dans certains déséquilibres observés entre la forme libre et les formes liées du tritium au sein d'un même milieu. En effet, le transfert différé et progressif de la matière organique terrigène (stocks de biomasse) marquée par les retombées atmosphériques anciennes semble être à l'origine des gammes de variabilité en TOL et ^{14}C constatées dans ces milieux et tendrait à expliquer notamment les déséquilibres observés entre les formes libre et liée du tritium observés à la fois en milieu aquatique continental et marin côtier (Eyrolle-Boyer *et al.*, 2014).

12.2 Les niveaux de référence en tritium et en ^{14}C dans les cours d'eau non anthropisés

Extrêmement peu de données acquises au sein de l'environnement pouvant permettre de connaître et d'expliquer les gammes de variabilité du TOL et du ^{14}C dans les milieux aquatiques hors influence des industries nucléaires, en particulier en lien avec la qualité, l'origine ou bien l'âge de la matière organique, sont aujourd'hui disponibles.

Une synthèse des données et des connaissances sur ce thème est résumée ci-après à partir des travaux de Eyrolle-Boyer *et al.* (2015).

« Le tritium et le ^{14}C sont actuellement les deux principaux radionucléides rejetés par l'industrie nucléaire. Le tritium suit le cycle de l'eau mais également, pour ce qui concerne sa forme organiquement liée, le cycle du carbone à l'instar du ^{14}C (Eyrolle-Boyer *et al.*, 2014). Ces deux éléments persistent ainsi au sein des environnements terrestres et aquatiques en fonction des taux de recyclage de la matière organique.

Bien qu'en moyenne l'activité en tritium organiquement lié (OBT) dans les sédiments des rivières non soumises aux rejets atmosphériques ou liquides de l'industrie nucléaire ne diffère pas significativement aujourd'hui (2007-2012) de la teneur moyenne en HTO de l'eau de pluie ($2,4 \pm 0,6$ Bq/L et $1,6 \pm 0,4$ Bq/L, respectivement), des différences régionales sont attendues. Ces différences devraient dépendre des stocks de biomasse constitués lors des retombées atmosphériques globales des essais nucléaires de surface et du taux de recyclage de la matière organique.

Les résultats obtenus entre 2007 et 2012 pour le ^{14}C montrent que les niveaux variaient entre $94,5 \pm 1,5$ et $2,7 \pm 234$ Bq/kg de C pour les sédiments des cours d'eau français et sur une gamme sensiblement supérieure, de $199 \pm 1,3$ à $238 \pm 3,1$ Bq/kg de C pour les poissons de ces même cours d'eau ».

Nous pensons que cet écart inter-matrice est lié à une absorption préférentielle de certains composés organiques par les poissons (alimentation discriminante) au détriment du ^{14}C organique fossile (COF) plus réfractaire et des carbonates anciens, chacune de ces deux espèces étant appauvris en ^{14}C . Cette hypothèse reste à ce jour à tester.

« Quoiqu'il en soit, la plupart des plages de valeurs observées sont en-dessous de la valeur de référence caractéristique de l'environnement terrestre ($232,0 \pm 1,8$ Bq/kg de C en 2012 (Roussel-Debet, 2014)) reflétant la dilution par les carbonates et/ou le carbone organique fossile présent dans les hydro-systèmes.

Cela souligne l'intérêt d'établir, pour ces deux radionucléides, des gammes de valeurs de référence à l'échelle régionale afin de tenir compte des variations paléo climatiques et lithologiques.

Eyrolle-Boyer *et al.* (2015) montrent également que les archives sédimentaires témoignent relativement bien du transfert différé vers les cours d'eau des stocks de biomasse terrestre marqués en tritium par les retombées atmosphériques globales

des tirs et se prêtent particulièrement bien à la reconstruction des niveaux historiques en ^{14}C et en tritium organiquement lié ».

Nous soulignons ici que les accumulations sédimentaires représentent des milieux de stockages de tritium lié et, potentiellement, de redistribution de cette forme du tritium lors de remobilisation par des forçages externes (crues, dragages, rénaturalisation des chenaux...).

Nous montrons enfin que les crues peuvent affecter de manière significative les niveaux en tritium organiquement lié et en ^{14}C au sein des particules en suspension en transit ou des sédiments, en fonction de l'origine des particules, confortant la nécessité d'acquérir des gammes de valeurs de référence à l'échelle régionale.

Dans ce contexte, je proposais fin 2013 d'accueillir un doctorat au laboratoire afin de travailler sur « le rôle de la qualité de la matière organique dans la variabilité des teneurs en tritium organiquement lié et en ^{14}C dans les cours d'eau non anthropisés »

12.3 Le rôle de la matière organique dans le transfert du tritium organiquement lié et du ^{14}C dans les cours d'eau (thèse de Loïc Ducros, novembre 2014-)

Le projet de thèse s'organise aujourd'hui selon les six axes majeurs suivants :

1. Établir les gammes de variabilité des niveaux en HTO, TOL et ^{14}C au sein des différentes matrices des milieux dulçaquicoles. Les matrices ciblées sont l'eau, les matières en suspension (MES), les sédiments, et les poissons.
2. Établir des liens entre les activités en TOL et ^{14}C mesurées dans différentes matrices des milieux aquatiques continentaux et la qualité de la matière organique particulaire ou dissoute en transit dans ces milieux.
3. Reconstruire les niveaux passés à partir d'archives biologiques et sédimentaires (carottes ligneuses (dendrochronométrie) et sédimentaires).
4. En déduire, à l'échelle des bassins versants étudiés, une évaluation des stocks de tritium et de ^{14}C au sein de la biomasse terrestre.
5. Paramétrer les fonctions de transfert bassin versant/cours d'eau (modélisation).
6. Caractériser, en particulier pour les fleuves côtiers étudiés, les signatures propres en HTO/TOL/ ^{14}C et les flux délivrés au milieu marin.

Il s'agit de disposer au terme de ce projet de données environnementales clés permettant de parfaire les connaissances sur le devenir à court, moyen et long termes du **tritium** et du **carbone 14** au sein des hydro-systèmes continentaux et marins côtiers, en lien avec les stocks de biomasse terrestre.

Les hydro-systèmes ciblés *a priori* sont des cours d'eau et des fleuves côtiers de la région Provence-Alpes-Côte-d'Azur ou Languedoc-Roussillon non soumis aux rejets directs de l'industrie nucléaire et choisis soit : (1) pour l'importance des flux solides (le Var et l'Aude) ou des flux liquides délivrés au milieu marin (le Var, l'Aude, l'Hérault, l'Orb, l'Argens, et la Têt) ; (2) pour le caractère contrasté des bassins versants (Durance/Ardèche/Cèze) ; (3) pour l'importance de la production primaire permettant de différencier les signatures entre les particules autogéniques et allogéniques (canaux d'irrigation) ; (4) pour les facilités d'accès par rapport à l'implantation du laboratoire de Cadarache (Durance, Abéou, Asse). Ces hydro-systèmes seront à prioriser ou à compléter.

Loïc Ducros a d'ores et déjà émis l'hypothèse qu'il pouvait exister un lien entre les taux de précipitation et les zones d'accumulation du **tritium** sous sa forme liée au sein de la biomasse terrestre. Les zones sensibles ont été identifiées à l'échelle du territoire français et une première campagne de prélèvements a eu lieu dans le sud-ouest du territoire français afin de tester cette hypothèse.

À cette zonation sera couplée une cartographie de la nature du couvert végétal ainsi que de l'érodabilité des sols afin de cibler les zones de rémanence les plus pertinentes (Ducros *et al.*, 2015 *submitted*).

Bibliographie

Ducros L., Eyrolle-Boyer F., Charmasson S., Cossonnet C. Variability of trace organically bound tritium concentrations in Mediterranean coastal continental water systems, 13th international Conference on the biogeochemistry of trace elements, July 12-16, 2015, Fukuoka international Congress Center, Fukuoka, Japan, 2015.

[Eyrolle-Boyer F.](#), Boyer P., Claval D., Charmasson S. and Cossonnet C. Apparent enrichment of organically bound tritium in rivers explained by the heritage of our past, *Journal of Environmental Radioactivity*, 136, 162-168, 2014.

Eyrolle-Boyer F. Sources of organically bound tritium in pristine rivers. Third Organically Bound Tritium (OBT) Workshop 2014, September 15-18, Ontario, Canada, 2014.

Eyrolle-Boyer F. Flux et bilan des principaux radionucléides d'origine artificielle présents dans le Rhône, Journées Techniques de la SFRP, Eau, Radioactivité et Environnement, 3 et 4 décembre 2014, Paris, 2014.

[Eyrolle-Boyer F.](#), Antonelli C., Renaud P., Tournieux D. Origins and trend of radionuclides within the Rhône River over the last decades, *Radioprotection*, 50, 1, 27-34, 2015.

[Eyrolle-Boyer F.](#), Thébault H., Claval D., Calmon P., Zebracki M. and Cossonnet C. Tritium and ^{14}C background levels in pristine aquatic systems and their potential sources of variability, *Journal of Environmental Radioactivity*, 139, 24-32, 2015.

Chapitre 13

Perspectives

Parmi les axes de recherches que je privilégie actuellement, je citerais (1) l'étude des conséquences des typhons sur les flux de radioactivité transférés des territoires contaminés de Fukushima vers l'océan Pacifique, (2) le rôle des particules organiques allogènes des cours d'eau dans le transfert de la radioactivité, (3) l'étude de la réactivité estuarienne appliquée au ¹³⁷Cs et aux tellure et antimoine stables, et (4) Le [tritium](#) organiquement lié au sein des archives sédimentaires et ligneuses.

Ces axes s'inscrivent dans la continuité de mes travaux et sont déjà partiellement engagés.

13.1 Conséquences des typhons dans les exports de radioactivité au milieu marin (cas des cours d'eau de Fukushima)

Le [chapitre 10](#) a souligné l'importance des épisodes extrêmes dans le transfert de matière au sein des compartiments de l'environnement.

En milieu aquatique continental, les crues exportent en quelques jours seulement l'essentiel des flux solides de l'année. Les travaux de recherches dédiés au fleuve Rhône ont permis de quantifier précisément les flux exportés durant ces épisodes hydrologiques extrêmes ([paragraphe 10.1](#)), et les résultats acquis peuvent être extrapolés aux autres grands fleuves des milieux tempérés. En ce qui concerne les petits fleuves côtiers, il est attendu que les flux exportés lors des épisodes hydrologiques intenses soient encore plus marqués (forte réactivité des bassins versants de faibles dimensions). Ainsi, en milieu méditerranéen par exemple, de nombreux fleuves côtiers ont un fonctionnement de type « éclair ». Ils délivrent des flux de matière au milieu marin côtier de manière brève et intense car ils sont généralement extrêmement réactifs aux précipitations (faible capacité tampon des sols). Ce fonctionnement hydrologique est également celui des oueds, tels que ceux débouchant en Méditerranée en façade du continent nord-africain. Ce fonctionnement hydrologique est régulièrement source de pollution aussi bien pour les réseaux d'alimentation en eau potable dans les zones inondées (contamination des nappes alluviales) que pour les zones côtières (baie de Marseille par exemple).

Le Japon est quant à lui frappé par des épisodes de typhons automnaux extrêmement intenses à l'origine de crues éclairs de forte intensité. La contribution de ces événements aux flux de radioactivité délivrés à l'océan pacifique par les fleuves côtiers transportant la contamination radioactive des retombées atmosphériques de l'[accident de la centrale de Fukushima Daiichi](#) n'est pas établie à ce jour. Or il est primordial de restreindre les incertitudes associées à ces flux événementiels responsables du transfert vers l'océan de l'essentiel des flux de radioactivité d'origine terrigène (drainage des bassins versants).

Comme souligné dans le [paragraphe 9.2](#), la campagne de terrain de 2014 sur la zone contaminée de Fukushima a permis d'enregistrer le passage de deux typhons. Les résultats d'analyses sur les échantillons collectés permettront un premier ajustement des évaluations de flux réalisées pour ces modes de transferts événementiels.

D'autres campagnes de prélèvements dans le cadre du [projet AMORAD/MARIN-SEDIM](#) (*action monitoring*) (ANR-11-RSNR-0002 (2014-2019)) viendront compléter ces premiers résultats.

13.2 Rôle des particules organiques allogènes dans le transfert de la contamination radioactive (cas des cours d'eau de Fukushima)

Les fleuves côtiers drainant les sols les plus contaminés par les retombées radioactives de l'[accident de la centrale de Fukushima Daiichi](#) (FDNPP) transportent des particules présentant *a minima* des activités de plusieurs milliers de Bq/kg. Si les particules en transit dans les cours d'eau lors des événements hydrologiques extrêmes générés par les typhons ont été caractérisées (Évrard *et al.*, 2013), en particulier par la collecte de « laisses » de crue au sein des marges alluviales proximales, les particules fines transférées en dehors de ces épisodes ont été peu étudiées jusqu'à présent.

La campagne de terrain réalisée en novembre 2013 dans le cadre de l'[ANR AMORAD](#) (CONTI-ERO) a permis de montrer que ces particules fines, présentent des activités massiques en ^{137}Cs et ^{134}Cs extrêmement élevées (jusqu'à 4 millions de Bq/kg) (Eyrolle-Boyer *et al.*, *in prep*).

Ces particules fines sont présentes en très faibles concentrations dans les eaux (< 2 mg/L) pour des débits liquides représentatifs des débits moyens annuels. L'on estime qu'elles sont transférées vers le milieu marin plus de 95 % du temps et constituent par conséquent un terme source de radioactivité non négligeable pour le milieu marin, les eaux filtrées présentant des activités relativement faibles (quelques dizaine de mBq/L). De plus, nos premières observations montrent que ces particules présentent des activités massiques proches de celles enregistrées pour les feuilles caduques déposées sur la partie sommitale des litières sous forêt à proximité des stations de collecte des eaux et des particules. Elles présentent également des activités massiques similaires à celles observées pour les horizons humifères développés en partie sommitale des sols sous forêt.

Une caractérisation biogéochimique de ces particules s'avère dès lors primordiale afin d'en préciser l'origine, la nature (organique/inorganique) et leur capacité à fixer et à transférer les radionucléides apportés par les retombées atmosphériques de l'accident.

Dans ce cadre, un sujet de post-doctorat (2016) dédié à la « caractérisation biogéochimique des particules exportées par les cours d'eau qui drainent le panache principal de contamination radioactive de Fukushima » vient d'être proposé.

13.3 Réactivités estuariennes (ANRAMORAD /MARIN/SEDI)

Les milieux marins côtiers sont sous l'influence des apports terrigènes issus des rivières et fleuves côtiers. Ainsi par exemple près de 50 % des apports d'eau douce et 80 % des apports solides en Méditerranée nord occidentale sont issus du Rhône. La quantification des apports terrigènes en éléments nutritifs mais aussi en contaminants par les grands fleuves est un enjeu majeur dans le cadre de la protection des ressources marines (convention de Barcelone).

Les zones d'interfaces eau douce/eau de mer, c'est-à-dire les embouchures ou les estuaires, quelles que soient leur dimension, sont des milieux dynamiques dans lesquels se développent simultanément des gradients de densité, de salinité et des processus géochimiques transitoires. Ces zones sont généralement caractérisées par un piégeage temporaire des particules et sont ainsi particulièrement propices à l'accumulation d'un grand nombre de contaminants organique et inorganique. Elles jouent en fait un rôle de filtre réactionnel pour les apports terrigènes issus des bassins versants (flux « bruts »). Ces milieux de forte réactivité sont susceptibles de modifier dans de nombreux cas les flux « bruts » de contaminants qu'il s'agisse des flux globaux, des flux dissous ou bien encore des flux dissous, tel démontré en outre pour les éléments métalliques (Dabrin, 2009 ; Lanceleur, 2010). L'évaluation des flux « nets », c'est-à-dire en sortie des zones d'interface, demeure une attente majeure dans le cadre des études d'influence sur le milieu marin côtier (Eyrolle *et al.*, 2011).

Le devenir des radionucléides artificiels dans les zones d'interface est extrêmement peu connu, que ce soit pour les éléments radioactifs rejetés de manière accidentelle ou de manière chronique. En effet, les difficultés techniques d'acquérir des données dans ces milieux (moyens à la mer, variabilité des paramètres) ainsi que la forte dilution des apports fluviaux avec les eaux marines conduisant généralement à des concentrations extrêmement faibles limitent les investigations de terrain.

Cet axe de recherche a pour objectif d'acquérir des compétences dans l'évaluation des flux nets émis par les rivières et fleuves côtiers en milieu marin. Sur cette base, les zones d'interface des milieux côtiers du Japon, en particulier ceux impactés par

les émissions radioactives de l'[accident de Fukushima Daiichi](#), ou à défaut celles représentées par les estuaires de la Gironde ou de la Loire, seront étudiées comme observatoire (zone atelier). Les éléments ciblés, à ce stade de la réflexion, seraient le tellure et/ou le sélénium (propriétés physico-chimiques analogues) et/ou les différents isotopes de l'uranium (mines uranifères de la Vienne et de la Dordogne).

Cet axe est soutenu, comme indiqué dans le chapitre 1, par le [projet AMORAD/MARIN-SEDIM](#) (ANR-11-RSNR-0002 (2014-2019) porté par l'[IRSN](#)). Une thèse en codirection [EPOC](#) (université de Bordeaux)/[IRSN](#) sera initiée à partir de 2016 sur cette thématique.

