

UNIVERSITE PAUL CEZANNE AIX-MARSEILLE

**Transfert des radionucléides artificiels par voie
fluviale : conséquences sur les stocks sédimentaires
rhodaniens et les exports vers la Méditerranée.**

Thèse pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE Paul CEZANNE
Faculté des Sciences et Techniques

Discipline : Géosciences de l'Environnement

présentée et soutenue publiquement
par

Benoît ROLLAND

Le 10 février 2006 dans l'amphithéâtre de l'INSTN à Cadarache

Directeur de thèse : Didier L. Bourlès

Ecole doctorale Sciences de l'Environnement

JURY

M. Jacques BERTHELIN	Rapporteur
M. Joan-Albert SANCHEZ-CABEZA	Rapporteur
M. Serge HEUSSNER	Examineur
M. Marc LAHFID	Examineur
M. Didier L. BOURLÈS	Directeur de thèse
Mme Frédérique EYROLLE	Responsable de thèse IRSN



REMERCIEMENTS

Entre toutes les personnes qui ont participé de près ou de loin à ce travail, je tiens à remercier en priorité Frédérique Eyrolle. Ce sujet, c'est au départ son projet, dont elle m'a confié la responsabilité tout au long de ces trois années. Toujours derrière moi à m'aider, à m'encourager, à m'épauler, je tiens à lui dire que cette thèse, c'est avant tout pour moi un aboutissement et un épanouissement personnel auxquels elle a pris une grande part. Je te serai toujours reconnaissant de m'avoir permis d'accomplir cette aventure.

Je veux remercier particulièrement Didier Bourlès, dont je fus l'étudiant en Maîtrise, puis en DEA, et qui accepta d'être mon directeur de thèse. C'est lui qui me dit, lorsque je lui demandais si je devais me lancer dans cette thèse : « à ta place, je foncerai ». Je l'ai fait et j'en suis là aujourd'hui, merci.

Je voudrais remercier M Jacques Berthelin, Mr Joan-Albert Sanchez-Cabeza, Mr Serge Heussner et Mr Marc Lahfid d'avoir accepté de donner leur avis critique sur cette thèse et de faire partie du jury.

Je remercie Didier Louvat, puis Philippe Renaud pour m'avoir accueilli durant trois années au sein du Laboratoire d'Etudes Radioécologiques en milieu Continental et Marin (LERCM) de l'IRSN.

Parmi les gens de ce laboratoire, il y a certaines personnes qui ont participé très activement à l'aboutissement de cette thèse, et à qui je veux témoigner des remerciements plus que sincères :

Merci à Christelle Antonelli, à Alain Champelovier, à Vincent Boullier, à Gilles Salaün et à Jacques Marquet pour leur aide précieuse sur le terrain comme au laboratoire, pour leurs nombreux conseils, et tous ces moments passés ensemble.

Merci à Mireille Arnaud et Sabine Charmasson pour ces moments lors des campagnes en mer et à La Seyne sur Mer, ainsi que pour leur avis lors de la rédaction du manuscrit.

Merci à Catherine Mercat-Rommens pour ses encouragements et son aide précieuse lors de la rédaction.

Je tiens à remercier Marcel Morello et Danielle Poncet-Bonnard pour toutes les mesures qu'ils ont effectuées pour me rendre service, pour leur accueil dans leurs laboratoires et pour toutes les fois où ils m'ont éclairé de leur savoir en métrologie.

Je voudrais remercier particulièrement Bruno Lansard, d'abord car c'est lui qui le premier m'a formé au traitement radiochimique des échantillons en vue de la spectrométrie α , ensuite pour tous les moments passés ensemble lorsque nous étions voisins de bureau et pour tout ceux passés chez lui, à Paris, lorsqu'il m'hébergeait.

Je remercie chaleureusement Patrick Bouisset et Sandrine Thomas pour m'avoir accueilli au sein du Laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans l'Environnement (LMRE) de l'IRSN et permis d'effectuer les radiochimies nécessaires à l'obtention d'une grande partie des résultats de plutonium traités dans ce travail.

Je remercie Mr Peter Mitchell, professeur à l'Université de Dublin et directeur du laboratoire de recherche en radiophysique et en radiocarbone, et Mr Luis Leon Vintro de ce même laboratoire, pour l'acquisition des mesures de plutonium sur une carotte sédimentaire acquise lors de ce travail.

Je souhaite remercier les gens qui ont accepté de faire partie de mon comité de thèse et qui m'ont suivi tout au long de l'aventure. Merci donc à Mme Mireille Provençal, à Olivier Radakovitch, à Claude Vella et à Régis Braucher, du Centre Européen de Recherche et d'Enseignement en Géosciences de l'Environnement (CEREGE), pour leurs avis et leurs conseils avisés.

Finalement, une aventure telle que l'aboutissement d'une thèse de doctorat, car il s'agit d'une réelle aventure, ne peut être menée à son terme dans de bonnes conditions sans le soutien sans faille et inexorable des proches.

Je vous remercie donc, Papa, Maman et Fanou pour être là, toujours, dans les moments de joie comme dans les moments plus difficiles.

Et je te remercie pour ton amour, ma Roxane, qui sera là, je le sais, quoi qu'il arrive dans ma vie...

Sommaire.

Introduction générale.....	9
1. Généralités.....	17
1.1. Présentation générale du Rhône et de son bassin versant.....	19
1.1.1. Bref rappel des caractéristiques géologiques du bassin versant rhodanien	19
1.1.2. Données hydrologiques caractéristiques.....	21
1.1.3. Les différents types de crues rhodaniennes.....	22
1.2. Les sources de radioactivité dans le bassin versant rhodanien.....	24
1.2.1. La radioactivité naturelle.....	24
1.2.2. L'industrie nucléaire rhodanienne.....	24
1.2.2.1. Présentation du cycle du combustible nucléaire.....	27
1.2.2.1.1. Les déchets radioactifs.....	28
1.2.2.1.2. Les effluents radioactifs.....	29
1.2.2.2. Le centre de Marcoule.....	30
1.2.2.2.1. Historique des activités.....	30
1.2.2.2.2. Evolution des rejets.....	32
1.2.2.3. Les centrales nucléaires.....	36
1.2.2.4. Les autres installations nucléaires rhodaniennes.....	39
1.2.3. Les retombées radioactives atmosphériques.....	40
1.2.3.1. Les retombées des essais nucléaires atmosphériques.....	40
1.2.3.2. Les retombées du satellite SNAP-9A.....	43
1.2.3.3. Les retombées de l'accident de Tchernobyl.....	43
1.3. Les radionucléides artificiels étudiés.....	44
1.3.1. Choix des radionucléides étudiés.....	44
1.3.2. Le césium 137.....	45
1.3.3. Les isotopes du plutonium ^{238}Pu , ^{239}Pu et ^{240}Pu	46
1.3.4. Propriétés en tant que traceurs des transferts particulaires.....	48
1.4. Chronique des mesures radioactives dans les sédiments du Rhône aval.....	49

2. Matériel et méthodes.....	53
2.1. Période d'étude et contexte hydrologique.....	56
2.1.1. Evènement 1 du tableau 2-1.....	58
2.1.2. Evènement 2 du tableau 2-1.....	59
2.1.3. Evènement 3 du tableau 2-1.....	59
2.1.4. Evènements 4 et 5 du tableau 2-1.....	61
2.2. Estimation des flux de ^{137}Cs , de ^{238}Pu , de $^{239+240}\text{Pu}$, de ^7Be et de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$	62
2.3. Contribution de la remobilisation sédimentaire.....	63
2.4. Les sites d'échantillonnage.....	64
2.4.1. La station OPERA d'Arles.....	64
2.4.1.1. Description du site d'implantation de la station.....	64
2.4.1.2. Représentativité des prélèvements de MES.....	64
2.4.2. Les sites en amont du bief Marcoule-Arles.....	67
2.5. Fréquence d'échantillonnage.....	70
2.5.1. En Arles.....	70
2.5.2. En amont du bief Marcoule-Arles.....	70
2.6. Identification des stocks de radioactivité artificielle.....	71
2.6.1. Dans le chenal du Rhône.....	71
2.6.2. Sur les berges et annexes fluviales du Rhône.....	73
2.6.2.1. Description du site de Barriol.....	73
2.6.2.2. Description du site de la peupleraie.....	75
2.6.2.3. Description du site de la lône du Mas des Tours.....	76
2.7. Prélèvements et traitements.....	76
2.7.1. Les échantillons de MES.....	76
2.7.2. Le ^{137}Cs dissous.....	78
2.7.3. Les carottages sur berges et annexes fluviales.....	80
2.7.3.1. Techniques de carottage.....	80

2.7.3.2. Traitement des échantillons.....	84
2.8. Méthodes de mesure.....	84
2.8.1. Détection des radionucléides émetteurs gamma (γ).....	85
2.8.2. Détection des radionucléides émetteurs alpha (α).....	85
2.8.2.1. Traitement radiochimique.....	87
2.8.3. Mesures ICPMS.....	91
2.8.4. Mesures physico-chimiques.....	91
2.8.4.1. Granulométrie.....	92
2.8.4.2. Teneur en matière organique totale.....	92
2.8.4.3. Capacité d'échange cationique (CEC).....	92
2.9. Etude de la remobilisation sédimentaire.....	93
2.9.1. Mise en évidence par des bilans de matière.....	93
2.9.2. Mise en évidence par comparaison des niveaux d'activité.....	93
2.9.3. Mise en évidence grâce à l'utilisation des rapports isotopiques.....	94
2.9.3.1. Le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	95
2.9.3.2. Le rapport isotopique $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	99
2.10. Estimation des temps de résidence.....	101
3. Estimation des flux actuels.....	103
3.1. Estimation des flux particuliers de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et ^{210}Pb	107
3.1.1. Méthode d'estimation des flux.....	107
3.1.1.1. Description de la méthode.....	107
3.1.1.2. Validité de la méthode.....	109
3.1.2. Les résultats du suivi en Arles.....	110
3.1.2.1. La Charge Solide en Suspension (CSS).....	110
3.1.2.2. Les activités particulières de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{XS}}$ dans les MES.....	114
3.1.2.2.1. Activités particulières hors périodes de crues.....	116
3.1.2.2.2. Activités particulières en périodes de crues.....	117
3.1.3. Résultats de flux associés à la phase particulaire.....	118

3.2. Estimation de la contribution du transport particulaire (CTP).....	120
3.2.1. Description de la méthode.....	120
3.2.2. Les coefficients de distribution (Kd) utilisés.....	122
3.2.2.1. Kd du ^{238}Pu , du $^{239+240}\text{Pu}$, du ^7Be et du ^{210}Pb xs.....	122
3.2.2.2. Kd du ^{137}Cs	122
3.2.2.2.1. Kd du ^{137}Cs hors périodes de crues.....	123
3.2.2.2.2. Kd du ^{137}Cs en périodes de crues.....	125
3.2.3. Résultats de CTP.....	126
3.3. Les flux totaux vers la Méditerranée.....	127
3.3.1. Contribution du Petit Rhône.....	127
3.3.2. Résultats de flux totaux.....	130
3.4. Discussion.....	130
3.4.1. Evolution des flux totaux avec le temps.....	130
3.4.1.1. Comparaison avec l'évolution des termes sources.....	130
3.4.1.2. Le bief Marcoule-Arles : source ou puits ?.....	133
3.4.2. Contribution des périodes de crues.....	135
4. Etude de la remobilisation sédimentaire.....	137
4.1. Résultats en amont du bief Marcoule-Arles.....	139
4.2. L'accumulation sédimentaire hors périodes de crues.....	141
4.3. La remobilisation sédimentaire lors des périodes de crues.....	144
4.3.1. Mise en évidence de la remobilisation des stocks de plutonium.....	145
4.3.1.1. Utilisation des activités particulières des MES.....	145
4.3.1.2. Utilisation des rapports isotopiques du plutonium.....	148
4.3.1.2.1. Le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	148
4.3.1.2.2. Le rapport de masse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	151
4.3.2. Contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$	154
4.3.2.1. Utilisation des activités particulières.....	154

4.3.2.2. Utilisation du rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	157
4.3.3. Contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux de ^{137}Cs	160
4.3.3.1. Méthode d'estimation et résultats.....	161
4.3.3.2. Influence de la remobilisation sédimentaire sur les activités en ^{137}Cs des MES.....	165
4.4. Discussion.....	167
5. Estimation des temps de résidence.....	173
5.1. Problématique.....	175
5.2. Conséquences à court et moyen termes.....	176
5.3. Conséquences à long terme.....	178
5.4. Discussion.....	181
6. Identification des zones de stockage sédimentaire.....	183
6.1. Stockage dans le chenal.....	185
6.2. Stockage sur berges et les bras morts (lônes).....	187
6.2.1. Le site de Barriol.....	187
6.2.2. Le site de la peupleraie.....	193
6.2.3. Le site de la lône du Mas des Tours.....	197
6.3. Discussion.....	199
7. Synthèse et bilans.....	201
Conclusion générale.....	211
Références bibliographiques.....	219
Liste des figures.....	235
Listes des tableaux.....	241
Annexes.....	243

INTRODUCTION GENERALE

Les flux de matière sont, depuis le début du 20^{ème} siècle, largement étudiés au sein des grands systèmes fluviaux. En effet, le transport par l'eau des fleuves et des rivières représente le plus important vecteur de transfert des éléments constitutifs des terres émergées vers les mers et les océans. A l'échelle du globe, il contribue pour près de 90% des flux de matières vers le milieu marin. Le transfert des éléments vers les cours d'eau se fait notamment par l'intermédiaire du drainage des sols du bassin versant par les précipitations. Ces processus de drainage entraînent à la fois les éléments présents naturellement dans la structure des roches et des sols ainsi que les éléments naturels et anthropiques déposés à la surface des sols par les apports atmosphériques. Les eaux de rivières sont également le réceptacle des rejets d'effluents liquides d'origine agricole, industrielle ou domestique. Ces éléments qu'ils soient d'origine naturelle ou anthropique, sont transportés dans le milieu aquatique soit sous forme dissoute, soit sous forme particulaire ou colloïdale qu'ils constituent ou auxquels ils s'associent principalement via des mécanismes d'adsorption.

Au sein d'un système fluvial, la connaissance du comportement physico-chimique des éléments étudiés ainsi que de la dynamique des masses d'eau et des masses sédimentaires est primordiale afin d'appréhender au mieux le devenir des éléments jusqu'à leur exportation vers le milieu marin. Cette approche est en particulier nécessaire lorsqu'on s'intéresse à la dynamique d'épuration d'un système naturel suite à une contamination anthropique, qu'elle soit accidentelle ou chronique. Elle est particulièrement appropriée dans le cas du Rhône étant donnée son histoire récente étroitement liée au développement de l'énergie nucléaire. Durant les soixante dernières années, ce fleuve a en effet été l'objet de plusieurs formes de contaminations radioactives chroniques ou accidentelles d'origine industrielle ou militaire. Son bassin versant a d'abord été soumis, comme partout dans l'hémisphère nord, aux retombées globales des essais d'armes nucléaires dans l'atmosphère qui ont conduit aux dépôts de quantités significatives de radionucléides artificiels. Il a ensuite été l'objet des retombées atmosphériques de l'accident de Tchernobyl, survenu le 26 avril 1986, qui ont touché notamment l'est de la France où s'étend le bassin versant rhodanien. Enfin, la vallée du Rhône a accueilli, à l'exception de l'exploitation de mines d'uranium, l'ensemble des installations du cycle du combustible nucléaire (usines de conversion et d'enrichissement de l'uranium, usines de fabrication du combustible, centrales nucléaires productrices d'électricité, usine de retraitement du combustible irradié, centre de stockage des déchets). Ces installations ont été autorisées à rejeter des effluents liquides de faible radioactivité dans les eaux du fleuve.

Bien que le Rhône ait été soumis à différents termes sources de contamination radioactive, les rejets d'effluents liquides par le centre de Marcoule ont représenté, depuis son ouverture en 1958, le terme source prépondérant de radionucléides artificiels dans les eaux du Rhône, du fait de la présence d'une usine de retraitement du combustible nucléaire irradié sur le centre. La mise en place d'un nouveau procédé de traitement des effluents liquides en 1990, puis l'arrêt et la mise en démantèlement de l'usine de retraitement du combustible en 1997, ont entraîné, au cours des années 1990, une diminution globale d'un facteur 90 des rejets de radionucléides artificiels émetteurs β et γ hors tritium (concernant le tritium, les rejets ont diminué d'un facteur 10), et d'un facteur 30 des radionucléides émetteurs α . La diminution importante des rejets du centre de Marcoule dans les années 1990 a entraîné une modification de la contribution de chaque terme source de radioactivité artificielle au sein des eaux du Rhône aval. Avant la présente étude, deux termes sources étaient généralement considérés comme étant à l'origine de l'essentiel de la radioactivité artificielle des eaux du Rhône. Ces termes sources sont représentés d'une part par les apports issus du drainage des retombées radioactives sur les sols du bassin versant, d'autre part par les rejets d'effluents liquides par le centre de Marcoule. Des travaux basés sur des bilans entre les apports et les exports de radionucléides artificiels dans le Rhône ont montré l'accumulation de radionucléides tels le césium 137 (^{137}Cs) et les isotopes du plutonium dans le compartiment sédimentaire (*Eyrolle et al., 2004 ; Thomas, 1997*). Ces stocks sédimentaires accumulés au cours du temps représentent aujourd'hui un terme source différé, ou terme source secondaire, de radioactivité artificielle dans les eaux du Rhône, dont la contribution est d'autant plus importante que les sources primaires sont en nette diminution.

Long de plus de 800 kilomètres, le fleuve Rhône prend sa source dans les Alpes suisses, traverse le grand Sud-Est français pour finalement se jeter en Méditerranée dans le Golfe du Lion. De part l'étendue de son bassin versant, 98845 km², ce qui représente le cinquième du territoire français, le Rhône est le plus important fleuve de Méditerranée occidentale en terme d'apports d'eau douce et de matières solides. Le rôle des apports rhodaniens sur la qualité des environnements côtiers et marins de cette partie de la Méditerranée est déterminant puisqu'ils ont un impact direct sur les concentrations en éléments nutritifs nécessaires au développement des écosystèmes inféodés à ces environnements, et génèrent des flux de contaminants pouvant les altérer.

L'étude présentée porte sur les flux d'éléments radioactifs d'origine artificielle du Rhône vers la mer Méditerranée et sur l'évolution de ces flux au cours du temps. Cette étude s'intéresse ainsi aux processus hydro-sédimentaires qui engendrent le transport d'éléments radioactifs vers la Méditerranée, et tout particulièrement au rôle des crues. En effet, des travaux ont montré l'importance de ces événements dans l'export des matières solides (*Lorgeré, 1959; Pont et al., 1992; Pont et al., 2002; French IGBP-WCRP News letter, 2000*). Or la plupart des contaminants présents à l'état de traces dans l'environnement, dont les radionucléides artificiels, ont une forte affinité pour ces matières solides. Quel est de ce fait le rôle des épisodes de crues dans le transport des contaminants par voie fluviale? Il est aussi question, dans cette étude, de la contribution des différents termes sources de radioactivité artificielle aux flux d'éléments radioactifs vers la Méditerranée. Une attention particulière est portée à l'étude des stocks sédimentaires contaminés par les rejets du centre de Marcoule en tant que terme source différé de radioactivité artificielle. Cette étude comprend l'estimation du poids de ce terme source dans les exports de certains radionucléides artificiels vers la Méditerranée, la détermination des temps de résidence des stocks avant leur remobilisation, ainsi que l'identification des zones d'accumulation des stocks.

La détermination des flux de radionucléides artificiels vers la mer Méditerranée représente un des objectifs de la thèse. Elle s'inscrit dans l'étude de l'évolution des termes sources de radioactivité artificielle sur l'environnement rhodanien et, à plus grande échelle, sur le milieu Méditerranéen nord occidental. Elle s'appuie sur un nombre important de données obtenues dans le cadre d'un suivi des matières en suspension et des radionucléides associés. Nous proposons, dans ce travail, d'estimer les flux d'exportation actuels de radionucléides artificiels vers la Méditerranée, afin d'étudier leur évolution suite à la forte diminution des rejets du centre de Marcoule.

Une attention particulière est portée, dans cette étude, au suivi des événements de crues du Rhône afin d'appréhender précisément leur contribution dans le transport des matières solides et des contaminants associés. Bien que les crues soient des événements stochastiques, qui n'ont représenté dans le cas du Rhône que 5% du temps de ces trente dernières années, elles participent de façon significative aux flux solides annuels. Les résultats acquis permettront de souligner leur rôle dans les exports de radionucléides artificiels vers la Méditerranée. La taille du bassin versant rhodanien entraîne une grande diversité climatique qui engendre à son tour la diversité des crues du Rhône. Il existe ainsi plusieurs grands types de crues du Rhône en fonction des sous bassins versants qui les alimentent, et chaque crue ne génère pas les mêmes

flux d'eau, de matières solides et de contaminants. L'occurrence, durant la période d'étude, de cinq évènements de crues, dont trois exceptionnels de périodes de retour supérieures à 50 ans et deux modérés (périodes de retour de 1 à 2 ans) représentant chaque grand type, permettra de souligner le rôle des crues dans le transport de certains radionucléides artificiels.

Cette thèse s'attache ensuite à déterminer la contribution des différents termes sources de radionucléides artificiels dans les eaux du Rhône. L'étude s'intéresse plus particulièrement au terme source secondaire engendré par la remobilisation de sédiments contaminés par des radionucléides artificiels. Nous verrons en particulier que les évènements de crues du Rhône sont à l'origine des processus de remobilisation des stocks sédimentaires contaminés. In fine, les contributions actuelles des apports issus du drainage du bassin versant, des rejets directs du centre de Marcoule et de la remobilisation sédimentaire aux flux totaux de certains radionucléides artificiels vers la Méditerranée seront estimées.

Ce travail s'attache ensuite à évaluer dans quelle mesure le Rhône est capable d'exporter les stocks sédimentaires marqués par les rejets du centre de Marcoule et accumulés pendant près de 50 ans. Il s'agit de proposer des temps de résidences des sédiments marqués avant leur remobilisation, et d'évaluer le temps nécessaire au système fluvial pour évacuer la totalité de ses stocks.

La localisation des zones de dépôt préférentiel des matières particulaires contaminées est importante lorsqu'on s'intéresse au devenir des contaminants dans le milieu aquatique, aussi bien à court terme dans le cas de rejets accidentels, qu'à long terme notamment dans le cas de rejets chroniques. Ainsi, une partie de la thèse est enfin consacrée à l'identification des zones d'accumulation potentielle des sédiments contaminés par les rejets du centre de Marcoule. La mise en évidence de ces zones et l'étude de leurs caractéristiques intrinsèques (caractéristiques sédimentologiques, situation géographique) permettront en outre de mieux comprendre à la fois les processus de formation des stocks de contaminants, et les processus qui permettent leur remobilisation. Les zones ciblées dans ce travail concernent d'une part l'amont des ouvrages hydroélectriques, et d'autre part les berges et les bras morts (lônes) du Rhône. L'étude en amont des ouvrages est basée sur une étude bibliographique. La mise en

évidence de l'accumulation de sédiments marqués sur les berges et dans les lônes est basée, quant à elle, sur des données de terrains acquises dans le cadre de ce travail.

Le travail de thèse présenté ici tente finalement de répondre à plusieurs questions qui permettront de mieux comprendre la dynamique d'exportation des matières solides et des contaminants associés du milieu continental vers le milieu marin. Ces questions sont principalement :

- Quels sont les flux actuels de radionucléides artificiels vers la mer Méditerranée depuis la diminution des rejets du centre de Marcoule?
- Quelle est la contribution des évènements de 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 ?

Ce travail de thèse s'est inscrit dans les thématiques de recherche du programme européen EUROSTRATAFORM (European Margin Strata Formation - EC Contract No. EVK3-CT-2002-00079) ciblé sur les transferts de particules depuis les rivières jusqu'au milieu marin profond via les deltas et les marges continentales ; le Rhône et le Golfe du Lion ayant représenté un système d'investigations importantes. Les résultats de cette thèse ont également contribué au programme national ORME (Observatoire Régional Méditerranéen de l'Environnement – CNRS/Programme Environnement, Vie et Sociétés), dont les objectifs sont de créer un observatoire des hydrosystèmes de la région Languedoc- Roussillon, allant des bassins versants jusqu'à la zone côtière, selon une approche pluridisciplinaire basée sur un

acquis de données à haute fréquence et à long terme aussi bien dans les domaines physique et biogéochimique que dans les domaines économique, juridique et sociologique.

1-GENERALITES

1. Généralités

1.1. Présentation générale du Rhône et de son bassin versant

Le fleuve Rhône représente la plus importante source d'eau et de matériel particulaire qui transite vers la Méditerranée Nord Occidentale. Cette importance résulte de l'étendue du bassin versant que ce fleuve draine le long de ses 800 km. Cette étendue d'environ 98000 km² représente à peu près le cinquième du territoire français, et impose au Rhône une grande diversité à la fois des terrains géologiques qu'il traverse et des influences climatiques auxquelles il est soumis.

1.1.1. Bref rappel des caractéristiques géologiques du bassin versant rhodanien

Comme le décrivent *Beaudouin et Rycx (2000)*, le Rhône traverse des unités topographiques et géologiques très diversifiées (*figure 1-1*). A l'aval du Lac Léman, il traverse d'est en ouest le domaine géologique calcaire du Jura Méridional. La vallée du Rhône s'ouvre ensuite largement lorsque le fleuve pénètre dans la région du bas Dauphiné, caractérisée par des terrains calcaires et des marnes sableuses. Après la confluence avec la Saône, le fleuve prend la direction du sud jusqu'à son delta. Au sud de Lyon, la vallée du Rhône est bordée à l'ouest par le domaine cristallin du Massif Central, et à l'est par les massifs préalpins calcaires (Vercors, Diois). Dans le cours inférieur du Rhône, à partir de Montélimar, les affluents de rive droite (Ardèche, Cèze, Gardon) drainent en partie les Cévennes cristallines et leur avant-pays calcaire (les Garrigues). La rive gauche est soumise quant à elle aux apports détritiques de la Drôme, de l'Aygue et de l'Ouvèze. A l'aval en rive gauche, la Durance draine un vaste bassin versant méditerranéen caractérisé par des structures géologiques variées : une zone alpine, des unités subalpines, un bassin néogène puis la basse Provence calcaire. Après la confluence avec la Durance en Avignon, le Rhône étale finalement son delta à partir d'Arles dans des formations quaternaires.

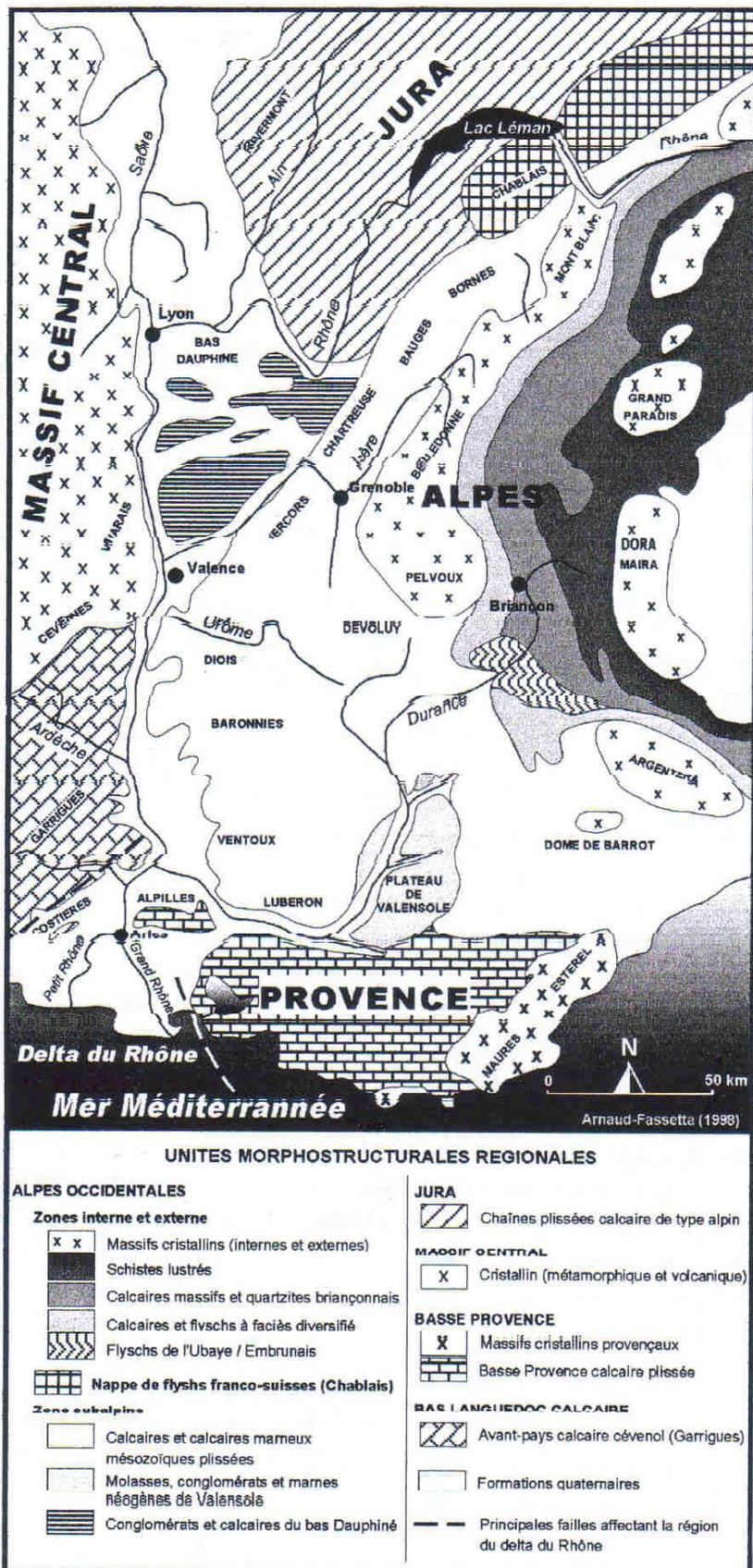


Figure 1-1. Géologie du bassin versant rhodanien (figure publiée dans Arnaud-Fassetta, 1998).

1.1.2. Données hydrologiques caractéristiques

Le fonctionnement hydrologique du Rhône peut être caractérisé par des valeurs représentatives établies à partir des données de débit disponibles depuis que l'écoulement du fleuve en continu est mesuré (fin XIX^{ème} siècle). Les valeurs les plus souvent citées sont le débit caractéristique d'étiage, le débit moyen annuel ou module du Rhône, et les débits caractéristiques de crue. Ces valeurs sont généralement établies à partir des données acquises à Beaucaire, en amont de la confluence entre le Grand Rhône et le Petit Rhône.

- Le débit caractéristique d'étiage (DCE): Les débits d'étiage correspondent chaque année aux dix débits journaliers les plus faibles. Le DCE est défini comme le débit seuil au-dessous duquel le Rhône est dit en étiage. A Beaucaire, le DCE a été établi à $520 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ sur la période 1920-2002. L'étiage le plus sévère a été mesuré à $320 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ en 1921 par *Pardé (1925)*.

- Le débit moyen annuel: Le module du Rhône est obtenu en faisant la moyenne des débits moyens mensuels sur une période donnée. A Beaucaire, le module a été estimé à $1714 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ sur la période 1920-2002, ce qui correspond à un export moyen annuel d'environ $5,4 \times 10^{10} \text{ m}^3$ d'eau à la Mer Méditerranée.

- Les débits de crue: Selon le Petit Larousse, une crue (de croître) est « une élévation du niveau d'un cours d'eau, due à la fonte des neiges ou à des pluies importantes ». Les crues sont donc des événements durant lesquels le débit augmente anormalement par rapport au reste de l'année. Ces événements sont d'autant plus rares que les débits qu'ils atteignent sont élevés. A partir de certaines lois statistiques (loi de Galton et Gumbel) et de la chronique des données de débit disponibles, il est possible d'estimer la période de retour d'un événement de crue en fonction du débit maximum qui l'a caractérisé. La figure 1-2 illustre ainsi l'évolution des débits de crue caractéristiques à Beaucaire selon leurs périodes de retour en années. Selon l'*IRS (2000)*, les débits de crues décennales, centennales et millennales à Beaucaire sont de 8390, 11300 et $14160 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ respectivement. Les débits de crue mesurés sur le Grand Rhône en Arles diffèrent peu de ceux de Beaucaire, environ 87% à 89% des eaux du Rhône étant exportées à la Méditerranée via cette branche du delta (paragraphe 3.3.1).

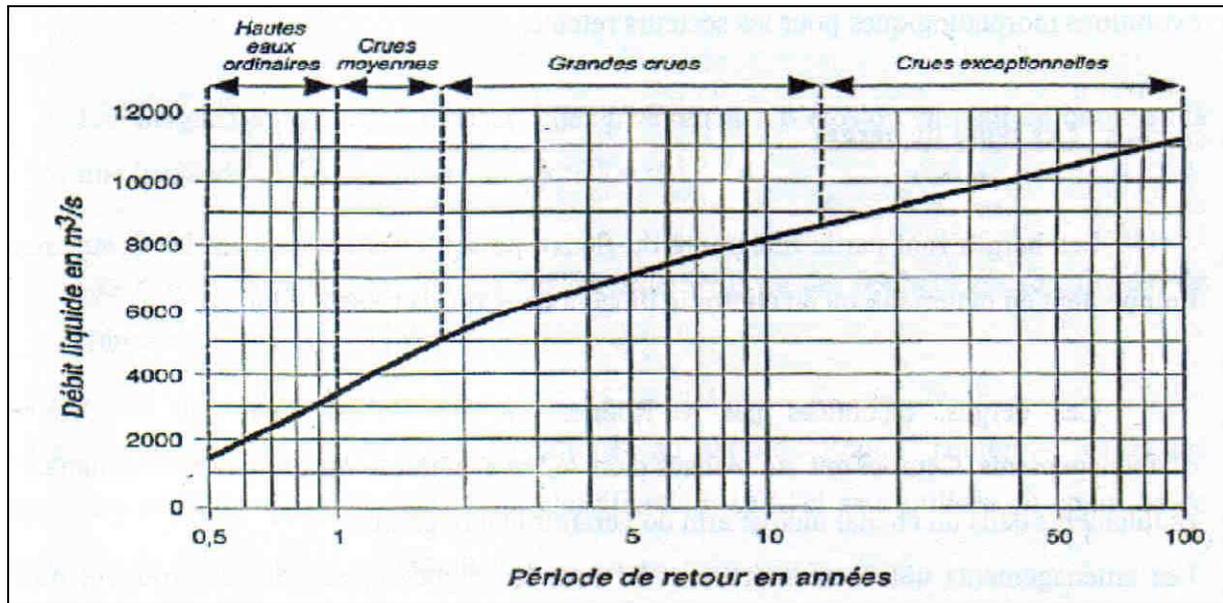


Figure 1-2. Périodes de retour théoriques des crues du Rhône en fonction du débit à Beaucaire (figure publiée dans *Arnaud-Fassetta, 1998*).

1.1.3. Les différents types de crues rhodaniennes

La diversité des types de crue qui peuvent affecter le Rhône est directement liée à l'étendue de son bassin versant. Celle-ci permet l'influence de plusieurs types d'événements climatiques en fonction des sous bassins versants concernés. Des influences glaciaires, pluviales, nivales caractérisent ainsi ce fleuve par l'intermédiaire des affluents qui drainent ses sous bassins versants. Une typologie globale des événements de crue du Rhône a pu être établie en fonction des grandes influences climatiques, qui entraînent chacune la contribution de tel affluent ou groupe d'affluents.