13.4 Archives sédimentaires et ligneuses appliquées au tritium organiquement lié

Les premières archives sédimentaires étudiées afin de reconstruire les niveaux d'activité en [tritium](#) au cours des dernières décennies ont donné des résultats très encourageants (Eyrolle-Boyer *et al.*, 2015). Elles montrent que le tritium sous sa forme liée est relativement bien conservé au sein des profils permettant d'évaluer à terme les niveaux de marquage des particules allogéniques des hydrosystèmes au cours du temps, sous réserve de pouvoir différencier les matières allogéniques des particules autogéniques (production primaire). Des travaux de recherches sur cette problématique ont été initiés dans le cadre de la thèse de Loïc Ducros.

D'autres archives sédimentaires, collectées dans le Rhône amont permettent de retracer l'histoire des rejets de [tritium](#) technogénique (molécules organiques de synthèse tritiées) par les ateliers d'horlogerie largement implantés par le passé dans cette région de France. Ces mêmes archives retracent les niveaux en ¹⁴C des matières en suspension drainées par ce système au cours des 80 dernières années. Les données soulignent en particulier une similitude remarquable avec les niveaux atmosphériques. Ce travail original est en cours de publication (rédaction).

Outre les archives sédimentaires, un protocole de prélèvements et d'analyse d'échantillons, issus de carottes ligneuses est en cours de développement au laboratoire. L'objectif est de reconstruire les niveaux du passé mais surtout d'évaluer les stocks de [tritium](#) toujours présents au sein de la biomasse terrestre.

Ces résultats permettront à terme une meilleure évaluation de l'impact des rejets tritiés (liquides ou atmosphériques) sur l'environnement à moyen et long termes.

Chapitre 14

Présentation personnelle

14.1 Curriculum vitae

Frédérique EYROLLE-BOYER

Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN)

Laboratoire de recherche sur les transferts des radionucléides dans l'environnement

BP 3

13115 Saint-Paul-Lez-Durance Cedex

Tél : + 33 (0)4 42 19 95 12

frederique.eyrolle-boyer@irsn.fr



Fonctions actuelles

- Chercheure en sciences de l'environnement, pôle Radioprotection, Environnement, Déchets et Crise.

Parcours professionnel

Ma carrière de chercheur démarre dès 1989 au sein du Laboratoire de chimie analytique de l'[université de Pau et des Pays de l'Adour](#) sous la responsabilité du Pr. Michel Astruc. J'y suis accueillie en stage de DEA encadrée par Martine Potin et Sylvaine Tellier sur un sujet concernant l'étude expérimentale de la décontamination des sols pollués par un procédé d'électro-migration. À l'automne 1990, recommandée (à tort ou à raison) par le Pr. Michel Astruc, j'intègre le Laboratoire de recherche en chimie des organométalliques (RCMO) de l'[université de Toulon](#), dirigé à l'époque par le Pr. Jean Yves Benaïm, qui m'accueille en thèse afin d'étudier le rôle de la matière organique colloïdale dans les processus de transfert des éléments majeurs et traces au sein des systèmes latosols-podsols des milieux tropicaux, en collaboration avec le Pr. François Fernex de l'[université de Nice Sophia Antipolis](#), et Yves Lucas alors en poste détaché de l'IRD à l'INPA ([Institut national de Piscis da Amazônia](#)) basé à Manaus. Je suis rattachée administrativement à l'[université d'Aix-Marseille III](#), au laboratoire des géosciences de St Jérôme, dirigé durant ces années par le Pr. Daniel Nahon. J'y côtoie en particulier Bruno Hamelin et Marc Benedetti qui accepteront de faire partie de mon jury de thèse, ainsi que Yves Noack, Jean Paul Ambrosi, Jean-Marie Garnier... Entre 1990 et 1994, j'effectue trois campagnes de terrain dans le Para, le Parana et en Amazonie afin de collecter en particulier les eaux « coca cola » des affluents du Rio Négro et les eaux « laiteuses » du rio Solimoes. C'est sans aucun doute cette immense expérience qui aura profondément marquée tant mes aspirations à la recherche que ma démarche scientifique basée sur l'observation de l'environnement. À l'issue d'une petite année de maternité, j'intègre à l'automne 1995 l'antenne marine de La Seyne-sur-mer de l'Institut de protection et de sûreté

nucléaire, l'IPSN avant qu'il ne devienne [IRSN](#), pour un contrat post-doctoral ayant pour objectif d'évaluer la contribution des colloïdes dans le transfert vers le milieu marin des radionucléides artificiels véhiculés par le fleuve Rhône. Épaulée par Mireille Arnaud et Sabine Charmasson, il me faudra deux années pour apporter quelques éléments de réponses à cette question difficile ciblant un milieu complexe et hétérogène, à savoir les zones d'interfaces eaux douces/eaux de mer. Après une seconde pose maternité en 1998, non lassée de la complexité rhodanienne, je réintègre l'IPSN pour un CDD d'un an au sein de la même équipe marine. En 2000, je suis définitivement recrutée par l'IPSN au sein d'un laboratoire basé sur le centre le Cadarache, l'ancêtre du LERCM, mon laboratoire d'affiliation actuelle, où l'on, et notamment Didier Louvat responsable du laboratoire de l'époque, me donne carte Blanche pour développer amplement les activités de recherche en milieu aquatique continental.

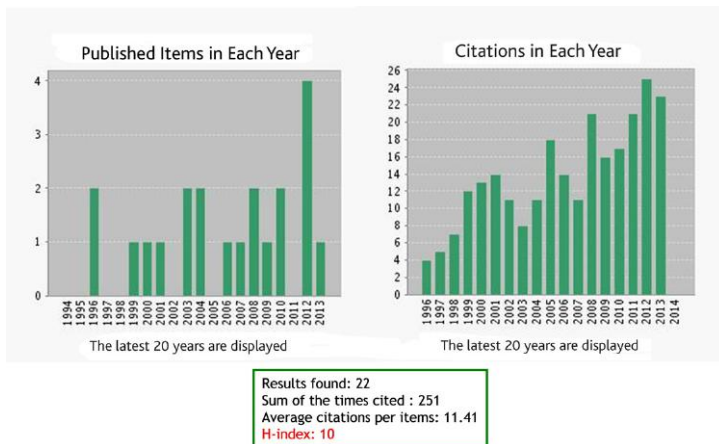
Formation initiale

- Habilitation à diriger des recherches : « Origine, comportement et devenir des radionucléides en milieu aquatique continental », [université d'Aix-Marseille](#), faculté des Sciences, soutenue le 17 novembre 2015.
- Post-doctorat : « Rôle des Substances colloïdales dans les mécanismes de transfert des radionucléides drainés par le Rhône vers la mer Méditerranée », rapport interne IPSN, 1998.
- Doctorat ès Sciences de la terre, spécialité chimie analytique : « La fraction colloïdale organique dans les processus de transport des métaux dans les eaux de surface: application aux systèmes d'altération en milieu tropical », [université d'Aix Marseille III](#), 1994.
- DEA de chimie et microbiologie de l'eau, « Étude de l'électromigration des métaux dans les sols », [université de Pau et des Pays de l'Adour](#), 1990.

Activités de recherche

Tout au long de mon parcours et quel que soit mon statut, j'ai toujours su maintenir une activité scientifique soutenue. Aujourd'hui, je signe 36 articles de rang A (voir l'annexe bibliographique), publiés, sous presse ou acceptés, ce qui correspond à environ 2 publications par an (voir figure ci-dessous). À cela s'ajoute un ensemble de plus de 60 communications avec actes dans des congrès nationaux (15) et internationaux (53), 9 contributions à des ouvrages scientifiques, plus de trente rapports [IRSN](#) sur des sujets d'expertise ou de recherche et 5 participations en tant que conférencière invitée. Mon index-h est 10 et le nombre total de mes citations 251 :

Statistiques de mes publications selon le « web of knowledge » (février 2014) :



Entre 1992 et 2006, je signe en premier auteur la majorité de mes publications et communique mes travaux dans plus de 25 conférences internationales. Par la suite, mes collaborations se concrétisant, je laisse la plume aux étudiants que j'encadre et ne signe plus en premier auteur qu'un tiers de mes publications. La plupart de mes recherches ont été effectuées dans le cadre de programmes de recherche nationaux et internationaux et ont mis en jeu de nombreuses collaborations incluant des disciplines connexes comme l'océanographie, la géomorphologie, la métrologie nucléaire, la sédimentologie. J'ai encadrée une seule thèse (2002-2006) et quatre étudiants en post-doctorat sur des contrats de deux ans. Une thèse sous ma responsabilité a débuté à l'automne 2014. Je cumule ainsi 13 années d'encadrement. Dans ces recherches, j'ai pris soin de faire évoluer mes compétences en fonction tout autant des attentes et besoins de mon laboratoire que des disciplines des partenaires impliqués sur des projets communs. Ainsi, si à l'issue de ma thèse, spécialiste en chimie analytique et géochimie des eaux naturelles, j'ai ensuite acquis des connaissances empiriques de plus en plus approfondies en métrologie nucléaire afin de dimensionner les échantillonnages de terrain, en géomorphologie afin de comprendre les dynamiques sédimentaires, en sédimentologie afin d'étudier les archives sédimentaires permettant de reconstruire les contaminations passées, ainsi qu'en océanologie afin d'échanger avec bon nombre de mes partenaires. Cette reconnaissance scientifique m'a permis de participer à 2 jurys de thèse et d'être sollicitée pour participer à la rédaction d'une dizaine d'ouvrage de synthèse.

Thématiques de recherches

Depuis le début de ma carrière, mes recherches sont orientées vers l'étude du comportement et du transfert des éléments au sein des milieux aquatiques (principalement les éléments traces) et intéressent trois thématiques majeures : 1/ les interfaces solides/solution incluant les composés colloïdaux largement investis durant ma thèse (cas des éléments stables) et mon post-doctorat (cas des éléments radioactifs, les radionucléides), 2/ les flux et l'origine des flux (dynamique sédimentaire et traçage des particules) et 3/ les stocks (archives sédimentaires et ligneuses).

Depuis près de 20 ans, je me consacre donc aux radionucléides d'origine artificielle ou naturelle, ceux régis par des constantes d'équilibre solide/solution et, plus récemment, ceux faisant partie intégrante du cycle du carbone et de l'eau, à savoir le [carbone 14](#), le [tritium](#) libre et le tritium lié. J'étudie principalement les grands fleuves (depuis le Rio Negro, le Solimoes et l'Amazone durant ma thèse jusqu'au Rhône, sans oublier la Seine, la Loire ou encore la Garonne par la suite). J'étudie également certains affluents, afin d'y acquérir des valeurs de référence et caractériser les termes sources (l'Ardèche, la Cèze, la Durance, le Gard). Depuis 2013, j'investis les petits fleuves côtiers (littoral méditerranéen français, côte est du Japon au nord de la centrale de Fukushima Daichi). Je travaille à différentes échelles : depuis celle des grands bassins versants jusqu'aux zones de réactivité estuariennes à l'interface eau douce/eau de mer ; depuis les régimes hydrologiques moyens jusqu'aux épisodes hydrologiques extrêmes (crues, lâchers de barrage). Si jusqu'à présent l'essentiel de mes activités de recherche s'est porté sur les compartiments abiotiques (eau, matières en suspension, sédiments), les prochaines années seront sans nul doute fortement consacrées à étudier les composés organiques en transit au sein des hydrosystèmes, en particulier leur caractère autogénique/allogénique. J'acquiers enfin également depuis peu des connaissances et des données sur des organismes vivants des milieux aquatiques dulçaquicoles (poissons) et marins (moules), et passe des archives sédimentaires aux archives ligneuses (dendrochronologie, lepidochronologie).

Toute mon activité de recherche est basée sur l'observation de l'environnement par l'acquisition de jeux de données environnementales. J'étudie les gammes de variabilité, les paramètres connexes (charges en suspension, granulométrie, COP), les relations entre les paramètres, les séries temporelles et les tendances à court, moyen et long termes.

Si je dois m'attribuer une spécialité scientifique, je me désignerais comme bio-géochimiste des eaux continentales avec des connaissances relativement consolidées en hydrologie, en géomorphologie fluviale et en sédimentologie, sans oublier quelques notions élémentaires d'océanographie.

Activités d'expertise

Parallèlement à mes activités de recherches, j'ai pris dès mon arrivée au Laboratoire la responsabilité des expertises radioécologiques en milieu aquatique continental. Ainsi, en 2003, j'ai été chargée d'évaluer l'impact radiologique des inondations de décembre 2003 en petite Camargue, suite à la demande de la [CLI du Gard](#) (Commission locale d'information du Gard) et de la DRIRE PACA, relayée par une saisine de l'ASN ([Autorité de sûreté nucléaire](#)). En 2009, j'ai réalisé une expertise pour le compte de la [CLI de Cadarache](#) afin d'identifier sur la Durance et en aval du centre de Cadarache, les zones d'accumulation sédimentaires les plus propices à la reconstruction des contaminations historiques du centre. En 2012, j'ai produit un document de synthèse sur l'état radiologique des eaux du canal Philippe Lamour (réseau hydraulique régional de la région Languedoc Roussillon géré par [BRL](#)) à la demande du groupe BRL. Cette expertise initiera un accord quinquennal de collaboration [IRSN/BRL](#) (2013-2017). Enfin, en 2013, j'ai été chargée de réaliser le bilan radio écologique décennal du CNPE du Tricastin pour le compte d'[EDF](#).

Activités d'enseignement et d'encadrement

Lors de mon arrivée à l'[IRSN](#) en tant que post-doctorante à la Seyne-sur-mer, puis lors de mes activités en tant que chercheur permanent à Cadarache, j'ai dû appréhender à la fois les radionucléides et le milieu marin. Les connaissances acquises au cours de mon doctorat sur le transfert des éléments majeurs et traces au sein des systèmes latosols-podzols d'Amazonie par les colloïdes organiques m'ont grandement facilité l'appréhension de ces nouveaux objets. En effet, bon nombre de radionucléides artificiels d'intérêt pour mon laboratoire n'étaient pour moi que des « métaux lourds » (^{60}Co , ^{58}Co , ^{54}Mn , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{63}Ni , etc.) néanmoins radiotoxiques et présents dans l'environnement à des niveaux d'ultra ultra-traces (10-15 ppm). D'autres présentaient une très forte affinité avec les supports solides ou colloïdaux (isotopes du plutonium), d'autres encore se fixaient préférentiellement dans les interstices des feuillets d'argiles (^{137}Cs). Quant au milieu marin, je ne l'ai perçu à mes tous débuts que comme un milieu de force ionique élevée devant agir indubitablement sur les interfaces solide/solution des matériaux en transit du Rhône à la mer, et devant modifier les distributions des radionucléides entre les phases dissoutes, colloïdales et particulaires, ainsi qu'entre la colonne d'eau et les sédiments. Très

rapidement, j'ai donc axé mes thématiques de recherches sur les flux, les stocks et les dynamiques sédimentaires afin d'appréhender la mobilité des radionucléides artificiels sur différentes échelles d'espace et de temps. Je me suis ensuite intéressée également aux radionucléides naturels présents à des niveaux bien supérieurs à ceux de la plupart des radionucléides artificiels ainsi qu'aux particules (phases porteuses) afin de caractériser leur granulométrie ou bien encore, comme plus récemment, leur teneur en matière organique et la qualité des composés organiques. Dans ce cheminement, j'ai eu la chance d'encadrer les thèses et post-doctorants suivants :

Encadrement de thèses

- Benoît Rolland (2002-2006) : « Transfert des Radionucléides artificiels par voie fluviale : conséquences des crues sur les stocks sédimentaires et les exports vers la Méditerranée », [université Paul Cézanne](#).
- Loïc Ducros (2014-à ce jour) : « Origine du tritium organiquement lié et du carbone 14 dans les cours d'eau non anthropisés », [université d'Aix Marseille](#).

Encadrement de post-doctorants

- Christelle Antonelli(2003-2004) : « Représentativité des flux de radioactivité mesurés par la station-observatoire du Rhône (Station d'Arles – [réseau OPERA](#)) ».
- Grégoire Maillet (2007-2008) : « Sensibilité radioécologique des berges - apports de la géomorphologie à la détermination des facteurs de sensibilité radioécologique des berges ».
- Emmanuelle Ferrand (2009-2010) : « Détermination des niveaux historiques en radionucléides et éléments trace métalliques à partir d'enregistrements sédimentaires ausein des marges alluviales du Rhône aval et de la Têt ». Contribution au [projet ANR EXTREMA](#) (contrat N°ANR-06-VULN-005-2007-2011).
- Mathilde Zebracki (2011-2012) : « Origine des particules en transit dans le Rhône Aval : Les radionucléides sont-ils de bons traceurs ? »
- Maud Naulier (2015-2017) : « Caractérisation biogéochimique des particules exportées par les cours d'eau qui drainent le panache principal de contamination radioactive de Fukushima ».

Dès mon arrivée en poste permanent à l'[IRSN](#) j'ai donc organisé mes recherches en proposant des sujets de thèse et de post-doctorat afin de dynamiser mes thématiques de recherches. J'ai souhaité avancer sur plusieurs fronts dans un même temps. Des fronts différents sur des axes thématiques proches qui m'ont permis d'apporter plus rapidement les réponses attendues par mon laboratoire, également

chargé d'expertises environnementales. Dans ce contexte, j'ai souvent privilégié l'encadrement de post-doctorats à celui de thèses. Afin d'ancrer mes thématiques de recherches au laboratoire et de renforcer les compétences de l'équipe j'ai souhaité très rapidement travailler dans le cadre de projets collaboratifs. C'est ainsi que j'ai mis en place dès la fin de l'année 2004, le [projet EXTREME](#) au sein de mon unité, puis élaboré en août 2006 le [projet ANR EXTREMA](#). Ces deux grands projets porteurs soutiendront mes recherches jusqu'en 2011 et m'offriront l'opportunité de nombreux et riches échanges et collaborations en particulier avec les équipes du [CEREGE](#) (Aix-en-Provence, l'Arbois), du [CEFREM](#) (Perpignan), de l'[IFREMER](#) (Centres de Toulon et de Brest), du [LA](#) du pôle d'Océanographie côtière de Toulouse, du [LSCE](#) (Gif-sur-Yvette), de l'[EPOC](#) (Bordeaux), du [BRGM](#) d'Orléans, de l'[université de Tours](#), du [Sisyphé](#) (Jussieu), de l'[IRSTEA](#) et de l'[ENTPE](#) de Lyon. Ces échanges m'ont conduit à participer à de nombreux programmes de recherches, et à intégrer plusieurs comités scientifiques au sein de structures fédératrices de recherches.