Pardé (1925) a établi pour la première fois une typologie en distinguant les quatre types de crues rhodaniennes qui peuvent affecter le Rhône aval. De nombreux auteurs se sont ensuite basés sur cette classification (*Bethemon, 1988 ; Roditis, 1993 ; Pont et Bombled, 1995 ; Pont et al., 2002 ; Arnaud-Fassetta, 1998 ; Antonelli, 1999 ; Antonelli, 2002*) dans le cadre de leurs travaux. Les quatre types de crues considérés sont les suivants :

- Les crues méditerranéennes: Elles sont en général la conséquence d'événements pluvieux d'origine méditerranéenne, qui remontent la vallée du Rhône et affectent principalement les affluents drainant le massif des Cévennes (Ardèche, Cèze, Gard). Elles sont donc généralement appelées « crues cévenoles », et sont le plus souvent caractérisées par un régime torrentiel. Ces crues rapides et violentes se produisent généralement en automne.

- Les crues méditerranéennes extensives: Elles sont le plus souvent liées à des événements pluvieux qui affectent non seulement les affluents cévenols mais aussi les affluents méridionaux situés en rive gauche (Drôme, Aygues, Ouvèze, Durance), et parfois le sud du bassin versant de la Saône. Elles se produisent en automne, parfois au début du printemps.

- Les crues océaniques: Elles sont issues d'événements de pluie résultant de dépressions océaniques venant de l'Océan Atlantique. Ces événements affectent le nord du bassin versant rhodanien, et plus particulièrement les sous bassins versants de la Saône ainsi que tous ceux se situant au nord de Valence. Contrairement aux crues méditerranéennes, la montée des eaux lors d'une crue océanique est le plus souvent lente et régulière, à l'image des dépressions pluvieuses dont elles sont originaires. Elles se produisent généralement entre octobre et mars.

- Les crues généralisées: Les crues généralisées correspondent à la combinaison des différents types de crues que l'on vient de décrire. Ces crues peuvent se produire de façon simultanée ou se succéder. Une crue généralisée comporte le plus souvent au moins une crue de type méditerranéen, et apparaît généralement en automne et en avril-mai.

A ces 4 grands types de crues s'ajoutent les régimes glaciaires et nivaux qui influent aussi sur l'hydrologie du Rhône et peuvent contribuer à des débits importants. L'influence glaciaire est liée à la fonte des glaciers alpins qui entraîne de forts débits entre juin et août. L'influence nivale est issue quant à elle de la fonte des neiges des massifs alpins et jurassiens de moyenne altitude, qui entraîne des débits importants de mars à juin.

Etant donnée l'hétérogénéité des influences climatiques qui affectent l'ensemble du bassin versant rhodanien, tous les intermédiaires sont finalement possibles entre les différents types de crues décrits ci-dessus. L'*IRS (2000)*, qui a recensé les 20 plus importantes crues à Beaucaire depuis le milieu du 19^{ème} siècle, a cependant montré que 90% des événements

exceptionnels de crue étaient d'origine méditerranéenne extensive et généralisée, évènements qui se sont produits majoritairement en automne.

1.2. Les sources de radioactivité dans le bassin versant rhodanien

1.2.1. La radioactivité naturelle

La plupart des radionucléides naturels rencontrés dans les écosystèmes aquatiques ont deux origines principales:

- Les radionucléides issus des réactions de spallation entre les particules du rayonnement cosmique et les éléments constitutifs de l'atmosphère et de la croûte terrestre. Ces réactions conduisent à la formation de radionucléides cosmogéniques tels ^{14}C , ^3H , ^7Be , ^{22}Na , ^{32}P .

- Les radionucléides d'origine tellurique. La croûte terrestre contient naturellement en son sein les descendants des familles de l' ^{238}U , de l' ^{235}U et du ^{232}Th (figure 1-3). L' ^{238}U représente 2,8 ppm de la lithosphère, tandis que l' ^{235}U représente 0,7% de la proportion d' ^{238}U soit environ 20 ppb de la lithosphère. Le ^{232}Th représente quant à lui 11 ppm de la lithosphère.

1.2.2. L'industrie nucléaire rhodanienne

Plusieurs types d'installations nucléaires sont présents sur les bords des cours d'eau du bassin versant rhodanien (figure 1-4). Ces installations (centres de recherche, usines de fabrication du combustible nucléaire, centrales nucléaires productrices d'électricité, usine de retraitement du combustible irradié) représentent la quasi-totalité du cycle du combustible nucléaire, mis à part l'extraction de l'uranium. Comme toute activité industrielle, l'utilisation de l'énergie nucléaire engendre la production de déchets et d'effluents gazeux et liquides. Dans cette partie, nous présenterons d'abord brièvement le cycle du combustible nucléaire pour en venir à la notion de déchets et d'effluents radioactifs. Nous recenserons ensuite les différentes installations nucléaires présentes sur le bassin versant rhodanien en dressant pour chacune d'elle le bilan des rejets et de leur évolution dans le temps. Une attention particulière

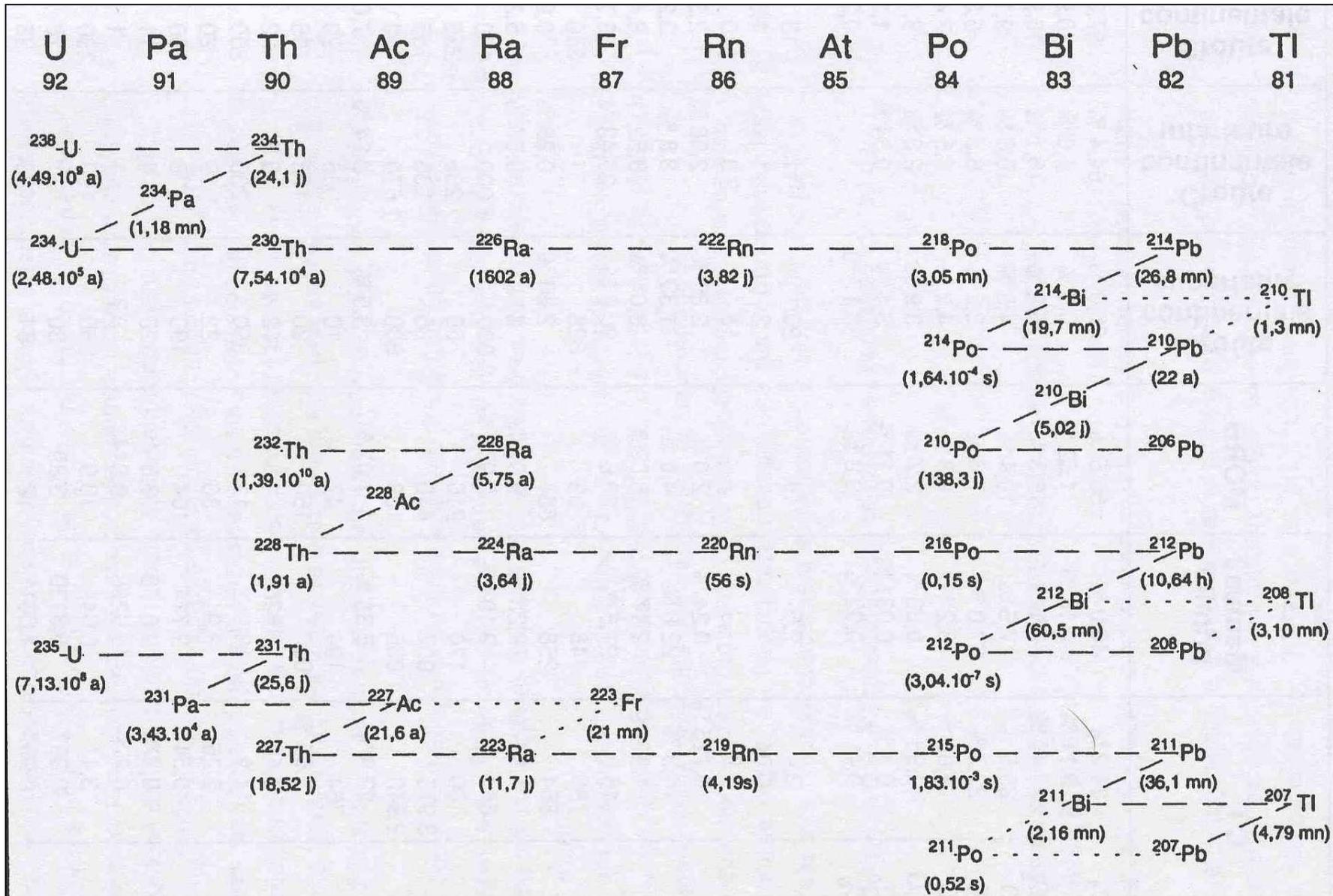


Figure 1-3. Les trois chaînes radioactives naturelles issues de la décroissance de l' ^{238}U , de l' ^{235}U et du ^{232}Th (figure publiée dans Vidal (1998)).

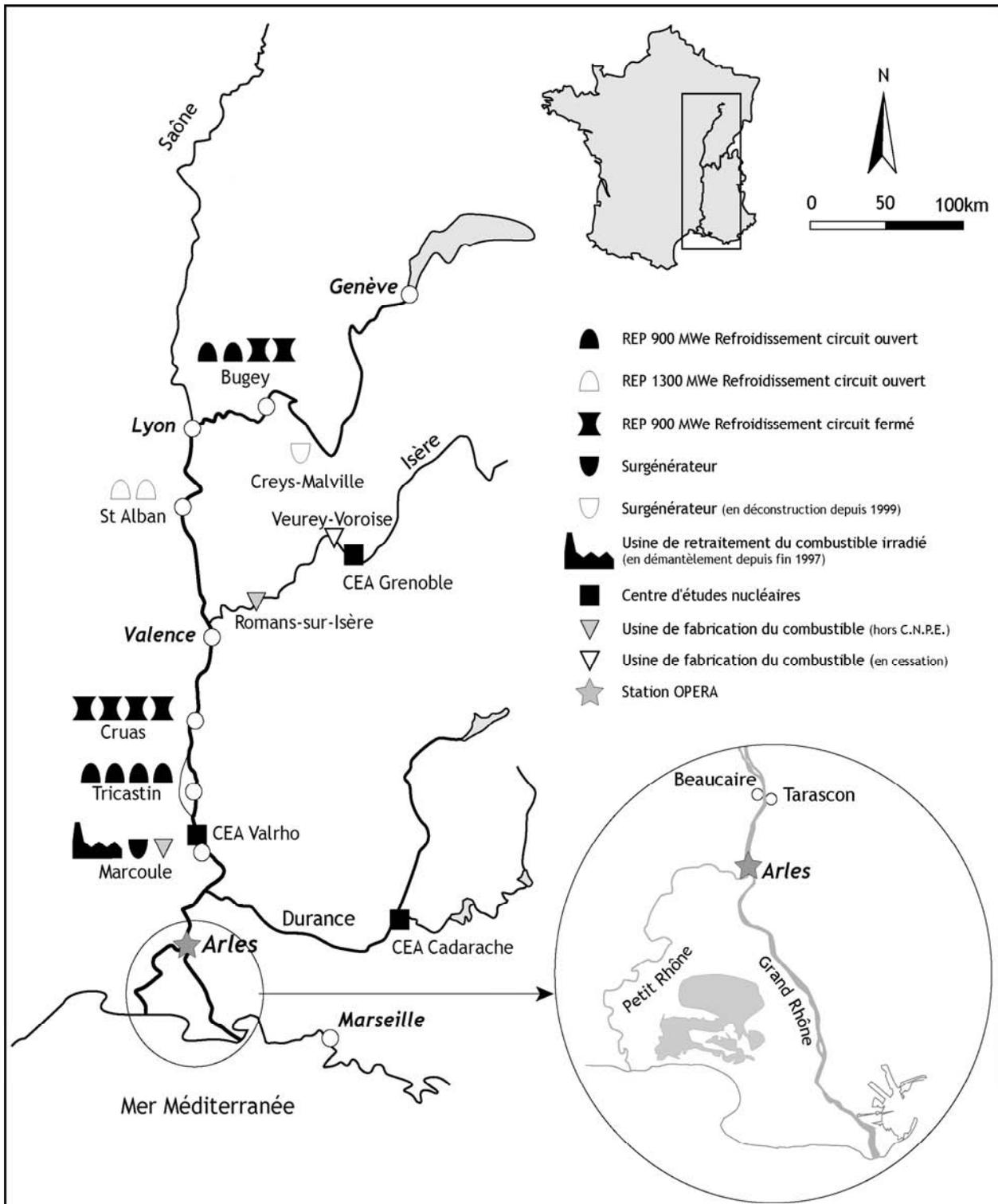


Figure 1-4. Les installations nucléaires rhodaniennes (figure publiée dans *Lambrechts et al., 1992* et réactualisée).

sera portée au centre nucléaire de Marcoule car c'est le terme source prépondérant de radioactivité artificielle dans les eaux du Rhône aval.

La plupart des renseignements suivants sont issus en grande partie des ouvrages de *Lambrechts et al. (1992 a)* et *Charmasson (1998)*.

1.2.2.1. Présentation du cycle du combustible nucléaire

De l'extraction du minerai d'uranium jusqu'au stockage provisoire ou définitif du combustible irradié dans les centrales, le cycle complet du combustible nucléaire peut être décrit en plusieurs étapes principales. Ces étapes sont les suivantes :

- L'extraction minière du minerai d'uranium. Ce minerai d'uranium est composé à l'état naturel de 99% d' ^{238}U et de 0,7% d' ^{235}U .

- La production de l'énergie nucléaire met en jeu la réaction de fission du noyau des atomes d'uranium. Seul les noyaux d' ^{235}U sont fissiles, et ceux-ci ne sont pas en assez grande proportion dans l'uranium naturel pour que les réactions de fissions en chaîne soient possibles. Il est donc nécessaire d'enrichir l'uranium naturel jusqu'à une teneur de 3,25% d' ^{235}U pour les réacteurs à eau pressurisée (REP), les plus fréquents dans les centrales nucléaires françaises actuelles. L'enrichissement est possible grâce à un procédé de diffusion gazeuse de l'hexafluorure d'uranium, qui permet le fractionnement des molécules d' $^{235}\text{UF}_6$ et d' $^{238}\text{UF}_6$ en fonction de leur vitesse de diffusion et donc de leur masse.

- La confection des éléments combustibles sous la forme d'empilements de pastilles d'oxyde uranium est réalisée dans une usine de fabrication du combustible.

- Au cœur des réacteurs des centrales nucléaires électrogènes se produit la fission en chaîne des noyaux d' ^{235}U en noyaux plus petits. Ce sont ces réactions de fission fortement exothermiques qui produisent l'énergie nucléaire utilisable. Parallèlement à la fission de l' ^{235}U , la capture d'un neutron par les noyaux d' ^{238}U conduit au ^{239}Pu , lui-même fissile. La fission des noyaux de ^{239}Pu fournit environ 1/3 de l'énergie produite.

- Le retraitement du combustible irradié est ensuite réalisé pour séparer l'uranium et le plutonium réutilisables des produits de fission qui seront conditionnés et stockés en tant que déchets de haute activité.

1.2.2.1.1. Les déchets radioactifs

On appelle déchets radioactifs toute matière, sous forme solide ou liquide, dont la radioactivité ou la forme physique la destine à être concentrée et stockée afin d'éviter sa dispersion dans l'environnement. Les déchets radioactifs sont engendrés principalement lors des opérations de retraitement et de conditionnement effectuées en fonction de leur activité et de leur durée de vie. Selon l'ANDRA¹, ils sont classés comme suit :

- Les déchets de très faible activité (TFA) ont un niveau de radioactivité généralement compris entre 1 et 100 Bq/g parfois supérieur pour de très faibles volumes de déchets. L'activité décroît en quelques dizaines d'années jusqu'à un niveau moyen de quelques Bq/g. Ces déchets proviennent principalement du démantèlement des installations nucléaires arrêtées, d'industries dont les procédés de fabrication concentrent la radioactivité naturelle présente dans certains minerais, de l'assainissement et de la réhabilitation de sites anciennement pollués.

- Les déchets de faible et moyenne activité (FMA) renferment principalement des émetteurs β et γ à vie courte ou moyenne ($T_{1/2} < 30$ ans), ainsi que des émetteurs α ou à vie longue présents en faible quantité. Leur niveau d'activité sera devenu comparable à celui de la radioactivité naturelle dans moins de 300 ans. Selon l'ONDRAF², les déchets de faible activité sont ceux dont le débit de dose au contact (dose à laquelle un individu est exposé au contact) est inférieur à 5 milliSievert par heure, et les déchets de moyenne activité sont ceux dont le débit de dose au contact se situe entre 5 milliSievert et 2 Sievert par heure. Les déchets FMA sont par exemple des filtres, des résines de traitement de l'eau, du matériel usagé... qui proviennent de l'industrie nucléaire, mais aussi des laboratoires de recherche, des universités, des hôpitaux. En France, ces déchets sont soit entreposés de façon définitive soit

¹ Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs ; www.andra.fr

² Organisme National des Déchets RADioactifs et des matières Fissiles enrichies (Belgique) ; www.nirond.be/francais/1_index_fr.html

stockés provisoirement en attente d'une solution définitive, dans des sites de stockage de surface.

- Les déchets HAVL sont les déchets de haute activité et/ou à vie longue. Ce sont ceux dont le débit de dose au contact est supérieur à 2 Sievert par heure. Ils nécessitent, pour ceux qui ont les plus longues durées de vie, d'être confinés pendant des périodes de temps de l'ordre du million d'années, avant que leur radioactivité ne devienne équivalente à celle que l'on peut trouver dans le milieu naturel. Il s'agit le plus souvent des solutions de produits de fission et d'actinides issus du retraitement du combustible irradié. Ils sont coulés dans des matrices de verre limitant les émissions radioactives, puis stockés dans des puits bétonnés sur le lieu même du retraitement. En France, les sites concernés par le conditionnement des déchets de catégorie C sont ceux de Marcoule et de la Hague. Il s'agit d'un stockage provisoire, qui devra déboucher à long terme sur une solution définitive tels, par exemple, l'entreposage définitif dans des couches géologiques profondes, ou encore le retraitement par transmutation c'est à dire la transformation des éléments de haute activité en éléments moins radioactifs.

1.2.2.1.2. Les effluents radioactifs

Au contraire des déchets, les effluents radioactifs sont constitués de matières radioactives très diluées destinées à être dispersées dans l'environnement, directement ou après traitement, sous forme liquide, gazeuse ou d'aérosols, et de façon contrôlée. Les effluents gazeux proviennent par exemple du dégazage des circuits des centrales ou de l'ouverture des gaines de combustibles dans les usines de retraitement. Les effluents liquides proviennent par exemple des opérations de décontamination, de lavage et de rinçage dans les centrales et dans les installations des usines de retraitement du combustible irradié.

Les éléments présents dans les effluents liquides des centrales et des usines de retraitement sont les suivants :

- Les produits d'activation formés au cœur des réacteurs à partir d'éléments qui ont été soumis au flux neutronique, tels que des impuretés présentes dans les liquides de

refroidissement ou dans les alliages des structures. Sont principalement rejetés dans l'environnement : ^3H , ^{54}Mn , ^{57}Co , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{65}Zn , $^{110\text{m}}\text{Ag}$.

- Les produits de fissions des noyaux d' ^{235}U . Sont principalement rejetés dans l'environnement : ^3H , ^{129}I , ^{131}I , ($^{90}\text{Sr} + ^{90}\text{Y}$), ^{99}Tc , ^{125}Sb , ^{137}Cs , ^{141}Ce , ^{144}Ce , ^{103}Ru , ^{106}Ru , ^{85}Kr , etc.

- Les transuraniens issus des noyaux d'uranium par capture neutronique, il s'agit principalement des ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Am , ^{244}Cm .

Dans le cadre de cette étude, qui s'intéresse avant tout aux processus naturels de stockage et de remobilisation de la radioactivité artificielle en milieu fluvial, nous nous intéresserons essentiellement aux effluents liquides à partir desquels un stockage dans le compartiment sédimentaire est possible.

1.2.2.2. Le centre de Marcoule

Le centre nucléaire de Marcoule représente un terme source majeur de radionucléides artificiels dans les eaux du Rhône aval. Cet état de fait est directement lié à la présence de l'usine de retraitement du combustible irradié COGEMA, ce type d'installation étant à l'origine des rejets nucléaires les plus importants dans l'environnement (*CEC, 1989 ; Cigna et al.; 1994*). Ce centre regroupe cependant des activités multiples, qui reposent sur trois missions:

- 1) la production de plutonium et de tritium,
- 2) le retraitement des combustibles de la filière Uranium Naturel-Graphite-Gaz (UNGG) français et espagnols,
- 3) le soutien aux installations du Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA).

1.2.2.2.1. Historique des activités

L'établissement COGEMA de Marcoule a été inauguré le 10 octobre 1955. Son historique reflète la diversité des activités qui y sont menées en son sein :

- Janvier 1956 : divergence du réacteur G1,
- Janvier 1958 : démarrage de la première usine française de retraitement du combustible irradié par séparation chimique (UP1). L'usine a retraité jusqu'à son arrêt en 1997 les combustibles des réacteurs de la filière à uranium naturel, modérés au graphite et refroidi au gaz (UNGG),
- Juillet 1958 : divergence du réacteur G2,
- 20 février 1959 : production du premier lingot de plutonium,
- Juin 1959 : divergence du réacteur G3,
- Mai 1967 et octobre 1968 : divergence des deux réacteurs Célestin destinés à fournir le tritium utilisé pour l'armement thermonucléaire,
- Octobre 1968 : arrêt de G1,
- Août 1973 : divergence de Phénix, prototype industriel de réacteur de la filière neutrons rapides,
- 1976 : les réacteurs Célestin reçoivent une vocation purement plutonigène,
- 1978 : démarrage de l'atelier de vitrification des produits de fission de Marcoule (AVM),
- Février 1980 : arrêt de G2,
- 1983 : démarrage de l'atelier de dégainage,
- Juin 1984 : arrêt de G3,
- 1990 : mise en service de la nouvelle station de traitement des effluents liquides (STEL) et de l'atelier d'évaporation EVA,
- 1991 : aménagement du laboratoire ATALANTE qui permettra de faire face à long terme aux besoins en matière de recherche et développement sur le retraitement du combustible,
- 1995 : mise en exploitation de l'usine MELOX chargée de la fabrication du combustible MOX. Le plutonium issu des centrales est récupéré par retraitement, puis mélangé à de l'uranium naturel ou appauvri afin de constituer un nouvel assemblage de combustible (MOX). Le combustible MOX peut ensuite être chargé dans les réacteurs de type REP.
- 1997 : arrêt de l'usine de retraitement UP1.

En plus des installations de COGEMA, le centre de Marcoule héberge aussi des activités diverses de recherche et de développement du CEA, avec le laboratoire ATALANTE et le réacteur Phénix.

1.2.2.2.2. Evolution des rejets

La radioactivité contenue dans les effluents liquides du centre de Marcoule est nettement plus élevée que celle des effluents des centrales. C'est en effet au niveau de l'usine de retraitement (cisailage, dégainage et dissolution du combustible irradié) qu'est libérée la plus grande quantité de déchets et d'effluents.

Dans le tableau 1-1 sont reportés les rejets annuels du centre de Marcoule de 1961 à 2003. Toutes les données de ce tableau ont été fournies par COGEMA. L'ensemble des données reportées pour la période 1961-1997 est issu de *Charmasson (1998)*. Le tableau constitue donc une mise à jour des rejets liquides du centre de Marcoule jusqu'à la fin du présent travail de thèse.

La figure 1-5 illustre l'évolution temporelle des rejets de radionucléides émetteurs gamma (sauf tritium) et alpha. Cette figure souligne de façon nette une diminution drastique des rejets du centre de Marcoule à partir de 1991. Cette diminution est la conséquence directe de la mise en service d'une nouvelle station de traitement des effluents liquides (STEL). COGEMA a mis en chantier en 1986 le renouvellement de la STEL de Marcoule, en y incluant l'utilisation d'un nouveau procédé, l'évaporation (*Levy et al., 1993*). La mise en service en avril 1990 de l'atelier d'évaporation EVA, qui comprend deux lignes d'évaporation ayant une capacité de 8,5 tonnes par heure, a permis une diminution globale des rejets liquides globaux d'un facteur compris entre 5 et 10 dans les années qui suivirent. L'arrêt de l'usine de retraitement du combustible irradié UP1 en 1997 a ensuite contribué à la diminution des rejets du centre de Marcoule. Finalement, entre 1990 et aujourd'hui, la radioactivité des rejets du centre de Marcoule a diminué d'un facteur environ 100 pour les radionucléides émetteurs gamma, et d'un facteur environ 30 pour les émetteurs alpha.

Tableau 1-1. Activités en GBq des éléments identifiés dans les effluents liquides du centre de Marcoule de 1961 à 2003. Les données de 1961 à 1997 sont tirées de *Charmasson (1998)*. De 1961 à 1963, les activités rejetés sont disponibles sous forme d'activités α et β globales. Ce n'est qu'à partir de 1979 que des informations plus complètes sur la composition des rejets sont disponibles. Avant cette date, les valeurs indiquées pour $^{239+240}\text{Pu}$ représentent en fait les valeurs cumulées de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am et $^{242+244}\text{Cm}$.

	Radionucléides émetteurs gamma (GBq)												Radionucléides émetteurs alpha (GBq)				
	^{54}Mn	^{58}Co	^{60}Co	$^{90}\text{Sr-Y}$	$^{95}\text{Zr-Nb}$	^{103}Ru	$^{106}\text{Ru-Rh}$	^{125}Sb	^{134}Cs	^{137}Cs	$^{144}\text{Ce-Pr}$	^3H	U Nat.	$^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am}$	$^{242+244}\text{Cm}$	^{241}Am
1961				400									30	20			
1962				1600									100	30			
1963				400									100	20			
1964				1200	700	20000	31700			4700	200		100	30			
1965				1000	1800	42000	37700	100		4300	700		20	100			
1966				1000	400	26400	33100	20		6380			40	30			
1967				600	30	13000	21200			5600			10	3			
1968				800	100	1900	13100			4800		42000	10	3			
1969				1720	300	1800	20800	30		1900	300	36000	20	20			
1970			30	2400	100	400	15300			700	100	51000	10	3			
1971			3	1000	40	700	13500	100	100	100	100	47000	3	3			
1972			10	600	100	200	9000	300	100	1400	100	83000	3				
1973			10	800		300	16800	300	200	1000	30	149000	3				
1974			200	1600	10	800	16100	200	100	600	100	107000	40	3			
1975	3	1	70	1800	100	1600	32600	500	100	900	200	138000	40	10			
1976	20	3	100	800	50	600	20000	900	100	600	300	168000	3	3			
1977	40		100	800	30	200	27100	1000	200	1300	200	117000	3	3			
1978	30	1	200	1600	20	400	25000	1000	700	4100	200	270000	10	3			
1979	90	1	200	1200	20	100	14200	500	600	2900	200	297000	12	4,6	8,5	1	7,12
1980	260	3	70	1600	50	50	25100	600	800	3800	500	414000	20,4	23,4	40,8	3,9	33,78
1981	130	3	100	1000	30	40	26900	800	800	3800	300	330000	8,9	18,7	16,8	1,9	11,19
1982	440	4	80	2420	40	190	36600	1900	1300	5550	900	348000	6	13,7	35,2	12	31,09
1983	300	4	60	860	200	410	53400	1000	300	1660	500	205000	20,6	12	21,7	3,2	18,1
1984	400	10	90	2000	30	120	28000	3610	340	2100	300	406000	26	25,7	40,1	2,4	32,39
1985	770	10	100	3940	41	230	34300	1840	450	2350	440	521000	24,3	26,6	21,7	3,8	13,72
1986	230	0,750	50	5460	3,7	0,68	33100	1380	430	2470	530	536000	30,3	24,8	34,7	10,4	27,26
1987	140	2,000	178	5300	2,7	2,1	32200	570	270	2420	390	437000	25,9	24,1	57,4	6,3	50,17
1988	630	0,700	59	4920	27	2,3	50500	760	190	1950	310	376000	20,1	28,8	40	6,6	31,36
1989	690	2,000	63	4500	81	84	47600	920	150	1130	450	457000	15,7	17,4	20,2	3,9	14,98
1990	170		37	2720	44	30	48800	1250	390	1670	530	463000	16,3	21,1	20	3,9	13,67
1991	20	0,100	55	1920	3	16	17400	420	100	760	190	376000	7,15	12,6	13,6	2,02	9,82
1992	5,55		32	317	0,194	0,394	7620	145	27,3	220	34,8	349000	3,79	3,3	4,53	1,63	3,54
1993	0,7		28,2	358	0,0864	0,455	5540	135	7,35	86,6	22,5	352000	2,54	0,954	2,18	0,538	1,8938
1994	0,576	0,040	10,5	379	1,55	0,0272	3450	109	12,1	155	17,4	320000	5,79	1,27	2,66	0,21	2,279
1995	1,26	0,046	24,6	262	7,81	1,9	6270	67,2	7,74	112	5,8	258000	8,71	0,545	1,01	0,452	0,8465
1996	18,6	1,570	32,6	362	2,05	0,0716	6510	52,6	8	115	15,8	268000	8,59	0,809	1,54	0,0589	1,2973
1997	1,84		25,8	276	2,33	0,128	6830	32,9	3,05	84,6	7,48	162000	6,96	1,64	2,89	0,07	2,398
1998	3,06		15,2	220	0,11		922	30,2	0,999	32,3	0,881	18500	1,04	0,654	1,91	0,0188	1,7138
1999	3,12	0,011	22,6	147			380	55,4	1,23	46,9		24500	0,498	0,649	1,59	0,033	1,3953
2000	0,622	0,022	24,7	115			118	61,1	0,682	28,4	0,124	34900	0,138	1,59	1,69	0,0287	1,213
2001	1,7	0,028	24,4	91			29,3	21,4	0,519	20,5	0,0643	3700	0,164	0,787	1,08	0,0376	0,8439
2002	0,375	0,026	21,2	56,3			15,9	10,4	0,541	40		25600	0,184	0,53	1,27	0,0253	1,111
2003	0,09	0,027	19,9	29,1			12,7	18	0,4	27		23700	0,233	0,301	0,675	0,016	0,5847
Total	4400	47	2147	60572	4367	111578	818798	20738	7790	71908	8175	8213900	817	551	394	64	314

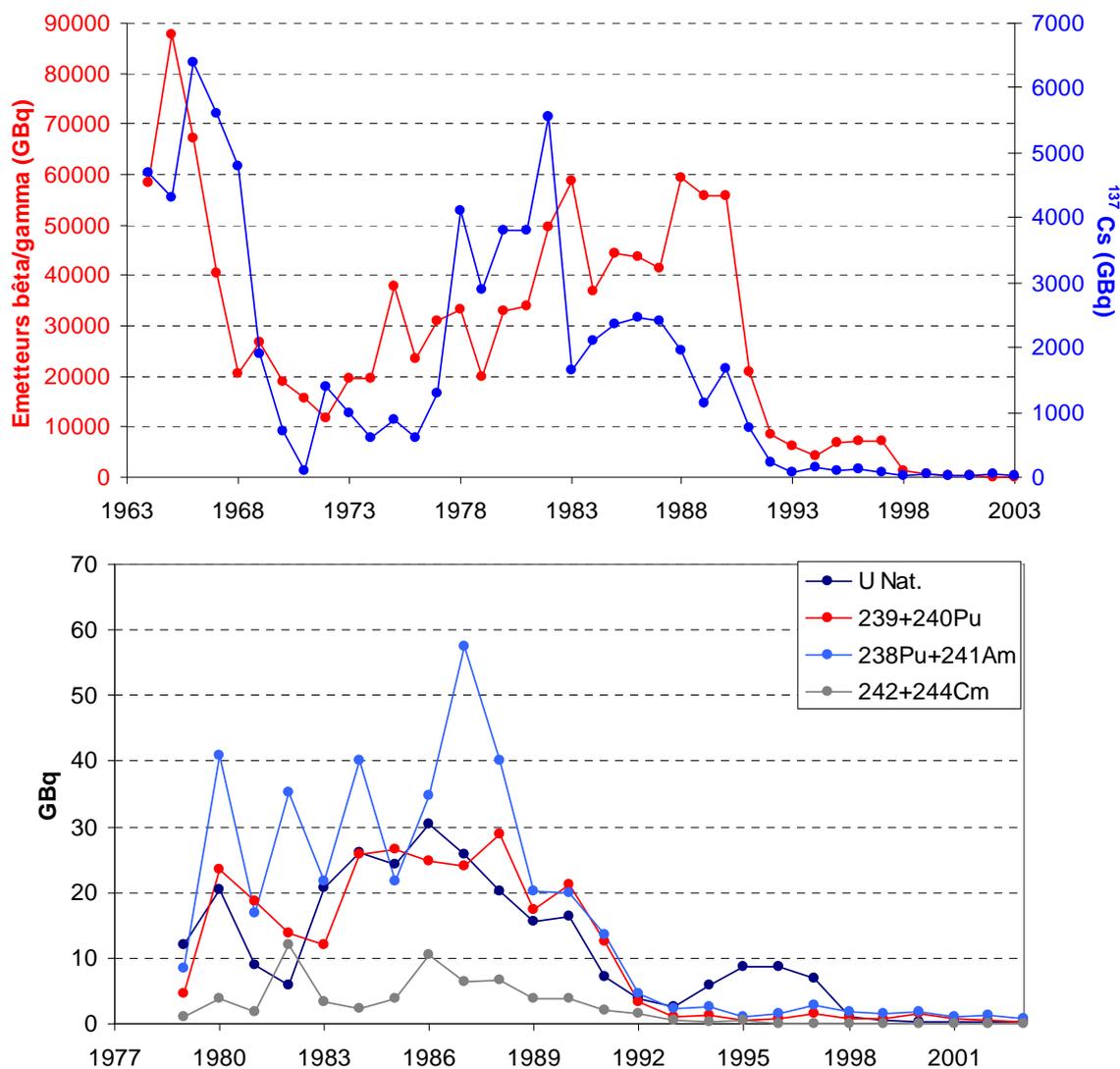


Figure 1-5. Evolution temporelle des rejets de Marcoule de 1964 à 2003 pour les rejets en émetteurs γ hors tritium, et de 1979 à 2003 pour les émetteurs α .

La figure 1-6 représente la composition moyenne des effluents sur la période 1964-2003. Par rapport à l'analyse faite par *Charmasson (1998)* de la composition moyenne pour la période 1964-1997, les valeurs de proportion des différents radionucléides émetteurs alpha, bêta et gamma sont identiques, ce qui est logique étant donné la faiblesse des rejets totaux sur la période 1998-2003 par rapport aux rejets antérieurs. Le tritium domine largement les rejets β/γ de 1964 à 2003 avec une proportion de 88%, suivi par le couple $^{106}\text{Ru-Rh}$ avec 8,9%, l'ensemble des autres éléments représentant environ 3,1% de ces rejets. Si l'on excepte le tritium, le $^{106}\text{Ru-Rh}$ prédomine largement les activités en émetteurs β/γ avec une proportion de près de 74%. Apparaissent ensuite par ordre d'importance décroissante ^{103}Ru , ^{137}Cs , $^{90}\text{Sr-Y}$ et ^{125}Sb avec des proportions comprises entre 10,1 et 1,9%, les éléments ^{144}Ce , ^{134}Cs , $^{95}\text{Zr-Nb}$,

^{60}Co et ^{58}Co représentant chacun moins de 1% de l'activité totale rejetée sur cette période. En ce qui concerne les émetteurs α , la répartition entre les différents éléments identifiés est beaucoup plus homogène. Les rejets sur la période 1979-(2003) sont dominés par le ^{238}Pu et l' ^{241}Am (39,5%), l'uranium naturel et le $^{239+240}\text{Pu}$ représentent des proportions similaires (respectivement 27,3 et 26,7%), alors que les $^{242+244}\text{Cm}$ sont les éléments proportionnellement les moins abondants (6,5%) (*Charmasson, 1998*).

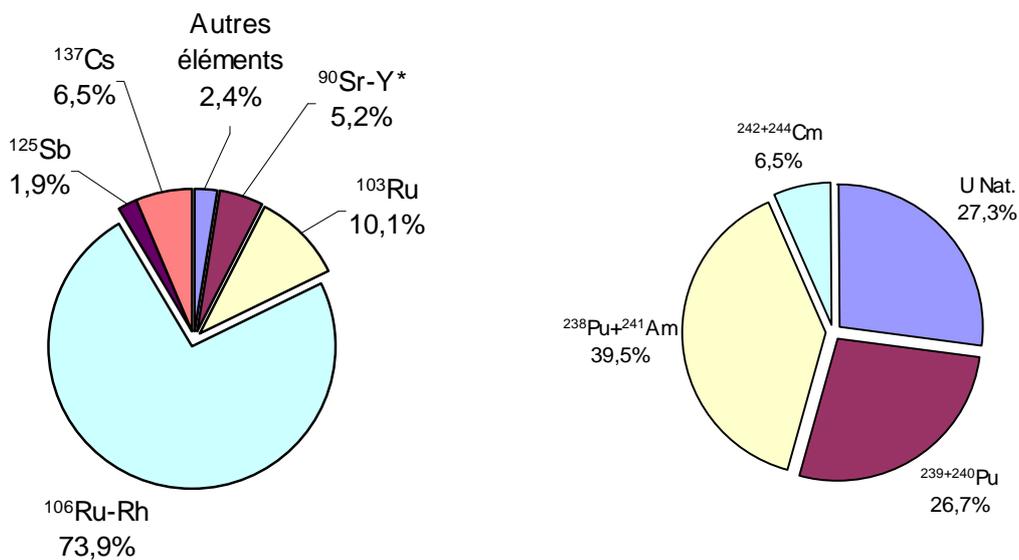


Figure 1-6. Composition isotopique moyenne des rejets du centre de Marcoule sur la période 1964-2003 (hors tritium) pour les radionucléides émetteurs β/γ , sur la période 1979-2003 pour les radionucléides émetteurs α .

La figure 1-7 représente la composition moyenne des rejets déterminée pour la période 1998-2003, c'est à dire depuis le dernier bilan de *Charmasson (1998)*. Elle représente la composition moyenne actuelle, depuis que les rejets ont diminué et se sont stabilisés. Concernant les émetteurs β/γ , les rejets de tritium sont toujours largement majoritaires et représentent même aujourd'hui la quasi-totalité des rejets avec une participation de 97,6%. Hors tritium, le $^{106}\text{Ru-Rh}$ domine toujours, mais sa contribution a baissé pour passer de 73,9% à 56,5%. Vient ensuite le $^{90}\text{Sr-Y}$ dont la contribution a augmenté de 5,2% à 23,3% aujourd'hui, puis le ^{137}Cs qui reste relativement stable (respectivement 6,5 et 7,2% sur les périodes 1964-2003 et 1998-2003). La contribution des rejets de ^{125}Sb (7,2%) a significativement augmenté par rapport à la moyenne globale sur les quarante dernières

années (1,9%). Le ^{60}Co représente actuellement 4,9% des rejets β/γ hors tritium alors qu'il n'a contribué qu'à hauteur de 0,2% sur la période 1964-2003. Finalement, les ^{54}Mn , ^{58}Co , $^{95}\text{Zr-Nb}$, ^{134}Cs et $^{144}\text{Ce-Pr}$ ont représenté sur la période récente moins de 0,5% des rejets, et aucun rejet de ^{103}Ru n'a été mentionné par COGEMA. Concernant les émetteurs α , la répartition entre les différents éléments identifiés dans les rejets est moins homogène sur la période récente que sur la période 1979-2003. Le ^{238}Pu et l' ^{241}Am prédominent toujours (55%). Les rejets de $^{239+240}\text{Pu}$ se maintiennent à hauteur de 30% alors que l'uranium naturel contribue de façon moindre qu'auparavant (respectivement 27,3 et 13,9% sur les périodes 1964-2003 et 1998-2003). La contribution des $^{242+244}\text{Cm}$ est toujours la plus faible (inférieure à 1%).

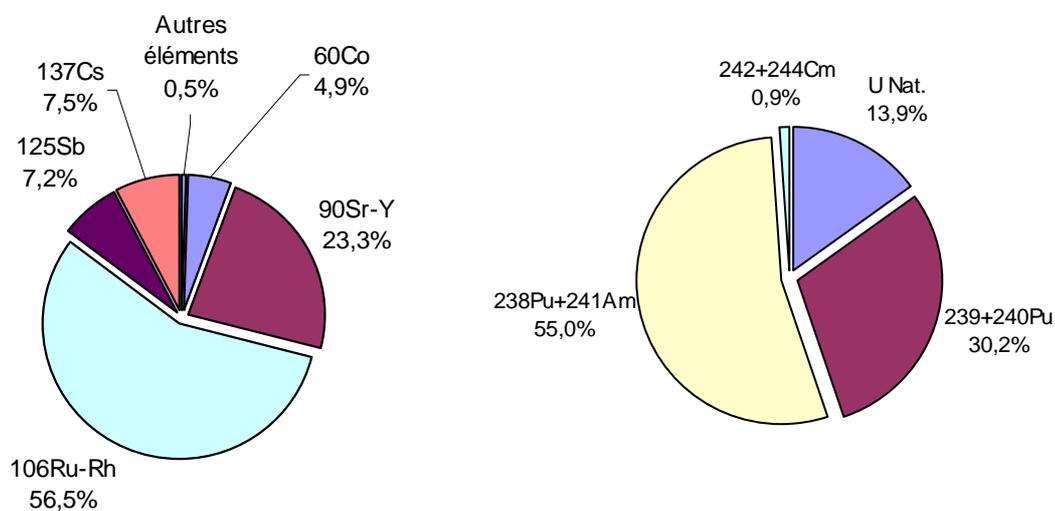


Figure 1-7. Composition isotopique moyenne des rejets du centre de Marcoule sur la période 1998-2003 (hors tritium).

1.2.2.3. Les centrales nucléaires

Vingt réacteurs ont été construits sur 6 implantations nucléaires le long du Rhône. Les trois réacteurs expérimentaux de type UNGG G1, G2 et G3 de Marcoule ont été arrêtés respectivement en 1968, 1980 et 1984. Les cinq sites restants, Creys-Malville, Bugey, Saint Alban, Cruas-Meysse et Tricastin, comportent 17 réacteurs, couplés au réseau électrique et appartenant à différentes filières nucléaires dont les réacteurs à uranium naturel-graphite-gaz (UNGG), les réacteurs à eau pressurisée (REP), et un réacteur à neutrons rapides (RNR). Ces installations productrices d'électricité sont autorisées à rejeter des effluents liquides radioactifs dans les eaux du Rhône. Ces effluents proviennent essentiellement des opérations de décontamination et de lavage des structures des réacteurs. Les radionucléides concernés

sont représentés par toutes les catégories d'éléments résiduels issus de l'utilisation du combustible au sein du réacteur (produits d'activation, produits de fission, transuraniens). En France, les rejets par les centrales d'effluents contenant des radionucléides émetteurs β et γ sont soumis à autorisation. Les centrales nucléaires françaises ne sont pas autorisées à rejeter de radionucléides émetteurs α , tels les transuraniens ^{235}U , ^{238}U , ^{240}Pu , ^{239}Pu , ^{238}Pu , ^{241}Am .

Tableau 1.2. Composition isotopique moyenne (en GBq) des rejets des centrales nucléaires dans le Rhône.

	^3H	^{54}Mn	^{58}Co	^{60}Co	$^{110\text{m}}\text{Ag}$	^{124}Sb	^{131}I	^{134}Cs	^{137}Cs	Autres éléments
1977	8,7			2,2				2	3,4	
1978	17,5	1,8	316	38,4		0,5		6,6	21	
1979	37	15,9	142	91,6		9,9	0,6	0,9	6,5	
1980	64800	37	1050	187		14,5	20,8	2,9	17,4	
1981	108000	41,3	1560	180		50,6	75,3	32,6	78,1	
1982	119000	9,94	288	73,7	4,37	27,6	11,3	17,7	28,5	
1983	130000	9,55	336	58,2	20,2	29,2	18,7	8,38	27,5	
1984	165000	4,6	292	65,9	42,6	43	9,74	21,8	26,1	
1985	228000	22,3	323	103	151	78,4	23,4	44,9	69,4	
1986	213000	9,48	213	89,9	68,4	92,5	16,7	28	64,6	63
1987	197000	6,58	184	83,2	80,3	109	5,03	22,2	30	28
1988	196000	5,24	122	52,7	64,8	52,9	5,4	10,5	13,5	26,5
1989	178000	7,07	112	78,7	59	59,1	4,1	4,91	9,7	53,9
1990	172000	5,6	138	71,3	54,1	86,6	2,6	8,9	10,8	38,1
1991	124000	3,42	64,6	39,3	26	33,8	2,9	2,14	3,33	13,3
1992	90000	1,2	23,2	26	17,5	12,4	0,7	1,3	2,2	5,4
1993	139000	0,6	9,1	12,9	8,6	4,4	0,92	1,22	2,24	4
1994	144000	0,37	7,82	8,3	6,73	6,32	0,37	0,52	1,23	2,01
1995	123000	0,31	7,29	4,86	3,89	3,59	0,22	0,41	0,87	1,5
1996	175000	0,32	10,7	4	4,16	1,66	0,22	0,53	1,23	1,38
1997	138000	0,51	9,53	6,26	4,82	0,96	0,17	1,53	1,84	0,75
1998		0,32	5,34	3,75	3,18	0,55	0,24	0,51	1,95	
1999		0,178	3,83	78,69	2,6	0,26	0,16	0,29	0,82	
2000		0,166	2,58	2,41	2,52	0,21	0,13	0,33	0,56	
2001		0,102	1,61	1,18	1,29	0,25	0,09	0,12	0,53	
2002		0,145	1,038	1,44	2,11	0,43	0,15	0,14	0,31	
2003		0,175	1,039	1,04	1,85	0,29	0,12	0,14	0,26	
2004		0,168	0,98	1,87	1,5	0,26	0,15	0,2	0,49	
Total	2703863	184	5225	1368	632	719	200	222	424	238

Concernant les radionucléides émetteurs β et γ , le tableau 1-2 représente la chronique des rejets totaux toutes centrales nucléaires rhodaniennes confondues pour la période 1977-2004. Les données antérieures à 1998 sont issues de *Charmasson (1998)* qui avait fait un bilan pour la période 1977-1997. Il s'agit donc ici d'une mise à jour des données de rejets jusqu'à la fin de la présente thèse. Cette chronique débute en 1977 car avant cette date, seul le site de Bugey comportait une tranche UNGG en fonctionnement de 1972 à 1978. Cette chronique ne comprend pas non plus les rejets liquides du site de Crey-Malville avant 1995, puisque jusqu'à cette date les rejets de ce réacteur n'étaient pas disponibles élément par élément. Ces rejets n'ont cependant contribué que faiblement à l'apport de l'ensemble des centrales (*Charmasson, 1998*).

La figure 1-8 illustre l'évolution temporelle des rejets hors tritium des centrales sur la période 1977-2004. La diminution globale de ces rejets à partir de 1990 est essentiellement due aux efforts engagés par les exploitants pour améliorer la gestion des effluents.

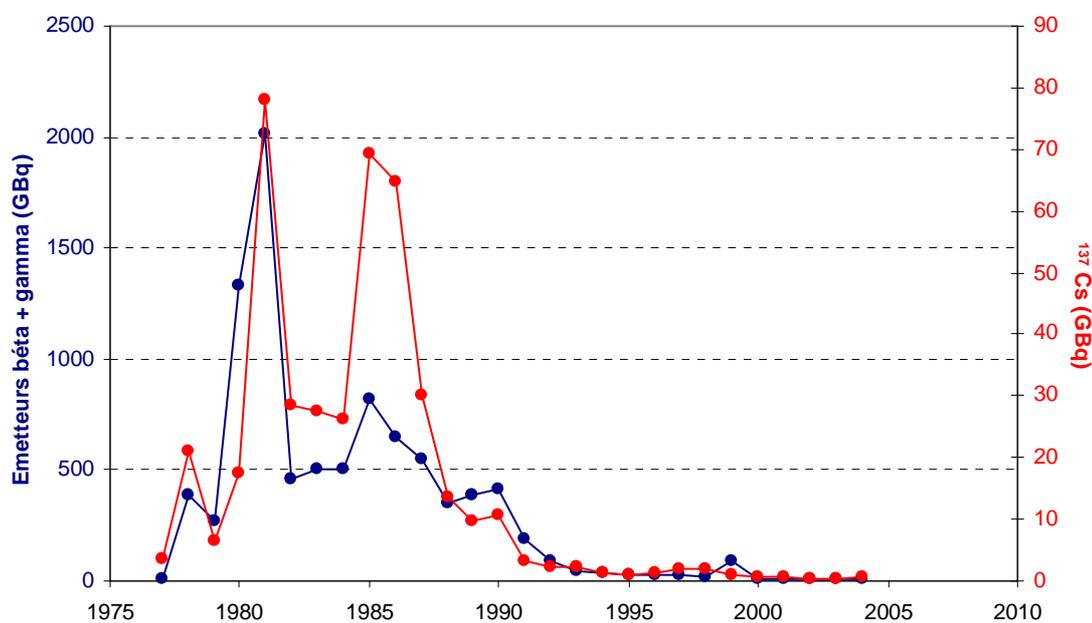


Figure 1-8. Evolution temporelle des rejets en émetteurs gamma totaux hors tritium, toutes centrales confondues, de 1977 à 2004. En rouge est représentée l'évolution des rejets de ¹³⁷Cs.

Il est intéressant de comparer les rejets des centrales à ceux issus du centre de Marcoule. Concernant le tritium, les rejets du centre de Marcoule et des centrales nucléaires ont contribué respectivement à hauteur de 26,8% et 63,2% de la quantité totale de tritium rejeté dans le Rhône sur la période 1977-2004. Les rejets des centrales sont par contre négligeables par rapport aux rejets de Marcoule en ce qui concerne les émetteurs β/γ hors tritium. Les rejets du centre de Marcoule ont ainsi contribué pour 98,6% de la quantité totale des émetteurs β/γ hors tritium rejetés dans le Rhône sur la période 1977-2004.

Les isotopes du plutonium d'origine industrielle présents dans le bassin versant rhodanien proviennent du centre de Marcoule. Par contre, les centrales nucléaires représentent un autre terme source de ¹³⁷Cs d'origine industrielle que le centre de Marcoule. Le bilan des rejets en ¹³⁷Cs d'origine industrielle dans les eaux du Rhône sur la période 1977-2004 indique une contribution négligeable des centrales qui ont fourni à peine 1% de la quantité totale de ¹³⁷Cs introduit dans le Rhône sous forme d'effluents liquides.

Si l'on s'intéresse plus particulièrement à la période récente, le bilan des rejets liquides en émetteurs β/γ hors tritium sur la période 1998-2004 souligne que, malgré la diminution drastique des rejets du centre de Marcoule dans les années 1990, les rejets de ce centre sont encore prépondérants par rapport à ceux des centrales. En effet, les centrales ont rejeté sur cette période 133 GBq d'émetteurs β/γ , alors que les rejets de Marcoule ont rejeté dans le même temps 2671 GBq, ce qui représente environ 95% des rejets. Concernant le ^{137}Cs , les rejets des centrales et de Marcoule ont rejeté respectivement 5 GBq et 195 GBq dans les eaux du Rhône, soit des contributions respectives de 2,5% et 97,5% de la l'activité totale de ^{137}Cs d'origine industrielle rejetée.

1.2.2.4. Les autres installations nucléaires rhodaniennes

Plusieurs autres installations du cycle du combustible nucléaire sont présentes sur le bassin versant rhodanien. Les rejets cumulés de ces installations sont négligeables par rapport à ceux des centrales nucléaires et du centre de Marcoule. Ces installations sont les suivantes :

- L'usine de Romans : Elle abrite deux sociétés travaillant dans la fabrication du combustible. La Franco-Belge de Fabrication du Combustible (FBFC) fabrique les assemblages de crayons d' UO_2 enrichi à moins de 5% pour les réacteurs REP. La Compagnie d'Etude et de Réalisation de Combustible Atomique (CERCA) fabrique, quant à elle, les combustibles des réacteurs de recherche et expérimentaux. Les rejets de FBFC sont faibles et proviennent des ateliers de traitement de l'uranium. Les effluents de CERCA, qui contiennent de l'uranium enrichi à 20% et 93%, ne sont pas rejetés mais retraités.
- L'usine FBFC de Pierrelatte : Ses activités sont les mêmes que celles de l'usine FBFC de Romans.
- L'usine COMURHEX de Pierrelatte : Il s'agit d'une usine de conversion de l'uranium en hexafluorure d'uranium UF_6 destiné à l'enrichissement pour la fabrication du combustible. Les effluents liquides uranifères de l'installation sont acheminés dans une station de traitement puis stockés et contrôlés avant rejet dans le canal Donzère-Mondragon.

- L'usine EURODIF de Pierrelatte: Il s'agit d'un établissement travaillant sur l'enrichissement de l'uranium par diffusion gazeuse de l' UF_6 . Les rejets liquides de cette installation correspondent à un flux annuel d'uranium de l'ordre de 0,1 kg.
- Les centres de recherche nucléaires: Trois centres d'études nucléaires (CEN) sont présents sur le bassin versant rhodanien. Il s'agit des CEN de Grenoble, de Cadarache et de Valrhô. Les rejets du centre de Valrhô sont inclus dans ceux des installations du centre de Marcoule. Globalement, les rejets de ces trois centres sont plus faibles de plusieurs ordres de grandeurs par rapport à ceux des centrales et de l'usine de retraitement du combustible irradié de Marcoule.
- Les installations hospitalières et les universités: Le milieu médical a développé de nombreuses techniques basées sur l'utilisation de certains radionucléides (traitements anticancéreux, scintigraphie, ...). Les installations hospitalières rejettent donc, en situation normale, de faibles activités. Les universités de médecine et de sciences autorisées à utiliser des radionucléides sont soumises à la même réglementation que les hôpitaux.

1.2.3. Les retombées radioactives atmosphériques

1.2.3.1. Les retombées des essais nucléaires atmosphériques

L'historique des essais nucléaires a débuté le 16 juillet 1945 par l'explosion d'une bombe atomique dans le désert du Nouveau Mexique aux USA. De nombreux essais en atmosphère, sous-marins ou en sous-sol, ont été effectués ensuite par les principales puissances militaires du monde qui sont, ou ont été, les USA, l'URSS, la Grande Bretagne, la France, la Chine et l'Inde. Au total, 541 tests d'armes nucléaires ont été réalisés à l'air libre entre 1945 et 1980. Ces essais ont entraîné la dispersion dans l'atmosphère de divers radionucléides qui ont intégré les grands courants atmosphériques, et ont ainsi été redistribués sur la quasi-totalité de la surface du globe via principalement les précipitations. Le pic de production de ces radionucléides a été atteint dans les années 1961 et 1962. Après la signature entre les Américains, les Soviétiques et les Britanniques du moratoire de 1963 qui a interdit

les expérimentations atmosphériques, les retombées ont diminué d'un facteur 10 environ, malgré la persistance des essais jusqu'en 1980 (essais chinois et français, figure 1-9).

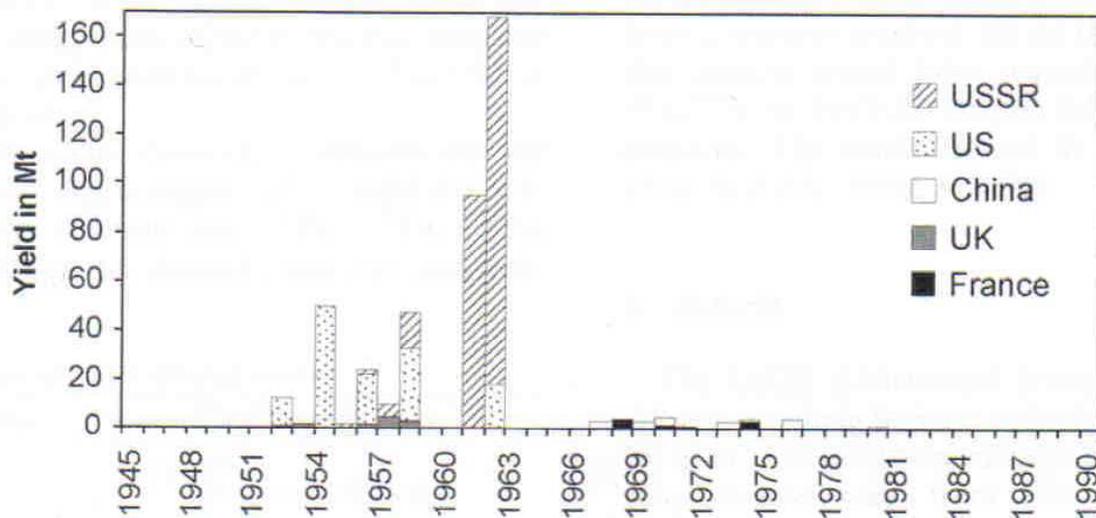


Figure 1-9. Chronique des charges totales annuelles ayant explosé suite aux essais nucléaires atmosphériques de charge supérieure à 500 kt sur la période 1945 à 1980 (figure publiée dans *Warneke et al., 2002*).

Lors d'une explosion nucléaire, les débris radioactifs sont dispersés dans l'atmosphère entre la troposphère et la stratosphère en fonction de la taille des particules et de la puissance de l'explosion (*Eisenbud et al., 1997 a*). Les retombées qui en découlent se produisent sur des échelles de temps allant de quelques minutes à quelques années. Les débris fins issus des tests de petite charge (<100 kt d'équivalent TNT) entraînent des retombées après des temps de résidence maximum dans la troposphère de 70 jours environ (*Holloway et al., 1982*). Les retombées originaires des tests de forte charge (>500 kt d'équivalent TNT) sont quant à elles presque entièrement issues de débris injectés dans la stratosphère et ont été distribuées de façon globale dans l'hémisphère où l'essai avait eu lieu, et ce sur plusieurs années. Des temps de résidence caractéristiques de 15 à 18 mois dans la stratosphère ont été déterminés par *Reiter (1975)* pour les aérosols. Les retombées à long terme à partir de la stratosphère impliquent en outre le transfert des aérosols radioactifs de la stratosphère vers la troposphère. Ce transfert s'effectue de manière saisonnière et, dans l'Hémisphère Nord, se produit principalement à la fin de l'hiver et au printemps. Un pic des retombées est donc visible

annuellement entre mars et juin, environ un mois après le maximum d'échange entre les deux couches atmosphériques (figure 1-10). A l'échelle du globe, les retombées radioactives des essais nucléaires ont été distribuées selon un rapport 3/1 entre l'hémisphère Nord et l'hémisphère Sud.

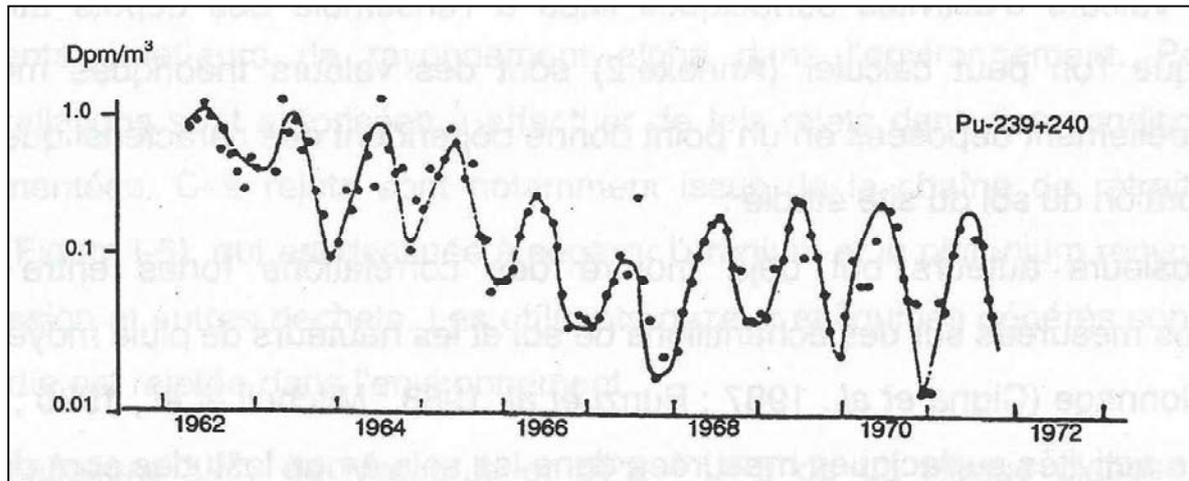


Figure 1-10. Activités en $^{239+240}\text{Pu}$ (en dpm : désintégrations par minute) mesurées dans l'air dans l'état de Washington, USA (figure publiée dans *Harley, 1980*).

Les retombées des explosions nucléaires militaires sont essentiellement constituées par des matières fissiles non utilisées telles que le ^{239}Pu , des produits de fissions tels que le ^{137}Cs et le ^{90}Sr , et des produits d'activation formés à partir de l'enveloppe de l'engin (^{55}Fe , ^{65}Zn , ^{54}Mn , ^{60}Co). Environ 200 Ebq ($\times 10^{18}\text{Bq}$) de produits de fission, dont 5 tonnes de plutonium, ont été dispersés dans l'atmosphère de 1961 à 1964. Les activités totales des éléments ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ libérées selon l'*UNSCEAR (1982)* sont reportées dans le tableau 1-3. Aux latitudes de la France, les dépôts moyens annuels cumulés suite aux retombées globales des essais nucléaires en atmosphère ont été respectivement de $1,5\text{ Bq.m}^{-2}$ et de 58 Bq.m^{-2} pour le ^{238}Pu et le $^{239+240}\text{Pu}$ (*UNSCEAR, 1982* ; tableau 1-4).

Tableau 1.3. Activités totales de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ libérées par les essais nucléaires en atmosphère (en PBq : $\times 10^{15}\text{ Bq}$) (*UNSCEAR, 1982*).

	^{137}Cs	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu
Quantité libéré (PBq)	1000	0,33	7,8	5,2

1.2.3.2. Les retombées du satellite SNAP-9A

Le 21 avril 1964, le satellite de navigation américain Transit 5-BN-3 s'est désintégré dans la stratosphère au-dessus de l'Océan Indien. Ce satellite était équipé d'un générateur auxiliaire de puissance SNAP-9A fonctionnant à l'énergie nucléaire (*Deprés, 1995*). Sa désintégration aurait ainsi libéré 630 TBq ($\times 10^{12}$ Bq) de ^{238}Pu dans l'atmosphère selon *Krey (1967)*. 512 TBq ont été déposés au total suite à cet accident selon les estimations de *Hardy et al. (1973)*. Les retombées globales issues de cet accident ont duré de 1965 à 1973. Le cumul des activités moyennes en ^{238}Pu déposés aux latitudes de la France durant cette période a été de 1 Bq.m^{-2} environ (*Duffa, 2001; Perkins, 1980*, tableau 1-4).

1.2.3.3. Les retombées de l'accident de Tchernobyl

Le 26 avril 1986, un des réacteurs de la centrale électrogène de Tchernobyl en Ukraine explose, entraînant le plus grave accident nucléaire de l'histoire. L'accident de Tchernobyl aurait entraîné l'expulsion dans l'atmosphère de 38 PBq ($\times 10^{15}$ Bq) de ^{137}Cs , et respectivement de 30, 36 et 26 TBq de ^{238}Pu , ^{239}Pu et ^{240}Pu selon l'*UNSCEAR (1988)*. *Muramatsu et al. (2000)* ont eux estimé à 87 TBq l'activité en $^{239+240}\text{Pu}$ libéré. Suite au passage début mai 1986 du nuage radioactif contaminé lors de l'accident, l'ensemble du bassin versant rhodanien a été caractérisé par des dépôts de ^{137}Cs de 3200 Bq.m^{-2} en moyenne (*UNSCEAR, 1988* ; tableau 1-4). A partir des travaux de *Renaud et al. (2003)*, qui ont établi une carte des dépôts de ^{137}Cs issus du nuage de Tchernobyl sur la moitié Est française, il a été possible d'estimer un dépôt résiduel actuel de 1500 Bq.m^{-2} en moyenne sur le bassin versant rhodanien, qui reflète à la fois la décroissance radioactive du ^{137}Cs et les pertes par érosion des sols du bassin versant.

Tableau 1.4. Récapitulatifs des dépôts de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ cumulés en France.

	Retombées des essais nucléaires atmosphériques (Bq.m-2)	Retombées du satellite SNAP-9A (Bq.m-2)	Retombées de Tchernobyl (Bq.m-2)
^{137}Cs	5200		3200
^{238}Pu	1,5	1	
$^{239+240}\text{Pu}$	58		

1.3. Les radionucléides artificiels étudiés

Dans cette partie, les propriétés physico-chimiques et le comportement environnemental des radionucléides étudiés dans ce travail sont présentés.

1.3.1. Choix des radionucléides étudiés

Les radionucléides artificiels que nous étudierons dans ce travail sont le ^{137}Cs , le ^{238}Pu , le ^{239}Pu et le ^{240}Pu . Ces radionucléides ont été choisis d'une part en fonction de l'importance des activités introduites dans le Rhône, en particulier par les rejets du centre de Marcoule. Ils ont été choisis, d'autre part, en fonction de leurs périodes radioactives respectives relativement longues (tableau 1-5) et leur forte affinité pour les particules, qui font d'eux des prétendants potentiels au stockage sédimentaires à plus ou moins longs termes. Suite à la baisse des rejets du centre de Marcoule, le ^{137}Cs , le ^{238}Pu , le ^{239}Pu et le ^{240}Pu représentent en outre les seuls radionucléides émetteurs γ et α qu'on peut encore détecter régulièrement dans les sédiments et les matières en suspension du Rhône, à la fois hors périodes de crues et lors des périodes de crues du Rhône. Le fait de pouvoir les mesurer dans les MES prélevées lors des périodes de crues est important car, comme nous le verrons, le processus de remobilisation des stocks sédimentaires se produit essentiellement durant ces périodes. De part leur affinité pour la matière particulaire, les radionucléides ^{137}Cs , ^{238}Pu , ^{239}Pu et ^{240}Pu représentent de plus des outils potentiels de traçage de la remobilisation des stocks sédimentaires.

Les rejets liquides du centre de Marcoule ont représenté jusqu'à aujourd'hui le terme source prépondérant de ces 4 radionucléides dans l'environnement rhodanien.

Tableau 1.5. Périodes radioactives des radionucléides artificiels étudiés dans le présent travail.

	^{137}Cs	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu
Période radioactive	30,2 ans	87,7 ans	24100 ans	6563 ans

1.3.2. Le césium 137

Dans l'environnement rhodanien, le ^{137}Cs est issu d'une part des retombées sur le bassin versant rhodanien des essais nucléaires en atmosphère et de l'accident de Tchernobyl, et d'autre part des rejets d'effluents liquides par le centre de Marcoule et les centrales nucléaires.

Le ^{137}Cs est un isotope alcalin faisant partie des 23 isotopes stables ou radioactifs du césium (nombres de masse compris entre 123 et 145). Il s'agit d'un produit de fission. Sa période radioactive relativement longue ($T_{1/2} = 30,2$ ans) et l'importance des activités libérées dans l'environnement en font un des radionucléides artificiels les plus étudiés. Il se désintègre par émission β pour donner naissance au radionucléide émetteur γ $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ($T_{1/2} = 2,3$ mn). Les activités en ^{137}Cs sont essentiellement déterminées par spectrométrie gamma grâce à la détection du $^{137\text{m}}\text{Ba}$.

La forme principale du césium dissous en eau douce est l'ion Cs^+ . Les variations de pH et de potentiel rédox sont sans effet sur sa forme chimique (*Onishi et al., 1981 ; Lieser et Steinkopff, 1989*). Il ne forme pas ou peu de complexes dans la nature. Suite à un rejet en phase dissoute, une partie du césium est rapidement associée aux sédiments de surface et aux matières en suspension (*Onishi et al., 1981*). Le mécanisme principal de sorption du césium est l'échange d'ions concernant principalement les minéraux argileux. Ce mécanisme intéresse trois types de sites de fixation sur les particules :

- les sites de surface non sélectifs, sur lesquels le césium fixé est facilement échangeable,
- les sites interfoliaires en bordure des particules argileuses à partir desquels l'ion Cs^+ peut être échangé seulement contre des cations de taille et de charge voisine (K^+ , NH_4^+),
- les sites interfoliaires à l'intérieur des particules argileuses dans lesquels le césium est fixé de façon quasi irréversible.

Plusieurs paramètres environnementaux conditionnent la proportion de césium fixé en phase particulaire (*Fournier-Bidoz et al., 1994*), donc sur la valeur du coefficient de distribution K_d qui le caractérise (Annexe A1). Le temps de contact entre la phase particulaire et la phase dissoute peut avoir une influence sur le K_d du ^{137}Cs , cette influence résulte du

temps nécessaire à la mise à l'équilibre entre la phase solide et la phase liquide et est caractérisée par une augmentation du K_d avec le temps de contact. Les principaux composés solides responsables de l'affinité du césium pour les particules sont les argiles, en particulier les illites, et le pourcentage en illites de la phase solide influe directement sur l'activité particulaire en césium. Comme pour la plupart des éléments à forte affinité particulaire, la taille des particules joue aussi un rôle important, les particules les plus petites augmentant la surface d'échange et la teneur en minéraux argileux, donc l'activité en césium. La composition en éléments minéraux dissous ainsi que la force ionique de l'eau sont des facteurs influençant le K_d du césium. Une forte salinité entraîne ainsi une baisse du K_d , et en milieu marin le césium est essentiellement rencontré sous forme dissoute du fait d'une compétition ionique plus importante avec les ions majeurs de l'eau de mer. Enfin, des paramètres tels que l'activité en césium dissous ou la proportion de césium échangeable, ainsi que des paramètres biologiques (rôle de certains microorganismes dans les échanges dissous-particulaire) sont aussi des facteurs influençant le partage du césium entre phase dissoute et particulaire.

Selon *Thomas (1997)*, le K_d moyen du ^{137}Cs dans les eaux du Rhône est de $3,1 \cdot 10^4 \pm 1,7 \cdot 10^4$ ($n=13$) et ne peut pas être distingué des résultats obtenus sur les autres rivières française (Garonne, Loire et Seine).

1.3.3. Les isotopes du plutonium ^{238}Pu , ^{239}Pu et ^{240}Pu

Dans l'environnement rhodanien, les isotopes du plutonium ^{238}Pu , ^{239}Pu et ^{240}Pu sont originaires des retombées des essais nucléaires en atmosphère et de l'accident du satellite SNAP-9A, et des rejets liquides du centre de Marcoule.