Autres activités

Responsabilités collectives

À mon arrivée au laboratoire, la responsabilité scientifique de la station Observatoire du Rhône à Arles, qui deviendra SORA, m'est confiée. J'ai alors pour mission d'évaluer la représentativité des prélèvements qui y sont réalisés et de dimensionner la stratégie d'échantillonnage afin de permettre de quantifier les flux à la mer. Il s'agit avant tout d'en faire une station pérenne, et si possible de référence, pour la communauté des gestionnaires du milieu et la communauté scientifique. SORA sera inaugurée en 2002. Après trois années d'ajustement des protocoles de prélèvements et de tests de validation, elle permet depuis de 2005 de quantifier les flux solides et de radioactivité à la mer selon une procédure inchangée.

Fin 2004, j'initie le [projet EXTREME](#) qui prend la suite du [projet CAROL](#) (Camargue Rhône Languedoc). Il constitue alors l'un des trois grands projets fédérateurs du laboratoire. Il a pour objectif d'étudier le transfert des radionucléides lors des épisodes météo climatiques extrêmes (poussières sahariennes, brouillard, crues, tempêtes en milieu côtier). Il sera sélectionné parmi les projets de l'[IRSN](#) afin d'être présenté au [MEDD](#) en 2006. Il fera également l'objet en 2007 d'une évaluation interne des projets scientifiques de l'Institut.

En 2006, je réponds à l'AAP du [programme « Vulnérabilité, Milieux et Climat »](#) (VMC) de l'[ANR](#), et construit le [projet ANR EXTREMA](#) en collaboration avec le [CEREGE](#),

le CEFREM, l'IFREMER (centres de la Seyne-sur-mer et Nantes) et le laboratoire d'Aérodologie du pôle d'océanographie côtière de Toulouse. Je piloterai ce projet jusqu'en juin 2011. Les projets EXTREME et EXTREMA fédéreront une partie des activités des membres de mon laboratoire pendant plus de six années.

Depuis 2012, la responsabilité des études programmatiques de recherches sur le tritium et le ^{14}C en milieu dulçaquicoles m'est confiée. Je lance le projet interne TCAQ (D3P10/03/03) qui a pour objectif d'établir les gammes de valeurs des référentiels en tritium et ^{14}C au sein des hydro systèmes et de les expliquer. Dans ce cadre, je propose un sujet de thèse sur cette thématique en collaboration avec le CEFREM de Perpignan (variabilité des teneurs en TOL (tritium organiquement lié) et carbone 14 au sein des hydro systèmes continentaux côtiers méditerranéens – rôle de la qualité de la matière organique), ainsi qu'un projet « Interface » en réponse à l'AAP NEEDS Environnement 2014.

Valorisation de la recherche et programmation

Participation à des programmes de recherche

- DBT Dynamique et bilan de la terre (programme INSU), PEGI (Programme environnement géosphère intertropicale) : 3 campagnes de prélèvements d'eau dans le Para et en Amazonie dans le cadre de ma thèse en collaboration avec l'IRD et l'INPA Manaus ont été en partie financées par ce projet, (1990-1992).
- PNOC Programme national d'océanographie côtière, volet « microbiologie sanitaire » (INSU CNRS piloté par l'IFREMER). Campagnes en mer dans le cadre de mon post-doctorat et échange avec les équipes de l'IFREMER. Contributions aux rapports d'avancement à partir de 2000, (1995-2002).
- PNEC Programme national environnement côtier (INSU CNRS piloté par l'IFREMER) : contributions aux rapports d'avancement sur la période 2002 à 2008 (*Monitoring of the Rhône River from March 2001 to October 2004* – Post-doctorat de C. Antonelli), (2002-2008).
- MTP II MATER (MAST) HFF *High Frequency Flux Experiment* : campagnes en mer dans le cadre de mon post-doctorat et premiers échanges avec les équipes marines en particulier du CEFREM, (1996-1999).
- REMOTRANS *Processes regulating remobilisation, bioavailability and translocation of radionuclides in marine sediments* : premiers contacts et collaborations avec les équipes de radio écologie marine européennes (NRPA Norway, National University of Ireland, Lund University Sweden), dans le cadre de mon post-doctorat. Échange en particulier du protocole d'extraction du ^{137}Cs de l'eau de mer par piégeage sur cartouches imprégnées aux ferrocyanures, (1999-2003).

- ORME Observatoire régional méditerranéen de l'environnement (zone atelier du [CNRS-INEE](#)), (2001-2009).
- EUROSTRATAFORM *European Margin Strata Formation*, participation au *joint meeting EURODELTA EUROSTRATAFORM* à Venise en 2004, (2002-2005).
- ORE RESYST Réponse d'un SYSTème deltaïque aux forçages externes (les observatoires de recherches en environnement du [CNRS](#)). Coordinateur O. Radakovitch. Étude des radionucléides artificiels dans les eaux de nappes du Delta de Camargue et contribution aux rapports d'étape, (2003-2007).
- CARMA Conséquences des apports rhodaniens sur le milieu littoral associé : cas des évènements extrêmes (projet inter régional régions Midi Pyrénées et Provence-Alpes-Côte-d'Azur). Coordination M. Arnaud. Implémentation du projet dans [EXTREME](#), (2005-2007).
- [EXTREME](#) Impact d'évènements extrêmes sur les transferts de matières (projet IRSN). Coordination et animation scientifique (thèse B. Rolland), (2005-2010).
- [CHACCRA](#) *Climate and human - induced alterations in carbon cycling at the river-sea connection* (projet ANR-06-VULN-012-2006-2009) [programme ANR VMC](#) (Vulnérabilité Milieux et Climat). Coordination C. Rabouille. Participation invitée aux séminaires d'avancement du projet en tant que coordinatrice d'[EXTREMA](#). Mutualisation des moyens et des données acquises au cours des deux projets EXTREMA et CHACCRA, (2006-2009).
- [FUTURAE](#) *A future for radioecology in Europe*. Coordination J.C. Gariel ([IRSN](#)). Participation au séminaire de lancement (Madrid 2006) ainsi qu'aux différents groupes de travail. Échanges avec les différentes équipes européennes de radioécologie, (2006-2008).
- [EXTREMA](#) Analyse des conséquences d'épisodes météo-climatiques extrêmes (projet ANR-06-VULN-005-2007-2011, labellisé par les pôles de compétitivité « Mer PACA » et « Gestion des risques et vulnérabilité des territoires »). [Programme ANR VMC Vulnérabilité Milieux et Climat](#). Coordination et animation scientifique. Chargée de l'action dédiée aux stocks fluviaux et aux crues (Post-doctorat d'E. Ferrand), (2007-2011).
- [PRIME](#) Projet de recherche sur les indicateurs de la sensibilité radioécologique et les méthodes multicritères appliqués à l'environnement d'un site industriel du Ministère de l'écologie du développement et de l'aménagement durables ([MEDAD](#)). Coordination C. Mercat. Chargée du volet « fluvial » du projet. Étude de la sensibilité radioécologique des berges – apports de la géomorphologie à la détermination des facteurs de sensibilité radioécologiques des berges (post-doctorat de G. Maillet), (2007-2009).

- **MISTRAL-MERMEX** *Marine Ecosystems Response in the Mediterranean Experiment*. Coordination X. Durieu de Madron *et al.* Participation aux meetings de 2005 à Salamanca (Spain) et de 2007 à Cadarache (France). Contribution aux rapports d'avancement (MERMEX-Fleuve WP3), et à la rédaction du chapitre du livre Blanc dédié aux événements extrêmes (*Influence of extreme events on ecosystems and biogeochemical cycling in the Mediterranean Sea*). Projet non poursuivi depuis 2011 (parution du livre Blanc dans *Progress in Oceanography*, cf annexe bibliographique), (2010-2020).
- **AOI MARHONE** Caractérisation de la matière organique particulaire du Rhône et de contaminants inorganiques associés (projet AOI ECCOREV 2011). Coordinateur O. Radakovitch. Chargée des analyses de tritium lié (TOL) et ¹⁴C au sein des matières en suspension (MES) du Rhône aval. Ce projet permettra d'acquérir les toutes premières données en TOL au sein des MES des hydro-systèmes français. Contribution à la restitution du projet lors des journées consacrées, (2011-2012).
- **STAR** *Strategy for Allied Radioecology* (projet du 7^e PCRD - Euratom de la Commission européenne). Coordination J.C. Gariel (IRSN). Ce projet s'inscrit dans la continuité du projet FUTURAE. Participation au *Kick-off meeting* (Saint Maximin). Chargée de représenter mon unité et impliquée en particulier dans le WP2 "Observatories". Participation aux réunions des WP (Helsinki en mai 2011, Lancaster octobre 2011, Madrid janvier 2012, Berlin en juin 2012). Contribution à la rédaction des livrables sur les observatoires. Chargée en 2012 par l'IRSN de la co rédaction du SRA (*Strategic Research Agenda*) – volet « *Exposure and transfer* ». Une partie de ce travail sera publié en fin d'année (Hinton *et al.*, 2012, cf annexe bibliographique), (2011-2015).
- **COMET** *Coordination and implementation of a pan-European instrument radioecology*. Ce projet s'inscrit dans la continuité du projet STAR. Coordination SCK-CEN (Belgium). Le consortium COMET associe 13 organismes dont l'IRSN (10 pays européens ainsi que l'Ukraine et le Japon représenté par l'université de Fukushima). Participation support, (2013-2017).
- **NEEDS COPA** COefficient de PArtage du terrain au model (projet NEEDS environnement APR 2013). Coordination L. Marang (EDF). Chargée de l'acquisition des données sur les radionucléides artificiels rejetés dans la Seine. Contribution à la rédaction du rapport final, (2013-2014).
- **NEEDS HAMUSUTA** Flux de radionucléides par lessivage des bassins versants. Évaluation combinant base de données et mesures *in situ*. Application à la région de Fukushima (projet NEEDS environnement APR 2013). Coordination L. Garcia-Sanchez (IRSN). Chargée de l'acquisition des données de terrain au sein

des bassins versants contaminés au Nord de la centrale de Fukushima-Daiichi (campagne de terrain du 26 octobre au 8 novembre 2013). Contribution à la rédaction du rapport final, (2013-2014).

- **AMORAD/CONTI** (projet ANR-11-RSNR-0002) Amélioration des Modèles de prévision de la dispersion et d'évaluation de l'impact des RADionucléides au sein de l'environnement – axe Continent. ANR RSNR Programme « Investissements d'avenir » de l'ANR - recherche en matière de sûreté nucléaire et de radioprotection (RSNR). Coordination D. Boulaud/M. Simon-Cornu (**IRSN**). Chargée de caractériser les niveaux de radioactivité dans les cours d'eau des bassins versants contaminés dans la région de Fukushima en collaboration avec le **LSCE** Gif-sur-Yvette, (2013-2018).
- **AMORAD/MARIN** (projet ANR-11-RSNR-0002) Amélioration des Modèles de prévision de la dispersion et d'évaluation de l'impact des RADionucléides au sein de l'environnement – Axe Marin. ANR RSNR Programme « Investissements d'avenir » de l'ANR - recherche en matière de sûreté nucléaire et de radioprotection (RSNR). Coordination D. Boulaud/S. Charmasson (**IRSN**). Chargée d'évaluer la conservativité des flux de radioactivité dans les zones de réactivité estuarienne en collaboration avec l'**EPOC** de Bordeaux, (2013-2018).
- **NEEDS INTERFACE** Transfert du **tritium** organiquement lié à l'écosystème côtier méditerranéen par les petits fleuves côtiers – rôle de la matière organique (projet **NEEDS** environnement APR 2014). Coordination F. Eyrolle-Boyer. Projet déposé le 25 février 2014, non retenu, (2014-2015).
- **NEEDS GEODE**, caractérisation bioGEOchimique des particules en transit dans les cours D'Eau de Fukushima. Coordination F. Eyrolle-Boyer/O. Évrard. Projet déposé le 15 mai 2015, non retenu, (2015-2016).
- **NEEDS PALYNO**, reconstruction chronologique des sources de ¹⁴C et de **tritium** organiquement lié (TOL) au sein d'une archive sédimentaire de la Loire aval par l'analyse interprétative des palynofaciès, coordination F. Eyrolle-Boyer/Y. Coppard, déposé le 15 février 2016, (2016-2017).
- **NEEDS CAMORA**, Caractérisation des Matières Organiques des sols et sédiments pour identifier les zones sources de Radionucléides à Fukushima, coordination S. Huon/O. Évrard, déposé le 15 février 2016, (2016-2017).
- **ARCHEO**, reconstitution de l'historique des concentrations en radionucléides ayant transité dans les grands fleuves français au cours de l'ère nucléaire à l'échelle nationale, à partir d'archives sédimentaires. Projet **IRSN**, coordination F. Eyrolle-Boyer/D. Boust, (2016-2019).
- **ARCHEORHONE**, reconstruction des chroniques des concentrations en contaminants dans le Rhône au cours des 65 dernières années à partir d'archives

sédimentaires. Projet ZABR AE, coordination F. Eyrolle-Boyer/J. Ph. Bedell, (2016-2017).

- GRANOFLUX, quantification et caractérisation des apports fluviaux particuliers au Golfe du Lion en fonction de la granulométrie des particules, projet EC2CO AAP 2016, coordination W. Ludwig, (2016-2017).

Rayonnement

Participation à des jurys de thèse

- Dabrin Aymeric (2009) : « Mécanismes de transfert des éléments traces métalliques (ETM) et réactivité estuarienne : cas des systèmes Gironde, Charente, Seudre et Baie de Marennes Oléron », thèse de l'[université Bordeaux I](#), co-directeurs : G. Blanc et J. Schäfer, avril 2009 (rapporteur).
- Lancelot Laurent (2011) : « L'argent, sources, transfert et bioaccumulation - cas de l'estuaire de la Gironde », thèse de l'[université Bordeaux I](#), co-directeurs : G. Blanc et J. Schäfer, juin 2011 (rapporteur).
- Dange Catherine (1999-2002) : « Étude du comportement des éléments traces en milieu estuarien : approche expérimentale et modélisation. Application à l'étude de la spéciation de Cd, Co et Cs dans les estuaires majeurs français (Seine, Loire, Gironde et Rhône) », co-directeur : S. Charmasson et J.L. Gonzales (membre du comité de suivi).
- Lansard Bruno (2001-2004) : « Distribution et remobilisation du plutonium dans les sédiments du prodelta du Rhône (Méditerranée nord occidentale) », université d'Aix-Marseille II, co-directeurs : S. Charmasson et C. Grenz (membre du comité de suivi).
- Launay Marina (2010-2013) : « Mesure et modélisation des flux de matières en suspension et des contaminants associés (PCB et mercure) dans le Rhône à l'amont de Lyon », université de Lyon 1, co-directeur : J. LeCoz et M. Coquery (membre du comité de suivi).

Membre de comités scientifiques et participation à des ateliers thématiques

- Membre du comité scientifique de la ZA ORME (Observatoire régional méditerranéen sur l'environnement), (2005-2009).
- Directeur *at Large* de l'IASWS (*International Association for Sediment Water Science*). Chargée de promouvoir l'association. Participation à l'organisation thématique des conférences de 2011 (Dartington, England, June 19-23 2011) et 2014 (Grahamstown, South Africa, July 15-18) (depuis 2008).

- Membre du comité scientifique de l'OSR ([Observatoire des sédiments du Rhône](#)) (Observatoire de la [zone atelier du bassin du Rhône](#)) (depuis 2009).
- Participation invitée à la 1^{ère} réunion programmatique de l'OSLA (ZAL) en janvier 2011. Apport du retour d'expérience de l'OSR (2011).
- Participation invitée à l'atelier de perspectives thématique sur les « Archives sédimentaires » du réseau des zones ateliers de l'INEE, Paris, siège du [CNRS](#), organisé par les différents représentants des zones ateliers : Laurence Lestel & Sophie Ayrault - Piren Seine, Emmanuelle Montargés-Pelletier & Laurence Mansuy-Huault - zone atelier Moselle, Yves Perrodin - [zone atelier bassin du Rhône](#), Marc Desmet - zone atelier Loire (2013).
- Membre du comité scientifique de la ZABR ([zone atelier du bassin du Rhône](#)) (depuis 2013).
- Membre du comité scientifique de la conférence internationale organisée sous l'égide de l'ICHMT ([International Centre for Heat and Mass Transfer](#)) : HMTNS - 16 "The Heat and Mass Transfer in Nuclear Safety Applications: Severe Accident, Environment Contamination, Waste Storage", 25 - 28 October, 2016, Nice, France (2015-2016).
- Membre invité du comité d'évaluation de l'AAP [ANDRA](#) édition 2016, 5 et 6 avril 2016, [ANR](#) (2016).
- Organisation du 1^{er} GT Env « [tritium](#) », 18 et 19 avril 2016, Cadarache (2016).
- Membre invité au *worshop international* « Tritium et incertitudes », 24 au 27 avril 2016, Ottawa, Canada (2016).