Le plutonium ($Z=94$) comporte 15 isotopes de nombre de masse compris entre 232 et 246, tous radioactifs. Ce sont tous des transuraniens de type actinides générés par captures neutroniques à partir des atomes d' ^{235}U et d' ^{238}U lors des réactions de fissions nucléaires, que ce soit dans les centrales électrogènes ou lors des essais nucléaires. Les isotopes les plus largement répandus dans l'environnement sont le ^{238}Pu , le ^{239}Pu et le ^{240}Pu . Le plutonium retrouvé dans l'environnement est donc essentiellement artificiel malgré certains cas, exceptionnel, de production de plutonium dans des gisements d'uranium où se sont produits

naturellement des réactions de fission nucléaire (par exemple à Oklo au Gabon, *Bryan et al., 1976*). Les isotopes ^{238}Pu , ^{239}Pu et ^{240}Pu sont des émetteurs α à vie longue d'où leur capacité potentielle à être piégés dans des stocks sédimentaires à plus ou moins long terme suite à un rejet chronique (tableau 1-6). De plus, le rayonnement par émission de particules α (noyaux d'hélium ^4_2H) confère aux isotopes du plutonium une forte radiotoxicité. Les émissions de particules α sont arrêtées par les couches superficielles de la peau mais l'ingestion ou l'inhalation de radionucléides émetteurs α entraînent une irradiation interne de l'organisme suite à l'accumulation du plutonium principalement dans le squelette et dans le foie.

Tableau 1.6. Propriétés nucléaires du ^{137}Cs et des isotopes du plutonium étudiés.

	^{137}Cs	^{238}Pu	^{239}Pu	^{240}Pu
Période radioactive	30,2 ans	87,7 ans	24100 ans	6563 ans
Activité spécifique	$1,85 \times 10^{12} \text{ Bq.g}^{-1}$	$6,43 \times 10^{11} \text{ Bq.g}^{-1}$	$2,30 \times 10^9 \text{ Bq.g}^{-1}$	$8,35 \times 10^9 \text{ Bq.g}^{-1}$
Energie d'émission principale	661,7 keV (gamma)	5,499 MeV (alpha)	5,155 MeV (alpha)	5,168 MeV (alpha)

En solution, le plutonium présente quatre états d'oxydation allant de III à VI, sous les formes respectives Pu^{3+} , Pu^{4+} , PuO_2^+ et PuO_2^{2+} (*Nelson et Lovett, 1978*). L'état d'oxydation le plus stable est l'état IV. La figure 1-11 représente le diagramme pH-Eh du plutonium dans les milieux naturels. Les états d'oxydation III et IV représentent les formes réduites ayant la plus grande capacité à se fixer à la surface des particules solides (*Skipperud et al, 2000*). Au contraire, le plutonium dissous se trouve le plus souvent sous la forme oxydée minoritaire Pu (V). En milieu aquatique, le plutonium possède finalement une forte affinité pour les matières particulaires. L'étude bibliographique disponible dans *AIEA, 2004* permet ainsi de définir un domaine de variation du Kd du plutonium de 10^4 à 10^6 l.kg^{-1} et une valeur moyenne de 10^5 l.kg^{-1} dans des environnements aquatiques aussi différents que les milieux marin, lacustre et de rivières.

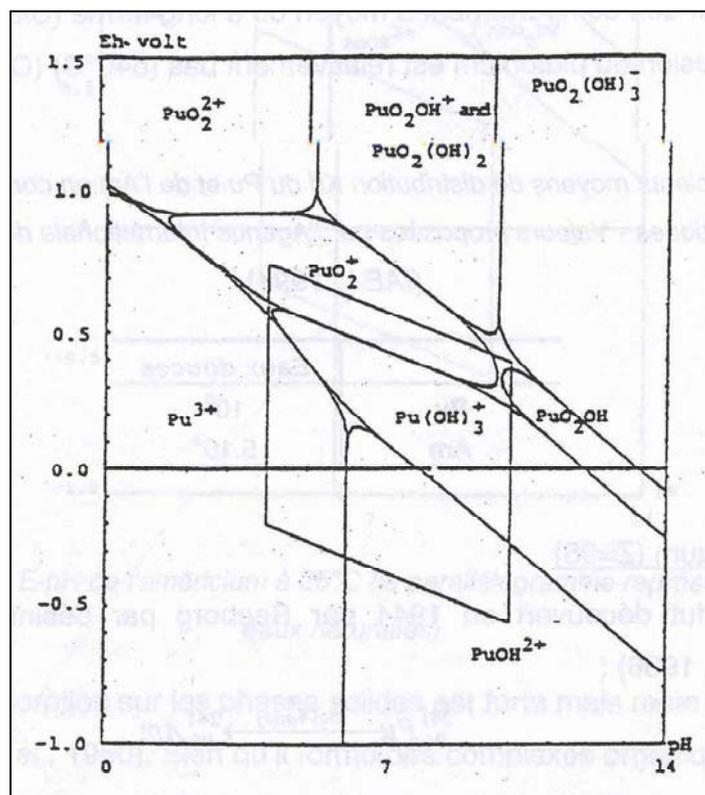


Figure 1-11. Diagramme Eh-pH du plutonium à 25°C (le parallélogramme représente le domaine des eaux naturelles).

1.3.4. Propriétés en tant que traceurs des transferts particulaires

Les radionucléides artificiels ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ sont utilisés dans les domaines touchant à l'étude du transport des particules dans l'air, les sols et les milieux aquatiques, que ce soit les cours d'eau continentaux, fleuves et rivières, les lacs ou le milieu marin.

Le radionucléide ^{137}Cs est un outil au fort potentiel dans le cadre des études sur les processus d'érosion des sols et de sédimentation (Zapata, 2003). Dès les années 1960, certains travaux mettaient en avant le potentiel de l'utilisation du ^{137}Cs issus des retombées globales dans l'étude de ces processus (Rogowsky et Tamura, 1965). Les nombreuses applications du ^{137}Cs dans ces domaines ont finalement fait l'objet d'un recensement bibliographique regroupant 2500 citations environ par Ritchie et Ritchie (2001).

Les radionucléides ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ sont utilisés dans la détermination des temps de résidence des particules et des contaminants associés dans l'atmosphère (*Masson, 2005*), dans les sols des bassins versants (*Smith et al., 1982; Simpson et al., 1976; Scott et al., 1985*), ou encore dans les milieux aquatiques estuariens et fluviaux (*Bonniwell et al., 1999*).

Ces études démontrent le potentiel des radionucléides étudiés dans ce travail en tant que traceurs des matériaux particuliers. Ils représentent donc des outils intéressants dans le cadre de l'étude de la formation et de la remobilisation de stocks sédimentaires de radioactivité artificielle dans le Rhône aval suite aux rejets de Marcoule.

1.4. Chronique des mesures radioactives dans les sédiments du Rhône aval

Dans le cadre du présent travail, nous avons réalisé l'inventaire des mesures radioactives effectuées sur les sédiments du Rhône en aval de Marcoule, afin en particulier d'établir quelle pouvait être la gamme de variation des activités particulières en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ des stocks sédimentaires. A partir de la base de données SYLVESTRE¹ de l'IRSN², qui compile tous les prélèvements et les mesures, radioactives ou non, effectués par l'IRSN dans le cadre des thématiques de recherche, de développement, et de suivi liées à la radioactivité dans l'environnement, il a été possible d'extraire les données d'activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ acquises dans des sédiments du Rhône de Marcoule à la Mer Méditerranée depuis le début des années 1980.

Les paramètres de sélection des données dans la base SYLVESTRE ont été la localisation géographique, la date des prélèvements et le mode de prélèvement. Ces modes de prélèvements (principalement le cône de Berthois et la benne Eckmann) permettent d'effectuer des prélèvements de sédiments de surface, afin d'obtenir une chronique des activités potentielles des stocks sédimentaires contaminés suite aux rejets de Marcoule.

En complément des données disponibles dans la base de données SYLVESTRE, une compilation des mesures effectuées par COGEMA dans le cadre du suivi de l'environnement

¹ SYstème Logique de Valorisation et d'Exploitation du STockage des données sur la Radioactivité dans l'Environnement

² Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire

autour de Marcoule a aussi été réalisée. Ces données ont été récupérées dans les rapports annuels de suivi de site communiqués par COGEMA depuis le milieu des années 1980, et concernent des prélèvements effectués mensuellement au cône de Berthois sur le site S6 représenté sur la figure 2-9.

Toutes les données d'activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ des sédiments du Rhône ainsi récupérées sont disponibles en Annexe A2. La figure 1-12 représente l'évolution des activités moyennes annuelles en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ et des écarts types associés. Cette figure met en évidence une diminution significative des niveaux d'activité de ces trois radionucléides à partir de 1990, diminution qui peut être mise en relation avec la baisse des rejets du centre de Marcoule comme en attestent les relations de la figure 1-13.

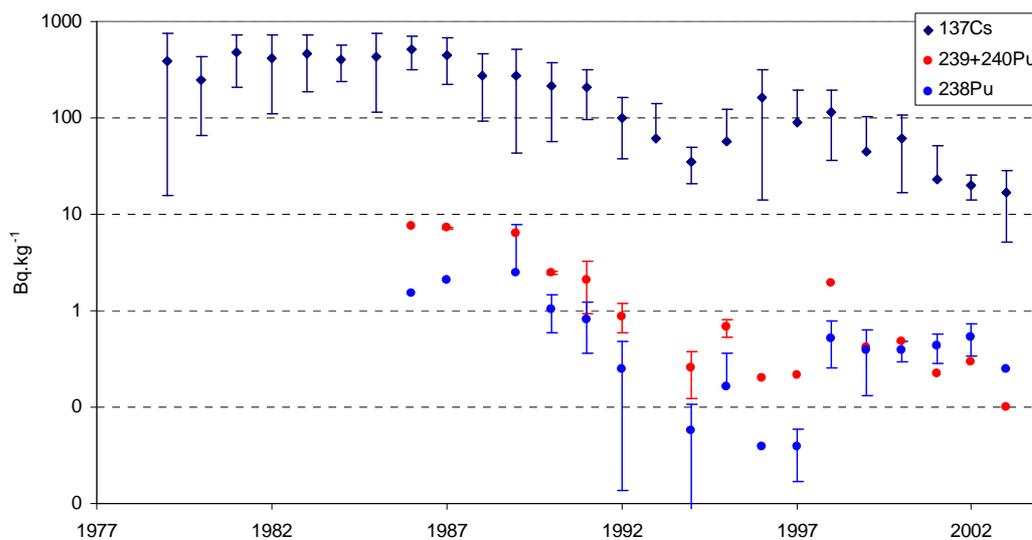


Figure 1-12. Evolution temporelle des activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ dans les sédiments du Rhône en aval du centre de Marcoule.

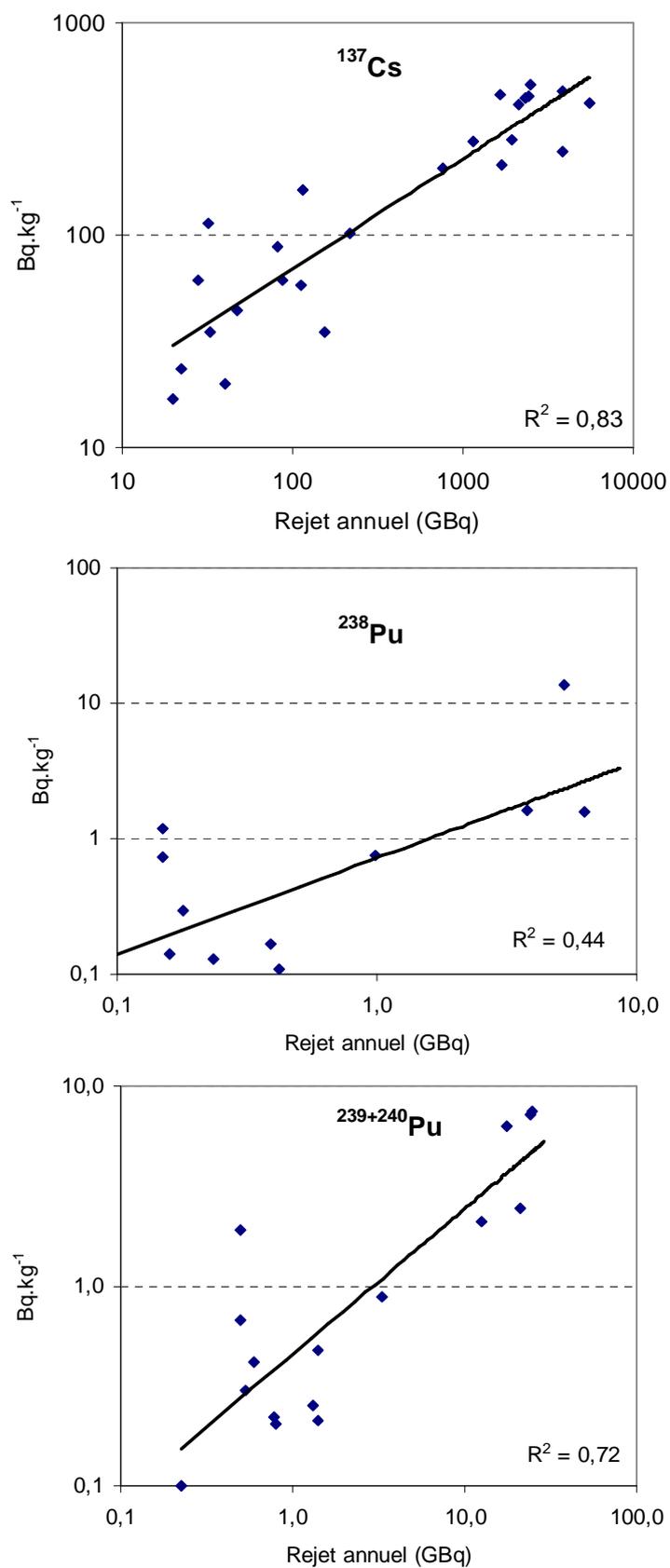


Figure 1-13. Corrélations des activités moyennes annuelles en ¹³⁷Cs, ²³⁸Pu et ²³⁹⁺²⁴⁰Pu des sédiments du Rhône en aval de Marcoule, avec les rejets annuels de Marcoule de 1979 à 2004.

2-MATERIEL ET METHODES

2. Matériel et méthodes

La présente étude s'intéresse à la connaissance des flux actuels vers la Mer Méditerranée de certains radionucléides susceptibles de former des stocks à plus ou moins longs termes dans le compartiment sédimentaire. Une attention particulière est donc portée à la possibilité que des processus d'accumulation sédimentaire aient permis le piégeage de certains radionucléides artificiels à vie relativement longue et ayant une forte affinité pour les particules (^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$). Nous nous intéressons particulièrement aux stocks formés par les rejets du centre de Marcoule car ce centre a constitué, en particulier jusqu'en 1990, année la mise en place de sa station de traitement des effluents liquides (STEL), le terme source prépondérant de radioactivité artificielle vers la mer Méditerranée. Depuis la baisse drastique des rejets du centre depuis les années 1990, la remobilisation des stocks sédimentaires contaminés par ces rejets représentent probablement aujourd'hui un terme source décalé de radioactivité artificielle dans le Rhône aval contribuant de façon significative aux flux totaux de radioactivité artificielle vers la Méditerranée. Nous tenterons donc de mettre en évidence cette contribution.

Afin d'estimer les flux actuels de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ vers la Méditerranée, un suivi de ces flux dans le Rhône aval a été mis en place sur la période 2002 à 2004. Comme on l'a déjà évoqué, les flux des radionucléides naturels ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ont aussi été suivis, pour leurs qualités de traceurs des matériaux particuliers, et donc pour leur potentiel à caractériser la remobilisation des stocks sédimentaires. Les résultats acquis lors de ce suivi devraient permettre de mettre en évidence les mécanismes d'accumulation et de remobilisation des stocks sédimentaires en aval du centre de Marcoule. En parallèle, nous avons cherché à localiser, en aval de Marcoule, les zones d'accumulation probable des stocks sédimentaires, afin d'y mettre en évidence la présence de radionucléides originaires des rejets de Marcoule. Pour cela, nous avons cherché les zones d'accumulation préférentielle des particules fines, pour lesquelles les radionucléides étudiés ont une forte affinité, et à partir desquelles la remobilisation sédimentaire est possible. Dans cette étude, nous avons donc focalisé notre attention sur les ouvrages hydroélectriques d'une part, et sur les berges du Rhône d'autre part.

Dans cette partie, nous décrirons d'abord dans quel contexte hydrologique s'est étendue la période d'étude. Ce contexte hydrologique est important à prendre en compte pour la caractérisation de la stratégie de suivi. Nous évoquerons ensuite la stratégie de suivi des flux

de radioactivité dans le Rhône aval, puis nous verrons dans quelle mesure nous pourrions utiliser les résultats acquis lors de ce suivi afin de caractériser les processus d'accumulation et de remobilisation en aval de Marcoule. Nous parlerons ensuite de la stratégie d'échantillonnage adoptée dans le cadre de la localisation des stocks. Enfin, le matériel et les méthodes d'échantillonnage, de mesure et d'acquisition de données seront détaillés.

2.1. Période d'étude et contexte hydrologique

La période d'étude s'est étendue de septembre 2002 à novembre 2004, période durant laquelle le Rhône Aval a été soumis à cinq événements de crue, dont 3 qualifiés d'exceptionnels avec des périodes de retour supérieures à 10 ans. Les périodes de crues sont définies par la CNR¹ comme les périodes durant lesquelles le débit du Rhône en Arles est supérieur à $4000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$.

Les événements indiqués sur la figure 2-1 se reportent à ceux décrits dans le tableau 2-1. L'évènement 1 a atteint un débit journalier de $6400 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, cependant cette crue très brève (moins de 48h) fut en fait caractérisée par des débits moyens horaires ayant dépassé $9000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. Les événements 2 et 5 ont été caractérisés par deux pics de crues successifs entre lesquels le débit est resté supérieur à $4000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. Les deux pics de crues sont donc considérés à chaque fois comme faisant partie d'un même événement.

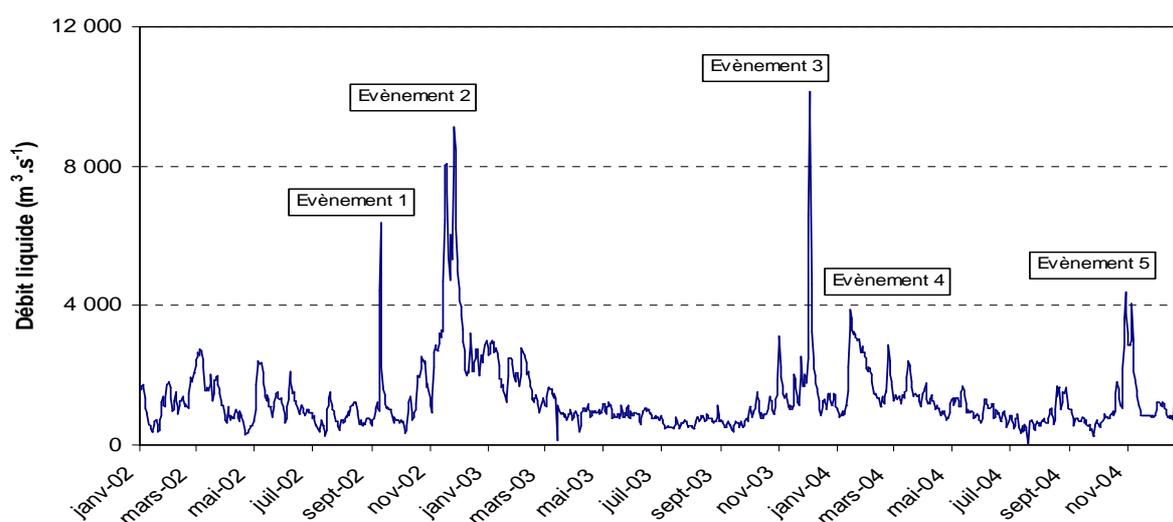


Figure 2-1. Chronique des débits moyens journaliers du Rhône en Arles durant les années 2002 à 2004.

¹ Compagnie Nationale du Rhône

Tableau 2-1. Caractéristiques générales des évènements de crues de 2002 à 2004.

Evènements de crues		Durée de l'évènement	Date des pics de crues	Débit des pics de crues ($m^3 \cdot s^{-1}$)	Type de crue	Période de retour
Evènement 1:	Septembre 2002	40 heures	10/09/2002	9019	Méditerranéenne	50-60 ans
Evènement 2:	Novembre 2002	25 jours	1er pic (18/11/02)	8100	Généralisée	10-20 ans
			2ème pic (26/11/02)	9100		50-60 ans
Evènement 3:	Decembre 2003	5 jours	03/12/2003	11500±600	Méditerranéenne extensive	>100 ans
Evènement 4:	Janvier 2004	10 jours	15/01/2004	3900	Océanique	1-2 ans
Evènement 5:	Oct. et Nov. 2004	9 jours	1er pic (29/10/04)	4400	Généralisée	1-2 ans
			2ème pic (05/11/04)	4000		

Les données de débits liquides utilisées comme référence sont celles acquises en Arles par la CNR. Celle-ci détermine le débit du Rhône en convertissant les mesures de hauteurs d'eau à partir de courbes de tarage du type de celle de la figure 2-2. Ces courbes de tarage sont valables sur une période donnée et sont régulièrement remises à jour en fonction des nouvelles données de débit acquises.

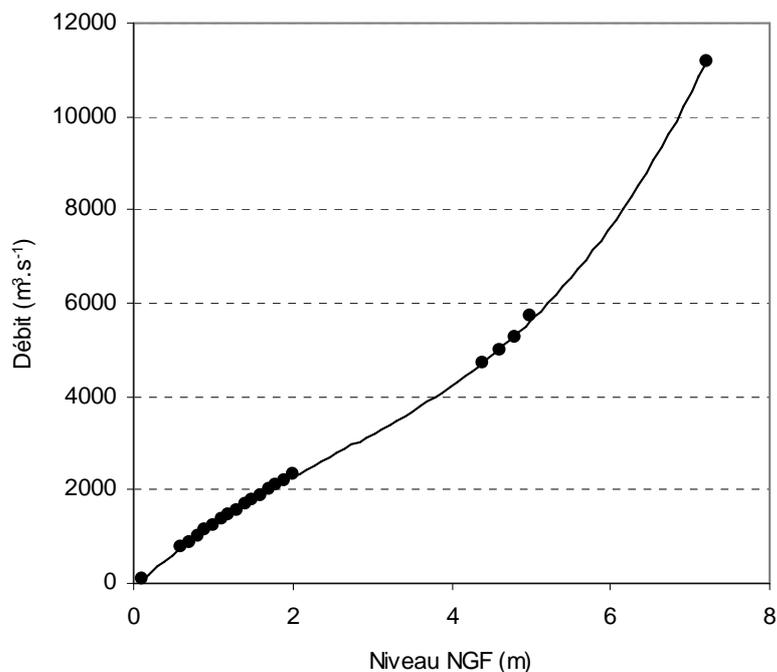


Figure 2-2. Courbe de tarage sur le Grand Rhône, fournie par la CNR. Cette courbe a été établie pour la station CNR d'Arles au point kilométrique 262,6, et a été valable pour la période de janvier 2001 à octobre 2002.

Durant la période d'étude, les débits moyens journaliers en Arles ont varié de $256 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ à plus de $10000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, tandis que le débit moyen sur l'ensemble de la période a été de $1332 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. Les différents évènements de crues de la période d'étude sont décrits dans les paragraphes suivants. L'origine des crues y sera illustrée par la contribution des différents affluents du Rhône : la contribution CAM (Contribution des Affluents Méditerranéens) intègre le cumul des affluents au sud de Valence et représente l'influence méditerranéenne sur les crues du Rhône (Pont et al., 2002), la contribution de la Saône représente l'influence des évènements climatiques océaniques sur les crues du Rhône, et la contribution de l'Isère représente l'influence alpine.

2.1.1. Evènement 1 du tableau 2-1

Les 9 et 10 septembre 2002 ont vu se dérouler le premier évènement de crue extrême de la période d'étude 2002-2004. Il s'est agi d'une crue de type Méditerranéen, alimentée essentiellement par un de ses affluents cévenols, le Gardon (figure 2-3). Durant cet évènement, le débit moyen horaire est passé de $1700 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ à $9019 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ pour redescendre ensuite à moins de $3000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ le tout en moins de 48 heures, ce qui souligne le caractère quasi torrentiel de cette crue.

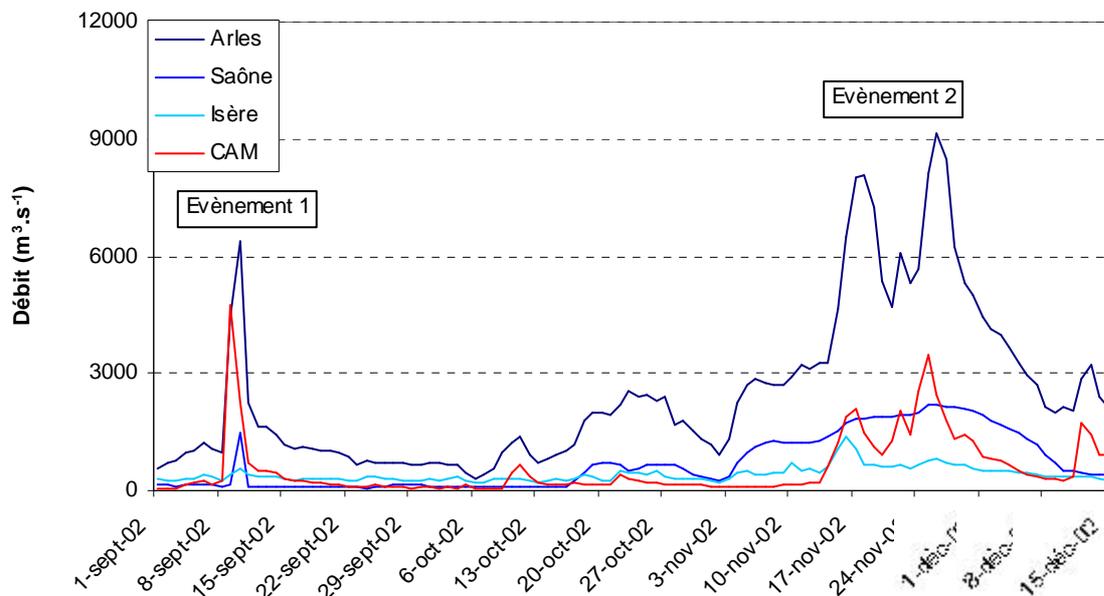


Figure 2-3. Contributions des principaux affluents du Rhône au débit en Arles durant les évènements de crue 1 et 2. Sont représentés les contributions de la Saône, de l'Isère, et le cumul des affluents du sud du bassin versant rhodanien (CAM).

2.1.2. Evènement 2 du tableau 2-1

Deux mois plus tard, la crue de novembre 2002 dura presque un mois, avec des débits journaliers supérieurs à $3000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ du 11 novembre au 5 décembre. Cette crue généralisée a été caractérisée par deux pics de crue successifs, ayant respectivement atteint 8000 et 9100 $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. Elle a été alimentée principalement par la CAM, avec toutefois la contribution non négligeable des affluents du nord du bassin versant, en particulier de la Saône, qui ont maintenu des débits élevés tout au long de la crue (figure 2-3). Cet évènement fut exceptionnel du fait des débits atteints (période de retour supérieure à 50 ans), de l'implication de la quasi-totalité des affluents du bassin versant, et de la durée de cet évènement.

2.1.3. Evènement 3 du tableau 2-1

La plus importante crue de la période d'étude se déroula du 1 au 6 décembre 2003. Le pic de crue dépassa les $10000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ en Arles dans la nuit du 3 au 4 décembre. Il s'agit de l'évènement de crue le plus important jamais enregistré (tableau 2-2), à tel point que les débits dépassèrent le seuil de tolérance des appareils de mesure. Une conférence de consensus a ainsi été créée afin de définir avec précision les valeurs de débit atteintes durant le pic (Conférence de consensus, 2005). Selon le rapport final de cette conférence, l'estimation la plus vraisemblable du débit maximal du Rhône à Beaucaire est de $11500 \pm 600 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, correspondant à une période de retour légèrement supérieure à 100 ans. La crue de décembre 2003 fut la conséquence d'un épisode de pluie exceptionnel par son étendue. 20 départements ont été concernés par la mise en vigilance orange de Météo France englobant notamment toutes la vallée du Rhône au sud de Lyon, sur une durée de plus de 48 heures, alors que les phénomènes similaires ne dépassent généralement pas 24 à 36 heures (*Dossier S.I.E.E DIREN, 2004*). Il s'agit d'un épisode d'origine méditerranéenne qui est remonté très au nord dans la vallée du Rhône, au-delà de la région lyonnaise. La plupart des affluents en aval de Lyon ont ainsi été en crue et ont alimenté le Rhône, avec la contribution significative d'affluents du nord de Lyon comme la Saône et l'Isère, faisant de l'évènement 3 une crue méditerranéenne extensive (figure 4-4). Cette crue fut encore amplifiée par son arrivée tardive dans la saison, sur des sols déjà proches de la saturation en eaux du fait des épisodes pluvieux précédents.

Le tableau 2-2 représente le classement des crues les plus importantes depuis qu'un suivi régulier du débit du Rhône a été mis en place. Les débits sont ceux mesurés à Beaucaire avant la diffluence entre le Grand Rhône et le Petit Rhône. L'évènement 3 se place en tête devant la crue de 1856 qui représentent aussi la première crue suivie depuis que le débit est mesuré régulièrement dans le Rhône. Il est à noter que les événements 1 et 2 (2^{ème} pic) de notre période d'étude se placent respectivement à la 4^{ème} et à la 6^{ème} place de ce classement.

Tableau 2-2. Historique des plus fortes crues du Bas-Rhône. (Sauvan et Magnet (2003), complétée pour la crue de décembre 2003 selon les conclusion de la conférence de consensus sur le débit maximal de la crue du Rhône de décembre 2003 à Beaucaire, 2005).

	Rang	Beaucaire 1856-2003	
Evènement 3:	1	04/12/2003	11500±600
	2	31/05/1856	11640
	3	08//01/1994	11000
Evènement 1:	4	10/09/2002	10500
	5	12/11/1886	10200
Evènement 2:	6	26/11/2002	10200
	7	10/10/1993	9800
	8	14/11/1935	9600
	9	22/11/1951	9170
	10	21/03/1872	9080
	11	02/11/1896	9060
	12	13/11/1996	8980
	13	30/09/1900	8940
	14	01/01/1889	8780
	15	11/11/1976	8690
	16	08/12/1910	8660

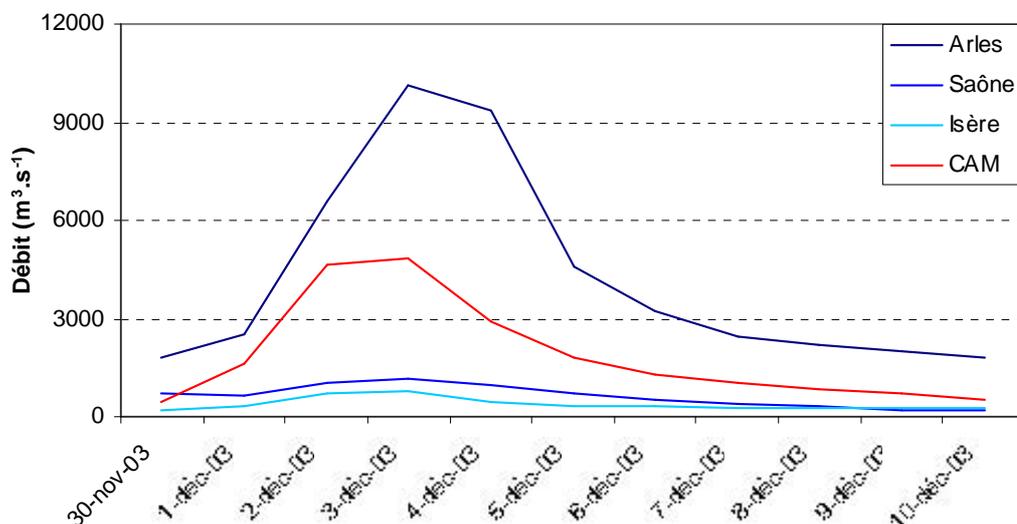


Figure 2-4. Contributions des principaux affluents du Rhône au débit en Arles durant l'évènement 3. Sont représentés les contributions de la Saône, de l'Isère, et de le cumul des affluents du sud du bassin versant rhodanien (CAM).

2.1.4. Evènements 4 et 5 du tableau 2-1

Deux autres évènements de crue se produisirent ensuite durant l'année 2004. La crue de janvier 2004 fut relativement longue, du 14 au 24 janvier. Les débits moyens journaliers n'y dépassèrent pas $3900 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. Essentiellement alimentée par la crue de la Saône, ce fut une crue de type océanique (figure 2-5). L'évènement 5, quant à lui, se déroula du 27 octobre au 06 novembre 2004. Il fut caractérisé par deux pics de crue successifs, le premier ($4400 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$) principalement alimenté par les affluents Méditerranéens, tandis que le second ($4000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$) fut marqué à la fois par une influence méditerranéenne et la contribution significative de la Saône (figure 2-6).

Au final, la période d'étude a été une période hydrologiquement riche, marquée par l'occurrence de plusieurs événements de crue différant à la fois par leur ampleur et leur origine. On retiendra particulièrement le fait que trois évènements exceptionnels, de périodes de retour de 10 à plus de 50 ans, se sont produits durant cette période. Les résultats du suivi de ces événements-là seront d'une grande utilité dans le cadre de l'étude de la remobilisation de stocks sédimentaires contaminés par du ^{137}Cs , du ^{238}Pu et du $^{239+240}\text{Pu}$ originaires de Marcoule.

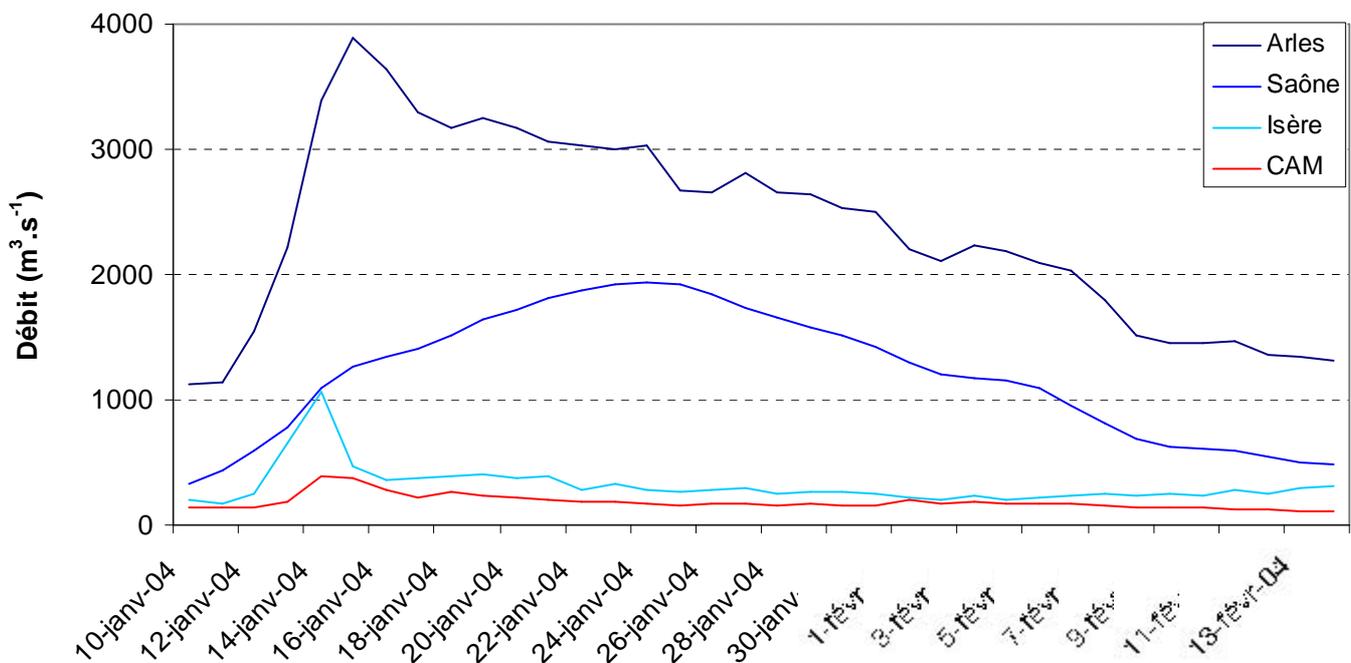


Figure 2-5. Contributions des principaux affluents du Rhône au débit en Arles durant l'évènement 4 de type océanique. Sont représentés les contributions de la Saône, de l'Isère, et le cumul des affluents du sud du bassin versant rhodanien (CAM).

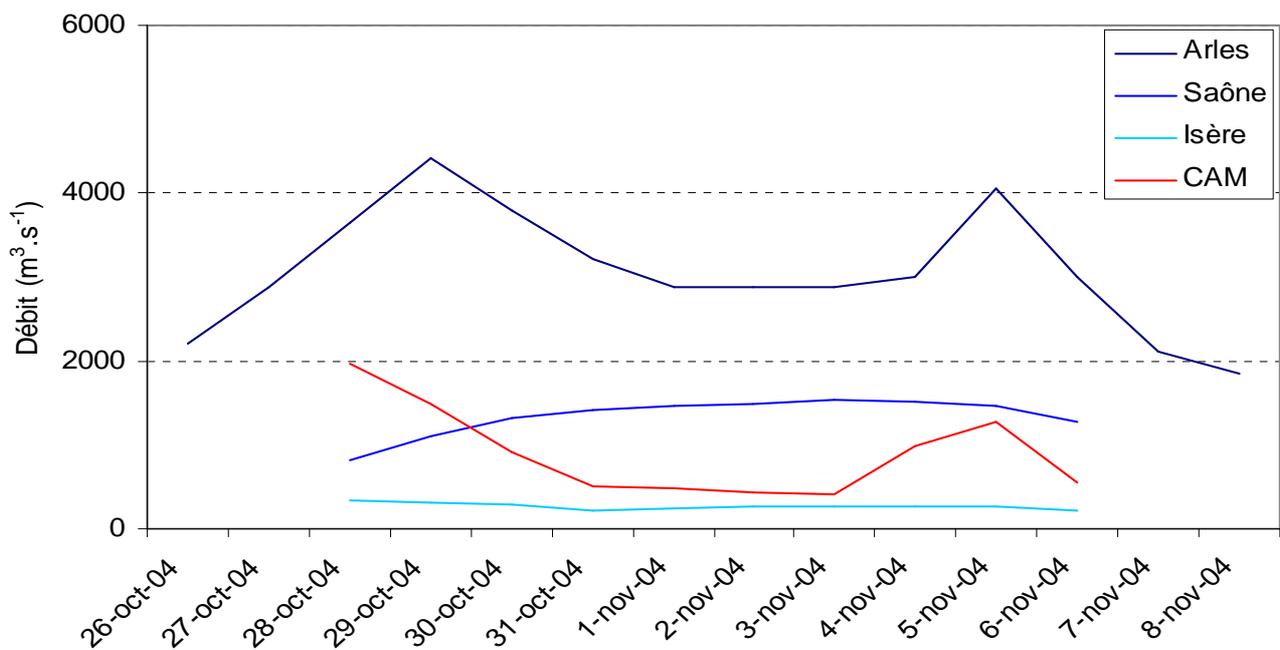


Figure 2-6. Contributions des principaux affluents du Rhône au débit en Arles durant l'événement 5. Sont représentées les contributions de la Saône, de l'Isère, et le cumul des affluents du sud du bassin versant rhodanien (CAM).

2.2. Estimation des flux de ^{137}Cs , de ^{238}Pu , de $^{239+240}\text{Pu}$, de ^7Be et de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$

Afin d'estimer les flux totaux de ^{137}Cs , de ^{238}Pu , de $^{239+240}\text{Pu}$, de ^7Be et de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ vers la mer Méditerranée, un suivi des flux particulières de ces radionucléides a été mis en place en Arles. Ce suivi a été basé sur des prélèvements de matières en suspension (MES) afin d'y déterminer les activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ associées. Les flux totaux de ^{137}Cs , de ^{238}Pu , de $^{239+240}\text{Pu}$, de ^7Be et de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ sont la somme des flux sous forme particulaire et des flux sous forme dissoute. La connaissance de la contribution du transport particulaire (CTP) aux flux totaux permet d'obtenir des valeurs de flux totaux sans effectuer de mesure d'activité dissoute des radionucléides. La détermination de la CTP est en effet possible connaissant la charge solide en suspension (CSS) et les coefficients de distribution (K_d , annexe A1) des radionucléides étudiés disponibles dans la littérature. L'estimation des flux totaux sera donc basée sur la détermination des flux particulières et de la CTP aux flux totaux.

Il faut noter cependant que des prélèvements de ^{137}Cs en phase dissoute ont pu être effectués lors de cette étude. Ces prélèvements ont été effectués en Arles lors des prélèvements de MES. Les résultats d'activité en ^{137}Cs dissous permettront, avec les résultats

d'activité en ^{137}Cs particulaire correspondants, de déterminer des valeurs de K_d pour le ^{137}Cs lors de la période d'étude. Les valeurs de CTP aux flux totaux de ^{137}Cs vers la Méditerranée seront déterminées à partir de ces valeurs de K_d .

2.3. Contribution de la remobilisation sédimentaire

Un des objectifs principaux de ce travail est de mettre en évidence la contribution de la remobilisation de stocks sédimentaires contaminés par les rejets du centre de Marcoule aux flux totaux de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ vers la Méditerranée. La mise en évidence de cette contribution est basée sur l'étude de l'évolution des activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ des MES en fonction du débit du Rhône.

Au début de l'étude, nous pensions que l'étude des résultats acquis lors du suivi en Arles pouvait mettre en évidence à elle seule la contribution de la remobilisation sédimentaire. L'hypothèse était que les activités particulières du ^{137}Cs , du ^{238}Pu et du $^{239+240}\text{Pu}$ pouvaient augmenter significativement avec le débit du Rhône suite à la remobilisation de stocks sédimentaires contaminés par les rejets de Marcoule lors des épisodes de crues. En parallèle, les activités particulières du ^7Be et du $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ auraient diminué significativement en raison de l'âge des stocks sédimentaires remobilisés.

Les premiers résultats du suivi, acquis durant les crues de l'automne 2002 (événements 1 et 2 du tableau 2-1), n'ont pas montré d'augmentation des activités particulières du ^{137}Cs , du ^{238}Pu et du $^{239+240}\text{Pu}$ avec le débit. Les résultats ont montré une diminution des activités particulières en ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, qui pouvait être due, cependant, à la remobilisation de stocks sédimentaires comme à d'autres facteurs tels que la dilution par des matériaux plus grossiers et/ou la variabilité des sources d'apports de ces radionucléides naturels. Il est donc apparu nécessaire de comparer les résultats d'activité des MES acquis en Arles à des résultats de référence non contaminés par les rejets du centre de Marcoule. Un suivi des activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ des MES a donc été mis en place en amont du bief Marcoule-Arles, en parallèle du suivi mis en place en Arles pour l'estimation des flux vers la Méditerranée. Ce suivi a été entrepris en mars 2003. Les différences d'activité en ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ des MES prélevées en Arles et en amont du bief pourront caractériser la contribution d'un autre terme source de radioactivité artificielle dans

le Rhône aval tel que la remobilisation de stocks sédimentaires contaminés par les rejets du centre de Marcoule.

2.4. Les sites d'échantillonnage

2.4.1. La station OPERA d'Arles

2.4.1.1. Description du site d'implantation de la station

Les prélèvements de MES dans les eaux du Rhône ont été effectués en Arles à partir de la station de prélèvement pérenne mise en place par l'IRSN dans le cadre du réseau OPERA¹ (*Masson et al., 2004*) (figure 2-7). De part sa localisation sur la partie terminale du fleuve, la station OPERA permet l'obtention de prélèvements de MES intégrant d'une part l'ensemble des apports de radionucléides introduits sur le bassin versant rhodanien, et intégrant d'autre part la variabilité des apports due à un bassin versant très contrasté. Elle a été implantée au niveau d'une portion canalisée du fleuve, aux rives bétonnées, caractérisée par une section quasi-rectangulaire permettant des vitesses d'écoulement élevées, donc une relative homogénéité des matières en suspension sur toute la section mouillée du fleuve (*Pont, 1992*). De plus, le fond du chenal au niveau de la station est principalement composé de galets alors que les particules fines, limons et argiles, n'y sont que très rares (*Dugas, 1989*) excluant leur contribution à la charge solide en suspension.

2.4.1.2. Représentativité des prélèvements de MES

Concernant la représentativité des prélèvements de MES par la station OPERA d'Arles, les travaux d'*Antonelli (2002)* ont montré que lors des événements de crues, le Rhône en aval d'Arles était caractérisé par une hétérogénéité manifeste de la charge solide en suspension (CSS) sur la section mouillée.

¹ Observatoire PERmanent de la RAdioactivité dans l'environnement

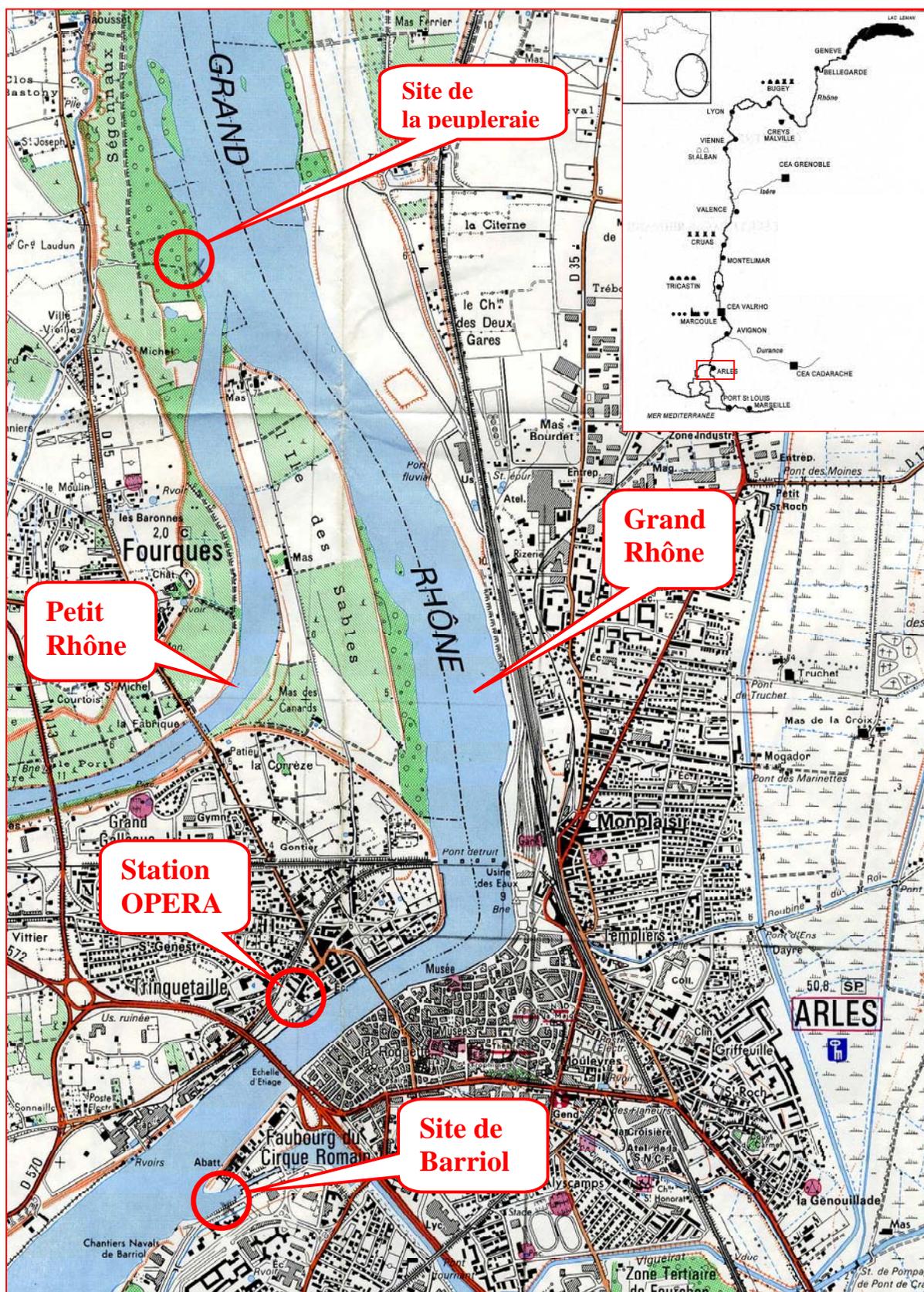


Figure 2-7. Localisation géographique sur une carte 1/25000 des sites de carottage de Barriol et de la peupleraie. La station de prélèvement pérenne implantée dans le cadre du projet OPERA de l'IRSN est aussi représentée.

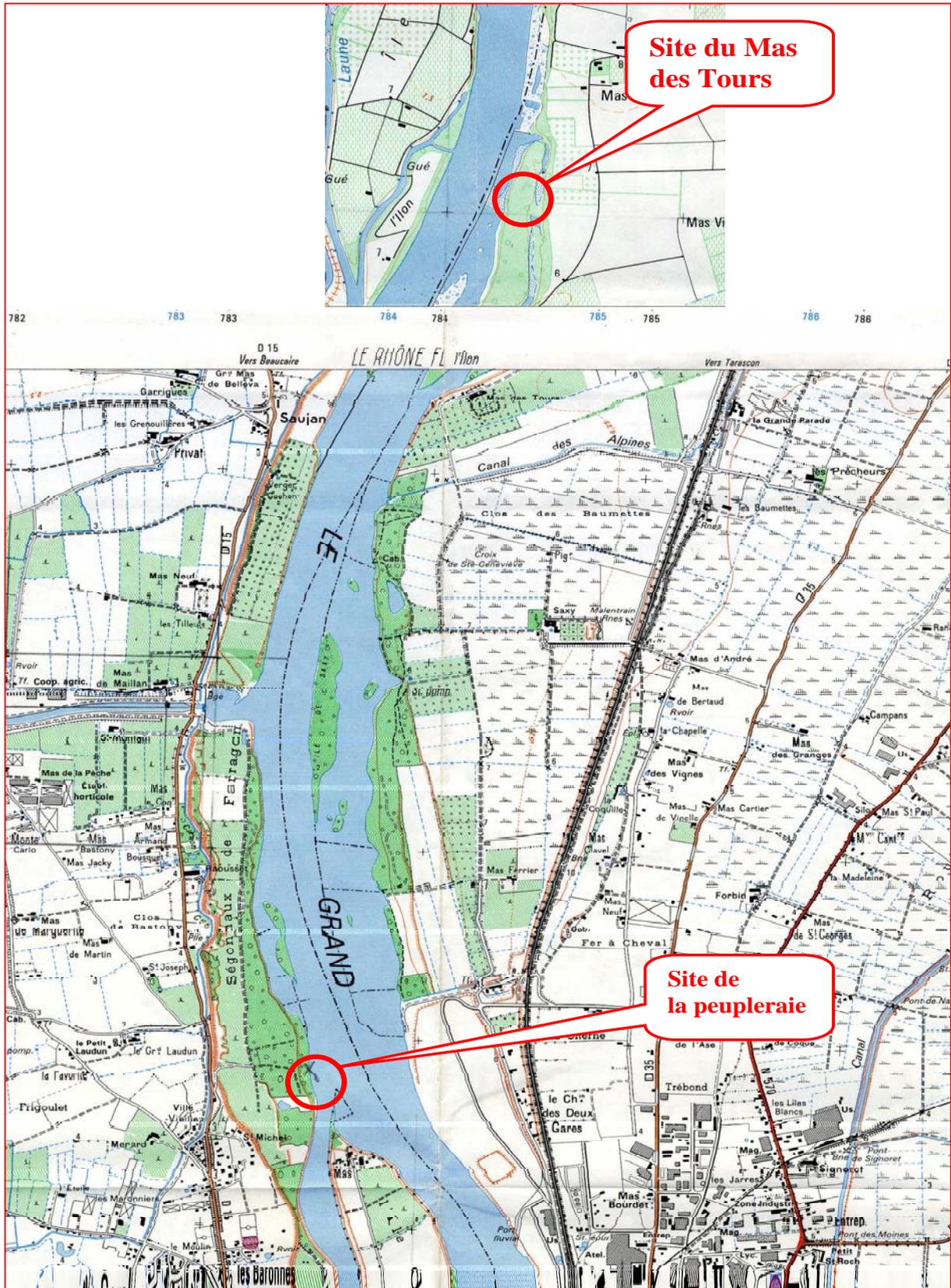


Figure 2-8. Localisation géographique sur une carte 1/25000 du site de carottage de la lône du Mas des tour.

Cet auteur, qui a travaillé sur les crues annuelles du Rhône de 2000 et 2001, a ainsi estimé sur deux sites du Grand Rhône une sous-estimation moyenne d'environ 30% des flux solides réels par rapport aux flux estimés à partir de prélèvements proches de la berge et en surface. Cette sous-estimation des flux solides lors des crues implique une sous-estimation des flux de radionucléides associés. *Antonelli (2004)* a ensuite travaillé sur l'hétérogénéité de la section mouillée au droit de la station OPERA d'Arles. Ses travaux, basés sur un quadrillage des prélèvements de MES sur la section mouillée, ont montré l'homogénéité de la section pour des débits liquides inférieurs à $3000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. La CSS semble donc homogène sur toute la surface de la section mouillée hors période de crue. Les travaux d'*Antonelli (2004)* ont cependant confirmé l'hétérogénéité de la CSS lors des crues du Rhône. Les valeurs de flux solides déterminées à partir de la station OPERA pour un débit de $3200 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ lors de la crue de janvier 2004 (événement 4 du tableau 2-1), ont ainsi été sous-estimées d'environ 13% par rapport aux valeurs de flux solides déterminées à partir des résultats de CSS acquis sur la totalité de la section mouillée.

Dans le cadre du présent travail, les estimations de flux particuliers et de radionucléides associés lors des crues ont donc été ré-estimés en fonction de cette valeur de 13%. Cette sous-estimation de 13% peut être considérée comme une valeur minimum probable de sous-estimation des flux de MES lors des crues du Rhône en Arles, selon les travaux d'*Antonelli (2002)*.

2.4.2. Les sites en amont du bief Marcoule-Arles

Le site sélectionné en amont immédiat du centre de Marcoule se trouve 9 km en amont du centre, au niveau du village de Mornas. Ce site de prélèvement correspond à celui utilisé par GOGEMA comme site de référence non contaminé dans le cadre du suivi environnemental du Rhône suite aux rejets de Marcoule (figure 2-9). Hors périodes de crues, les apports de MES par les affluents du Rhône dont la confluence se situe dans le bief Marcoule-Arles (figure 2-10) ont été considérés comme négligeables. Les prélèvements de MES en amont du bief Marcoule-Arles ont donc été effectués seulement sur le site de Mornas hors périodes de crues.

Lors des périodes de crues, la contribution de ces affluents peut être très significative en particulier lors de crues de type Méditerranéen. Des prélèvements ont donc été effectués sur ces affluents qui sont, d'amont en aval, la Cèze, l'Aygues, l'Ouvèze, la Durance et le Gardon.

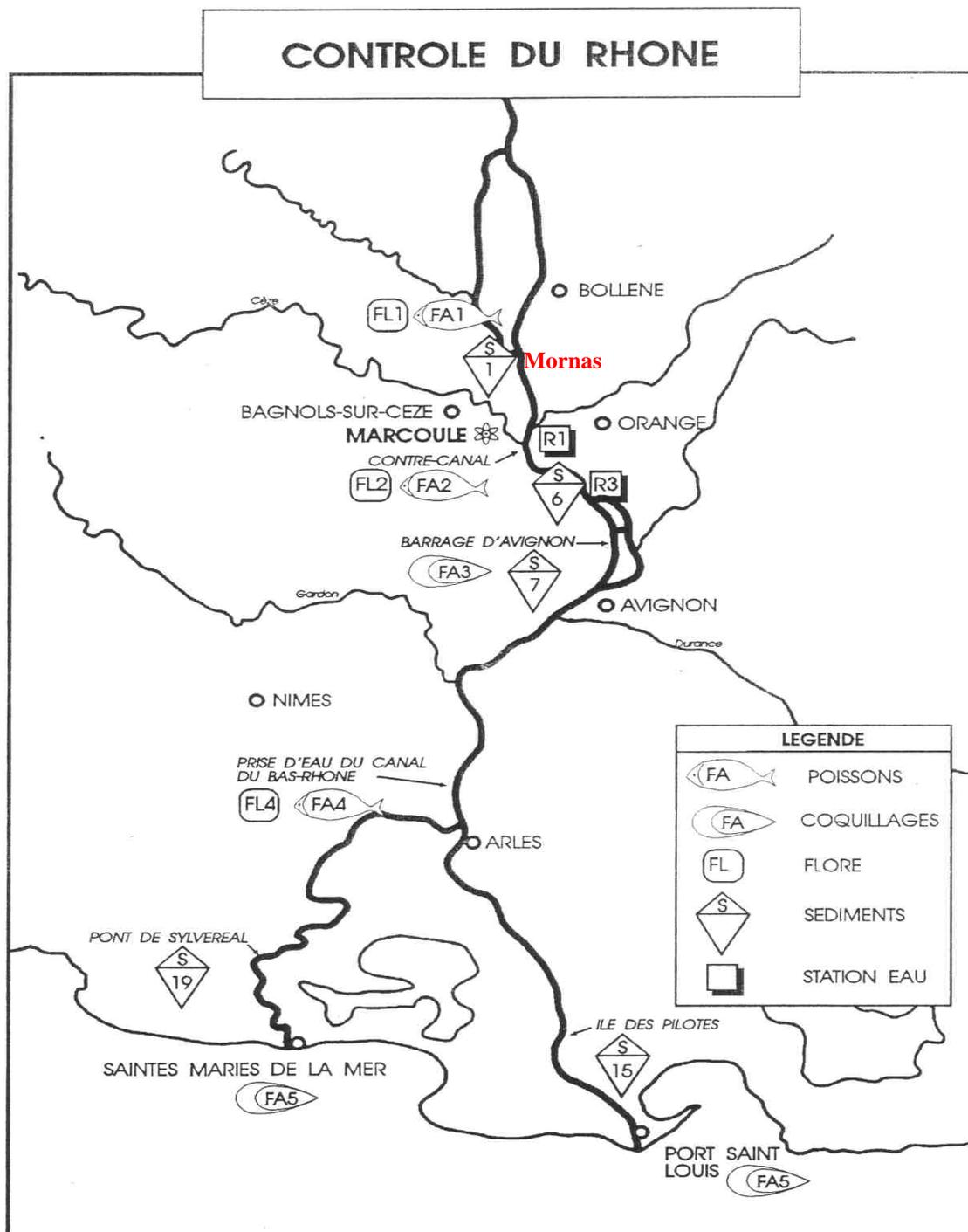


Figure 2-9. Situation géographique du site de prélèvement de Mornas par rapport au bief Marcoule-Arles. Cette carte illustre les sites d'échantillonnage de la COGEMA Marcoule dans le cadre du suivi que cette société effectue suite aux rejets du centre. Le site de Mornas est localisé au niveau du site S1 (Saint-Etienne des Sorts) de la COGEMA.

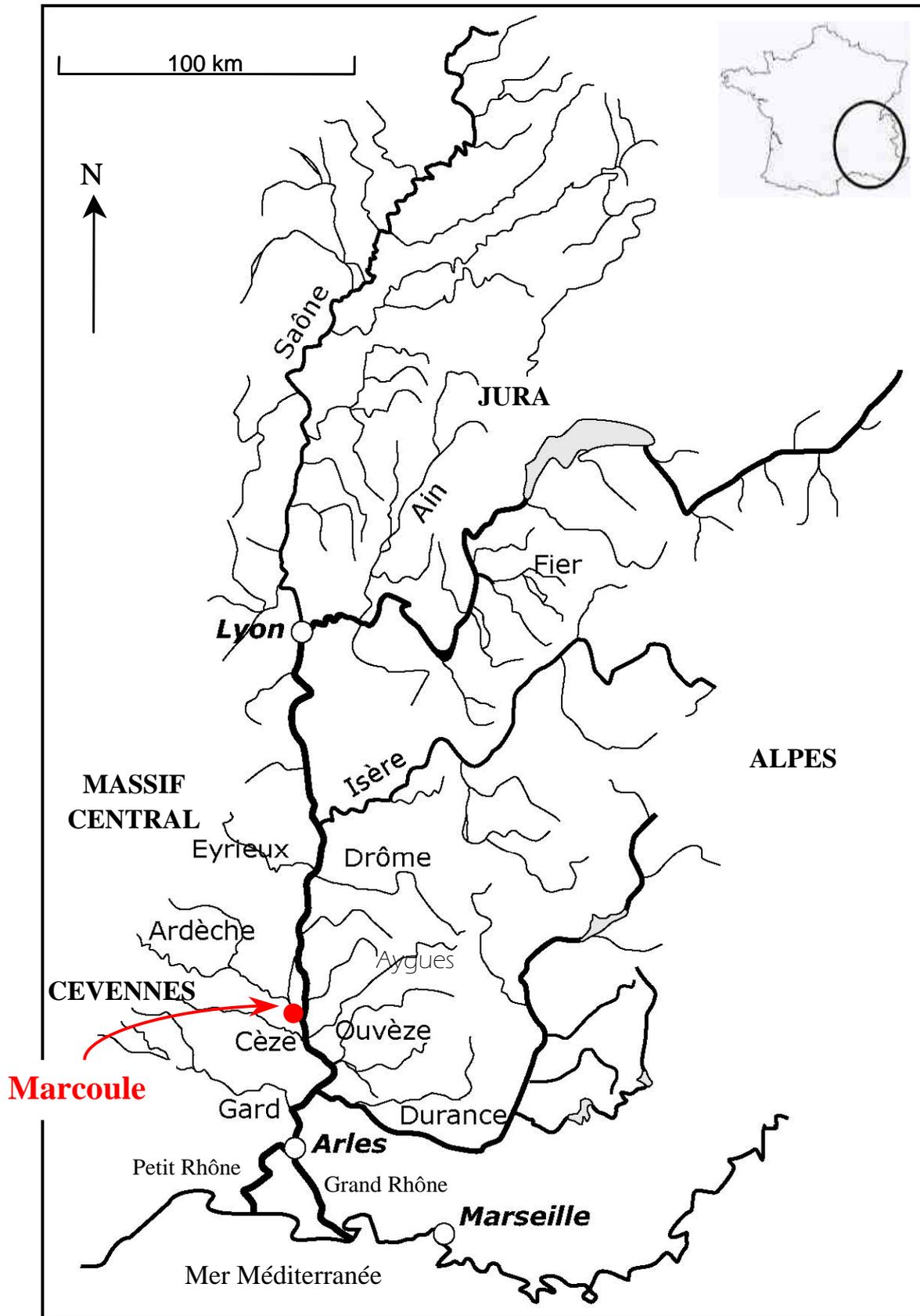


Figure 2-10. Les différents affluents du Rhône en aval de Lyon.

2.5. Fréquence d'échantillonnage

2.5.1. En Arles

La station OPERA de l'IRSN en Arles est conçue pour acquérir des données de mesures intégrées par rapport au temps. Cependant, au début de l'étude, le protocole de prélèvement intégré de la station OPERA n'était pas encore au point. Il a donc été décidé de suivre une stratégie d'échantillonnage selon un mode ponctuel à partir de la station.

La période d'échantillonnage des MES en Arles a duré de septembre 2002 à novembre 2004. La fréquence d'échantillonnage des MES en Arles a principalement été déterminée en fonction du temps nécessaire à la fois pour les prélèvements (une à plusieurs heures), le conditionnement des échantillons, et les délais de mesure (plusieurs mois). Hors périodes de crues, un pas d'échantillonnage d'une semaine fut initialement choisi afin d'obtenir un suivi le plus complet possible avec les contraintes préalablement citées. En pratique, cette cadence s'est trouvée difficile à tenir, particulièrement en raison de l'ajout du suivi du site de prélèvement des MES en amont du centre de Marcoule. Une fréquence d'échantillonnage de deux semaines a finalement été réalisée, afin de pouvoir effectuer le suivi des deux sites en parallèle. Cette fréquence d'échantillonnage a été réalisée pour le suivi hors périodes de crues.

Les crues de la période d'étude ont été suivies le plus précisément possible afin de suivre leur évolution (montée des eaux, pic de crue, descente des eaux). Leur suivi a dépendu fortement des possibilités d'accès aux sites d'échantillonnage, en particulier lors des évènements de grande amplitude ayant entraîné de fortes perturbations du réseau routier.

2.5.2. En amont du bief Marcoule-Arles

Hors périodes de crues, le suivi en amont du centre de Marcoule a été effectué avec la même fréquence d'échantillonnage que le suivi en Arles, de mars 2003 à novembre 2004.

En périodes de crue, seule la crue exceptionnelle de décembre 2003 (évènement 3 du tableau 2-1) a pu être l'objet d'un suivi journalier complet en amont du bief Marcoule-Arles, les autres évènements de crues n'ayant pas pu être échantillonnés en raison d'impossibilité

d'accès. La plus grande partie de l'étude sur la mise en évidence et la contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux totaux de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ vers la Méditerranée est donc basée sur les résultats acquis lors de l'évènement 3.

2.6. Identification des stocks de radioactivité artificielle

En collaboration avec le laboratoire de géomorphologie du CEREGE¹, il a été décidé de localiser les stocks de radioactivité artificielle dans le bief Marcoule-Arles. Du fait de l'affinité des radioéléments étudiés pour les fractions granulométriques fines des particules, nous avons focaliser notre attention sur des zones d'accumulation préférentielle de ce type de particules.

2.6.1. Dans le chenal du Rhône

Dans le chenal du fleuve, l'étude a essentiellement concerné l'amont des retenues d'eau qui jouent le rôle de piège à particules, plus particulièrement pour les particules fines. Ces retenues sont au nombre de 3 entre le centre de Marcoule et la ville d'Arles. Il s'agit des aménagements hydroélectriques de Caderousse, situé à l'aval immédiat de Marcoule, d'Avignon et de Vallabrègues (figure 2-11). *Lambrechts et al. (1996)* ont montré que ces retenues pouvaient constituer des lieux de stockage sédimentaire des radionucléides originaires de Marcoule, et que ces stocks pouvaient être remobilisés lors des crues du Rhône. Nous avons effectué une campagne de relevés bathymétriques en amont des retenues de Caderousse et de Vallabrègues. Le principe était de pouvoir établir ces relevés avant et après un épisode de crue dans le but d'en déduire des volumes nets accumulés ou remobilisés. Malheureusement, ces campagnes n'ont finalement pas pu être exécutées pour cause de matériel défectueux.

¹ Centre Européen de Recherche et d'Enseignement en Géosciences de l'Environnement

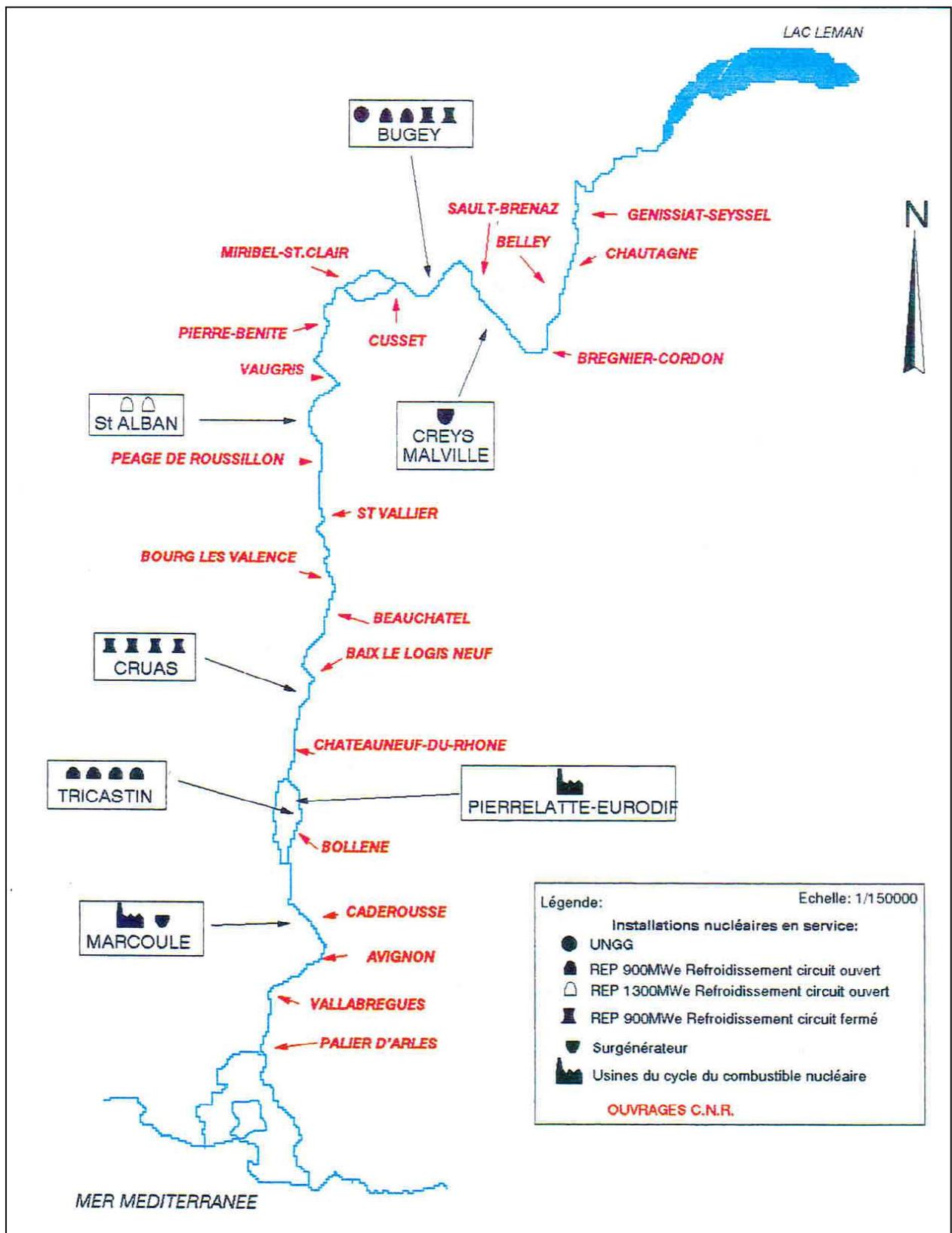


Figure 2-11. Les aménagements hydroélectriques et nucléaires du Rhône (carte publiée dans Lambrechts et Marchand, 1994 b).

2.6.2. Sur les berges et annexes fluviales du Rhône

Les berges du Rhône ont aussi été étudiées afin de déterminer s'il pouvait s'agir d'un compartiment important de stockage et de remobilisation des radionucléides artificiels. Des carottages ont donc été entrepris sur trois sites des bords du Rhône dans le bief Marcoule-Arles (figure 2-7 et 2-8). Le but était d'une part de mettre en évidence des stocks sédimentaires de radioactivité artificielle sur les berges, et d'autre part de voir s'il n'était pas possible à partir des profils obtenus de dresser un historique global de la formation de ces stocks. Les sites étudiés ont été choisis à partir des travaux de *Sabatier (2004)*.