Arbitrage scientifique : *reviewing*: articles et demandes de campagnes en mer (CIRMED)

- *Journal of Environmental Radioactivity*: The dispersion of ¹³⁷Cs and ^{239,240}Pu in the Rhône River plume: a numerical model, janv. 2006.
- *Journal of Environmental Radioactivity*: Study of radioactivity levels in Barcelona's water supply (period 1995-2002), fev. 2006.
- Éditions QUAE : la Têt en Roussillon. Ce que l'eau d'un fleuve peut nous dire sur son bassin versant et ses habitants, oct. 2006.
- Éditions QUAE : apports sédimentaires du Rhône à la mer - variabilité séculaire et impacts des aménagements, oct. 2006.
- *Journal of Environmental Radioactivity*, JENVRAD-D-07-00140: Possibilities of Determination of Radionuclides Released from Temelín nuclear power plant into Vltava River (Czech Republic), juin 2007.

- *Journal of Environmental Radioactivity*, JENVRAD-D-07-00212: An assessment of the effect of former uranium mining upon the surface water radiological quality of the Vienne River basin (France), déc. 2007.
- *Marine and Freshwater Research*: Effect of Ca^{2+} and Na^{+} on sorption of three selected endocrine disruptors to sediments, mai 2008.
- *Marine and Freshwater Research*: *In situ* record of sedimentary processes near the Rhone River mouth during the winter 2006 (Gulf of Lions, Mediterranean Sea), juin 2008.
- *Journal of Food Protection*: Radiometric analysis of farmed fish (Sea Bass, Gilthead Bream and Rainbow trout) from Tenerife island (Spain), sept. 2008.
- *Radioprotection* 2009-22: Radioactive contents and background doses from alluvial sediment plains between rivers Ravi and Chenab, Pakistan, par A. Jabbar *et al.*, mai 2009.
- *Applied Geochemistry*, APGEO-D-09-00206: The effect of mineral and geochemical properties of the Yenisei River sediments on the mobility of artificial radionuclides, nov. 2009.
- *Radioprotection*. Impact des industries dans l'accumulation des radionucléides dans le cours inférieur de l'Ebre (Catalogne, Espagne), juin 2010.
- *Applied Geochemistry*, APGEO-D-09-00206R10. The relationship of mineral and geochemical composition to artificial radionuclide partitioning in the Yenisei River sediments downstream from Krasnoyarsk-26, juin 2010.
- *Journal of Environmental Radioactivity*, JENVRAD-D-10-00206. The inflow of plutonium ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ from the Vistula River catchments area to the Baltic Sea, août 2010.
- *Journal of Environmental Radioactivity*, JENVRAD-D-10-00097. Sedimentation rates in near-surface sediments from Amazon River mouth, Macapá, Brazil, by the ^{210}Pb method, avril 2010.
- IAHS-IAPSO-IASPEI Assembly, Gothenburg, Sweden, July 2013, séance plénière : Heavy metal contamination in world rivers, an indicator of complex relations between societies and river basins, juillet 2013.
- *Journal of Environmental Radioactivity*, JENVRAD-D-13-00406. Environmental mobility of $^{110\text{m}}\text{Ag}$: lessons learnt from Fukushima accident (Japan) and potential use for tracking the dispersion of contamination along rivers, 2013.
- *Journal of Environmental Radioactivity*, JENVRAD-D-14-00092. Measurement of the Tritium Concentration in the Fractionated Distillate from Environmental Water Samples, 2014.

- *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, ECSS-D-14-00087. Assessment of natural radioactivity distribution in surface sediments at erosion and accretion sites of Nile Delta coastal profiles, Egypt, 2014.
- *International Journal of Environmental Research and Public Health*, ijerph-68578. Determination of Total Tritium in Urine from Residents Living in the Vicinity of Nuclear Power Plants in Qinshan, China, 2014.
- *Journal of Environmental Radioactivity*, JENVRAD-D-15-00074. Dynamic evaluation of environmental impact due to tritium accidental release from the fusion reactor, 2015.
- *Radiation & Environmental Biophysics*, REBS-D-15-00049. The interaction of tritium with some types of aquatic plants, 2015.
- *Radioprotection*, RADIOPRO150067. Radiological hazard in the sediment of Xining section of Huangshui river, 2015.
- *Marine Chemistry*, MARCHE-D-15-00168. Anthropogenic tritium in the Loire River estuary, France, 2015.

Comités de rédaction

- *Le golfe du Lion, un observatoire de l'environnement en Méditerranée*. Éditions Quae, Versailles, 2009.
- *Le Rhône aval en 21 questions*. Ouvrage collectif sous la direction de Mireille Provansal, Olivier Radakovitch, François Sabatier et Anne Clémens, ZABR, OSR, Édité par le GRAIE, Lyon, septembre 2012.

Présidence de session et conférencière invitée

- Eyrolle F. (2002). Sediment associated contaminant transfers. 9th International Symposium on the interaction between sediments and waters, Banff Springs Hotel, Canada, May 5-10, 2002, chairman.
- Eyrolle F. (2003). Distribution of radionuclide in aquatic environment. International Symposium on Radioecology and environmental Dosimetry, Institute for Environmental Sciences, Rokkasho, Aomori, Japan, October 22-24, 2003, chairman.
- Eyrolle F. (2003). Origins and levels of artificial radionuclides within the Rhône River waters (France) for the last forty years: A long-term radioecological sensitivity analysis. International Symposium on Radioecology and environmental Dosimetry, Institute for Environmental Sciences, Rokkasho, Aomori, Japan, October 22-24, 2003, invited speaker.

- Eyrolle F. (2005). Sediment associated contaminant transfers. 10th International Symposium on the Interactions between sediments and water, Bled, Slovenia, 28August-2 Sept 2005, chairman.
- Eyrolle F. (2011). Sediment associated contaminant transfers. 12th International Symposium on the Interactions between sediments and water, IASWS 2011, June 19-23, 2011, Dartington, England, chairman.

14.2 Publications

14.2.1 Articles dans des revues internationales ou nationales à comité de lecture

Antonelli C., Eyrolle F., Rolland B. and Provansal M. et Sabatier F. Suspended sediment and ¹³⁷Cs fluxes during the exceptional December 2003 flood in the Rhone River, southeast France, *Geomorphology*, 95, 350-360, 2008.

Delmas M., Cerdan O., Cheviron B., Mouchel J.M. and Eyrolle F. Sediment exports of French Rivers to the sea, *Earth Surface Processes and Landforms*, 37, 7, 754–762, 2012.

Dumas C., Ludwig W., Aubert D., Eyrolle-Boyer F., Raimbault P., Gueneugues A., Sotin C. Riverine transfer of anthropogenic and natural trace metals to the Gulf of Lions (NW Mediterranean Sea), *Applied Geochemistry*, 58, 14-25, 2015.

Eyrolle F., Février D. et Benaim J. Étude par DPASV de l'aptitude de la matière organique colloïdale à fixer et à transporter les métaux : exemples de bassins versants en zone tropicale, *Environmental Technology*, 14, 701-717, 1993.

Eyrolle F., Benaim J. Y., Benedetti M. et Lucas Y. The distributions of colloidal and dissolved organic carbon, major elements, and trace elements in small tropical catchments, *Geochimica and Cosmochimica Acta*, Vol. 60, n°19, 3643-3656, 1996.

Eyrolle F. and Benaim J. Metal available sites on colloidal organic compounds in surface waters (Brazil), *Water Research*, Vol. 33, N°4, 995-1004, 1999.

Eyrolle F. and Charmasson S. Ultrafiltration of large volumes for the determination: of colloiddally bound artificial radionuclides in natural waters, *Applied Radiation and Isotopes*, 52, 927-936, 2000.

Eyrolle F. and Charmasson S. Distribution of organic carbon, selected stable elements and artificial radionuclides among dissolved, colloidal and particulate phases in the Rhône River (France): Preliminary results, *Journal of Environmental Radioactivity*, 55, 145-155, 2001.

Eyrolle F., Arnaud M., Duffa C. and Renaud P. Plutonium fluxes from the Rhône River to the Mediterranean Sea, *Radioprotection*, 37, C1, 87-92, 2002.

Eyrolle F. and Charmasson S. Importance of colloids in the transport within the dissolved phase (< 450 nm) of artificial radionuclides from the Rhône River towards the Gulf of Lions (Mediterranean Sea), *Journal of Environmental Radioactivity*, 72 (3), 273-286, 2004.

Eyrolle F., Charmasson S. and Louvat D. Plutonium isotopes in the lower reaches of the river Rhône over the period 1945-2000: Fluxes towards the Mediterranean Sea and sedimentary inventories, *Journal of Environmental Radioactivity*, Special issue, 74, 127-138, 2004.

Eyrolle F., Louvat D., Métivier J.M. and Rolland B. Origins and levels of artificial radionuclides within the Rhône River waters (France) for the last Forty years: Towards an evaluation of the radioecological sensitivity of river systems, *Radioprotection*, 40, 4, 435-446, 2005.

Eyrolle F., Rolland B., Antonelli C. and Métivier J.M. Artificial radioactivity within the Rhône River waters – Consequences of floods on activity levels and fluxes toward the Sea, *Environnement Risques et santé*, 5, 2, 83-92, 2006.

Eyrolle F., Duffa C., Rolland B., Antonelli C. and Leprieur F. Radiological consequences of the extreme flooding of the Rhône valley area (South east France, December 2003), *Science of the Total Environment*, 366, 427-438, 2006.

Eyrolle F., Claval D., Gontier G. and Antonelli C. Radioactivity level in major French rivers: summary of monitoring chronicles acquired over the past thirty years and current status, *Journal of Environmental Monitoring*, 10, 800-811, 2008.

Eyrolle F., Masson O., Antonelli C., Arnaud M. and Charmasson S. The EXTREME project - Consequences of paroxysmic meteo climatic events on the translocation of contaminants within the geosphere, *Radioprotection*, Vol. 44, N°5, 463-468, 2009.

Eyrolle F., Radakovitch O., Raimbault P., Charmasson C., Antonelli C., Ferrand E., Raccasi G., Aubert D. and Gurriaran R. Consequences of hydrological events on

suspended sediment and associated radionuclide deliveries from the Rhône River towards the Mediterranean Sea, *Journal of Soils and Sediments*, 12, 1479-1495, 2012.

Eyrolle-Boyer F., Renaud P., Le Dore F., Tournieux D., Claval D., Blanchet J. F., Antonelli C., Zebracki M., Cossonnet C., Boulet B., Cagnat X., Devisme A. and Gurriaran R. Radiological characteristics of water transport channels. Example of Rhone Languedoc Roussillon regional network, *Radioprotection*, 49, 2, 123-134, 2014.

Eyrolle-Boyer F., Renaud P., Claval D., Tournieux D., Le Dore F., Blanchet J. F., Loyen J., Antonelli C., Cossonnet C. and Cagnat X. Radiological quality Assessment of the Rhône River filtered waters at its lower course in the framework of water production for human consumption with historical and regional perspectives, *Radioprotection*, 49, 3, 183-193, 2014.

Eyrolle-Boyer F., Boyer P., Claval D., Charmasson S. and Cossonnet C. Apparent enrichment of organically bound tritium in rivers explained by the heritage of our past, *Journal of Environmental Radioactivity*, 136, 162-168, 2014.

Eyrolle-Boyer F., Antonelli C., Renaud P., Tournieux D. Origins and trend of radionuclides within the Rhône River over the last decades, *Radioprotection*, 50, 1, 27-34, 2015.

Eyrolle-Boyer F., Thébault H., Claval D., Calmon P., Zebracki M. and Cossonnet C. Tritium and ^{14}C background levels in pristine aquatic systems and their potential sources of variability, *Journal of Environmental Radioactivity*, 139, 24-32, 2015.

Eyrolle-Boyer F., Boyer P., Métivier J.M., Garcia-Sanchez L., Onda Y., Devisme A., Cagnat X. Behaviour of radiocaesium in coastal rivers of the Fukushima Prefecture (Japan) during conditions of low flow and low turbidity - Insight on the possible role of small particles and detrital organic compounds, *Journal of Environmental Radioactivity*, 151, 328-340, 2015.

Eyrolle-Boyer F., Claval D., Tournieux D., Charmasson S. 1963-2015, more than fifty years of anthropogenic tritium in our environment – Focus on the Rhône valley (south east France), *CRAS geosciences, in prep*, 2016.

Ferrand E., Eyrolle F., Radakovitch O., Provansal M., Dufour S., Vella C., Raccasi G. and Gurriaran R. Historical levels of heavy metals and artificial radionuclides reconstructed from overbank sediment records in lower Rhône River (South - East France), *Geochemica and Cosmochimica Acta*, special Issue on Environmental Records of Anthropogenic Impacts, 82, 163-182, 2012.

Gil-Diaz T., Schäfer J., Pougnet F., Abdou M., Dutruch L., Eyrolle-Boyer F., Coynel A., Blanc G. Distribution and geochemical behaviour of antimony in the Gironde Estuary: a first qualitative approach to regional nuclear accident scenarios, *Marine Chemistry*, 2016.

Hinton T. G., Garnier-Laplace J., Vandenhove H., Dowdall M., Adam-Guillermin C., Alonzo F., Barnett C., Beaugelin-Seiller K., Beresford N.A., Bradschaw C., Brown J., Eyrolle F., Février L., Gariel J-C., Gilbin R., Hertel-Aas T., Horemans N., Howard B.J., Ikäheimone T., Mora J. C., Oughton D., Real A., Salbu B., Simon-Cornu M., Steiner M., Sweeck L., Vives Battle J. An invitation to contribute to a strategic research agenda in radioecology, *Journal of environmental radioactivity*, 115, 73-82, 2012.

Illina S., Zebracki M., Eyrolle-Boyer F., Boyer P., Coppin F. Differences in solid/solution partitioning between various isotopes of a same element, *APGEO*, *in prep.*

Kim J.H., Buscail R., Fanget A. S., Eyrolle-Boyer F., Bassetti M. A., Dorthout D., Baas M., Berne S. Impact of river channel shifts on tetraether lipids in the Rhône prodelta (NW Mediterranean): Implication for the BIT index as an indicator of paleoflood events, *Organic Geochemistry (IMOG)*, *Organic Geochemistry*, 75, 99–108, 2014.

Lansard B., Charmasson S., Eyrolle F., Arnaud M. and Grenz C. Plutonium isotopes remobilization from natural sediments (Gulf of Lions, Northwestern Mediterranean Sea): Estimation based on flume experiments, *American Institute of Physics*, 673, 99-101, 2003.

Le Hecho I., Eyrolle F., Larranaga J., Tellier S. et Astruc M. Protection des eaux naturelles par décontamination *in situ* de sols pollués par des espèces ioniques à l'aide d'une méthode d'électromigration, *Récents progrès en génie des procédés, technologies innovantes en épuration des eaux*, 20, 6, 167-172, 1992.

Lepage H., Eyrolle-Boyer F., Ducros L., Claval D., Tournieux D., Antonelli C., Boyer P. Consequences of dam releases on radionuclide concentrations in the upper Rhône River in June 2012, *JER*, *in prep.*, 2016.

Lucas Y., Nahon D., Eyrolle F. and Cornu S. Soil genesis and dynamics in tropical areas, *Compte rendu de l'Académie des Sciences, Paris*, t.322, Série II a, 1-16, 1996.

Naulier M., Eyrolle-Boyer F., Métivier J.M., Boyer P., Onda Y. Particulate organic matter from Fukushima forests: A source of radiocaesium contamination of rivers for long term, *in prep.*

Marion C., Maillet G., Arnaud M., Eyrolle F. Quantifications des flux solides rhodaniens à l'embouchure : apports de la Durance pendant la crue exceptionnelle de mai 2008, *La Houille Blanche*, 5, 72-80, 2010.

MERMEX group: Durrieu De Madron X., Guieu C., Sempéré R., Conan P., Cossa D., Rabouille C., Guizien K., Estournel C., Loyé-Pilot M.-D., Charmasson S., Eyrolle F., Merle PL., Thébault H. Marine Ecosystems Responses to climatic and anthropogenic forcings in the Mediterranean, *Progress in Oceanography*, 91, 97-166, 2011.

Patel-Sorrentino N., Lucas Y., Eyrolle F. and Melfi A.J. Fe, Al and Si species and organic matter leached off a ferrallitic and podzolic soil system from Central Amazonia, *Geoderma*, 137, 444-454, 2007.

Provansal M., Villiet J., Eyrolle F., Raccasi G., Gurriaran R., Antonelli C. High-resolution evaluation of recent bank accretion rate of the managed Rhone: A case study by multi-proxy approach, *Geomorphology*, 117, 287-297, 2010.

Provansal M., Ferrand E., Eyrolle F., Raccasi G. Spatial variability of sedimentation rates and radionuclide storage in alluvial margin of the lower Rhône River, *Aquatic sciences*, special issue, 74, 735-750, 2012.

Rolland B., Eyrolle F. et Bourles D. Transfert des Radionucléides artificiels par voie fluviale : conséquences sur les stocks sédimentaires et les exports vers la Méditerranée, *Radioprotection*, 41, 2, 6-8, 2006.

Zebacki M., Eyrolle-Boyer F., De Vismes-Ott A., Antonelli C., Cagnat X. et Boullier V. Radionuclide contents in suspended sediments in relation to the flood types in the Lower Rhone River, *Procedia Earth and Planetary Science*, 7, 936-939, 2013.