2.6.2.1. Description du site de Barriol

Le site de Barriol est une zone alimentée en dépôts sédimentaires lors des épisodes de crues. Les processus d'érosion par le fleuve y sont cependant négligeables. Il s'agit donc d'une zone intéressante afin de mettre en évidence l'accumulation de stocks sédimentaires contaminés par les rejets du centre de Marcoule. Ce site se trouve dans le garage aval d'une écluse dont le chenal rejoint le Rhône au sud d'Arles (figure 2-12). Le chenal de cette écluse fut creusé au milieu des années 1970 (communication orale par les responsables de l'écluse). Dès lors, les forts taux d'accumulation sédimentaire qui caractérisent ce site n'eurent de cesse de combler le chenal, qui n'est régulièrement dragué qu'en son centre afin de dégager une voie navigable. La berge immédiate sur laquelle ont été effectués les carottages est donc le résultat de l'accumulation sédimentaire depuis le creusement initial du chenal. Cette accumulation sédimentaire a permis la formation au fil du temps de berges qui ne sont aujourd'hui alimentées en matériaux particulaire que lors des épisodes de crues du Rhône, lorsque ces berges se retrouvent en eaux. La situation géographique du chenal de cette écluse en fait aussi une zone relativement bien protégée du chenal même du Rhône. En conséquence, lors des crues du Rhône, les eaux qui recouvrent la berge carottée sont relativement calmes et stagnantes. De ce fait, il s'agit d'une zone où l'érosion est quasi nulle et l'accumulation favorisée durant les périodes de crue. S'il est possible d'établir une chronique complète des apports en radionucléides artificiels à partir des profils obtenus sur cette berge, ceux-ci serviront sans doute de profils de référence pour les carottes effectuées sur les autres sites.

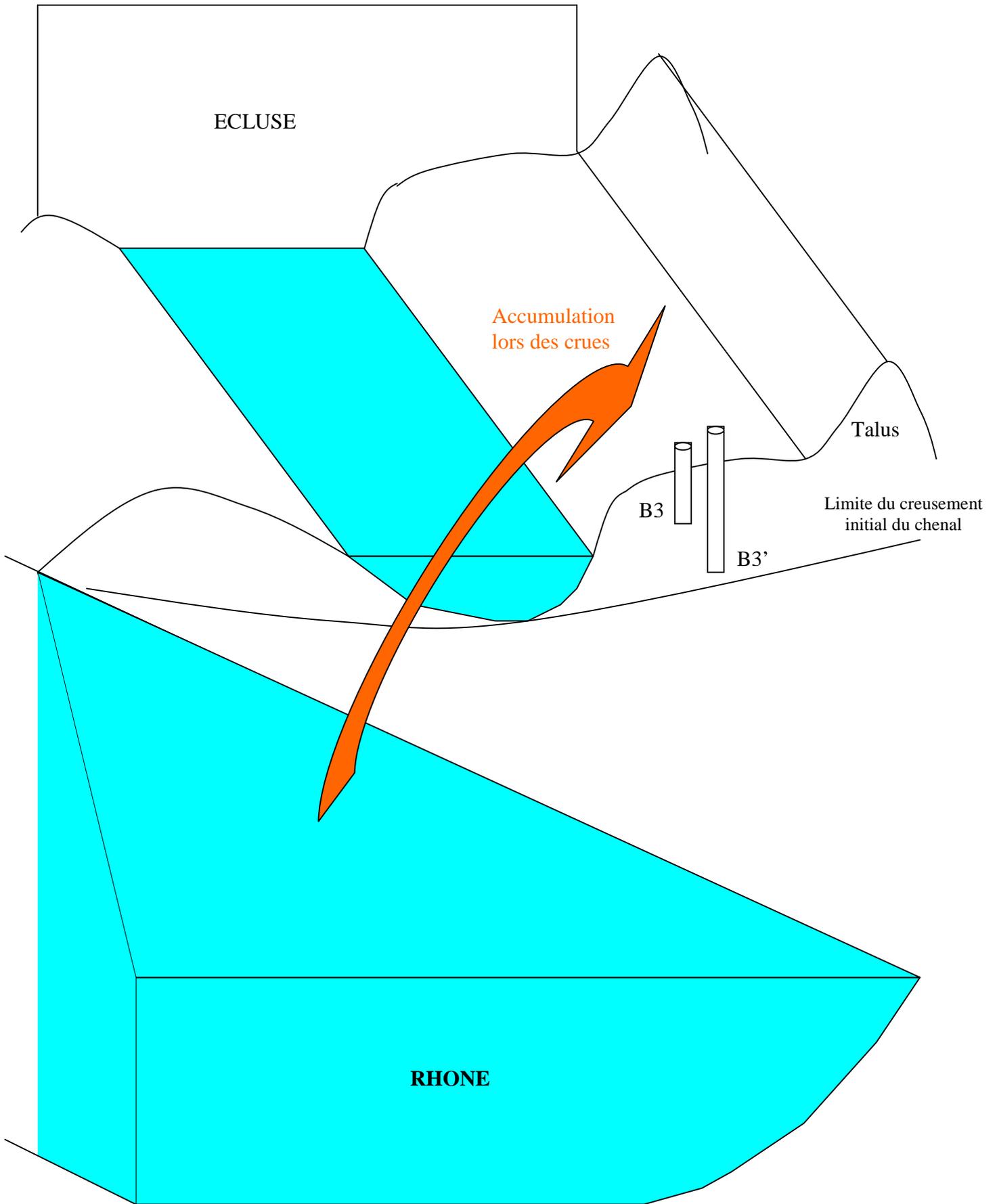


Figure 2-12. Illustration schématique du site de Barriol.

Deux carottages B3 et B3' ont été effectués sur cette berge. Le carottage B3' a été entrepris afin de prolonger les profils obtenus initialement sur la carotte B3.

2.6.2.2. Description du site de la peupleraie

Le site de la peupleraie est localisé en rive droite du fleuve, au niveau de la diffluence entre le Grand et le Petit Rhône. Il s'agit d'une berge directement exposée au Rhône, soumise à la fois à des processus d'accumulation sédimentaire et à des processus de remobilisation par érosion lors des crues (figure 2-13). Comme sur le site de Barriol, la berge carottée ici est alimentée en matériaux particuliers seulement lors des événements de crue du Rhône, durant lesquels elle se retrouve en eaux. De part son exposition au fleuve, elle est aussi soumise à des processus d'érosion latérale par arrachement due à la force des crues. Si stocks il y a, une partie de ces stocks est donc potentiellement remobilisable par érosion lors des périodes de crue.

Deux carottages B4 et B4' ont été effectués sur cette berge. Le carottage B4' a été entrepris afin de prolonger les profils obtenus initialement sur la carotte B4.

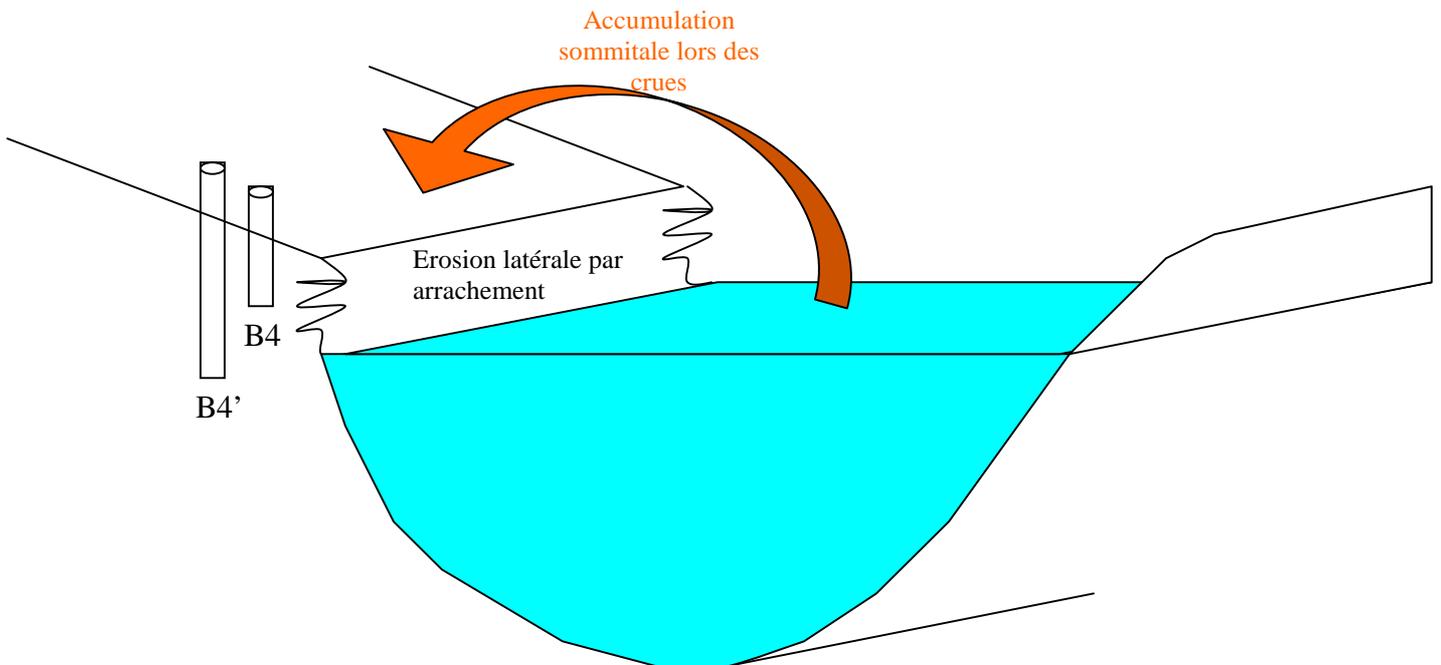


Figure 2-13. Illustration schématique du site de la peupleraie.

2.6.2.3. Description du site de la lône du Mas des Tours

Un troisième site a été choisi dans une lône, ou bras mort du Rhône, située en rive gauche entre Beaucaire et Arles. Il s'agit d'un bras mort du Rhône, connecté toute l'année au fleuve par l'aval. Le carottage a été effectué dans l'amont de ce bras mort, zone submergée par les eaux seulement lors des crues. Ce site est donc vraisemblablement en accumulation seule, car complètement protégé du chenal même du Rhône. Si on y montre l'existence de stocks de radionucléides artificiels, ce site représenterait probablement une zone de stockage à très long terme. Un seul carottage B5 a été effectué sur dans cette lône.

2.7. Prélèvements et traitements

2.7.1. Les échantillons de MES

Les prélèvements d'eau du Rhône en Arles ont été effectués via le bras de prélèvement de la station OPERA. Au bout de ce bras est située une tête de prélèvement (figure 2-14) qui permet d'effectuer un échantillonnage à une distance d'environ 7 mètres du quai, et à une profondeur de 0,5 mètre au-dessous de la surface. Pour ces prélèvements, la station utilise une pompe Jumbo 24 HD construite par ABS[®].

En amont du site Marcoule-Arles, les prélèvements d'eau ont été effectués grâce à une pompe de terrain submersible MP 1 de marque Grundfos[®], dont la tête de prélèvement a été fixée au bout d'une perche à l'aide d'un flotteur, afin d'échantillonner en surface à quelques mètres de la berge (figure 2-15).

Chaque échantillon de MES a été obtenu en filtrant l'eau du Rhône prélevée à travers un filtre cartouche Milligard[®] en acétate de cellulose de porosité 0,45 micromètre (accrédité ISO 9000). Avant toute utilisation, chaque filtre était au préalable pré-séché durant plusieurs jours dans une étuve soufflante à 80°C, puis pesé grâce à une balance précise à 0,01 g près.

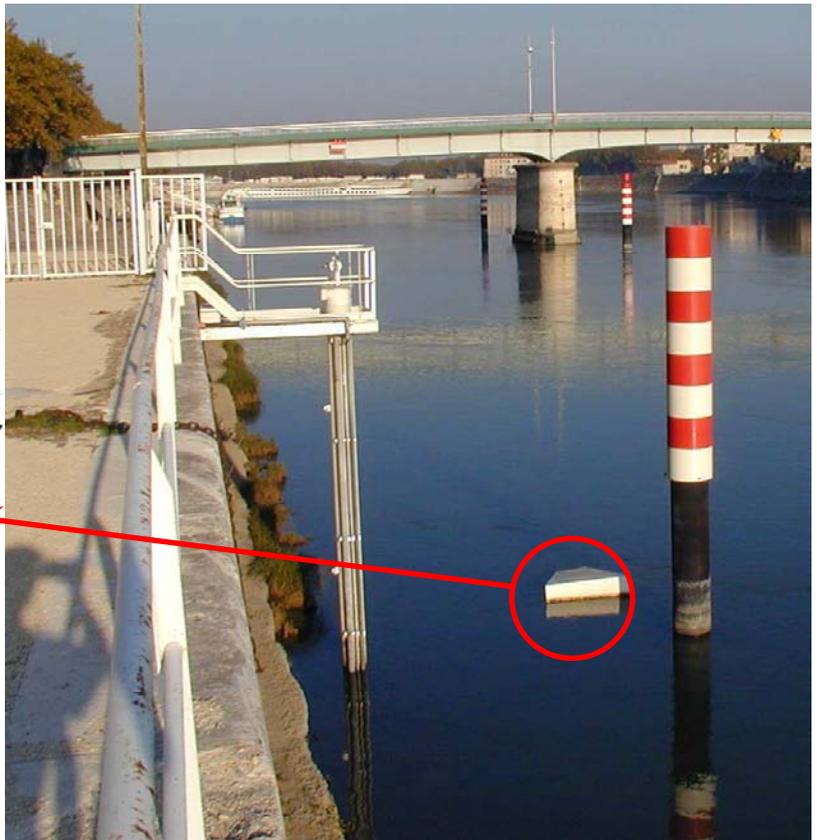
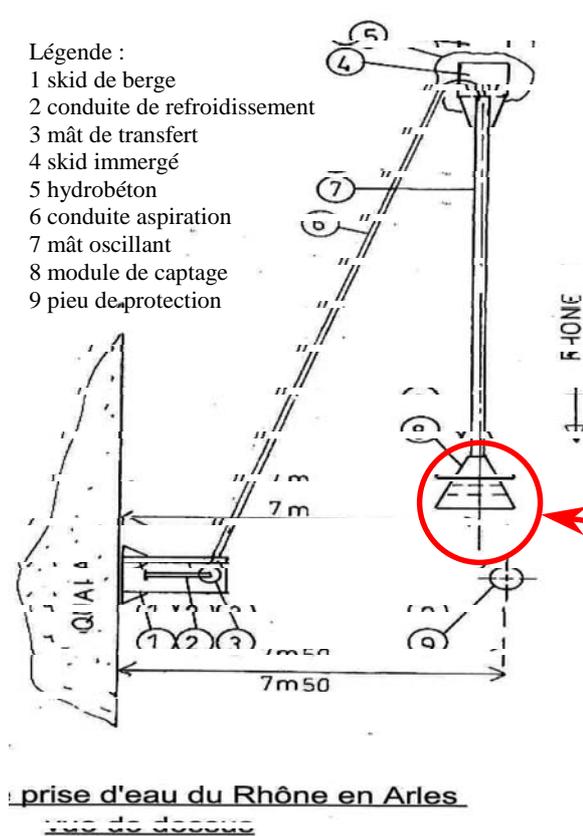


Figure 2-14. Principe schématique du système de prélèvement de la station OPERA d'Arles (schéma publié dans *Masson et al., 2004*)

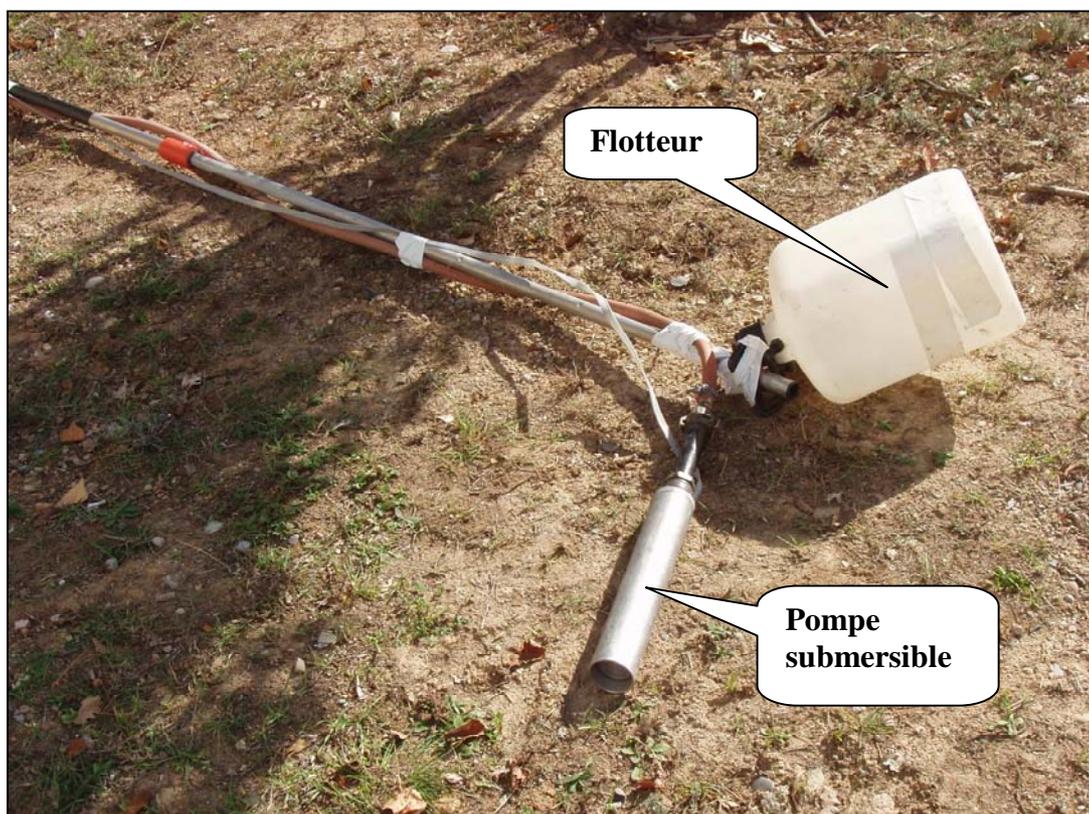


Figure 2-15. Photo de la pompe MP 1 Grundfos® fixée au bout de la perche servant à s'éloigner de la berge.

Les volumes d'eau filtrés ont essentiellement dépendus de la quantité de matière particulaire nécessaire pour les mesures (8 à 10 g minimum). Ces volumes ont ainsi varié de 30 l pour les prélèvements les plus chargés en MES lors des crues, à 2000 l lors des prélèvements en période d'étiage, et ont conduit à l'acquisition d'échantillons compris entre 2 et 200 g de matière sèche.

Une fois le prélèvement effectué à la station d'Arles, le filtre est ramené au laboratoire pour y être séché durant une semaine dans l'étuve à 80°C, puis pesé à 0,01g près pour déterminer la masse de matière sèche. La CSS (en mg.l⁻¹) correspondante peut ensuite être déterminée en faisant le rapport entre cette masse et le volume d'eau filtré.

Dans le but de mesurer les activités en radionucléides émetteurs gamma associées aux MES, le filtre était ensuite calciné à 480°C suivant un protocole par paliers de températures de 52 heures, la calcination permettant d'éliminer la structure en acétate de cellulose du filtre et de ne récupérer que les cendres des MES. Ces cendres étaient ensuite conditionnées, pour la spectrométrie gamma, en géométries de 17 ml ou de 60 ml selon la quantité et la densité de l'échantillon.

2.7.2. Le ¹³⁷Cs dissous

La technique de concentration par percolation de l'eau préalablement filtrée à travers des filtres cartouches imprégnées aux ferrocyanures a été utilisée afin de prélever le ¹³⁷Cs en phase dissoute (*Roos et al., 1994 ; Eyrolle et Masson, 2001*) Cette méthode permet de traiter de grands volumes d'eau directement in situ (plusieurs centaines de litres), et de s'affranchir des étapes de stockage, transport et traitements de ces volumes au laboratoire par d'autres méthodes comme l'évaporation ou la co-précipitation en batch. Elle permet d'obtenir des activités significatives en césium dissous dans l'eau par spectrométrie gamma lorsque les concentrations dans l'environnement sont très faibles.

L'eau du Rhône passe dans un premier temps sur le filtre Milligard® à 0,45 µm (prélèvement des MES), puis sur deux cartouches en coton tressé de porosité initiale 1 µm et imprégnées avec 40 g de Cu₂[Fe(CN)₆] (figure 2-16). Le débit de percolation à travers les cartouches imprégnées est réglé à environ 2 litres par minute, ce qui implique des

prélèvements de plusieurs heures mais permet un meilleur rendement d'extraction. Les activités mesurées sur les deux cartouches montées en série permettent de calculer le rendement d'extraction du césium. Avec A l'activité totale en ^{137}Cs dissous, A_1 l'activité piégée dans la première cartouche, A_2 l'activité piégée dans la seconde cartouche, et en considérant un rendement R identique pour les deux cartouches, R est calculé comme suit:

$$A_2 = R.(A-A_1) \quad (1)$$

Or: $A = A_1/R \quad (2)$

Donc l'équation (1) équivaut à : $R = (A_1 - A_2)/A_1 \quad (3)$

Sur les 23 prélèvements de ^{137}Cs dissous effectués en Arles, l'activité de la deuxième cartouche a toujours été inférieure à la limite de détection du spectromètre γ , quelle que soit l'activité mesurée sur la première cartouche. Nous avons donc considéré un rendement d'extraction de 95%.

Comme les filtres cartouches Milligard[®], les cartouches imprégnées sont ensuite séchées au laboratoire dans l'étuve à 80°C, puis calcinées à 480°C afin de recueillir environ 12 g de cendres pour la spectrométrie gamma.

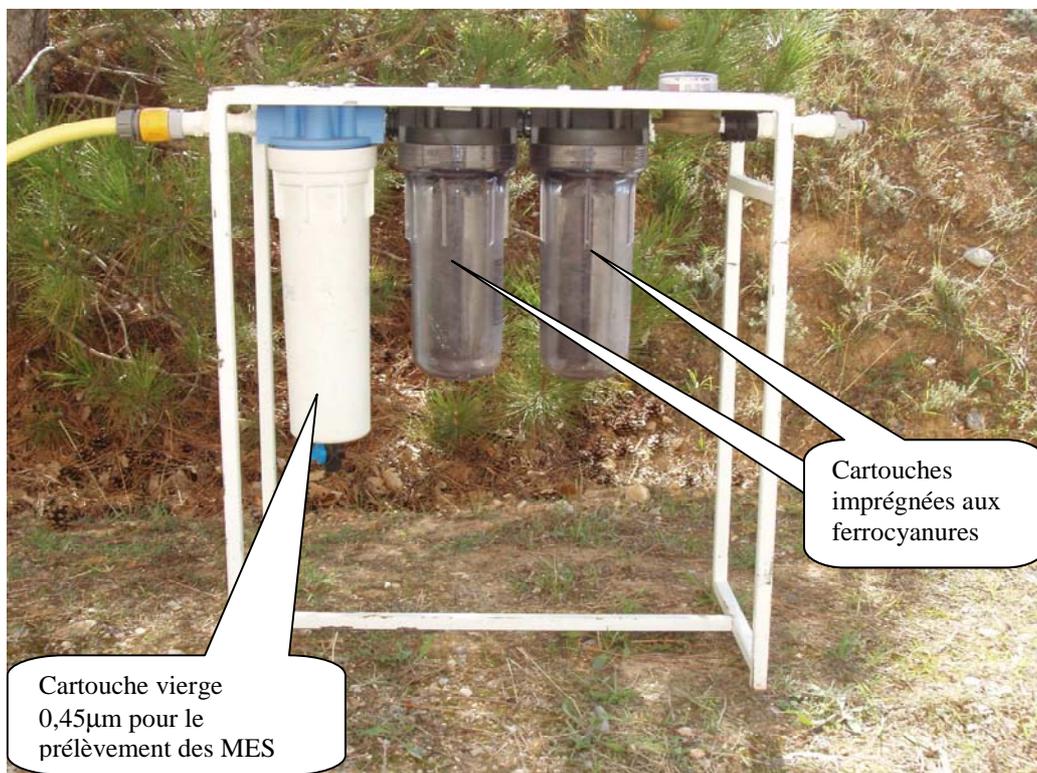


Figure 2-16. Banc de filtration de l'eau du Rhône utilisé dans cette étude.

2.7.3. Les carottages sur berges et annexes fluviales

Les carottes ont été réalisées lors de deux campagnes de carottages différentes, la première en avril 2003 et la deuxième en juin 2004.

2.7.3.1. Techniques de carottage

Lors de la campagne d'avril 2003, nous avons utilisé un carottier à percussion que le Centre d'Etude Technique de l'Equipement (CETE) Méditerranée nous avait prêté pour l'occasion. Il s'agit d'un carottier permettant d'effectuer des carottes de 2 mètres de long et de 100 mm de diamètre, qui fonctionne en laissant tomber une masse sur la chemise métallique contenant le tube en PVC qui accueille la carotte proprement dite (figure 2-17 et 2-18).

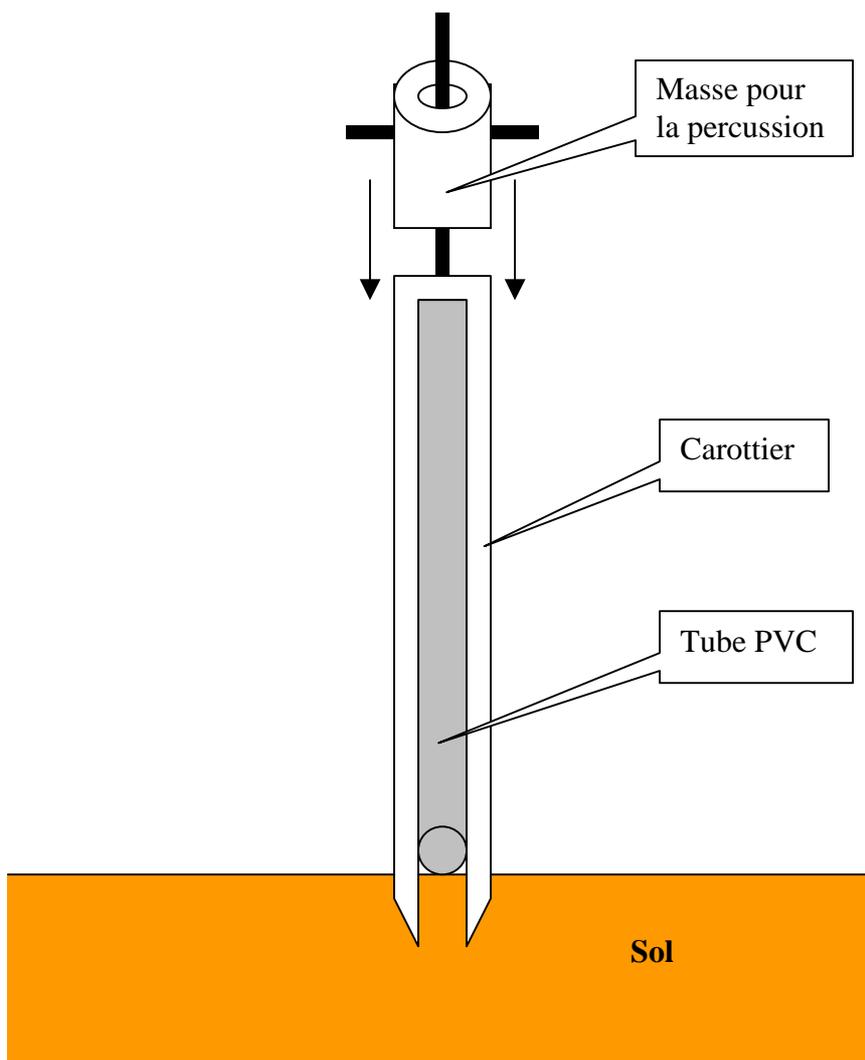


Figure 2-17. Illustration schématique du carottier à percussion utilisé pour les carottages B3, B4 et B5.



Figure 2-18. Photos de la campagne de carottage d'avril 2003, sur le site de Barriol. Le carottier à percussion photographié a permis l'obtention des carottes B3, B4 et B5.



Figure 2-19. Photos de la campagne de carottage de juin 2004, sur le site de Barriol. Le carottier hydraulique photographié ici a permis l'obtention des carottes B3' et B4'.

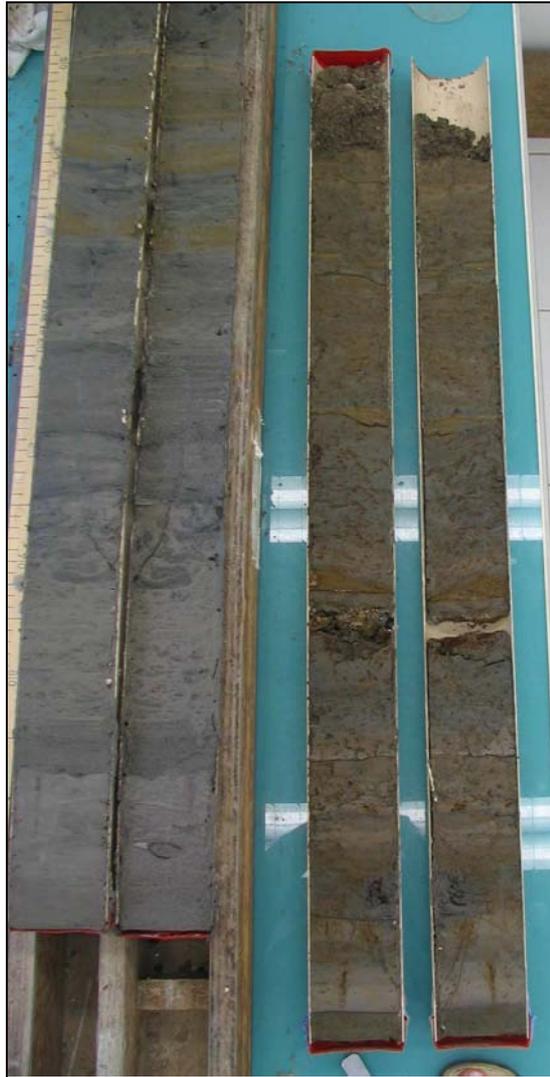


Figure 2-20. Photos de carottes obtenues lors du carottage B5' effectué en juin 2004 sur le site de la peupleraie.

La campagne d'avril 2003 a permis l'obtention des carottes B3, B4 et B5, respectivement pour les sites de Barriol, de la Peupleraie et du Mas des Tours. Les profils acquis sur les carottes B3 et B4 ont montré une augmentation significative des activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et d'autres radionucléides artificiels avec la profondeur. Il a donc été décidé de prolonger les profils sur le site de Barriol et sur celui de la Peupleraie afin d'obtenir des profils d'activité plus complets, c'est à dire des profils permettant de remonter au début des apports de radioactivité artificielle dans le bassin versant rhodanien. La réalisation des carottes B3' et B4', plus profondes (4 mètres), a fait l'objet de la campagne de juin 2004. Elle a été confiée au CETE qui s'est servi d'un carottier hydraulique permettant de carotter de mètre en mètre (figure 2-19). Ces portions de carotte étaient recueillies dans des tubes PVC de 100 mm de diamètre (figure 2-20).

Toutes les carottes acquises au cours de ce travail ont été ouvertes et échantillonnées grâce au matériel mis à disposition par le CEREGE. L'échantillonnage a été effectué à chaque fois sur une demi carotte, l'autre ayant été conservée en chambre froide. Cet échantillonnage était réalisé suivant la stratigraphie des carottes afin de respecter au mieux les séquences successives d'apports sédimentaires si elles apparaissaient. Ce type d'échantillonnage a été préféré à un découpage centimétrique dans le but initial de dresser, dans la mesure du possible, une chronique de la formation des stocks sédimentaires en isolant les épisodes de crue successifs.

2.7.3.2. Traitement des échantillons

La stratigraphie établie, des échantillons de sédiments étaient prélevés à partir des carottes de façon à obtenir assez de matière pour la spectrométrie gamma. Pour le séchage des échantillons, la technique de lyophilisation a été préférée à celle de l'étuvage, en raison de la granulométrie souvent très fine des sédiments qui entraînait leur durcissement lors de leur passage à l'étuve. Une fois secs, les échantillons étaient broyés en une poudre homogène, conditionnés en volumes de 17 ml ou 60 ml suivant la quantité disponible, puis envoyés à la mesure.

2.8. Méthodes de mesure

La majeure partie des mesures par spectrométrie gamma, alpha et ICPMS effectuées dans cette étude ont été réalisées par le Laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans l'Environnement (LMRE) de l'IRSN. Quelques mesures gamma ont été effectuées par le Laboratoire de métrologie du Service d'Etude du Comportement des Radionucléides dans l'Environnement de l'IRSN, lorsque les quantités de MES échantillonnées étaient inférieures à 8 g.

2.8.1. Détection des radionucléides émetteurs gamma (γ)

La mesure par spectrométrie γ est basée sur le fait que lors de la décroissance radioactive d'un radionucléide, celui-ci émet des ondes électromagnétiques γ caractérisées par une ou des énergies propres à ce radionucléide. L'établissement du spectre γ d'un échantillon équivaut à faire l'analyse sélective des différents radionucléides présents dans cet échantillon, émettant chacun dans leur énergie propre. Dans un détecteur, les rayonnements γ provoquent des phénomènes d'ionisation au sein d'un cristal de germanium, qui sont transformés en signaux électriques. Ces signaux sont comptés pour chacun des radionucléides émetteurs γ . Leur quantité est directement proportionnelle à la concentration des radionucléides dans l'échantillon, et définit l'amplitude des pics du spectre γ .

Les spectromètres utilisés par le LMRE sont des spectromètres gamma HPGe haute résolution et bas bruit de fond, dotés de détecteurs germanium hyper purs avec une efficacité relative de 50% (*Bouisset et al., 1997*). Les spectrométries sont réalisées dans une bande d'énergie comprise entre 20 keV et 3 MeV, avec des temps de comptage allant de 1000 à 3000 minutes. Afin de permettre la mesure des radionucléides à l'état de traces et d'ultra-traces, les détecteurs γ du LMRE sont disposés dans une salle située en sous-sol, à 6 mètres de profondeur, sous une dalle de béton de 3 mètres d'épaisseur, et blindée par une couche de 10 cm de plomb de faibles activités, recouverte elle-même de 2 cm de cuivre électrolytique afin de neutraliser la fluorescence x du plomb.

Les énergies de transition utilisées pour la détection des radionucléides étudiés dans ce travail sont respectivement de 661,7 keV, 477,6 keV et 46,5 keV pour le ^{137}Cs , le ^7Be et le ^{210}Pb respectivement. Concernant le ^{210}Pb , nous nous sommes intéressés plus particulièrement au ^{210}Pb en excès ($^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$), c'est à dire au ^{210}Pb d'origine atmosphérique fixé à la surface des particules. La détermination de l'activité en $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ a nécessité un délai d'un mois entre le conditionnement de l'échantillon en volume étanche et la mesure spectrométrique. Ce délai permet la mise à l'équilibre du ^{210}Pb supporté avec les éléments à vie courte descendants du ^{222}Rn (figure 1-3). L'activité en $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ est alors déterminée en faisant la différence entre l'activité en ^{210}Pb mesuré dans l'échantillon, qui est égale au ^{210}Pb supporté plus le $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, moins l'activité en ^{214}Bi (609,3 keV) à l'équilibre avec le ^{210}Pb supporté.

2.8.2. Détection des radionucléides émetteurs alpha (α)

Les radiochimies et les comptages α ont été effectués au sein du LMRE.

La technique de spectrométrie α permet de mesurer les isotopes du plutonium à l'état d'ultra-traces. Ce travail a ainsi permis de déterminer des activités en ^{238}Pu en amont du bief Marcoule-Arles de l'ordre de 5 mBq.kg^{-1} . Sachant qu'un becquerel de ^{238}Pu équivaut environ à $1,55.10^{-15} \text{ kg}$, cet ordre d'activité équivaut ainsi à des concentrations d'environ 8.10^{-18} g/g de ^{238}Pu . Néanmoins, l'obtention de niveau d'activité si bas nécessite le traitement de quantités d'échantillon relativement importantes afin d'acquérir des mesures significatives. La plupart des échantillons sur lesquels les deux isotopes ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ ont pu être mesurés étaient ainsi constitués d'au moins 30 g de matière sèche, les échantillons de masse plus faible ayant le plus souvent conduit à des activités en ^{238}Pu inférieures aux limites de détection des spectromètres α .

Si les propriétés très pénétrantes du rayonnement électromagnétique gamma permettent une détection relativement facile, en plaçant directement l'échantillon dans le détecteur, la mesure directe des émissions α est impossible étant donné leur pouvoir de pénétration faible qui entraîne des phénomènes importants d'auto-absorption au sein même de l'échantillon. La technique de mesure des isotopes du plutonium ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ par spectrométrie α passe donc obligatoirement par une étape de radiochimie, qui a pour but la concentration des plutoniums contenus dans l'échantillon en une solution la plus pure possible.

Etant donné le temps nécessaire à la radiochimie et au comptage α (2 à 3 semaines pour la radiochimie, 1 à 2 semaines pour le comptage), les mesures α n'ont pas concerné tous les échantillons acquis lors de cette étude, mais certains qui furent sélectionnés en fonction de l'acquisition préalable des résultats gamma. Concernant les échantillons de MES prélevés lors du suivi, le traitement radiochimique a été appliqué sur les cendres ayant déjà servi pour les mesures gamma. Des mesures alpha ont aussi été effectuées sur des échantillons lyophilisés de dépôt de crue en Arles, à partir desquels il a été possible d'utiliser une centaine de grammes pour le traitement radiochimique.

2.8.2.1. Traitement radiochimique

L'objectif de la radiochimie étant de concentrer et de purifier le plutonium des échantillons, elle permet l'élimination progressive de la matrice des échantillons et de tous les éléments pouvant interférer lors de la mesure spectrométrique α . Il s'agit donc de l'élimination des éléments majeurs stables constituant la matrice de l'échantillon (alumine, silice, Ca, Fe, K, Na,...), et de celle des autres radionucléides émetteurs α dont les raies d'émissions peuvent interférer avec celles des isotopes du plutonium, ce qui concerne en particulier les descendants des chaînes radioactives naturelles de l'uranium et du thorium.

Le protocole de radiochimie suivi pour le traitement des échantillons de cette étude est celui proposé par *Goutelard et al. (1998)*. Il se décompose en différentes étapes successives illustrées sur la figure 2-21 :

- Conditionnement de l'échantillon, séchage et calcination :

Les principales étapes de conditionnement de l'échantillon en vue du traitement radiochimique sont celles réalisées précédemment à la spectrométrie γ . Suite à la mesure γ , l'échantillon subit une calcination à 480°C (la deuxième pour les échantillons de MES suite au conditionnement pour la mesure γ) suivant un protocole par paliers de températures de 52 heures. Cette étape vise à détruire entièrement la phase organique de l'échantillon. Les transuraniens étant stables à très haute température, ils sont conservés dans les cendres résiduelles de la calcination.

- Ajout des traceurs de rendement:

Comme souvent concernant les protocoles d'extraction d'un élément particulier à partir d'une matrice naturelle, le traitement radiochimique appliquée ici ne permet pas la concentration de la totalité du plutonium présent initialement dans l'échantillon. Il est donc nécessaire d'établir un rendement d'extraction, qui permettra de déterminer l'activité initiale des isotopes du plutonium à partir de l'activité effectivement mesurée lors de la spectrométrie α . Pour ce faire, on introduit dans l'échantillon, avant le début du traitement radiochimique

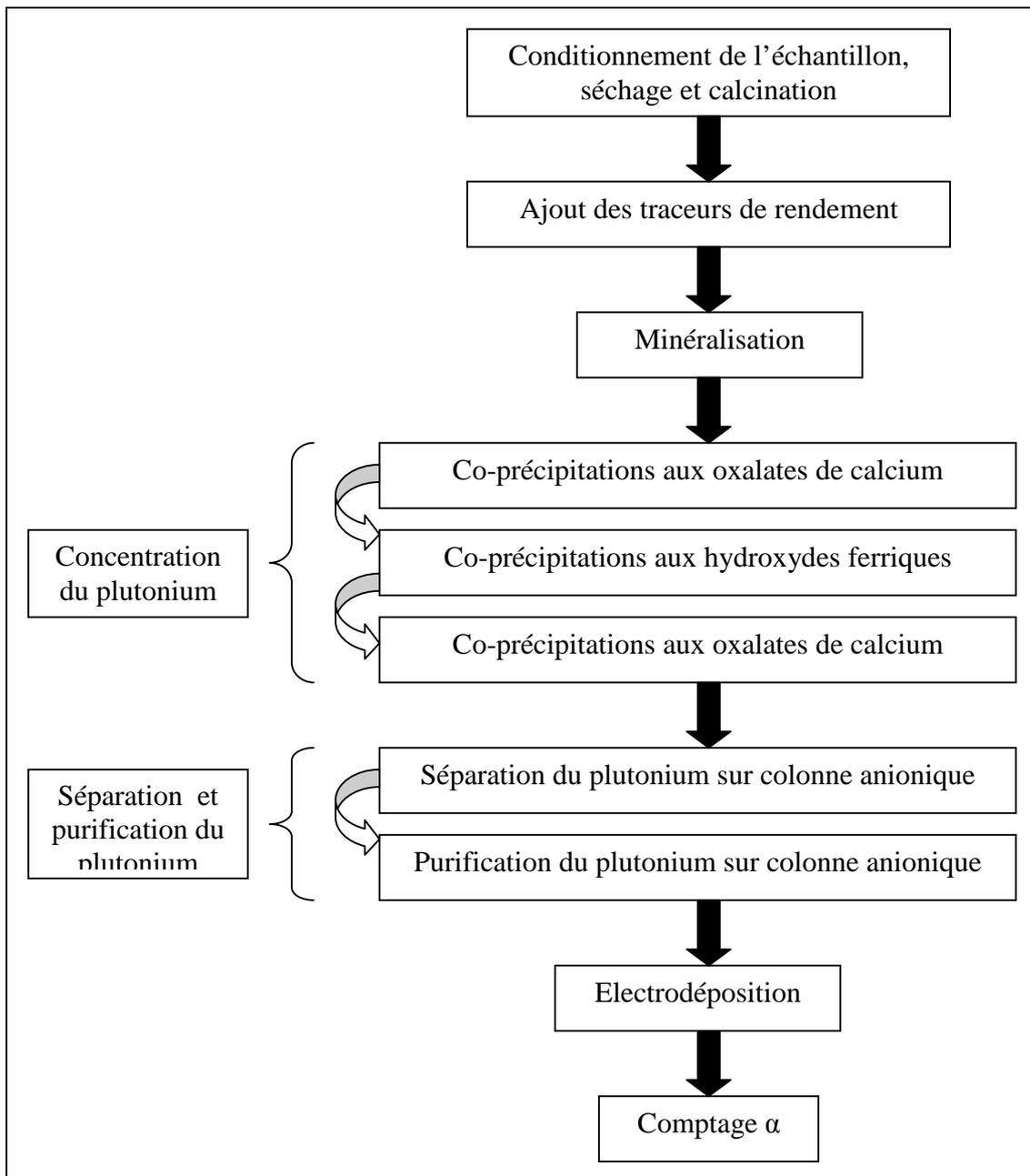


Figure 2-21. Les principales étapes du traitement radiochimique nécessaire à la spectrométrie α .

proprement dit, un traceur en quantité connue. Au final, la quantité de ce traceur retrouvée lors du comptage α est comparée à celle initialement introduite, ce qui permet le calcul d'un rendement global d'extraction et de mesure. Ce traceur, qui accompagne tout au long du protocole d'extraction l'élément étudié, doit donc posséder un comportement physico-chimique similaire, ne pas être présent dans l'échantillon traité et ne pas interférer avec l'élément étudié lors du comptage α . Dans le cas de la mesure des isotopes du plutonium ^{238}Pu

et $^{239+240}\text{Pu}$, le traceur utilisé est le ^{242}Pu . La quantité introduite dépend de l'activité présumée des ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ dans l'échantillon étudié.

- Minéralisation:

L'étape de minéralisation permet de solubiliser les éléments constitutifs de la matrice de l'échantillon, dont les éléments étudiés. L'échantillon de cendre subit une série d'attaques acides oxydantes à l'acide nitrique (HNO_3), à l'acide chlorhydrique (HCl) et au peroxyde d'hydrogène (H_2O_2), qui sépare ces éléments maintenant sous forme dissoute d'une phase réfractaire composée essentiellement d'alumine (Al_2O_3) et de silice (SiO_2).

- Concentration du plutonium par co-précipitation:

La série des co-précipitations a pour principal objectif de concentrer le plutonium en éliminant la quasi totalité des éléments majeurs, et si possible une partie des radionucléides naturels émetteurs α comme l'uranium :

- Une première co-précipitation est réalisée en utilisant les oxalates de calcium. Elle permet l'entraînement des transuraniens et l'élimination des hydroxydes métalliques tels les hydroxydes de fer qui restent en phase aqueuse étant donné le pH utilisé (pH=1,5). Le précipité d'oxalate de calcium est ensuite calciné à 550°C , ce qui le transforme en carbonate.

- Après dissolution des carbonates à l' HCl , la solution subit une co-précipitation aux hydroxydes ferriques qui entraîne les transuraniens et permet d'éliminer le calcium et les alcalino-terreux restant.

- Une troisième co-précipitation est finalement réalisée avec les oxalates de calcium afin d'éliminer les dernières traces de fer des échantillons.

- Séparation et purification du plutonium:

Les étapes de chromatographie sur résine échangeuse d'ions ont pour but premier de séparer le plutonium des autres transuraniens comme l'uranium, le thorium et l'américium. Deux chromatographies sur une résine anionique AG1X8 (100-200 mesh) sont effectuées successivement, la première permettant la séparation proprement dite du plutonium, la

deuxième permettant la purification du plutonium récupéré lors de la première chromatographie.

Chaque chromatographie comporte plusieurs passages sur colonne qui permettent d'abord la fixation des transuraniens sur la résine en milieu nitrique (1^{er} passage), puis l'élution séquentielle d'une part des transuraniens autres que le plutonium, des terres rares et des traces de métaux non éliminés lors des co-précipitations (passage 2), et d'autre part du plutonium séparé de ces éléments (passage 3). Lors des deux premiers passages, le plutonium est fixé sur la résine anionique à sa valence IV, ce qui nécessite un ajustement de la normalité de la colonne en HNO₃ à 8N ainsi que l'ajout de H₂O₂ et de NaNO₂ afin d'obtenir les conditions d'oxydo-réduction adéquates. Son élution lors du passage 3 est possible grâce à l'ajout d'une solution d'iodure d'ammonium (NH₄I) qui permet la réduction du plutonium IV en plutonium III.

- Electrodéposition:

Le plutonium séparé et concentré de l'éluat est ensuite électrodéposé de manière uniforme sur un disque en acier inoxydable, en vue de la détection des isotopes étudiés par spectrométrie α .

- Comptage α :

L'électrodépôt est finalement placé dans une chambre de comptage α du spectromètre. Les spectromètres utilisés par le LMRE sont constitués de chambres de comptage équipées de détecteurs PIPS (Passivated Implanted Planar Silicon) à très bas bruit de fond. Le temps de comptage peut varier de 1 à 2 semaines en fonction du rendement d'extraction et des activités initiales en isotopes du plutonium des échantillons étudiés. Les expressions des résultats d'un comptage α , des incertitudes liées à ce comptage, et des limites de détection sont exposées dans le détail dans *Duffa (2001)*.

2.8.3. Mesures ICPMS

Les mesures des isotopes du plutonium ^{239}Pu et ^{240}Pu ont toutes été réalisées sur le spectromètre de masse à source plasma couplée inductivement haute résolution (ICPMS HR) du LMRE. Il s'agit d'un ICPMS HR à collecteur simple VG axiom placé dans une salle blanche de classe 1000. Le mode basse résolution (mode 400 dans le cas de ce spectromètre) permet de mesurer les isotopes ^{239}Pu et ^{240}Pu à l'état d'ultra-traces. En effet, le principal intérêt de l'ICPMS HR est d'avoir dans ce mode de résolution une limite de détection 10 à 100 fois plus basse qu'un ICPMS conventionnel (*Bruneau, 1999*).

La mesure des isotopes ^{239}Pu et ^{240}Pu par ICPMS HR nécessite une préparation radiochimique préalable des échantillons, proche de celle réalisée dans le cas de la spectrométrie α . Il a ainsi été possible de récupérer les électrodépôts issus des comptages α afin de les conditionner pour les mesures ICPMS. Les principes du traitement radiochimique, de mesure et d'expressions des résultats appliqués par le LMRE pour la détection du ^{239}Pu et du ^{240}Pu par ICPMS HR dans des échantillons naturels sont détaillés dans *Agarande et al. (2004)*.

L'ICPMS permet des mesures de masse des éléments détectés dans l'échantillon. Elles s'expriment en grammes de l'élément détecté par grammes d'échantillon sec (g/g). Contrairement aux rapports isotopiques $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ et $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ qui sont des rapports d'activité en béquerels, le rapport isotopique $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ est donc un rapport de masse. Afin de convertir les données acquises en g/g en données exprimées en béquerels, il nécessaires de connaître les activités spécifiques des isotopes considérés (tableau 1-6).

2.8.4. Mesures physico-chimiques

Toutes les mesures granulométriques, de capacité d'échange cationique (CEC) et de teneur en matière organique totale (MOT) effectuées sur les échantillons issus des carottages sur les berges du Rhône, ont été réalisées par le Laboratoire d'Analyses des Terres et des Eaux de la Société du Canal de Provence.

2.8.4.1. Granulométrie

Méthode de conditionnement : Un aliquote est prélevé sur les échantillons de carotte à la sortie de la lyophilisation. La matière organique, qui constitue un ciment entre les particules minérales, est détruite par un traitement au peroxyde d'hydrogène (H_2O_2). Les particules sont ensuite dispersées par un dispersant énergétique tel que l'hexamétaphosphate de sodium et par agitation mécanique.

Méthode de mesure : Les différentes fractions granulométriques de l'échantillon sont séparées selon la classification d'Atterberg adoptée par l'Association Internationale des Sciences du Sol :

- $2\text{ mm} > x > 200\text{ }\mu\text{m}$: Sables grossiers
- $200\text{ }\mu\text{m} > x > 50\text{ }\mu\text{m}$: Sables fins
- $50\text{ }\mu\text{m} > x > 20\text{ }\mu\text{m}$: Limons grossiers
- $20\text{ }\mu\text{m} > x > 2\text{ }\mu\text{m}$: Limons fins
- $2\text{ }\mu\text{m} > x$: Argiles

(x = diamètre théorique des particules)

Cette analyse est effectuée selon la Norme expérimentale X 31-107. Le fractionnement des sables se fait par tamisage sous jet d'eau. Les particules inférieures à $50\text{ }\mu\text{m}$ sont séparées selon la loi de Stokes.

2.8.4.2. Teneur en matière organique totale

La teneur en matière organique totale est déterminée par perte au feu lors de la calcination de l'aliquote en vue des mesures granulométriques. On en détermine la quantité par des pesées avant et après calcination.

2.8.4.3. Capacité d'échange cationique (CEC)

La capacité d'échange cationique est déterminée selon la méthode à l'acétate d'ammonium (Norme expérimentale X31-130).

2.9. Etude de la remobilisation sédimentaire

2.9.1. Mise en évidence par des bilans de matière

Un premier moyen de mettre en évidence la remobilisation sédimentaire dans le bief Marcoule-Arles serait d'établir des bilans de matières entre les apports dans le bief et les exports en Arles. Cette méthode implique cependant de pouvoir estimer quantitativement, comme dans le cas des flux en Arles, les flux de radionucléides entrant dans le bief. Or plusieurs problèmes se sont posés concernant l'établissement de ces flux entrants :

- D'abord, ils impliquaient de pouvoir être exhaustif quant aux entrées des radionucléides dans le bief. Un suivi en amont des rejets du centre de Marcoule supposait donc non seulement le suivi des apports par l'amont du fleuve, mais aussi ceux par les affluents se déversant entre Marcoule et Arles. D'un point de vue logistique (durée des prélèvements, matériel consommable mis en œuvre, coût et délais des mesures), il ne fut pas possible d'assurer un tel suivi sur toute la période d'étude, et le suivi n'a donc concerné que l'amont direct du centre de Marcoule.

- Il a toutefois été possible d'effectuer des prélèvements sur tous les affluents entrant dans le bief lors de la crue de décembre 2003. Les autres crues de la période d'étude n'ont cependant pas fait l'objet d'un suivi complet journalier en amont du centre de Marcoule et sur les affluents du bief.

Finalement, l'absence d'un suivi complet des apports de matières dans le bief, et plus particulièrement des apports durant les périodes de crue, ne permet pas de déterminer avec précision les flux entrants de radionucléides artificiels afin de les comparer avec ceux déterminés en Arles.

2.9.2. Mise en évidence par comparaison des niveaux d'activité

L'acquisition de données même disparates en amont du bief Marcoule-Arles, lors de la crue de décembre 2003, apporte néanmoins des informations intéressantes d'un point de vue qualitatif, puisqu'elles représentent des données de référence non contaminées par les rejets

du centre de Marcoule auxquelles pourront être comparées les données obtenues en Arles. Les rejets des centrales et des centres de recherche nucléaires situés en amont du bief Marcoule-Arles étant supposés négligeables pour le ^{137}Cs , le ^{238}Pu et le $^{239+240}\text{Pu}$ par rapport aux autres termes sources de radioactivité artificielle dans le Rhône, les niveaux d'activité mesurés en amont du bief sont représentatifs des apports liés au lessivage des dépôts atmosphériques sur le bassin versant. Il s'agirait donc de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ originaire d'une part des retombées globales des essais atmosphériques d'armes nucléaires, ainsi que du ^{137}Cs issus des retombées de l'accident de Tchernobyl. La remobilisation de stocks sédimentaires de césium et de plutonium originaire du centre de Marcoule pourra alors être mise en évidence s'il y a une modification significative des niveaux d'activité caractéristiques des apports venant du lessivage du bassin versant.

2.9.3. Mise en évidence grâce à l'utilisation des rapports isotopiques

Il est délicat, cependant, de travailler avec des activités particulières brutes. D'autres facteurs que la remobilisation sédimentaire peuvent en effet influencer sur les différences d'activités entre l'amont et l'aval du bief Marcoule-Arles. Ces facteurs peuvent être, par exemple, des facteurs de composition et de taille des particules. Il sera donc intéressant de confirmer l'éventuelle contribution de la remobilisation sédimentaire en utilisant une autre méthode que la simple comparaison des activités particulières en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles. Pour cela, l'étude des rapports d'activité des isotopes artificiels peut être un outil adéquat puisqu'ils permettent de s'affranchir des facteurs de variabilité liés à la composition et à la taille des particules, et mettent en évidence les variations dues aux termes sources seulement. De plus, les rapports entre isotopes artificiels que nous utiliserons dans le cadre de cette étude ($^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$; $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ et $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$) ont été choisis étant donné leur potentiel à tracer les termes sources qui les ont produits. La mise en évidence de la remobilisation sédimentaire à partir de l'étude de ces rapports se basera sur la comparaison des résultats obtenus en Arles, avec ceux acquis en amont du bief Marcoule-Arles. Ces comparaisons se feront en considérant d'une part des valeurs de rapport typique du drainage des retombées radioactives sur le bassin versant, et d'autre part des valeurs de rapport typiques des rejets du centre de Marcoule, qui permettent donc de caractériser les stocks sédimentaires contaminés par ces rejets. Dans la basse vallée du Rhône, ces valeurs ont déjà

été étudiées dans le cas du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, mais restent à établir pour le rapport de masse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ et le rapport d'activité $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$.

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

Comme nous le verrons plus avant dans ce travail, le rapport des isotopes du plutonium $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ est un outil performant lorsqu'il s'agit de tracer le plutonium originaire de l'usine de retraitement du combustible irradié de Marcoule. Il existe pour ce rapport des valeurs caractéristiques bien connues d'une part pour les retombées atmosphériques sur le bassin versant, et d'autre part pour l'influence des rejets du centre de Marcoule sur l'environnement dans le bief Marcoule-Arles.

Le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ des retombées atmosphériques :

En ce qui concerne le plutonium issu du lessivage des retombées atmosphériques globales, le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ que l'on peut aujourd'hui mesurer dans les sédiments de rivières oscille aux alentours de 0,03 à 0,05 (*Barth et al., 1993*). Avant 1964, le rapport des retombées dues aux essais nucléaires en atmosphère était de l'ordre de 0,025 (*Hardy et al., 1973 ; Koide et al., 1975 ; Aarkrog 1988*). La valeur de ce rapport était due au fait que lors des explosions nucléaires, la formation de ^{239}Pu par capture neutronique est plus efficace car plus rapide que celle du ^{238}Pu , d'où une activité en ^{239}Pu quarante fois supérieure à celle du ^{238}Pu dans les retombées. En 1964, la désintégration dans l'atmosphère du satellite américain Transit 5-BN-3, équipé d'un générateur auxiliaire SNAP-9A fonctionnant à l'énergie nucléaire, entraîna l'introduction dans l'atmosphère de 560 TBq de ^{238}Pu , ce qui provoqua une augmentation significative du rapport qui passa à environ 0,05 pour des latitudes comprises entre 40° et 50° N selon *Aarkrog (1988)* et *Harley (1971)*. *Hardy et al. (1973)* déterminèrent ainsi une valeur moyenne de 0.037 ± 0.015 à partir de cet accident, qui entraînerait aujourd'hui un rapport de l'ordre de 0.03 en tenant compte de la décroissance radioactive du ^{238}Pu .

Le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ des rejets de Marcoule :

Si la composition isotopique en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ des rejets du centre de Marcoule n'a jamais vraiment été connue de façon absolue, nombre d'études menées sur les sédiments en aval du centre ont montré un rapport de l'ordre de 0,30 significativement différent de celui des retombées globales et qui semble caractéristique de ces rejets (*Lambrechts et al., 1991; 1992 b; 1993; 1994 a; 1994 b; 1995 ; 1996 a; 1996 b; 1996 c ; Lambrechts et Duffa 1998 ; Lévy et al., 1993*). Cependant, *Lansard (2004)* avance que le centre de Marcoule a retraité une grande diversité de combustibles provenant à la fois d'activités militaires, civiles mais également liées à la recherche, ce qui suggère une évolution temporelle du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$. D'après cet auteur, le rapport d'activité des rejets aura pu varier de 0,05, typique du combustible militaire (*Duffa, 2001*), jusqu'à des valeurs de 3 à 5 pouvant caractériser le retraitement du combustible civil de type MOX (*Charmasson et al., 1996*). Néanmoins, la compilation des mesures de ce rapport dans les sédiments du Rhône en aval de Marcoule depuis le début des années 1980, établie à partir des mesures effectuées par l'IRSN et par COGEMA dans le cadre du suivi de l'impact environnemental des rejets (figure 2-22 et annexe A2), montre des valeurs qui, même caractérisées par une certaine variabilité, restent globalement de l'ordre de 0,30. Cette compilation aboutit ainsi à un rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ moyen de $0,29 \pm 0,15$. Il faut noter cependant que ce rapport tend à baisser depuis le début des années 1990 (figure 2-23), sans doute en raison de la baisse des rejets suite à l'installation de la station de traitement des effluents liquides (STEL) de Marcoule, diminuant l'influence de l'usine à l'aval (*Lambrechts et al., 1995; 1996 b ; Lambrechts et Duffa, 1998*).

Calcul de contribution avec le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$:

La méthode d'estimation de la remobilisation sédimentaire en aval du centre de Marcoule aux flux de plutonium vers la Méditerranée se base sur une équation de mélange entre les apports particuliers marqués par les retombées atmosphériques globales ($^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu} \approx 0,03$), et les stocks sédimentaires contaminés par du plutonium issu de Marcoule ($^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu} \approx 0,30$). La formulation mathématique de cette équation de mélange, tirée de *Duffa (2001)*, est la suivante :

$$\left[\frac{{}^{238}\text{Pu}}{{}^{239+240}\text{Pu}} \right]_{\text{Arles}} = \frac{\binom{238}{\text{Pu}}_M + \binom{238}{\text{Pu}}_{BV}}{\binom{239+240}{\text{Pu}}_M + \binom{239+240}{\text{Pu}}_{BV}}$$

$$\left[\frac{{}^{238}\text{Pu}}{{}^{239+240}\text{Pu}} \right]_{\text{Arles}} = \frac{\left(\left[\frac{{}^{238}\text{Pu}}{{}^{239+240}\text{Pu}} \right]_M \cdot \binom{239+240}{\text{Pu}}_M \right) + \left(\left[\frac{{}^{238}\text{Pu}}{{}^{239+240}\text{Pu}} \right]_{BV} \cdot \binom{239+240}{\text{Pu}}_{BV} \right)}{\binom{239+240}{\text{Pu}}_M + \binom{239+240}{\text{Pu}}_{BV}}$$

$$\left[\frac{{}^{238}\text{Pu}}{{}^{239+240}\text{Pu}} \right]_{\text{Arles}} = \left[\frac{{}^{238}\text{Pu}}{{}^{239+240}\text{Pu}} \right]_M \cdot \left(\frac{\binom{239+240}{\text{Pu}}_M}{\binom{239+240}{\text{Pu}}_M + \binom{239+240}{\text{Pu}}_{BV}} \right) + \left[\frac{{}^{238}\text{Pu}}{{}^{239+240}\text{Pu}} \right]_{BV} \cdot \left(\frac{\binom{239+240}{\text{Pu}}_{BV}}{\binom{239+240}{\text{Pu}}_M + \binom{239+240}{\text{Pu}}_{BV}} \right)$$

$$\boxed{\left[\frac{{}^{238}\text{Pu}}{{}^{239+240}\text{Pu}} \right]_{\text{Arles}} = x \cdot \left[\frac{{}^{238}\text{Pu}}{{}^{239+240}\text{Pu}} \right]_M + (1-x) \cdot \left[\frac{{}^{238}\text{Pu}}{{}^{239+240}\text{Pu}} \right]_{BV}} \quad (4)$$

$$\text{avec } x = \frac{\binom{239+240}{\text{Pu}}_M}{\left[\binom{239+240}{\text{Pu}}_M + \binom{239+240}{\text{Pu}}_{BV} \right]}$$

et M et BV indiquant respectivement Marcoule et le lessivage des retombées sur le Bassin Versant comme origine du plutonium.

Dans l'équation (1), x représente donc la proportion de ${}^{239+240}\text{Pu}$ originaire de Marcoule :

$$x \times 100 = \% \binom{239+240}{\text{Pu}}_M = \frac{R_{\text{Arles}} - R_{\text{BV}}}{R_M - R_{\text{BV}}} \times 100 \quad (5)$$

$$\text{avec } R = \frac{{}^{238}\text{Pu}}{{}^{239+240}\text{Pu}}$$

La proportion de ${}^{238}\text{Pu}$ originaire du centre de Marcoule est alors donnée par l'équation suivante :

$$\% \binom{238}{\text{Pu}}_M = \% \binom{239+240}{\text{Pu}}_M \times \frac{R_M}{R_{\text{Arles}}} \quad (6)$$

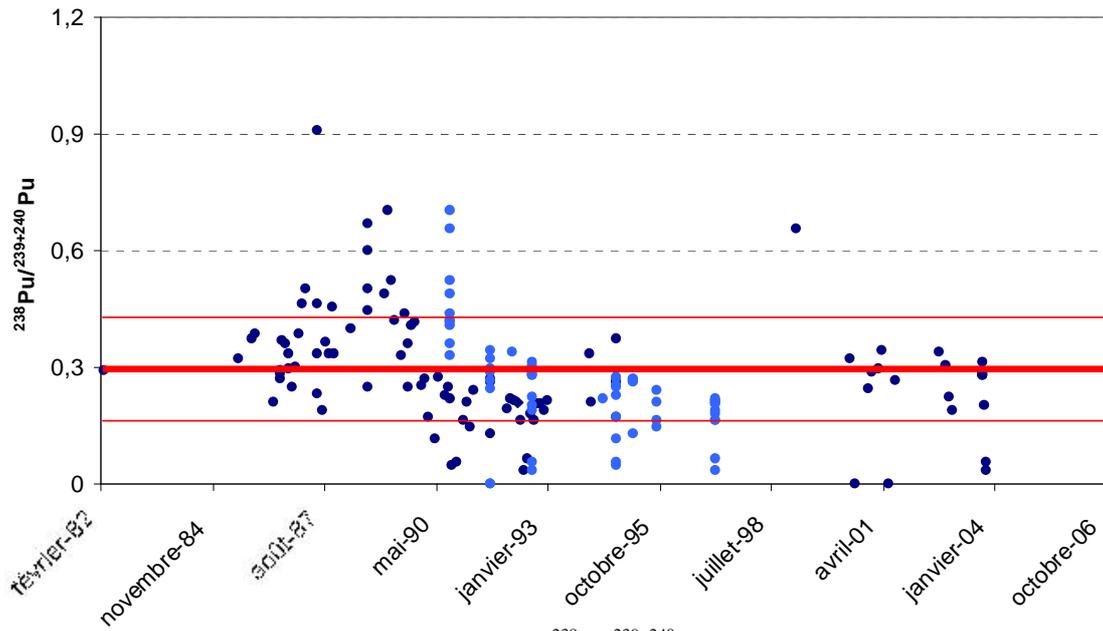


Figure 2-22. Chronique des résultats des rapports $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ mesurés par la COGEMA et l'IRSN dans les sédiments du Rhône en aval de Marcoule de 1979 à nos jours. Les points bleus foncés représentent les données acquises par COGEMA, les points bleus clairs par l'IRSN. Les droites rouges représentent le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ moyen et l'écart type associé calculés à partir de ces mesures ($0,29 \pm 0,15$).

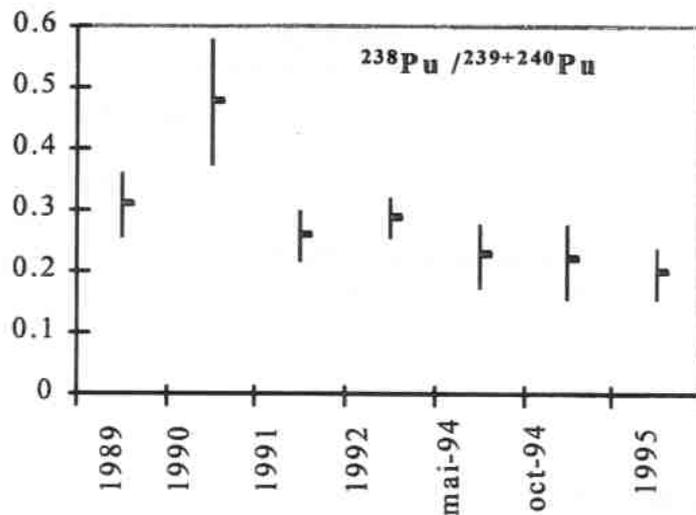


Figure 2-23. Evolution du rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les sédiments prélevés de Marcoule à Fourques de 1989 à 1995 (figure publiée dans *Lambrechts et Duffa, 1998*).

En considérant donc $R_M=0,30$ et $R_{BV}=0,03$, la figure 2-24 représente l'évolution de la contribution en Arles des isotopes ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ originaires du centre de Marcoule. Cette méthode d'estimation de la contribution des stocks sédimentaires de plutonium de Marcoule n'a été utilisée dans ce travail que pour les débits du Rhône supérieurs à $4000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, c'est à dire lors des périodes de crue, durant lesquelles le centre de Marcoule n'est pas autorisé à rejeter. Lors de ces périodes, le seul terme source possible de radioactivité artificielle originaire du centre de Marcoule ne pouvait donc être représenté que par la remobilisation des stocks.

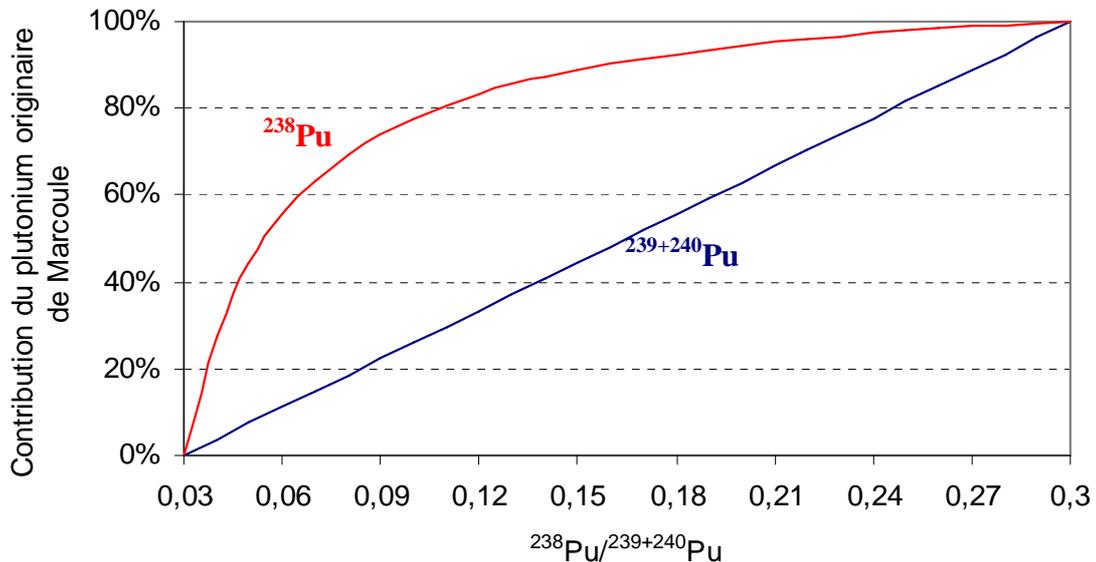


Figure 2-24. Contributions en Arles du ^{238}Pu et du $^{239+240}\text{Pu}$ originaire du centre de Marcoule, calculées en fonction du rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ des apports issus du lessivage des retombées globale (0,03) et du rapport issu des rejets de Marcoule (0,30).

2.9.3.2. Le rapport isotopique $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$

Le développement de la spectrométrie de masse a permis de mesurer indépendamment les isotopes du plutonium ^{239}Pu et ^{240}Pu , ce qui n'est pas possible avec la technique de mesure par spectrométrie alpha ($^{239+240}\text{Pu}$). Les techniques de spectrométrie de masse à thermo-

ionisation (TIMS) et de spectrométrie de masse par accélération (AMS) ont été les premières à permettre de différencier le ^{239}Pu du ^{240}Pu . Si ces instruments permettent des mesures précises à très bas niveaux de concentration, ils sont cependant très chers, et nécessitent un personnel hautement qualifié ainsi que des protocoles de préparations des échantillons relativement longs et complexes. Permettant des mesures relativement faciles à mettre en œuvre et rapides à exécuter, la technique de spectrométrie de masse couplée à un plasma par induction (ICPMS) représente alors une bonne alternative, malgré une précision plus faible (Bruneau, 1999; Agarande et al., 2004).