Zebacki M., Eyrolle F., Cagnat X., Antonelli C., De Vismes-Ott A. and Boullier V. Characterization of naturally occurring radionuclides in the lower Rhône River waters (France), preliminary results from suspended sediments monitoring, *Water Resources Management VII, WIT Transactions on Ecology and the Environment*, Vol. 171, 235-245, 2013.

Zebacki M., Eyrolle-Boyer F., Évrard O., Claval D., Mourier B., Gairoard S., Cagnat X., Antonelli C. Tracing the origin of suspended sediment in a large Mediterranean river by combining continuous river monitoring and measurement of artificial and natural radionuclides, *Science of the Total Environment*, 502, 122-132, 2014.

14.2.2 Communications publiques et rapports d'expertise

Antonelli C. Représentativité des flux de radioactivité mesurés par la station-observatoire du Rhône (station d'Arles – réseau OPERA), rapport IRSN/DEI/SESURE 2004-15, 23 p., 2004.

Desramaut N., Delmas M., Cerdan O., Mouchel J.M., Cheviron B., Eyrolle F. Traitement des données nationales d'exports de sédiments et analyse de leur variabilité spatio-temporelle, rapport BRGM/RP-59327-FR, 2010.

Eyrolle F. Le rôle important des colloïdes dans les transferts des radionucléides aux espèces aquatiques, rapport d'activité IPSN 1997, 36 p., 1997.

Eyrolle F. Les colloïdes en radioécologie marine, rapport d'activité DPRE 1997, 24-25, 1997.

Eyrolle F. Rôle des substances colloïdales dans les mécanismes de transfert des radionucléides drainés par le Rhône vers la mer Méditerranée, rapport final de post-doctorat, rapport IPSN, 145 p., 1998.

Eyrolle F et Masson O. Validation de méthodes de traitement des échantillons d'eau douce et marine (projet METHODEAU1). État d'avancement, rapport IPSN/DPRE/SERNAT 2001-07, 2001.

Eyrolle F. Exportation des radionucléides par voie fluviale – dynamique et bilan sur le bassin rhodanien, rapport IPSN/DPRE/SERNAT 2001-26, 2001.

Eyrolle F. et Duffa C. Flux annuels de $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{238}Pu du Rhône à la mer Méditerranée de 1945 à nos jours et stocks continentaux actuels, rapport IPSN/DPRE/SERNAT 2002-32, 2002.

Eyrolle F. et Rolland B. Radioactivité artificielle dans les eaux du Rhône aval – conséquence des crues sur les niveaux d'activité des eaux et sur les flux à la mer – bilan 2000-2003, rapport IRSN/DEI/SESURE/04-16, 2004.

Eyrolle F., Duffa C., Leprieur F., Rolland B., Antonelli C., Marquet J., Salaun G. et Renaud P. Conséquences radiologiques des inondations de décembre 2003 en Petite Camargue au lieu dit « Claire Farine » – résultats de l'expertise réalisée à la demande de la CLI du Gard, rapport IRSN/DEI/SESURE/04-14, 2004.

Eyrolle F. Conséquences radiologiques des inondations de décembre 2003 en Camargue - résultats de l'expertise réalisée à la demande de la CLI du Gard, réunion CLI du Gard, 23 juin 2004, Nîmes, 2004.

Eyrolle F., Charmasson S. et Masson O. Projet EXTREME – rapport de lancement, rapport IRSN/DEI/SESURE/05-07, 2005.

Eyrolle F. Transfert des polluants radioactifs dans le Rhône – la tendance actuelle, réunion COGEMA, 14 janvier 2005, Cadarache, 2005.

Eyrolle *et al.* EXTREMA contrat ANR-06-VULN-005. Épisodes météo climatiques extrêmes et redistribution des masses sédimentaires et des polluants associés au sein d'un système côtier. Dossier déposé en réponse à l'AAP ANR émis le 9 juin 2006, rapport DEI/SESURE 2007-40, 2007.

Eyrolle *et al.* EXTREMA contrat ANR-06-VULN-005. Épisodes météo climatiques extrêmes et redistribution des masses sédimentaires et des polluants associés au sein d'un système côtier, avancement juin 2007, rapport DEI/SESURE 2007-53, 2007.

Eyrolle *et al.* EXTREMA contrat ANR-06-VULN-005. Épisodes météo climatiques extrêmes et redistribution des masses sédimentaires et des polluants associés au sein d'un système côtier, avancement décembre 2007, rapport DEI/SESURE 2008-22, 2008.

Eyrolle *et al.* EXTREMA contrat ANR-06-VULN-005. Épisodes météo climatiques extrêmes et redistribution des masses sédimentaires et des polluants associés au sein d'un système côtier, avancement juin 2008, rapport DEI/SESURE 2008-37, 2008.

Eyrolle *et al.* EXTREMA Contrat ANR-06-VULN-005. Épisodes météo climatiques extrêmes et redistribution des masses sédimentaires et des polluants associés au sein d'un système côtier, avancement décembre 2008, rapport DEI/SESURE 2009-15, 2009.

Eyrolle F. Chronique des niveaux d'activité au sein des systèmes aquatiques fluviaux français - radionucléides émetteurs gamma, ⁹⁰Sr et isotopes du plutonium, rapport IRSN/DEI/SESURE 2009-29, 2009.

Eyrolle *et al.* EXTREMA contrat ANR-06-VULN-005. Épisodes météo climatiques extrêmes et redistribution des masses sédimentaires et des polluants associés au sein d'un système côtier, avancement juin 2009, rapport DEI/SESURE 2009-38, 2009.

Eyrolle F. Détermination de zones de dépôts sédimentaires sur la Durance propices à une étude d'impact radio écologique des rejets du centre de Cadarache, réunion de la [commission locale d'information \(CLI\) de Cadarache](#), 6 octobre 2010, Saint-Paul-Lez-Durance, 2010.

Eyrolle *et al.* [EXTREMA](#) contrat ANR-06-VULN-005. Épisodes météo climatiques extrêmes et redistribution des masses sédimentaires et des polluants associés au sein d'un système côtier, avancement décembre 2009, rapport DEI/SESURE 2010-17, 2010.

Eyrolle *et al.* [EXTREMA](#) contrat ANR-06-VULN-005, Épisodes météo climatiques extrêmes et redistribution des masses sédimentaires et des polluants associés au sein d'un système côtier, avancement juin 2010, rapport DEI/SESURE 2010-27, 2010.

Eyrolle F. Détermination de points de prélèvement de sédiments dans la Durance à proximité du [CEA Cadarache](#), rapport d'avancement, rapport DEI/SESURE n° 2011-04, 2011.

Eyrolle F. Détermination de points de prélèvement de sédiments dans la Durance à proximité du [CEA Cadarache](#), rapport final, rapport DEI/SESURE n° 2011-16, 2011.

Eyrolle F. Que deviennent les particules lors d'évènements climatiques extrêmes dans le Golfe du Lion ? [AKTIS](#) L'actualité de la recherche à l'[IRSN](#), N°6 – octobre-décembre 2011.

Eyrolle *et al.* [EXTREMA](#) contrat ANR-06-VULN-005. Épisodes météo climatiques extrêmes et redistribution des masses sédimentaires et des polluants associés au sein d'un système côtier, Colloque de restitution finale, compilation des actes du colloque, rapport DEI/SESURE 2011-24, 2011.

EYROLLE *et al.*, 2011, [EXTREMA](#) contrat ANR-06-VULN-005. Épisodes météo climatiques extrêmes et redistribution des masses sédimentaires et des polluants associés au sein d'un système côtier, rapport final, IRSN/DEI/SESURE 2011-33, 2011.

Eyrolle F. and Co. Séminaire [ANR](#) « Changements environnementaux », [ANR EXTREMA](#), 22-23-24 Mars 2011, SupAgro Montpellier, 2011.

Eyrolle F. Les particules en suspension et leurs pollutions, atelier 1 : devenir des polluants particuliers, journées d'échanges [OSR](#), journées d'information et d'échanges chercheurs/gestionnaires de milieux aquatiques, 20 février 2012, Fourques, 2012.

Eyrolle F. et Renaud P. Qualité radiologique des eaux du canal Bas-Rhône-Languedoc. Synthèse de connaissances, mise en perspective historique et régionale, rapport final, rapport IRSN PRP-ENV/SESURE/2012-07, 2012.

Eyrolle-Boyer F. Éléments d'information sur la qualité radiologique des eaux du canal du Bas-Rhône-Languedoc. Quoi de neuf depuis les études de 1995-2000 ? Restitution d'une étude auprès de la société du Bas Rhône Languedoc, 22 novembre 2012, Nîmes, 2012.

Eyrolle-Boyer F. Éléments d'information sur la qualité radiologique des eaux du canal du Bas-Rhône-Languedoc. Quoi de neuf depuis les études de 1995-2000 ? Note technique IRSN PRP-ENV/SESURE/2013-40, 2013.

Eyrolle-Boyer F. Niveaux de radioactivité dans les eaux du Rhône aval - Bilan annuel 2012, rapport PRP-ENV/SESURE/2013-54, 2013.

Eyrolle-Boyer F. Troisième bilan radioécologique décennal du centre de production d'électricité de Tricastin (2012), rapport PRP-ENV/SESURE/2014-13, 2014.

Eyrolle-Boyer F. Niveaux de radioactivité dans les eaux du Rhône aval - bilan annuel 2013, rapport PRP-ENV/SESURE/2014-36, 2014.

Eyrolle-Boyer F. Niveaux de radioactivité dans les eaux du Rhône aval - bilan annuel 2014, rapport PRP-ENV/SESURE/2015-31, 2015.

Gairoard S., Radakovitch O., Eyrolle F., Ludwig W., Cossa D. Flux de matières solides et liquides des bassins versants français à la mer Méditerranée - bilan des connaissances et recommandations pour un suivi optimisé, rapport contractuel pour l'Agence de l'eau RMC, 85 p., 2012.

Masson O., Eyrolle F., Antonelli C., Boullier V. Station observatoire « Rhône aval » - réseau OPERA - bilan 2001-2003, rapport IRSN/DEI/SESURE/LERCM-2004-05, 39 p., 2004.

Masson O., Eyrolle F., Boullier V. et Antonelli C. Station observatoire « Rhône aval », réseau OPERA - bilan de fonctionnement sur la période 2000-2003 et perspectives, rapport IRSN/DEI/SESURE/04-05, 2004.

Renaud P., Eyrolle F. Synthèse des données disponibles pour l'évaluation de la qualité radiologique des eaux du canal du Bas-Rhône-Languedoc, rapport IRSN/DEI/SESURE/2011-26, 2011.

14.2.3 Conférences dans un congrès national ou international

Aubert D., Sotin C., Eyrolle F., Antonelli C., Gueneugues A., Kerhervé P. Estimation des flux annuels en éléments traces métalliques véhiculés par les MES sur le Rhône. Importance de la prise en compte des événements de crue. Cas de l'année 2008. 23^e réunion des Sciences de la Terre, Bordeaux, 25-29 octobre 2010, 2010.

Ducros L., Eyrolle-Boyer F., Charmasson S., Cossonnet C. Variability of trace organically bound tritium concentrations in Mediterranean coastal continental water systems, 13th international Conference on the biogeochemistry of trace elements, July 12-16, 2015, Fukuoka international Congress Center, Fukuoka, Japan, 2015.

Eyrolle-Boyer F. Flux et bilan des principaux radionucléides d'origine artificielle présents dans le Rhône, Journées techniques de la SFRP, Eau, Radioactivité et Environnement, 3 et 4 décembre 2014, Paris, 2014.

Eyrolle-Boyer F. Sources of organically bound tritium in pristine rivers. Third Organically Bound Tritium (OBT) Workshop 2014, September 15–18, Ontario, Canada, 2014.

Ferrand E., Eyrolle F., Provansal M., Dufour S., Radakovitch O., Raccasi G., Gurriaran R. Heavy metals and artificial radionuclides records in riverbanks sediments of the lower Rhône river (South-East France), 19th V.M. Goldschmidt™ conference, 21-26 June, Davos, Switzerland, 2009.

Provansal M., Desmet M., Babut M., Bravard J.P., Bonté P., Dufours S., Eyrolle F., Ferrand E., Lefèvre I., Persat H., Raccasi G. et Roux G. Dynamique fluviale, stockages sédimentaires et distribution des contaminants dans les dépôts des marges et des annexes fluviales (Observatoire des sédiments du Rhône), Colloque « Les grands fleuves vont à la mer – de la production de connaissance à la gestion durable d'environnements d'exception », ZABR Zone atelier du bas Rhône, 30 novembre et 1^{er} décembre 2009, Lyon, 2009.

14.2.4 Communications dans un congrès international

Antonelli C., Provansal M., Ribes E., Rolland B., Eyrolle F. Characterisation of the suspended load of September and November 2002 large floods, COMDELTA, Conference on Comparing Mediterranean and Black sea Prodelta, 26-29 October 2003, Aix-en-Provence, France, 2003.

Antonelli C., Rolland B. and Eyrolle F. Calibration of the radionuclide fluxes of the Rhône River measured by the Arles Observatory Station (SE France), The 30th Congress of the International Geographical Union "One Earth, Many Worlds", 15-20 August 2004, Glasgow, UK, 2004.

Antonelli C., Eyrolle F., Rolland B., Provansal M. and Sabatier F. Suspended sediment and associated radioactivity fluxes during an exceptional flood. The case of the Rhône River (SE France) in December 2003, "The fluvial system - past and present dynamics and controls", Conference hosted by the Department of Geography, Bonn, Germany, May 16-22, 2005.

Antonelli C., Eyrolle F., Rolland B., Provansal M., Sabatier F. Suspended sediment and associated radioactivity fluxes during an exceptional flood. The case of the Rhone River (SE France) in December 2003, EUROSTRATAFORM-PROMESS Joint Meeting, Salamanca, Spain, 24-27 October 2005.

Antonelli C., Eyrolle F., BOULLIER V., Gurriaran R., Cossonnet C. Measurements, quantification and budget recoveries of radionuclide fluxes exported by Rhône River to the Mediterranean Sea, Mesures, estimation et bilan des flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée, I.S. Rivers, 1st international Conference on Integrative Sciences and sustainable development of rivers, 26-28 juin 2012, Lyon, France, book of abstract, p. 151, 2012.

Antonelli C., Zebracki M., Adell W., Sabatier D., Eyrolle-Boyer F., Gairoard S., Launay M. High frequency measurements of suspended sediment particles in the Rhône River, France, 8^e Conférence Internationale de Géomorphologie de l'AIG - du 27 au 31 août 2013, Paris, France, 2013.

Arnaud M., Charmasson S., Thébault H., Eyrolle F. and Barker E. Anthropogenic radionuclides in surface sediments of the Toulon-Bay area (French Mediterranean Coast), CIESM Rapp. Comm. Int. Mer Médit., 37, Barcelone, Spain, 2004.

Aubert D., Eyrolle F., Sotin C., Antonelli C., Kerhervé P., Gueneugues A. Annual fluxes of potentially harmful elements (PHE's) exported by the Rhône River particulate matter. Influence of flood events, 12th International Symposium on the Interactions between Sediments and Water, June 19-24 2011, Dartington hall, England, 2011.

Benaim J.Y., Eyrolle F. et Février D. Metal transport by organic colloids from leaching waters in central Amazonia and in Amapa, in Perspectives for Environmental Geochemistry in Tropical Countries, Thème 5, Organic matter and its importance

in Tropical geochemical cycles, International Symposium, Niteroi, Brazil, edited by ABRAO J. J., WASSERMAN J. C. et SILVA FILHO, 485 p., 1993.

Charmasson S., Eyrolle F., Arnaud M. Plutonium isotopes as tracers of flood events in sediment records at the Rhone River mouth (North western Mediterranean Sea), 12th International Symposium on the Interactions between Sediments and water, IASWS 2011, june 19-23, 2011, Dartington, England, 2011.

Coppard Y., Eyrolle-Boyer F., Radakovitch O., Poirel A., Raimbault P., Lebouteiller C., Gairoard S., Di-Giovanni C. Badlands and the carbon cycle: a significant source of petrogenic organic carbon in rivers and marine environments? EGU, April 17-24, Vienna, Austria, 2016.

Delmas M., Garcia-Sanchez L., Boyer P., Eyrolle-Boyer F., Nicoulaud V., Onda Y., Métivier J.M., De Vismes A. and Cagnat X. Estimating annual wash-off parameters of cesium from watersheds of Minami-Soma region (Fukushima prefecture) by a Bayesian approach, 13th international Conference on the biogeochemistry of trace elements, July 12-16, Fukuoka international Congress Center, Fukuoka, Japan, 2015.

Ducros L., Eyrolle-Boyer F., Charmasson S., Cossonnet C. Variability of trace organically bound tritium concentrations in Mediterranean coastal continental water systems, 13th international Conference on the biogeochemistry of trace elements, July 12-16, Fukuoka international Congress Center, Fukuoka, Japan, 2015.

Ducros L., Eyrolle-Boyer F., Charmasson S., Thébault H., Cossonnet C. Dynamic and variability of Organically Bound Tritium activities within Mediterranean coastal and continental water systems, 13th International Estuarine Biogeochemistry Symposium, June 7-10, Bordeaux, France, 2015.

Ducros L., Eyrolle-Boyer F., Charmasson S., Thébault H., Claval D. Organically Bound Tritium activities within French continental watersheds Preliminary results from areas most impacted by past nuclear fallout, International Conference on Environmental Radioactivity, ENVIRA2015, Thessaloniki, Greece, 21-25 September 2015.

El Ganaoui O., Boyer P., Eyrolle F., Amielh M. and Anselmet F. Modélisation de l'influence de la dynamique sédimentaire sur les transferts des polluants radioactifs dans les cours d'eau, 4^e congrès international du GRUTTEE, 22-23 novembre 2001, Limoges, France, 2001.

El Ganaoui O., Boyer P., Eyrolle F., Anselmet F., Amielh M., Morello M. Importance of particle classes for radionuclide transfers in rivers: Application to an irrigation canal,

Society of Environmental Toxicology and Chemistry, SETAC Europe 12th Annual Meeting, Vienna, Austria, 12-16 May 2002, 2002a.

ElGanaoui O., Boyer P. and Eyrolle F. Modeling and parameterization of a radioecological water quality model integrating sedimentary dynamics model with several classes of sediments: model presentation and application to the Bas Rhone Languedoc Channel in the low Rhone region, 9th International Symposium on the interaction between sediments and waters, Banff Springs Hotel, Canada, May 5-10, 2002b.

Eyrolle F., Goutelard F. and Calmet D. Pu-239+240 and Pu-238 distribution among dissolved, colloidal and particulate phases in the Rhone River waters (France), Proceedings of an International Symposium on Marine Pollution held in Monaco, 5-9 October 1998, IAEA, July 1999, 466-467, 1999.

Eyrolle F. Arnaud M., Delfanti R., Morgigni M, Papucci C. and Salvi S. Gamma emitting radionuclide reactivity within the Rhone River mouth waters (North Western Mediterranean Sea), Proceedings of the 4th International Conference on Environmental Radioactivity in the Arctic, Edinburgh, Scotland, 20-23 September 1999, 57-59, 1999.

Eyrolle F., Arnaud M. and Duffa C. Plutonium fluxes from the Rhône River to the Mediterranean Sea, Proceedings of an International congress on the radioecology-ecotoxicology of continental and estuarine environments (ECORAD), 3-7 September 2001, Aix-en-Provence, France, O4/2 (90), 2001.

Eyrolle F. and Duffa C. Sedimentary beds as a delayed source of ^{137}Cs , ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ for the Rhône River freshwaters, 9th International Symposium on the interaction between sediments and waters, Banff Springs Hotel, Canada, May 5-10, 2002.

Eyrolle F., Charmasson S., Arnaud M. and Louvat D. Remobilisation and translocation of particle bound Plutonium in the Rhône River system (watershed, river bed, marine delta), 5th International conference on environmental radioactivity in the arctic and antarctic, St Petersburg, Russia, June 16–20, 2002.

Eyrolle F, Duffa C. and Charmasson S. Inputs of plutonium isotopes from the Rhône River to the Gulf of Lion (North Western Mediterranean Sea) over the 1945-1998 period – mass balances, fluxes and predictive trend, proceedings of the International Conference on Radioactivity in the Environment, 1-5 September 2002 in Monaco, 577-581, 2002.

Eyrolle F., Rolland B. and Morello M. Radioecological sensitivity of the Rhône aquatic system (France) submitted to forty years of plutonium liquid releases, Plutonium Future – The Science Conference, Albuquerque, New Mexico USA, July 6-10, 2003.

Eyrolle F. Origins and levels of artificial radionuclides within the Rhône River waters (France) for the last Forty years: A long-term radioecological sensitivity analysis, invited speaker to the International Symposium on Radioecology and environmental Dosimetry, Institute for Environmental Sciences, Rokkasho, Aomori, Japan, October 22-24, 2003.

Eyrolle F., Rolland B. and Louvat D. Radioecological sensitivity indicators within continental aquatic system: An estimation based on a long-term chronological series of ^{137}Cs and ^{134}Cs activities within the Rhône River waters (France), 11th International Congress of the International Radiation Protection Association – 23-28 May 2004, Spain, Madrid, 2004.

Eyrolle F., Duffa C., Rolland B. and Antonelli C. Translocation of artificial radioactive contaminants from the Rhône River during the large flood of December 2003, Proceedings of the International Conference on Isotopes in Environmental Studies – Aquatic Forum, Monte Carlo, Monaco, 25-29 October 2004, 299-300, 2004.

Eyrolle F., Antonelli C., Duffa C. and Rolland B. The extreme flooding of the Rhône valley in December 2003 (South east France): Consequences on the translocation of sediments and the associated contaminants over the flooded areas, 10th International Symposium on the Interactions between sediments and water, Bled, Slovenia, 28 August-2 Sept 2005.

Eyrolle F., Antonelli C. and Duffa C. Translocation of sediments and associated artificial radionuclides during the flooding of the lower Rhône River in december 2003 (South East France), 2007, Meeting of the "Large Rivers Group" of the IAG, The Rhone River – A large European impacted hydrosystem, June 24th – July 1st 2007, Lyon, Arles, France, 2007.

Eyrolle F., Provansal M., Villiet J., Raccasi G., Radakovitch O., Gurriaran R., Antonelli C. Evidence for delayed source of long lived artificial radionuclides from a managed river banks (Rhône River, Southern France), 11th International Symposium on the Interactions between Sediments and Water, February 17-22 2008, Esperance, Australia, 2008a.

Eyrolle F., Rolland B. and Gurriaran R. Consequences of the Rhône River floods on ^{137}Cs , ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ fluxes towards the Mediterranean Sea, 11th International

Symposium on the Interactions between Sediments and Water, February 17-22 2008, Esperance, Australia, 2008b.

Eyrolle F. Consequences of paroxystic meteo climatic events on the translocation of contaminants within the geosphere: The EXTREME Project, BERGEN, juin 2008, 2008c.

Eyrolle F., Antonelli C., Raimbault P., Boullier V., Arnaud M. SORA: a high frequency flux monitoring station at the lower Rhône River, proceedings of the 39th CIESM Congress, Venice, Italy, 10-14 May, 2010.

Eyrolle F., Raimbault P., Antonelli C., Ferrand E., Aubert D., Radakovitch O. Suspended Sediment and associated radionuclides transport: 2001-2008 flood monitoring at the lower Rhône river, proceedings of the 39th CIESM Congress, Venice, Italy, 10-14 May 2010.

Eyrolle F., Raimbault P., Antonelli C., Zebracki M., Boullier V., Fornier M., Sivade E. A high frequency flux monitoring station of suspended sediments, nutrients and pollutants at the lower Rhône River (SORA), Station de surveillance et d'enregistrement haute fréquence des flux solides en suspension, des sels nutritifs et des polluants en transit dans les eaux du Rhône aval (Station SORA), I.S. Rivers, 1st international Conference on Integrative Sciences and sustainable development of rivers, 26-28 juin 2012, Lyon, France, book of abstract, p. 232, 2012.

Eyrolle F., Renaud P., Tournieux D., Zebracki M., Cossonnet C., Cagnat X. Assessment of the Radiological quality of the Rhône River waters from monitoring data at its lower course, 9^e congrès international du GRUTTEE, 29-31 octobre 2012, Aix-en-Provence, France, 2012.

Eyrolle-Boyer F., Claval D., Antonelli C., Tournieux D. et Cossonnet C. 1963-2013: Fifty years of anthropogenic tritium in our environment - Focus on the Rhône valley (South east France), 10th International Conference on Tritium Science and Technology, TRITIUM 2013, October 21-25, Nice Acropolis, France, 2013.

Eyrolle-Boyer F. Sources of organically bound tritium in pristine rivers, Third Organically Bound Tritium (OBT) Workshop 2014, September 15-18, Ontario, Canada, 2014.

Eyrolle-Boyer F., Antonelli C., Raimbault P. SORA Observatory Station in Arles - Origin and current status of radioactivity levels in the Rhône River, I.S. Rivers, 2^e conférence internationale, 22 au 26 juin 2015, Lyon, FRANCE, 2015.

Eyrolle-Boyer F., Boyer P., Garcia-Sanchez L., Onda Y., Métivier J. M., De Vismes A., Cagnat X. ^{134}Cs and ^{137}Cs activities in rivers of the Minami-Soma region (Fukushima) in october-november 2013, 2015, 13th international Conference on the biogeochemistry of trace elements, July 12-16, 2015, Fukuoka international Congress Center, Fukuoka, Japan, 2015.

Ferrand E., Eyrolle F., Provansal M., Dufour S., Radakovitch O., Raccasi G., Gurriaran R. Heavy metals and artificial radionuclides records in riverbanks sediments of the lower Rhône river (South - East France), 19th V.M. Goldschmidt™ conference, 21-26 june, Davos, Switzerland, 2009.

Gil-Diaz T., Schäfer J., Pougnet F., Husson A., Dutruch L. , Eyrolle-Boyer F., Bossy C., Gérard Blanc G. Preliminary approach to multiple radionuclide NPP accidental release and dispersion in the Gironde Estuary (France), 32nd International SEGH (4th – 8th July) – Brussels, 2016.

Kim J. H., Buscail R., Eyrolle-Boyer F., Tesit W., Ludwig W., Dorthout D. and Sinninghe Damsté J.L. Applicability of the BIT (Branched and Isoprenoid Tetraether) index as a proxy of paleoflood events in river-dominated continental margins, 26th International Meeting on Organic Geochemistry (IMOG 2013), September 16-20, 2013, Tenerife, Canary Islands, Spain, 2013.

Kim J.H., Buscail R., Fanget A. S., Eyrolle-Boyer F., Bassetti M. A., Dorthout D., Baas M., Berne S. Impact of river channel shifts on tetraether lipids in the Rhône prodelta (NW Mediterranean): Implication for the BIT index as an indicator of paleoflood events, European Geosciences Union General Assembly 2014, 27 April – 02 May, Vienna, Austria, 2014.

Lansard B., Charmasson S., Eyrolle F., Arnaud M. and Grenz C. Plutonium isotope remobilisation from natural sediments (Gulf of Lions, Northwestern Mediterranean Sea): Estimate from flume experiments, Plutonium Future – The Science Conference, Albuquerque, New Mexico USA, July 6-10, 2003.

Le Bescond C., Coquery M., Thollet F., Le Coz J., Gairoard S., Radakovitch O., Antonelli C., Eyrolle-Boyer F., Raimbault P., Pairaud I. Observation strategy for quantifying particulate contaminant fluxes in the Rhône River: the Rhône Sediment Observatory (OSR), I.S. Rivers, 2^e Conférence Internationale, 22 au 26 juin, Lyon, France, 2015.

Le Roux G., Antonelli C., Eyrolle F., Krachler M., Loyen J., Masson O., Mercat-Rommens C., Shoty W. New insights into the complete hydrological cycle of natural radionuclides from the Uranium-Thorium decay chains in French waters,

7th International Congress on Monitoring and Behaviour of Contaminants in the Environment, 29, 30 & 31 octobre 2007, Pau, France, 2007.

Radakovitch O., Gairoard S., Coquery M., Launay M., Le Coz J., Eyrolle-Boyer F., Raimbault P. Dealing with particulate trace metal data in large river system: examples from the Rhone Sediment Observatory, I.S. Rivers, 2^e conférence internationale, 22 au 26 juin, Lyon, France, 2015.

Rolland B., Eyrolle F. and Boulès D. Removal of sedimentary stocks and associated radioactivity in the lower Rhone River: preliminary results, 26-30 april 2004, EGS Nice, 2004.

Rolland B., Antonelli C. and Eyrolle F. Fluxes of suspended material and associated radionuclides to the sea during flood events of the Rhône River, Proceedings of the ECORAD 2004 international symposium, 6-10 sept. 2004, Aix-en-Provence, France, P3, 35, 2004.

Rolland B., Eyrolle F. and Boulès D. Removal of Sedimentary Stocks and associated radioactivity in the lower Rhône River (South Eastern France), Proceedings of the International Conference on Isotopes in Environmental Studies – Aquatic Forum, Monte Carlo, Monaco, 25-29 October 2004, 301-302, 2004.

Rolland B., Eyrolle F. and Boulès D. Significance of floods in the transfer of artificial radionuclides from the Rhône River towards the Mediterranean Sea, 10th International Symposium on the Interactions between sediments and water, Bled, Slovenia, 28 August-2 Sept 2005, 2005.

Rolland B., Antonelli C., Eyrolle F., Arnaud M., Charmasson S., Morello M. and Bouisset P. Suspended sediment fluxes and associated ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be and $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ from the Rhône river towards the Mediterranean Sea over the 2002-2004 period, EUROSTRATAFORM-PROMESS Joint Meeting, Salamanca, Spain, 24-27 October 2005, 2005.

Steiner M., Beresford N. A., Howard B., Bradshaw C., Stark K., Dowdall M., Liland A., Eyrolle-Boyer F., Guillevic J., Hinton T., Gashchak S., Hutri K. L., Ikäheimonen T., Muikku M., Outola L., Michalik B., Mora J-C., Real A., Robles B., Oughton D., Salbu B. Sweeck L., Urso L., Wichterey K., Willrodt C., Yoschenko V. Radioecological observatories – Breeding grounds for innovative Research, ICRER Conference ICRER 2014 - Third International Conference on Radioecology and Environmental Radioactivity, September 7-12, Barcelona, Spain, 2014.

Zebracki M., Eyrolle F., Cagnat X., Antonelli C., De Vismes A., Boullier V. Characterization of naturally occurring radionuclides in the lower Rhône River waters (France), preliminary results from suspended sediments monitoring data and flood deposits, 11th International Conference on Modelling, Monitoring and Management of Water Pollution, 10-12 July, New Forest, UK, 2012.

Zebracki M., Eyrolle-Boyer F., De Vismes-Ott A., Antonelli C., Cagnat X. and Boullier V. Radionuclide contents in suspended sediments in relation to the flood types in the Lower Rhone River, Water Rock Interaction, Symposium of the International Association of Geochemistry, June 9-14, Avignon, France, 2013.

Zebracki M., Eyrolle-Boyer F., Antonelli C., Cagnat X., Thomas S., Boullier V., Gurriaran R. Tracing the origins of sedimentary masses in transit in the Lower Rhone River using activities ratios $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ and $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$, IAHS Conference, assembly, 22-26 July 2013, Gothenburg (Sweden), 2013.

14.2.5 Communications dans un congrès national

Benaim J.Y., Eyrolle F. et Février D. Importance de la fraction colloïdale de la MOD dans le transport des métaux en région Amazonienne, colloque Grands bassins fluviaux péri Atlantiques : Congo, Niger, Amazone, novembre 1993, [ORSTOM](#) Paris, 1993.

Charmasson S., Eyrolle F. and Arnaud M. Les isotopes radioactifs traceurs du Rhône en Méditerranée au cours du temps, colloque de synthèse sur le Rhône et la Méditerranée, 5-7 mai 2004, Marseille, France, 2004.

Copard Y., Eyrolle-Boyer F., Radakovitch O., Rimbault P., Desmet M., Bedell J.P., Debret M., Zebracki M. Origine des matières organiques particulières des sédiments du Rhône et de la Durance, 15^e congrès français de sédimentologie, 13-15 octobre 2015, Chambéry, France, 2015.

Eyrolle F., Duffa C., Rolland B., Antonelli C., Leprieur F. and Renaud P. La crue exceptionnelle du Rhône de décembre 2003. Conséquences sur la translocation des sédiments rhodaniens et des contaminants associés sur les zones inondées, colloque de synthèse sur le Rhône et la Méditerranée, 5-7 mai 2004, Marseille, France, 2004.

Eyrolle F., Rolland B., Antonelli C. et Duffa C. Les sédiments du Rhône : terme puits et terme source de radioactivité artificielle, 2^e journée thématique de la [ZABR](#) : les sédiments du Rhône : grands enjeux, premières réponses, Valence, 10 juin 2005.

Eyrolle F. et Rolland B. Transfert des radionucléides artificiels par voie fluviale, séminaire IFR 112/[IRSN](#) gestion des risques et vulnérabilité des territoires, 2 juin 2005, l'Arbois, 2005.

Eyrolle F. Projet [EXTREME](#), colloque de radioécologie [IRSN-EDF](#) du 23 juin 2006, maison d'hôtes de Cadarache, 2006.

Eyrolle F., Arnaud M., Charmasson S. Les radionucléides marqueurs des apports solides du Rhône à la mer Méditerranée : sources, puits et devenir, séminaire ZA ORME, 4 Juin 2007, Perpignan, 2007.

Eyrolle-Boyer F., Renaud P., Tournieux D., Zebracki M., Cossonnet C., Cagnat X., Loyen J. Qualité radiologique des eaux filtrées du Rhône aval au cours des dernières décennies, journées de la Société française de radioprotection (SFRP), 11-13 juin 2013, Bordeaux-Lac, France, 2013.

Eyrolle-Boyer F. Flux et bilan des principaux radionucléides d'origine artificielle présents dans le Rhône, Journées techniques de la SFRP, Eau, Radioactivité et Environnement, 3 et 4 décembre, Paris, 2014.

Raccasi G., Sabatier F., Eyrolle F. et Provansal M. Estimation de la vitesse de déplacement de la charge de fond par suivi bathymétrique du Grand Rhône – vers une réévaluation des flux solides en transit vers la mer ? *Book of abstract*, colloque morphodynamique et transport solide en rivière : du terrain aux modèles, 16 et 17 octobre 2012, Tours, 2012.

Radakovitch O. et Eyrolle F. Flux de métaux et de radioéléments artificiels dans le Rhône et apports au Golfe du Lion, Les flux de polluants dans le bassin du Rhône : leur caractérisation dans différents contextes géographiques et fonctionnels, 4^e journée thématique de la [ZABR](#), 31 janvier 2008, Parc des expositions – Valence (26), 63-71, 2008.