Dans le cadre de ce travail, nous avons eu la possibilité d'effectuer un certain nombre de mesure par ICPMS sur des échantillons de MES du Rhône, ce qui a permis de déterminer le rapport $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$. Ce rapport de masse peut être utilisé dans l'environnement pour différencier le plutonium originaire des retombées globales d'autres sources locales ou régionales (Dasher et al., 2002), comme par exemple le plutonium industriel du centre de Marcoule. La composition isotopique en ^{239}Pu et ^{240}Pu des retombées globales est une conséquence complexe à la fois du type d'arme nucléaire testée, des processus physiques et chimiques qui se produisent durant l'explosion et des processus de transport atmosphérique (Eisenbud et Gesell, 1997 b). Néanmoins, le rapport de masse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ moyen caractéristique des retombées globales, sans tenir compte des rapports régionaux déterminés près des sites d'essais ou d'accidents nucléaires, a été évalué à $0,176\pm 0,014$ par Krey et al. (1976). Une ré-estimation des travaux de ces auteurs a récemment été proposée par Kelley et al. (1999) qui ont proposé des rapports moyens en fonction de la latitude. Selon eux, le rapport $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ moyen actuel pour les latitudes comprises entre 30° et 71° N est de $0,180\pm 0,014$, que nous prendrons comme valeur de référence dans ce travail.

Contrairement au rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, aucune étude ne s'est jusqu'à présent intéressée à ce rapport de masse en aval du centre de Marcoule, et il n'existe donc pas de valeur caractéristique pour les rejets du centre de Marcoule. Un des enjeux de ce travail sera donc d'étudier, par exemple à partir des prélèvements effectués hors périodes de crue en Arles, si l'influence du centre de Marcoule permet de définir actuellement une telle valeur caractéristique. Si cela est possible, nous nous intéresserons à voir dans quelle mesure le rapport $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ pourra être utilisé pour tracer la remobilisation sédimentaire des stocks de radioactivité artificielle en aval de Marcoule.

2.10. Estimation des temps de résidence

S'il existe bien des stocks sédimentaires de radioactivité originaire de Marcoule, un des objectifs de ce travail sera de pouvoir déterminer leur temps de résidence avant leur remobilisation. Etant donné leur potentiel à tracer les matières particulaires, les radionucléides naturels d'origine atmosphérique ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ constituent un outil de mise en évidence de la remobilisation de ces stocks. De plus, ces deux radionucléides, été choisis en fonction de leurs périodes radioactives différentes (respectivement 54 jours et 21 ans) offrent des possibilités d'investigation différentes. Avec une période radioactive courte, le suivi du ^7Be en Arles comparé à celui effectué en amont des rejets du centre de Marcoule pourrait en effet permettre de caractériser la remobilisation de stocks sédimentaires formés récemment, dans l'année précédant leur remobilisation (quelques mois à quelques années). De la même façon, la décroissance radioactive du $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ pourrait mettre en évidence la remobilisation de stocks plus anciens, formés par exemple avant 1990 lorsque le centre de Marcoule rejetait jusqu'à cent fois plus qu'aujourd'hui.

En parallèle, nous étudierons la possibilité d'estimer ces temps de résidence en établissant des bilans entre les quantités de radionucléides accumulés et remobilisés annuellement. Nous verrons dans quelles mesures cette méthode permettra, d'une part de proposer des âges relatifs pour les stocks remobilisés lors des événements de crue de la période d'étude, d'autre part d'établir des prévisions quant au temps nécessaire au système Marcoule-Arles afin d'évacuer la totalité des stocks de césium 137 et de plutonium accumulés en son sein à partir des rejets de Marcoule.

3-ESTIMATION DES FLUX ACTUELS

3. Estimation des flux actuels

L'objectif de cette partie est d'estimer les flux vers la mer Méditerranée des radionucléides artificiels ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$. La détermination des flux de radionucléides artificiels vers la Méditerranée s'inscrit, d'une part, dans l'étude de l'impact de l'évolution des termes sources de radioactivité artificielle sur l'environnement rhodanien et, à plus grande échelle, sur le milieu méditerranéen nord occidental. Les valeurs de flux obtenues permettront en particulier d'évaluer l'impact de la diminution importante des rejets du centre de Marcoule sur les exports ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ vers la Méditerranée.

D'autre part, les valeurs de flux obtenues permettront de déterminer quelle peut être la contribution des crues à ces flux. *Pont et al. (2002)* ont déterminé les flux moyens annuels de matières en suspension (MES) du Rhône vers la Méditerranée pour la période 1967-1996. Durant cette période, les événements de crues ont contribué pour 77% du transport total de MES. De la même façon, les travaux sur les transferts fluviaux de MES dans les bassins versants Adour-Dordogne-Garonne (France), publiés dans *French IGBP-WCRP News Letter (2000)*, montrent que près de 70% du transport de MES par le fleuve Garonne et les rivières Adour et Nivelle sont assurés durant les événements de crues de ces cours d'eau. Suite au constat de la contribution des événements de crues aux flux annuels de MES, nous posons donc la question de la contribution des crues aux flux de contaminants à l'état de trace, qui ont pour la plupart une forte affinité pour les matières solides.

Dans cette partie de la thèse, nous déterminerons aussi les flux des radionucléides naturels ^7Be et ^{210}Pb en excès ($^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$), étant donné leur intérêt en tant que traceurs des apports rhodaniens en Méditerranée. Les radionucléides ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ sont en effet connus pour leur potentiel à tracer les processus de transfert de la matière particulaire (*Zapata, 2003 ; Ciffroy et al., 2003 ; Caillet et al., 2001*). Une présentation plus approfondie de ces deux radionucléides est faite en Annexe 3.

Dans le cadre de ce travail, les flux représentent des activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et ^{210}Pb exportées par unité de temps par le Rhône vers la Méditerranée. L'objectif est de proposer des estimations de flux annuel d'exportation, et des valeurs de contribution annuelle des crues, pour chacun des radionucléides ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et ^{210}Pb lors des années 2002 à 2004.

En milieu aquatique, ces radionucléides se présentent principalement sous forme dissoute et particulaire. Le calcul du flux total intègre donc ces deux composantes :

$$\text{Flux total (F}_{\text{total}}) = \text{Flux particulaire (F}_{\text{part}}) + \text{Flux dissous (F}_{\text{dissous}}) \quad (7)$$

L'estimation du flux particulaire d'un radionucléide nécessite de connaître l'activité particulaire A_{part} (Bq.kg^{-1}) du radionucléide associée aux matières en suspension (MES), la charge solide en suspension CSS (kg.l^{-1}) et le débit du fleuve Q (m^3 par unité de temps). Le flux particulaire se calcule dès lors suivant l'équation :

$$F_{\text{part}} = A_{\text{part}} \cdot \text{CSS} \cdot Q \quad (8)$$

L'estimation des flux de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et ^{210}Pb sous forme particulaire fera l'objet du paragraphe 3.1.

L'estimation du flux dissous nécessite quant à lui de connaître l'activité A_{dissous} du radionucléide sous forme dissoute (Bq.l^{-1}) et le débit Q du fleuve :

$$F_{\text{dissous}} = A_{\text{dissous}} \cdot Q \quad (9)$$

Durant cette étude, aucune mesure d'activité en ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et ^{210}Pb sous forme dissoute n'a pu être effectuée. Des mesures de ^{137}Cs dissous ont été possibles mais seulement sur une vingtaine d'échantillons ce qui n'a pas permis de constituer un suivi complet. Les flux dissous de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et ^{210}Pb ne seront donc pas évalués dans ce travail selon l'équation (9). Les estimations de flux totaux des radionucléides ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et ^{210}Pb seront néanmoins déterminées en tenant compte de la contribution du transport particulaire (CTP) au flux total (particulaire plus dissous) vers la Méditerranée. L'estimation de la CTP ne nécessite pas de connaître les flux dissous. L'estimation de la CTP aux flux de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et ^{210}Pb fera l'objet du paragraphe 3.2.

De la connaissance des flux sous forme particulaire et de la CTP seront donc déduits, dans le paragraphe 3-3, les flux totaux de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et ^{210}Pb :

$$F_{\text{total}} = F_{\text{part}} / \text{CTP} \quad (10)$$

Les résultats de flux totaux des radionucléides artificiels ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ vers la Méditerranée seront enfin discutés dans le paragraphe 3-4, et mis en perspective en fonction de l'évolution temporelle des termes sources de radioactivité artificielle dans le Rhône aval, en particulier celui du centre de Marcoule.

3.1. Estimation des flux particulières de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et ^{210}Pb

3.1.1. Méthode d'estimation des flux

3.1.1.1. Description de la méthode

Les difficultés d'échantillonnage des MES rencontrées dans ce travail n'ont pas permis d'obtenir des prélèvements selon un mode intégré par rapport au temps mais des prélèvements ponctuels ont été effectués, au rythme d'un prélèvement bimensuel hors période de crues, et d'au moins un prélèvement journalier lors des crues. Cette fréquence de prélèvement constitue ce que l'on appelle dans ce travail le suivi en Arles sur la période d'étude, de septembre 2002 à novembre 2004.

Ces prélèvements ponctuels ont été considérés comme non représentatifs de la période séparant deux prélèvements successifs. Au lieu d'utiliser une méthode d'estimation des flux basée sur l'extrapolation des mesures du suivi, il a donc été décidé d'y préférer une méthode basée sur l'établissement, pour chaque radionucléide étudié, d'une corrélation entre les mesures d'activité et le débit du Rhône. Pour établir cette corrélation, il est nécessaire d'exprimer l'activité des MES sous la forme du produit $[A_{\text{part}} \cdot \text{CSS}]$ afin de tenir compte de l'influence de la CSS sur l'activité exportée sous forme particulière. Ce produit est exprimé en Bq.l^{-1} .

La méthode d'estimation des flux repose alors sur plusieurs étapes (figure 3-1):

- Etape 0 : détermination de la régression activité-débit à partir des résultats obtenus.

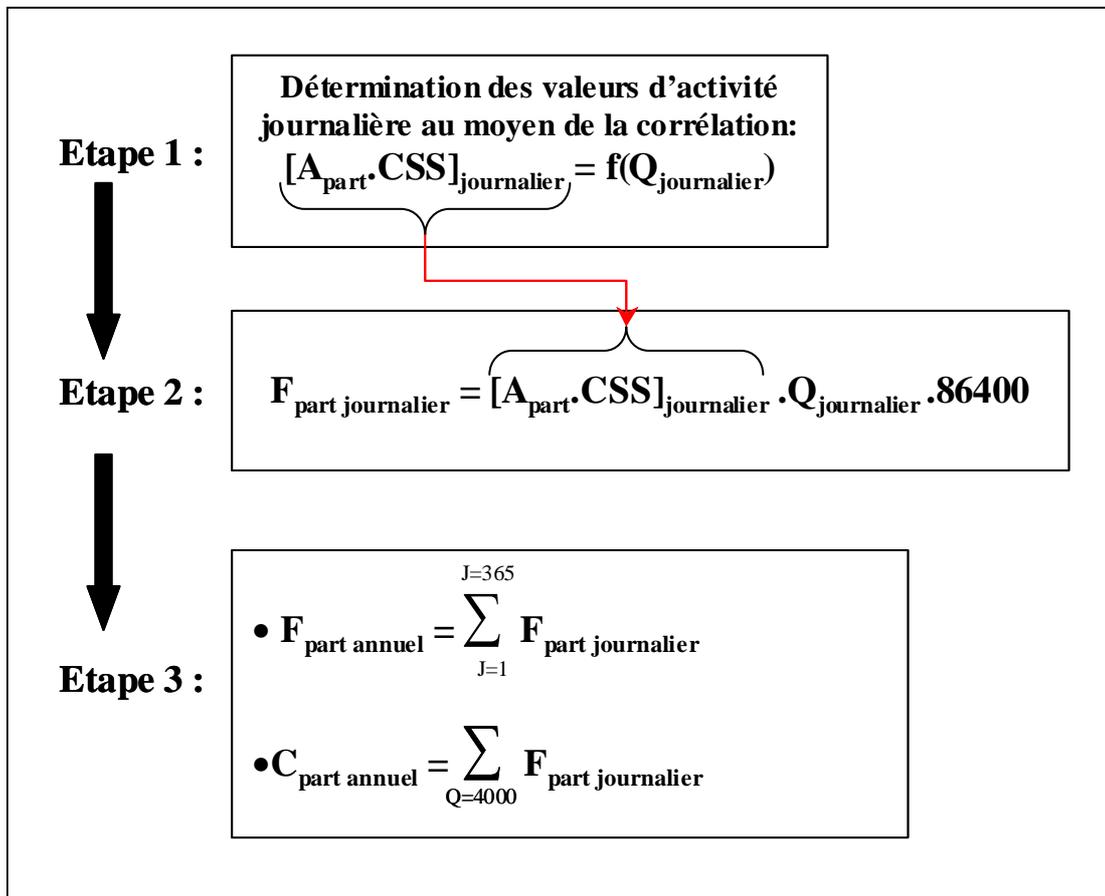


Figure 3-1. Principales étapes du calcul des flux de radionucléides associés à la phase particulaire.

- Etape 1 : à partir de la régression activité-débit est déduite une valeur $[A_{\text{part.CSS}}]_{\text{journalier}}$ de l'activité associée à la phase particulaire pour chaque jour de la période d'étude, grâce à la chronique des débits moyens journaliers du Rhône en Arles sur la période d'étude (2002-2004).
- Etape 2 : chaque valeur d'activité journalière des MES obtenue est multipliée par le débit moyen journalier $Q_{\text{journalier}}$ correspondant. Cette étape correspond à l'application de l'équation (8). Les valeurs de débit moyen journalier étant exprimées en $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, afin d'obtenir des valeurs de flux moyens journaliers, il est nécessaire pour chaque jour de la période d'étude de multiplier le résultat par 86400 secondes.
- Etape 3 : Les valeurs de flux moyens journaliers sont additionnées afin d'obtenir une estimation du flux particulaire annuel ($F_{\text{part annuel}}$) du radionucléide étudié sous forme particulaire. Afin d'obtenir la valeur de la contribution des crues au flux annuel particulaire ($C_{\text{part annuel}}$), les flux journaliers calculés pour les jours caractérisés par un débit moyen journalier supérieur à $4000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ sont comptabilisés indépendamment.

3.1.1.2. Validité de la méthode

Cette méthode basée sur la détermination d'une régression entre une concentration et le débit d'un cours d'eau est souvent utilisée dans le cadre de travaux s'intéressant aux flux des matériaux particulaires et des contaminants associés. Il a ainsi été montré que la charge solide en suspension (CSS) d'une rivière ou d'un fleuve suivait le plus souvent une loi du type :

$$\text{CSS} = a.Q^b \quad (11)$$

avec Q le débit liquide et a et b des coefficients propres au cours d'eau étudié. Malgré le fait que la CSS puisse varier autrement que suivant les variations de débit, par exemple suivant la diversité des événements de crue qui peuvent animer un fleuve comme le Rhône, la détermination de ce type de corrélation permet de dresser une relation globale spécifique du cours d'eau étudié, avec laquelle il est possible d'estimer des flux solides à partir des chroniques de débit du cours d'eau en question. *Pont et al, (2002)*, qui ont suivi la CSS du Rhône en Arles sur la période 1993-1995, ont ainsi établi la relation suivante :

$$\log\text{CSS} = 1,749.\log Q - 3,915 \quad (R^2 = 0,72 ; n=521) \quad (12)$$

avec laquelle ils purent estimer un flux solide moyen annuel de 7,4 millions de tonnes vers la mer Méditerranée, en se basant sur la chronique des débits moyens journaliers à Beaucaire sur la période 1967-1996.

Concernant les flux de radionucléides associés à la phase particulaire, il est possible de dresser le même type de régression en corrélant les activités des radionucléides sous la forme du produit [$A_{\text{part}} \cdot \text{CSS}$] avec le débit au moyen de régressions non linéaires simples. C'est ce qu'ont fait par exemple *Matsunaga et al. (1991 et 1995)* afin de déterminer les flux de ^{137}Cs , de ^7Be et de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ dans la rivière Kuji au Japon. *Dominik et al. (1987)*, qui ont effectué le même type d'étude sur un sous bassin versant alpin du Rhône, justifient le choix de cette méthode en avançant que la variabilité de la CSS en fonction du débit influe de façon prépondérante sur la variabilité du produit [$A_{\text{part}} \cdot \text{CSS}$], par rapport à la variabilité de l'activité particulaire A_{part} des radionucléides ^{137}Cs , ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ associés aux MES, ce qu'ils confirment par la suite dans leur étude. Dans la problématique d'estimation des flux de

radionucléides artificiels du Rhône vers la Méditerranée, *Thomas (1997)* a ainsi établi de telles régressions pour le ^{137}Cs et le $^{239+240}\text{Pu}$ et le débit du Rhône, de même que *Eyrolle et al. (2004)* qui ont estimé les exports annuels des isotopes du plutonium ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ à la mer de 1945 à 2000 en se basant sur des régression du type $[A_{\text{part. CSS}}] = a.e^{bQ}$.

Bien que, comme nous le verrons, la variabilité des activités particulières des MES peut influencer de façon significative sur la qualité des régressions, il semble toutefois qu'en l'absence de mesure de flux intégrée par rapport au temps, l'utilisation de régressions entre les activités mesurées et le débit soit la méthode la plus adéquate afin d'estimer les flux moyens à la mer.

3.1.2. Les résultats du suivi en Arles

Dans ce paragraphe sont présentés les résultats acquis tout au long du suivi en Arles de la CSS et des activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et ^{210}Pb associés aux MES. Nous insisterons sur les facteurs de variabilité auxquels ces résultats ont été soumis et qui affecteront nécessairement la qualité des estimations de flux.

3.1.2.1. La Charge Solide en Suspension (CSS)

Les résultats de mesures de la CSS obtenus en Arles durant les trois années de la période d'étude (2002 à 2004) sont reportés en Annexe A4. La figure 3-2 représente l'évolution de la CSS en fonction du débit. La CSS a varié de 2 à 3689 mg.l^{-1} avec la valeur la plus basse obtenue durant la canicule d'août 2003 et la valeur la plus forte obtenue quelques heures avant le pic de la crue de décembre 2003. Hors période de crue (débit $< 4000 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$), la CSS a été comprise entre 2 et 90 mg.l^{-1} . En période de crue (débit $> 4000 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$), elle a été comprise entre 63 et 3689 mg.l^{-1} .

Si la CSS augmente globalement avec le débit selon une régression non linéaire de type $[y=a.x^b]$ (figure 3-2 a), elle est néanmoins caractérisée par une grande variabilité. Etant donné que l'importance du transport solide est fortement liée à l'occurrence des évènements de crues (*Pont et al., 1992 ; French IGBP-WCRP News Letter, 2000 ; Antonelli, 2002*), il sera

principalement discuté dans ce paragraphe de l'influence de la variabilité de ces évènements sur la CSS du Rhône.

Sur la figure 3-2 b) sont discrétisés les cinq évènements de crues suivis lors de la période d'étude. La variabilité de la CSS lors des périodes de crues est liée à la fois à l'origine et à la typologie des évènements des crues, et à la chronologie de ces évènements entre eux. Concernant l'influence de l'origine des crues sur le transport sédimentaire rhodanien, *Pont et al. (2002)* ont montré que les évènements de crues de type méditerranéen étaient caractérisés par des capacités de transport des matériaux particuliers plus importantes que les autres types de crues. *Pont et Bombled (1995)* ont ainsi proposé un modèle « débit-CSS-origine des crues » faisant intervenir cette caractéristique des crues méditerranéennes par rapport aux crues océaniques (figure 3-3). Cette capacité de transport particulière lors des crues à caractère méditerranéen a été confirmée durant notre période d'étude par les valeurs atteintes par la CSS durant les évènements de crues 1, 2, 3 et 5 (figure 3-2 b).

La violence et l'ampleur des évènements exceptionnels 1, 2 et 3 sont certainement à l'origine des valeurs importantes de CSS. Par contre, l'évènement 5 illustre un autre processus, à savoir l'importance de la chronologie des évènements de crue. En effet, les fortes valeurs de CSS atteintes durant l'évènement 5, de l'ordre de celles mesurées pour des débits doubles lors des autres crues (tableau 3-1), ont probablement été la conséquence du fait que cet évènement fut le tout premier de l'automne 2004. Il est ainsi probable que les premiers évènements d'une période de crue remobilisent une grande partie du matériel particulaire accumulé précédemment. La succession de deux pics lors de la crue de novembre 2002 serait alors la raison de la différence de la CSS de plus d'un facteur 2 lors de ces deux pics (tableau 3-1), sans doute due à un épuisement des stocks sédimentaires remobilisés durant le premier pic (évènement 1 du tableau 2-1). Ce processus d'épuisement des stocks sédimentaires disponibles est aussi connu comme étant la cause principale de l'effet d'hystérésis qui peut caractériser l'évolution de la CSS durant un évènement de crue. Cet effet, qui représente un facteur de variabilité intra-évènement de la CSS, a en effet été observé sur plusieurs fleuves et rivières dont le Rhône (*Asselman et al., 1999; Steegen et al., 2000; Picouet et al., 2001*) et a été observé dans ce travail lors du premier pic de la crue de novembre 2002 et lors de la crue de décembre 2003 (évènement 2 et 3 du tableau 2-1).

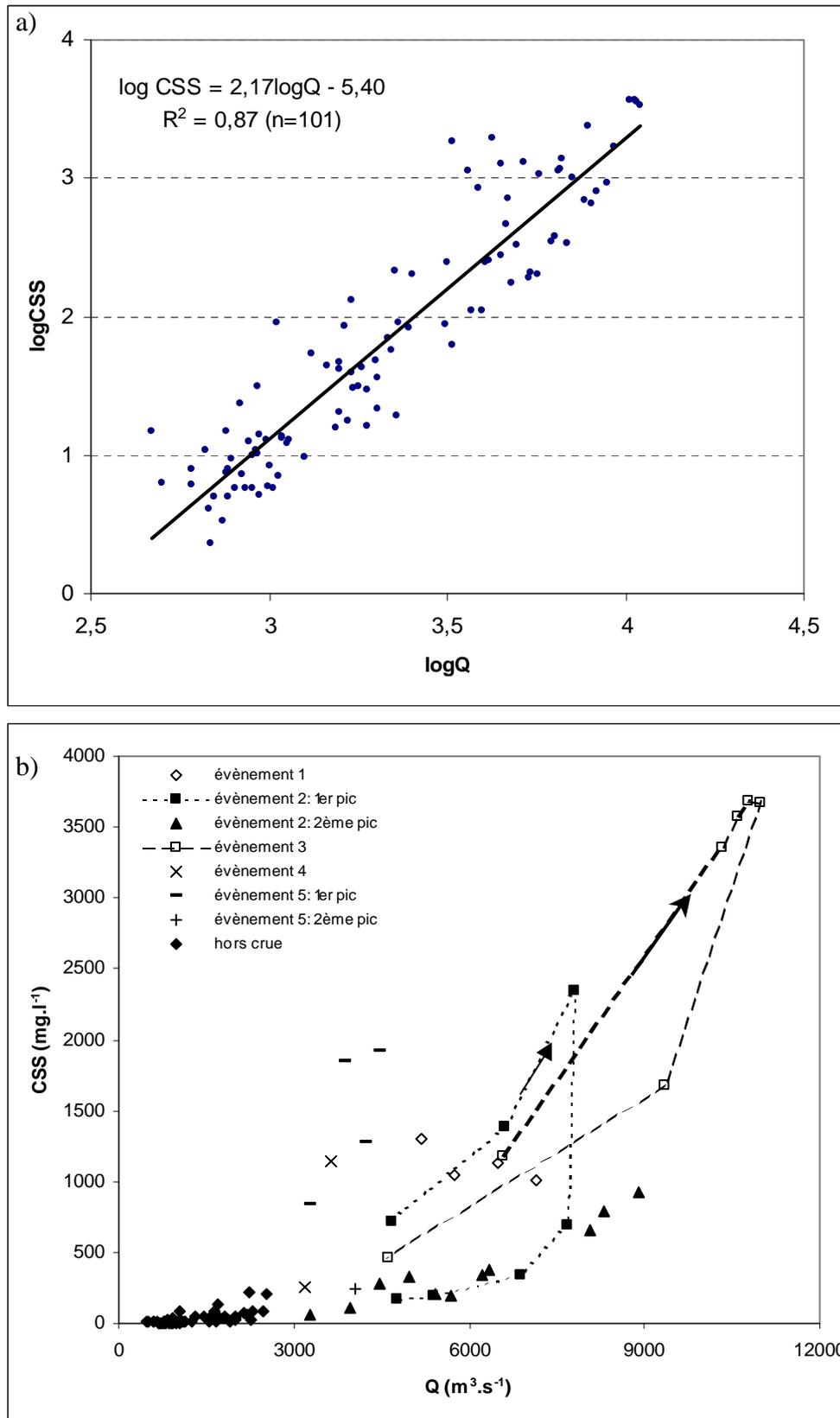


Figure 3-2. Evolution de la charge solide en suspension (CSS) en fonction du débit du Rhône (Q) en Arles. a) Corrélation CSS-débit au moyen d'une régression linéaire simple après transformation logarithmique des deux variables. b) Discretisation des différents événements de crues suivis pendant la période d'étude ; la numérotation des événements fait référence au tableau 4-1 ; les flèches indiquent le sens des deux cycles d'hystérésis observés lors des crues de la période d'étude.

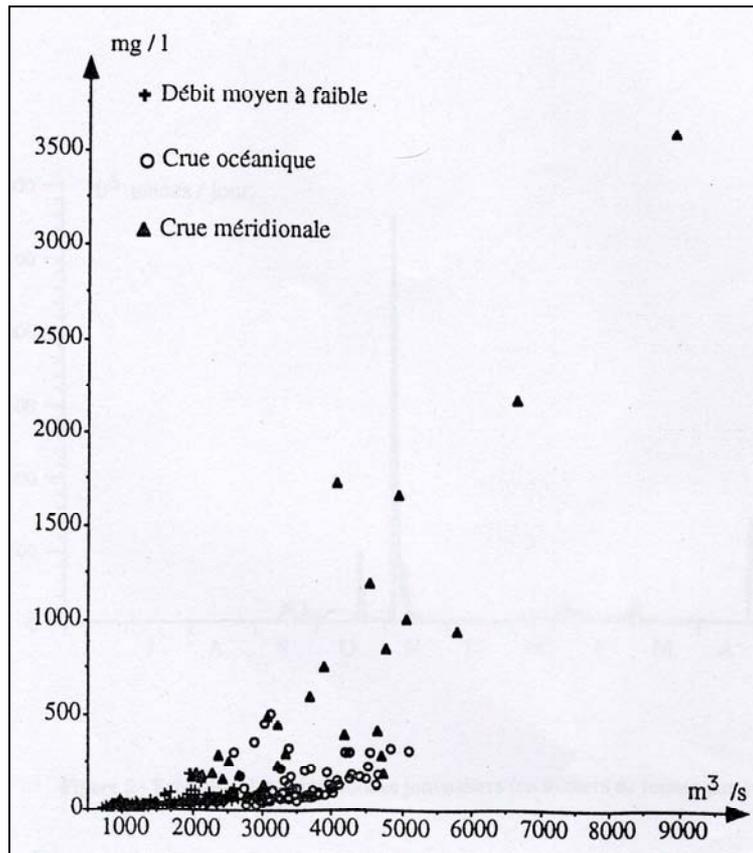


Figure 3-3. Variabilité de la charge solide en suspension en fonction de l'origine hydro-sédimentaire des crues (figure publiée dans Pont et Bombléd, 1995 et Pont, 1997).

Tableau 3-1. Valeurs de CSS mesurées durant les pics de crue successifs des évènements 2 (novembre 2002, tableau 2-1) et 5 (octobre 2004). Sont aussi notées, pour comparaison, les valeurs moyennes obtenues à partir de toutes les mesures effectuées lors de cette étude pour les débits compris entre 4000 et 5000 m³.s⁻¹, et entre 7000 et 9000 m³.s⁻¹.

	Evènement 2		CSS moyenne lors de cette étude	Evènement 5		CSS moyenne lors de cette étude
	1 ^{er} pic (17/11/2002)	2 ^{ème} pic (26/11/2002)		1 ^{er} pic (29/10/2004)	2 ^{ème} pic (05/11/2004)	
Débit Q lors du prélèvement (m ³ .s ⁻¹)	7814	8897	7000<Q<9000	4462	4046	4000<Q<5000
CSS (mg.l ⁻¹)	2349	925	1072	1922	245	630

Finalement, le suivi mis en place en Arles durant les trois années de la période d'étude a permis de caractériser la variabilité dont la CSS pouvait être le sujet, en particulier lors des périodes de crue du Rhône. Si, globalement, il est possible de différencier des gammes de valeurs de CSS en fonction de l'origine des crues selon le modèle de *Pont et Bombled (1995)*, d'autres facteurs tels que l'épuisement des stocks sédimentaires dû à la succession des évènements de crue et les effets d'hystérésis que l'on peut observer durant ces évènements sont autant de facteurs de variabilité de la CSS, non pris en compte dans les modèles de prédiction de la CSS proposés actuellement. *Antonelli (2002)* avait, d'ailleurs, déjà mis l'accent sur la complexité des processus d'apport de matériel particulaire en fonction, à la fois, de l'origine souvent plurielle des crues, et de leur chronologie. Dans le cadre de la présente étude, cette variabilité influera nécessairement sur les valeurs d'estimation des flux de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ et représentera, comme nous le verrons, le plus important facteur d'incertitude lié à ces estimations.

3.1.2.2. Les activités particulières de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ dans les MES

Les résultats de mesures des radionucléides artificiels ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$, et naturels ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ associés aux échantillons de MES prélevés durant les trois années de la période d'étude sont reportés en Annexe A4, et leur évolution en fonction du débit est illustrée par la figure 3-4. L'étude de cette évolution montre globalement un comportement similaire des cinq radionucléides étudiés en fonction du régime hydraulique du fleuve. Ce comportement est caractérisé par une variabilité importante lors des périodes de faible activité hydrologique, par rapport aux périodes de crue durant lesquelles on observe une baisse globale des niveaux d'activité et une diminution importante de la variabilité. Il semble donc que les radionucléides ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ aient des comportements différents hors périodes de crues et en périodes de crues. Bien que, dans le cadre de cette étude, nous attachions une importance particulière aux évènements de crues et à leur contribution aux flux de radionucléides vers la Méditerranée, il est donc intéressant de discuter des résultats acquis d'une part hors périodes de crues et d'autre part en périodes de crues.

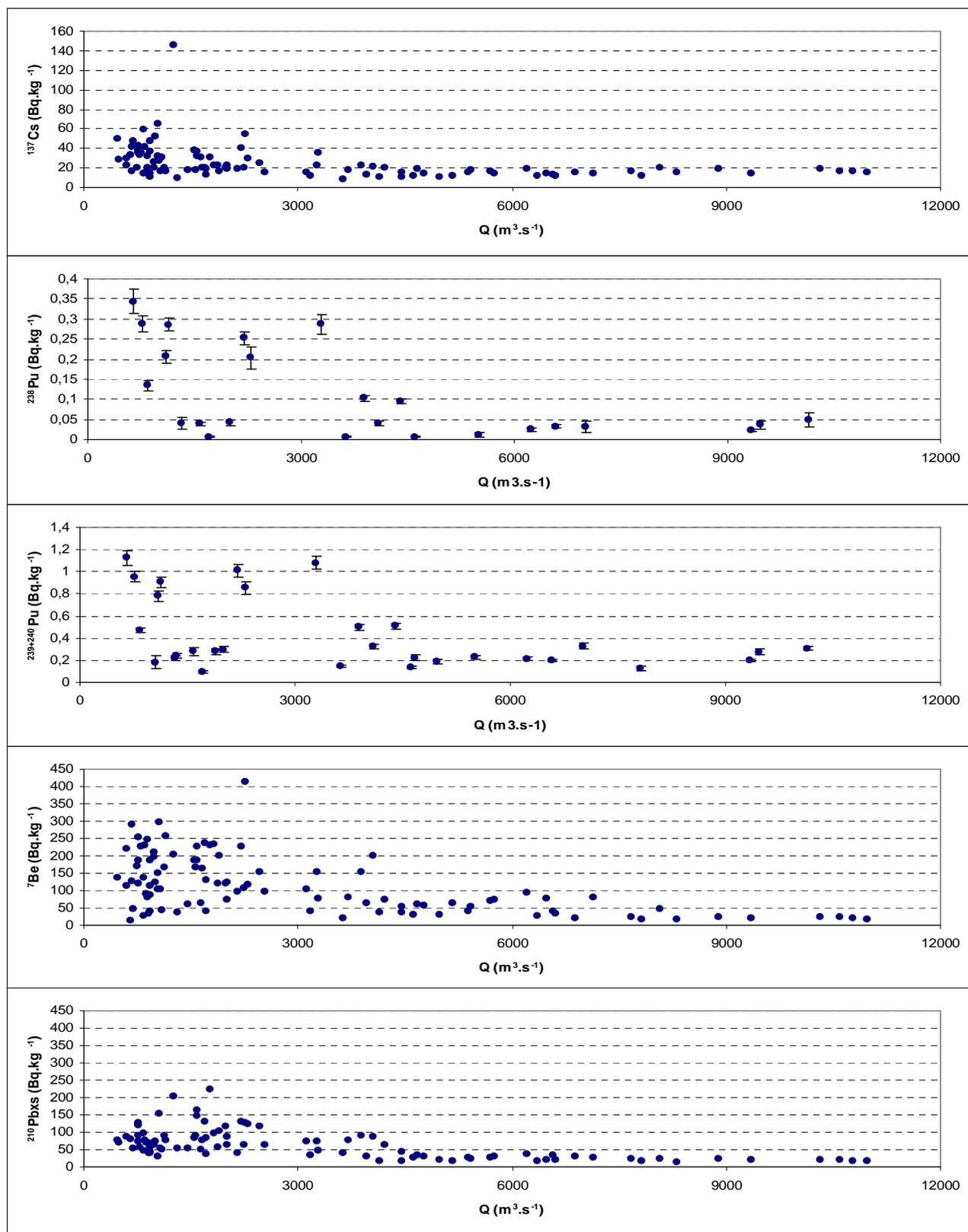


Figure 3-4. Activités massiques des radionucléides artificiels ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$, et naturels ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ mesurés sur les échantillons de matières en suspension prélevés en Arles durant la période d'étude.

3.1.2.2.1. Activités particulières hors périodes de crues

Hors période de crues, les activités moyennes et les écarts types associés pour le ^{137}Cs , le ^{238}Pu , le $^{239+240}\text{Pu}$, le ^7Be et le $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ont été respectivement de $30\pm 20 \text{ Bq.kg}^{-1}$, $0,155\pm 0,113 \text{ Bq.kg}^{-1}$, $0,534\pm 0,356 \text{ Bq.kg}^{-1}$, $150\pm 80 \text{ Bq.kg}^{-1}$ et $85\pm 41 \text{ Bq.kg}^{-1}$. Les activités mesurées sont caractérisées par une variabilité importante qui s'explique différemment suivant l'origine des radionucléides. Concernant les radionucléides artificiels ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$, cette variabilité s'explique essentiellement par celle des rejets liquides du centre de Marcoule. En effet, si la fréquence de rejets est relativement régulière