Radakovitch O., Raimbault P., Kerhervé P., Eyrolle F., Antonelli C., Jacquet S., Rabouille C. Flux de particules, de carbone, d'azote et de phosphore du Rhône : variations temporelles et caractéristiques, 23^e réunion des Sciences de la Terre, Bordeaux, 25 au 29 Octobre 2010.

Rolland B., Eyrolle F. et Boulès D. Estimation des flux de radioactivité artificielle drainée par le Rhône aval, colloque de synthèse sur le Rhône et la Méditerranée, 5-7 mai 2004, Marseille, France. Le Rhône et la Méditerranée : approche scientifique et gestion socio-économique. Textes du colloque de synthèse « Rhône – Méditerranée »,

Marseille les 4-6 mai 2004, publié par le Centre d'océanologie de Marseille (université de la Méditerranée, [CNRS](#)), éditeurs G. Gontier, D. Marty, M. Harmelin et I. Dekeyser, 300 p., 2004.

Zebracki M., Eyrolle-Boyer F., Bonté P., Alary C., Évrard O., Antonelli C., Cagnat X., Lefèvre I., Hammade V. Marquage temporel de l'historique récent des dépôts sédimentaires contaminés en milieu fluvial, 15^e congrès français de sédimentologie, 13-15 octobre 2015, Chambéry, France, 2015.

14.2.6 Ouvrages scientifiques

Antonelli C., Eyrolle F., Raccasi G. Comment évaluer le transport sédimentaire actuel dans le Rhône aval ? *in*: Le Rhône aval en 21 questions, ouvrage collectif sous la direction de Mireille Provansal, Olivier Radakovitch, François Sabatier et Anne Clémens, [ZABR](#), [OSR](#), édité par le GRAIE, Lyon, septembre 2012, Q2, 14-15, 2012.

Arnaud M., Charmasson S. et Eyrolle F. Les radionucléides marqueurs des apports solides du Rhône à la mer Méditerranée: sources, puits et devenir. *in*: Le golfe du lion, un observatoire de l'environnement en Méditerranée. Éditions Quae, Versailles, chapitre 7, 105-119, 2009.

Bresson C., Ansoborlo E., Malard V., Eyrolle F., Fiévet B. *in*: Toxicologie nucléaire environnementale et humaine, Lavoisier 2009, 808 p., partie 4, chapitre 29 : cobalt, 553-570, 2009.

Eve Sivade E., Raimbault P., Eyrolle F. Quels contaminants le Rhône apporte-t-il à la mer méditerranée ? *in*: Le Rhône aval en 21 questions, ouvrage collectif sous la direction de Mireille Provansal, Olivier Radakovitch, François Sabatier et Anne Clémens, [ZABR](#), [OSR](#). Édité par le GRAIE, Lyon, septembre 2012, Q19, 48-49, 2012.

Eyrolle F. Des radioéléments artificiels dans les eaux. L'environnement en France – l'état – l'eau, p. 221, Les synthèses de l'IFEN, Édition 2006.

Eyrolle F. Artificial radionuclides, *in*: Rivers of Europe, The Rhône River Basin, chap 7, Olivier J-M., Carrel G., Lamouroux, N., Dole-Olivier M-J., Malard F., Bravard J-P., Amoros C., Academic Press, London, 260-261, 2009.

Eyrolle F. Le devenir des particules lors des événements climatiques extrêmes dans le Golfe du Lion, [ANR EXTREMA](#) (contrat N°ANR-06-VULN-005), Les cahiers de l'[ANR](#), N°7, avril 2013, p. 118, 2013.

Eyrolle-Boyer F. La radioactivité des eaux de la Loire, contribution au chapitre « contaminants » de l'ouvrage dédié à « la Loire » piloté par l'[université de Tours](#) (F. Moatar), accepté, 2015.

Maillet G., Eyrolle F. Évolution des flux sédimentaires et des contaminants du Rhône à l'échelle séculaire, *in*: Encyclopédie de Camargue, nature et culture du delta du Rhône, éditeur Buchet-Chastel (Arles), 352 p., 2013.

Masson O., Eyrolle F., Antonelli C. Le Rhône est-il pollué par les radionucléides artificiels ? La qualité de l'eau du Rhône, *in*: Bravard J-P., Clémens, A. « Le Rhône en 100 questions », éditions du Graie, 2008.

Masson O., Eyrolle F., Antonelli C. Flux radioactifs dans le Rhône - Le Rhône est-il pollué par les radionucléides artificiels ? *in*: Le Rhône en 100 questions, ouvrage collectif sous la direction de J.P. Bravard et A. Clemens – ZABR ([Zone atelier du Bas Rhône](#)), édité par le GRAIE, Lyon, juin 2008, 178-181, 2008.

14.2.7 Publications de vulgarisation

Antonelli C. Flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée en 2008 - Station observatoire du Rhône en Arles (SORA), rapport IRSN/DEI/SESURE 2010-04, 2008.

Antonelli C. and Co. Journée du pôle de compétitivité Gestion des risques et vulnérabilité des territoires, [ANR EXTREMA](#), 1^{er} décembre 2009, Aix-en-Provence, 2009.

Arnaud M. Projet CARMA (Conséquences des apports rhodaniens sur le milieu littoral associé : cas des évènements extrêmes), 2005-2007, rapport DEI/SESURE 2009-16, 2009.

Eyrolle F. L'aptitude de la matière organique colloïdale à fixer et à transporter les métaux : exemples de bassins versants en zone tropicale, poster, journée de la chimie, université de Toulon et du Var, Société française de chimie ; section régionale Provence - Alpes - Côte d'Azur.

Eyrolle F. Distribution du Cs-137, du Ru-106 et du Co-60 entre les phases dissoute, colloïdale et particulaire. Application aux apports du Rhône en Méditerranée, séminaire DPRE/SERGD, [CEA Fontenay-aux-Roses](#), 21 Novembre 1997.

Eyrolle F. Le rôle important des colloïdes dans le transfert des radionucléides aux espèces aquatiques, rapport d'activité 1997 IPSN, 26 p., 1997.

Eyrolle F. Les colloïdes en radioécologie marine, rapport d'activité 1997 DPRE, 24-25, 1999.

Eyrolle F. Du Rhône à la Méditerranée, les radionucléides dans tous leurs états : soluble - colloïdal - particulaire, bulletin de Liaison du SERNAT n° 99/2, News Actions, 1999.

Eyrolle F. Les inondations de décembre 2003, CRAC de la DEI, 2004.

Eyrolle F. Lancement du projet EXTREME, flash technique du SESURE, 2005.

Eyrolle F. Stockages sédimentaires fluviaux : du terme puits au terme source, CRAC de la DEI, 2005.

Eyrolle F., Charmasson S. et Masson O. [Projet EXTREME](#) – rapport de lancement, rapport IRSN/DEI/SESURE/05-07, 2005.

Eyrolle F. and Co. CHACCRA Annual Workshop Banyuls sur mer, [ANR EXTREMA](#), 6-7 décembre 2007, 2007.

Eyrolle F. and Co. Vulnérabilité : Milieux, climat et sociétés - séminaire d'avancement mi-parcours de l'édition 2006, ANR EXTREMA, 17 et 18 novembre 2008.

Eyrolle F. [EXTREMA](#), un programme pour comprendre ce que deviennent les particules et les contaminants à l'échelle du golfe du Lion, [ATKIS](#), l'actualité de la recherche à l'[IRSN](#), N°6, 2011.

Eyrolle F. Le programme de recherches [EXTREMA](#), revue « Repères » de l'[IRSN](#), N°11, 2011.

[IRSN](#), [Fukushima, un an après](#) - premières analyses de l'accident et de ses conséquences, rapport IRSN/DG/2012-001 du 12 mars 2012. Contribution au chapitre sur les rivières, 2012.

[IRSN](#), impact environnemental de l'accident de Fukushima-Daiichi, rapport IRSN annexe 2 du dossier « [Accident de Fukushima-Daiichi : état des lieux 2 ans après l'événement](#) » rapport n° PRP-ENV/2013-00044. Participation à la rédaction du chapitre sur la contamination des écosystèmes aquatiques continentaux, 2013.

IRSN, Fukushima 4 ans après, rapport IRSN/DG en préparation. Contribution au chapitre dédié aux rivières et au milieu marin, 2015.

IRSN, rejets de plutonium dans la Loire, recherche d'un marquage historique au sein d'une archive sédimentaire collectée le 21 juillet 2015 à Montjean-sur-Loire, note d'information du 29 janvier 2016.

Masson O., Eyrolle F., Antonelli C. Le Rhône est-il pollué par les radionucléides artificiels ? La qualité de l'eau du Rhône, *in*: Bravard J-P., Clémens, A. « Le Rhône en 100 questions », éditions du Graie, 2008.

Provansal M. et Sabatier F. Pourquoi la côte de la Camargue recule-t-elle ? *In*: Bravard J-P., Clémens A. « Le Rhône en 100 questions », éditions du Graie, 2008.

Provansal M., Desmet M., Babut M., Bravard J.P., Bonté P., Dufour S., Eyrolle F., Ferrand E., Lefèvre I., Persat H., Raccasi G. et Roux G. Dynamique fluviale, stockages sédimentaires et distribution des contaminants dans les dépôts des marges et des annexes fluviales (*Observatoire des sédiments du Rhône*), colloque « Les grands fleuves vont à la mer – de la production de connaissance à la gestion durable d'environnements d'exception », ZABR *Zone atelier du Bas-Rhône*, 30 novembre et 1^{er} décembre 2009, Lyon, 2009.

site web : mise en ligne des documents du projet EXTREMA : <http://www.irsn.fr/FR/Larecherche/Organisation/Programmes/EXTREME/EXTREMA/Pages/Le-projet-EXTREMA-3429.aspx>

14.2.8 Autres publications

Rapport IRSN

Antonelli C. Représentativité des flux de radioactivité mesurés par la station-observatoire du Rhône (Station d'Arles – *réseau OPERA*), rapport IRSN/DEI/SESURE 2004-15, 2004.

Ferrand E. Détermination des niveaux historiques en radionucléides et éléments trace métalliques à partir d'enregistrements sédimentaires au sein des marges alluviales du Rhône aval et de la Têt, rapport de post-doctorat, rapport DEI/SESURE 2010-02, 2010.

Maillet G., Mercat C., Eyrolle F. Sensibilité radioécologique des berges - apports de la géomorphologie à la détermination des facteurs de sensibilité radioécologique des berges, rapport de post-doctorat, rapport IRSN/DEI/SESURE 2007-20, 2007.

Zebracki M. Origine des particules en transit dans le Rhône Aval : les radionucléides sont-ils de bons traceurs ? Rapport PRP-ENV/SESURE-2014-01, 2014.

14.2.9 Publications phares

Pour illustrer mes principaux travaux (et résultats) de recherche depuis mon intégration au sein de l'IRSN, j'ai choisi quelques articles phares en illustrant les points forts. La liste complète de mes publications se trouve dans l'annexe bibliographique.

1. **Eyrolle F.** and Charmasson S. (2004) Importance of colloids in the transport within the dissolved phase (< 450nm) of artificial radionuclides from the Rhône River towards the Gulf of Lions (Mediterranean Sea), *Journal of Environmental Radioactivity*, 72 (3), 273-286. Cet article présente la synthèse des activités de recherches que j'ai développées au cours de mon post-doctorat. Il marquera avant tout la relève d'un défi méthodologique, celui de filtrer des mètres cubes d'eau par filtration tangentielle séquentielle. Il permettra de souligner, outre la complexité de la zone d'interface des eaux du Rhône avec les eaux de mer, la faible contribution des colloïdes dans le Rhône aval et à son débouché en mer pour le transport des radionucléides artificiels rejetés par l'industrie nucléaire. Cet article clôturera les études de l'équipe sur cette thématique.
2. **Eyrolle F.**, Charmasson S. and Louvat D. (2004) Plutonium isotopes in the lower reaches of the river Rhône over the period 1945-2000: Fluxes towards the Mediterranean Sea and sedimentary inventories, *Journal of Environmental Radioactivity*, special issue, 74, 127-138. Ce travail est une valorisation des données acquises de manière disparate sur les teneurs en isotopes du plutonium dans les eaux du fleuve Rhône. Ces isotopes à vie longue constituent d'excellents traceurs des apports solides rhodaniens en mer. La connaissance des flux vers le milieu marin représentait un enjeu scientifique. La reconstruction de ces flux depuis le milieu du XX^e siècle a été réalisée par interpolation puis extrapolation. Les données acquises ont été mises en relation, sur l'échelle d'observation, avec les termes sources constitués d'une part par les rejets liquides du centre de retraitement du combustible irradié, et d'autre part les flux d'érosion du bassin versant marqué par les retombées atmosphériques des essais nucléaires de surface réalisés par le passé. Les relations empiriques établies ont alors été extrapolées aux décennies précédentes. Ce travail permettra également de

mettre en évidence, par le biais de bilans de masse, le stockage d'une proportion non négligeable de ces éléments dans les sédiments du fleuve aval. Ces conclusions fortes initieront quasiment dix années d'études et de recherches sur les stockages/déstockage de la radioactivité dans les sédiments de la partie terminale du Rhône.

3. Antonelli C., Eyrolle F., Rolland B., Provansal M. and Sabatier F. (2008) Suspended sediment and ^{137}Cs fluxes during the exceptional December 2003 flood in the Rhone River, southeast France, *Geomorphology*, 95, 350-360. Les travaux de thèse de Benoît Rolland (2003-2006) et de post-doctorat de Christelle Antonelli (2003-2004) sur les dynamiques sédimentaires, les flux et les forçages, permettront de décrire en détail l'évènement de crue majeure de décembre 2003 sur le Rhône aval. Il permettra en outre de quantifier pour la première fois de manière fine les flux exportés lors de ces évènements extrêmes et de caractériser la nature des particules en transit. On montrera ainsi que les crues transfèrent vers le milieu marin, en quelques jours par an seulement, plus de 75 % du flux solide annuel de radionucléides. On démontrera aussi que lors de ces évènements exceptionnels les exports de sables au sein de la suspension sont restreints et ne contribuent pas de manière significative à la dilution des concentrations en radionucléides ou en métaux enregistrée pour les forts débits. Les données acquises serviront longtemps de référence pour le suivi et l'enregistrement des épisodes de crues qui ont succédé à cette crue majeure, en particulier pour le dimensionnement de la stratégie d'échantillonnage de la station SORA.
4. Eyrolle F., Claval D., Gontier G. and Antonelli C. (2008) Radioactivity level in major French rivers: summary of monitoring chronicles acquired over the past thirty years and current status, *Journal of Environmental Monitoring*, 10, 800-811. Ce travail est une valorisation interprétative des données acquises par mon laboratoire dans le cadre de ses missions de surveillance des fleuves nucléarisés du territoire français. Il permettra de fournir des séries temporelles sur les activités de nombreux radionucléides artificiels au sein de différentes matrices des milieux aquatiques, à savoir les sédiments, les plantes aquatiques et les poissons, en mettant en perspective les zones à l'amont de toute installation nucléaire et avec celles situées en aval des industries. Il donnera également les niveaux de radioactivité naturelle des sédiments des différents fleuves français. Ce travail m'a sans aucun doute permis d'élargir le champ de mes observations jusqu'alors axées sur le Rhône. Il initiera très probablement mes réflexions sur les changements d'échelles, les gammes de variabilité et les référentiels (bruit de fond géochimique).

5. **Provansal M.**, Ferrand E., Eyrolle F., Raccasi G., Monaco M. and Gurriaran R. (2012) Spatial variability in sedimentation rates and artificial radionuclide storage in alluvial banks of the lower Rhône River, *Aquatic Sciences*, special issue, 74, 735-750. Cet article est l'aboutissement d'une collaboration intense et riche avec la Pr. émérite Mireille Provansal, responsable de l'équipe de géomorphologie fluviale du **CEREGE**. Il représente une synthèse des résultats d'analyses des multiples carottes collectées au sein des marges alluviales du Rhône, du grand Rhône et du Petit Rhône dans le secteur entre Beaucaire et la mer. L'utilisation des profils des activités en radionucléides artificiels au sein des archives sédimentaires permettra d'évaluer les taux de sédimentation qui se sont avérés varier fortement en fonction de la typologie des berges et de leur positionnement longitudinal sur le fleuve. Ces résultats permettront d'éclaircir les connaissances sur la morphogénèse du fleuve dans sa partie terminale au cours du siècle écoulé et sur les conséquences de l'incision du chenal sur l'alimentation des berges. Ce travail soulignera également l'originalité de l'utilisation des radionucléides artificiels rejetés par les industries du nucléaire pour dater les enregistrements sédimentaires. Il achèvera pour ma part les recherches sur les stockages sédimentaires dans les marges alluviales du fleuve aval, pour ce qui est des radionucléides jusqu'alors étudiés, à savoir les émetteurs gamma et les actinides.
6. **Ferrand E.**, Eyrolle F., Radakovitch O., Provansal M., Dufour S., Vella C., Raccasi G. and Gurriaran R. (2012) Historical levels of heavy metals and artificial radionuclides reconstructed from overbank sediment records in lower Rhône River (South - East France), *Geochemica and Cosmochimica Acta*, special Issue on *Environmental Records of Anthropogenic Impacts*, 82, 163-182. Cet article est une synthèse des résultats du post-doctorat d'Emmanuelle Ferrand. Il est le fruit d'un travail en collaboration avec Olivier Radakovitch du **CEREGE** réalisé dans le cadre du projet **ANR EXTREMA** que j'ai piloté de 2007 à 2011. Ces résultats permettront la reconstruction historique des niveaux de contamination en radionucléides artificiels et en métaux des eaux du Rhône aval au cours des dernières décennies. Ces niveaux seront mis en perspective avec ceux enregistrés pour d'autres grands fleuves, en particulier la Seine, afin de souligner les particularités rhodaniennes. On montrera ainsi par exemple que le Rhône a été un fleuve particulièrement peu pollué par des apports anthropiques de métaux lourds. Ces travaux seront en outre l'occasion de travailler sur les bruits de fond géochimiques et anthropiques, et les facteurs d'enrichissement.
7. **Eyrolle F.**, Radakovitch O., Raimbault P., Charmasson C., Antonelli C., Ferrand E., Raccasi G., Aubert D. and Gurriaran R. (2012) Consequences of hydrological events on suspended sediment and associated radionuclide deliveries from the Rhône

River towards the Mediterranean Sea, *Journal of Soils and Sediments*, 12, 1479-1495. Cet article est une valorisation d'une quantité relativement importante de données acquises sur le Rhône aval pour diverses conditions hydrologiques. Il présente l'évolution des niveaux et des flux des différents radionucléides naturels ou artificiels en fonction de l'hydrologie, en soulignant les variabilités inter et intra annuelles. Il met à disposition de la communauté scientifique la relation empirique charge/débit réactualisée à partir de la compilation de plus de 800 données de charges en suspension acquise sur la période 2001-2008. Cet article permettra d'introduire le terme « d'épisodes hydrologiques semi-anthropique » pour décrire l'association d'un lâcher de barrage et d'une crue, tel l'épisode de mai-juin 2008. Nous montrerons que ces événements atypiques soutenus par des débits liquides relativement faibles et des charges en suspension élevées peuvent conduire à des flux solides très importants, aussi forts que ceux observés lors des événements de crue majeure. Ces épisodes semi-anthropiques, non enregistrés par les stations observatoires, en particulier par SORA, pourraient potentiellement conduire à une sous-estimation non négligeable des flux à la mer. Cet article fournit enfin une partie des données d'entrée attendues pour le traçage du devenir des apports du Rhône dans le Golfe du Lion.

8. Zebracki M., Eyrolle-Boyer F., Évrard O., Claval D., Mourier B., Gairoard S., Cagnat X., Antonelli C. (2014) Tracing the origin of suspended sediment in a large Mediterranean river by combining continuous river monitoring and measurement of artificial and natural radionuclides, *Science of the Total Environment*, 502, 122-132. Les flux solides terrigènes vers le milieu marin présentent une importante variabilité en fonction de l'hydrologie et de l'hydrodynamisme des fleuves. Il en est de même des flux de radionucléides naturels ou artificiels associés à ces vecteurs de transfert. Cet article est le fruit du travail de post-doctorat de Mathilde Zebracki qui avait pour mission de travailler sur l'origine des masses sédimentaires et des polluants associés en s'appuyant sur les traceurs isotopiques. Ce travail a utilisé les jeux de données de la surveillance des eaux du Rhône aval ou acquises dans le cadre de l'OSR ([Observatoire des sédiments du Rhône](#)) et a permis d'identifier des traceurs radioactifs naturels et artificiels particulièrement pertinents pour tracer l'origine des particules en transit dans le Rhône aval. Les traceurs identifiés ont permis de mieux comprendre la dynamique spatiale des sédiments exportés à l'échelle du bassin rhodanien. L'article démontre également que certains d'entre eux, notamment le rapport $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ ou les combinaisons $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}/^{40}\text{K}$, sont applicables à n'importe quel autre bassin, sous réserve toutefois, dans le cas du premier traceur, que le bassin soit marqué de manière non homogène par les retombées de l'[accident de Tchernobyl](#).

9. Eyrolle-Boyer F., Boyer P., Claval D., Charmasson S. and Cossonnet C. (2014) Apparent enrichment of organically bound tritium in rivers explained by the heritage of our past, *Journal of Environmental Radioactivity*, 136, 162-168. Ce travail constitue le socle de l'une de mes dernières orientations de recherches, orientation forte prise presque par opportunisme lorsqu'il m'a été demandé pour des besoins d'expertise de m'intéresser au tritium et au ^{14}C . Ces deux radionucléides, dont le comportement nécessitait de s'éloigner des processus régissant les interfaces solide/solution, me conduisirent rapidement au cœur des grands cycles de l'eau et du carbone. Au fur et à mesure de ma lecture de la littérature, relativement riche, sur le tritium au sein de l'environnement, je pris conscience que cet élément intégrait, à l'instar du ^{14}C , le cycle du carbone, pour partie et de manière durable. Élément conservatif des masses d'eau et traceur clé en hydrologie, il devenait à cet instant un élément partiellement dépendant des cycles de production et de biodégradation de la matière organique. D'un comportement bien plus complexe que je ne me l'étais imaginé, ce radionucléide associé au ^{14}C me permettait de replonger au cœur des thématiques traitant d'une part des échanges moléculaires, hygroscopiques et tissulaires de l'eau, et d'autre part de l'origine et de la qualité de la matière organique naturellement présente dans les cours d'eau, tel que confrontée au cours de ma thèse. Cet article me permettra un positionnement fort au sein de la communauté internationale mouvementée par la controverse sur la « bioaccumulation » du tritium par les organismes vivants. Je démontrerais à partir de données de terrain archives soutenues par de la modélisation (fonction de transfert) que le tritium organiquement lié observé aujourd'hui dans les compartiments abiotiques et biologiques de l'environnement non soumis aux rejets des installations nucléaires n'était qu'une rémanence des tirs aériens du passé. Ce travail allait engager la thèse de Loïc Ducros (2014- à ce jour), et le début d'une collaboration franco-canadienne avec le CNL (*Canadian Nuclear Laboratories*, Ontario).

Bibliographie

Antonelli C. Flux sédimentaires et morphogenèse récente dans le chenal du Rhône aval. PhD thesis, université Aix-Marseille I, 272 p, 2002.

Antonelli C., Eyrolle F., Boullier V., Gurriaran R., Cossonnet C. Measurements, quantification and budget recoveries of radionuclide fluxes exported by Rhône River to the Mediterranean Sea, Mesures, estimation et bilan des flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée, I.S. Rivers, 1^{ère} conférence internationale, 26-28 juin 2012, Lyon, France, 2012.

Antonelli C. Flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée en 2008, rapport PRP-ENV/SESURE 2010-04, 2010.

Antonelli C. Flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée en 2009, rapport PRP-ENV/SESURE 2011-25, 2011.

Antonelli C. Flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée en 2010 et 2011, rapport PRP-ENV/SESURE 2013-03, 2013.

Arnaud M., Charmasson S. et Eyrolle F. Les radionucléides marqueurs des apports solides du Rhône à la mer Méditerranée : sources, puits et devenir. *In*: « Le golfe du lion, un observatoire de l'environnement en Méditerranée ». Éditions Quae, Versailles, chapitre 7, 105-119, 2009.

Beaugelin-Seiller K., Boyer P., Garnier-Laplace J., Adam C. CASTEAUR: A simple tool to assess the transfer of radionuclides in waterways, *Health Physics*, 83(4), 539-542, 2002.

Bosc E., Bricaud A. and Antoine D. Seasonal and interannual variability in algal biomass and primary production in the Mediterranean Sea, as derived from 4 years of SeaWiFS observations, *Global Biogeochemical Cycles*, 18(1):GB10052004, 2004.

Bossew P., Kirchner G., De Cort M., De Vries G., Nishev A., De Felice L. Radioactivity from Fukushima Dai-ichi in air over Europe; part 1: spatiotemporal analysis, *J. Environ. Radioact.*, 114, 22-34, 2012.

Boyer P., Beaugelin-Seiller K., Ternat F., Anselmet F., Amielh M. A dynamic box model to predict the radionuclide behaviour in rivers for medium and long-term periods, *Radioprotection*, Suppl. 1, Vol. 40, S307-S313, 2005.

Charmasson S. 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 II, rapport CEA-R-5826, Gif/Yvette, France, 359 p., 1998.

Chernobyl Forum, 2005. Environmental Consequences of the Chernobyl Accident and Their Remediation: Twenty Years of Experience. Report of the UN Chernobyl Forum Expert Group "Environment" (EGE), <http://www-ns.iaea.org/downloads/rw/meetings/environ-consequences-report-wm-08.05.pdf> (accessed 10.10.13).

Clerc E. Caractérisation sédimentologique et géochimique des sédiments du Rhône. Étude de quatre sites sur le Rhône : la lône de La Morte, la retenue du Grand Large, la darse de Crépieux et la lône de l'Île-du-Beurre, mémoire de master sciences de l'environnement industriel et urbain, ENTPE, 80 p., 2008.

Cochran J. K., Moran S. B., Fisher N. S., Beasley T. M. and Kelley J. M. Sources and transport of anthropogenic radionuclides in the Ob River system, Siberia, *Earth and Planetary Science Letters*, 179:1, 125-137, 2000.

Collectif IRSN. Fukushima, un an après, rapport IRSN/DG/2012-001, 2012.

Croudace I.W., Warwick P. E. & Morris J. E. Evidence for the preservation of technogenic tritiated organic compounds in an estuarine sedimentary environment, *Environmental Science and Technology*, 46, 5704-5712, 2012.

Dabrin A. Mécanismes de transfert des éléments traces métalliques (ETM) et réactivité estuarienne : cas des systèmes Gironde, Charente, Seudre et Baie de Marennes Oléron, thèse de l'université Bordeaux I, 2009.

Devallois V. Transferts et mobilité des éléments traces métalliques dans la colonne d'eau sédimentaires des hydro systèmes continentaux, thèse de l'université d'Aix-Marseille, 2009.

Évrard O., Navratil O., Ayrault S., Ahmadi M., Némery J., Legout C., Lefèvre I., Poirel A., Bonté P. and Esteves M. Combining suspended sediment monitoring and fingerprinting to determine the spatial origin of fine sediment in a mountainous river catchment, *Earth Surface Processes and Landforms*, 36, 8, 1072-1089, 2011.

Eyrolle *et al.* EXTREMA contrat ANR-06-VULN-005. Épisodes météo climatiques extrêmes et redistribution des masses sédimentaires et des polluants associés au sein d'un système côtier, rapport final, rapport DEI/SESURE 2011-33, 2011.

Gontier G. et Siclet F. Le tritium organique dans les écosystèmes d'eau douce : évolution à long terme dans l'environnement des centres nucléaires de production d'électricité français, *Radioprotection*, 46, 4, 457-491, 2011.

Hedges E. S. Colloids. By E. S. Hedges, Ph.D., D.Sc. Pp. Vii + 272. London: E. Arnold & Co., 1931. 12. 6d, 1931.

Hugon J., Quinault J.M. et Roussel S. Étude de la capacité radiologique du bassin rhodanien, document CEA/IPSN/SERE, 1981.

IAEA, Management of Waste Containing Tritium and Carbon-14, Technical Reports Series No. 421, 2004.

IRSN (Direction de la radioprotection de l'homme). Exposition de la population française aux rayonnements ionisants, 2006.

Lanceleur L. L'argent, sources, transfert et bioaccumulation – cas du système fluvio-estuarien girondin, thèse de l'université Bordeaux I, 2010.

Lansard B., Charmasson S., Gascó C., Antón M. P., Grenz C. and Arnaud M. Spatial and temporal variations of plutonium isotopes (^{238}Pu and $^{239,240}\text{Pu}$) in sediments off the Rhone River mouth (NW Mediterranean), *Science of the Total Environment*, 376, 1-3, 215-227, 2007.

Le Roux G. Radionucléides naturels en France. Approche géochimique de la variabilité des radionucléides naturels d'origine tellurique (^{40}K et chaînes U-Th) dans les sols et sédiments fluviaux, rapport IRSN/DEI/SESURE 2007–21, 2007.

Le Roux G., Duffa C., Vray F. and Renaud P. Deposition of artificial radionuclides from atmospheric Nuclear Weapon Tests estimated by soil inventories in French areas low-impacted by Chernobyl, *Journal of Environmental Radioactivity*, 101, 3, 211-218, 2010.

Levin I. and Hesshaimer V. A unique tracer of global carbon cycle dynamics, *Radiocarbon*, 42, 1, 69–80, 2000.

Long N.Q., Truong Y., Hien P.D., Binh N.T., Sieu L.N., Giap T.V. and Phan N.T. Atmospheric radionuclides from the Fukushima Dai-ichi nuclear reactor accident observed in Vietnam, *J. Environ. Radioact.*, 111, 53-58, 2012.

Loyen J., Thomassin A. Eaux destinées à la consommation humaine présentant une activité alpha globale $> 0,1 \text{ Bq.l}^{-1}$, bilan 2004-2008, analyse de la radioactivité - doses par ingestion, rapport IRSN DEI 2009-02, 2009.

Loyen J., Brassac A. Profil radiologique des eaux d'adduction présentant une DTI supérieure à 0,1 mSv/an. Exploitation des résultats d'analyses de la radioactivité obtenus entre 2004 et 2011 à l'IRSN, rapport PRP-ENV/STEME 2012-04, 2012.

Ludwig W., Dumont E., Meybeck M. and Heussner S. River discharges of water and nutrients to the Mediterranean and Black Sea: Major drivers for ecosystem changes during past and future decades? *Progress in Oceanography*, 80(3–4): 199-217, 2009.

MEXT. Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology (MEXT), Results of the Third Airborne Monitoring Survey by MEXT, 2011. http://radioactivity.nsr.go.jp/en/contents/5000/4182/24/1304797_0708e.pdf.

NERH (Nuclear Emergency Response Headquarters). Report of Japanese Government to the IAEA Ministerial Conference on Nuclear Safety, The Accident at TEPCO's Fukushima Nuclear Power Stations, 2011. http://www.kantei.go.jp/foreign/kan/topics/201106/iaea_houkokusho_e.html.

Paatero J., Vira J., Siitari-Kauppi M., Hatakka J., Holmen K., Viisanen Y. Airborne fission products in the high Arctic after the Fukushima nuclear accident, *J. Environ. Radioact.*, 114, 41-47, 2012.

Pont D., Simonnet J.-P., Walterc A.V. Medium-term changes in suspended sediment delivery to the ocean: consequences of catchment heterogeneity and river management (Rhône River, France), *Estuarine, Coastal Shelf Science*, 54, 1–18, 2002.

Radakovitch O., Roussiez V., Ollivier P., Ludwig W., Grenz C. and Probst J. L. Input of particulate heavy metals from rivers and associated sedimentary deposits on the Gulf of Lion continental shelf, *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 77(2): 285-295 2008.

Raimbault P. and Durrieu de Madron X. Research activities in the Gulf of Lion (NW Mediterranean) within the 1997–2001 PNEC project, *Oceanologica Acta*, 26, 4, 291-298, 2003.

Rolland B., 2002-2006. Transfert des radionucléides artificiels par voie fluviale : conséquences des crues sur les stocks sédimentaires et les exports vers la Méditerranée, thèse de géosciences de l'environnement de l'université Paul CEZANNE, 280 p.

Roussel-Debet S., Gontier G., Siclet F., Fournier M. Distribution of carbon 14 in the terrestrial environment close to French nuclear power plants, *Journal of Environmental Radioactivity*, 87, 3, 246-259, 2006.

Roussel-Debet S., Renaud P., Métivier J.-M. ^{137}Cs in French soils: Deposition patterns and 15-year evolution, *Science of the Total Environment*, 374, 388–398, 2007.

Roussel-Debet S. Données utiles à l'interprétation des mesures de carbone 14 en milieu terrestre, *Radioprotection*, 49, 1, 49-54, 2014.

Stohl A., Seibert P. and Wotawa G. The total release of Xenon-133 from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident, *J. Environ. Radioact.*, 112, 155-159, 2012.

Sundquist E. T. The Global Carbon Dioxide Budget, *Science, New Series*, 259, 5097, 934-941, 1993.

Tsumune D., Tsubono T., Aoyama M. and Hirose K. Distribution of oceanic ^{137}Cs from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant simulated numerically by a regional ocean model, *J. Environ. Radioact.*, 111, 100-108, 2011.

Syvitski J. P. M., Kettner A. J. On the flux of water and sediment into the Northern Adriatic Sea, *Continental Shelf Research*, 27(3–4): 296-308, 2007.

Walling D.E., He Q. Use of fallout ^{137}Cs in investigations of overbank sediment deposition on river floodplains, *Catena*, 29, 263-282, 1997.

Imprimerie Copiver
20, avenue Édouard Herriot, 92350 Le Plessis-Robinson
Dépôt légal : juin 2016



Mémoire d'habilitation à diriger des recherches

Origine, comportement et devenir des radionucléides en milieu aquatique continental

HDR de l'université d'Aix-Marseille
soutenue le 17 novembre 2015

Par Frédérique EYROLLE-BOYER,
Laboratoire de recherche sur les transferts
des radionucléides dans l'environnement
(IRSN/PRP-ENV/SERIS/LRTE)

L'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN) est un organisme public d'expertise et de recherche pour la sûreté nucléaire et la radioprotection. Il intervient comme expert en appui aux autorités publiques. Il exerce également des missions de service public qui lui sont confiées par la réglementation. Il contribue notamment à la surveillance radiologique du territoire national et des travailleurs, à la gestion des situations d'urgence et à l'information du public. Il met son expertise à la disposition de partenaires et de clients français ou étrangers.

ISBN 978-2-9545237-5-0

Siège social

31, avenue de la Division Leclerc
92260 Fontenay-aux-Roses
RCS Nanterre B 440 546 018

Téléphone +33 (0) 1 58 35 88 88

Courrier

BP 17 - 92262 Fontenay-aux-Roses Cedex

Site internet www.irsn.fr

IRSN

INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE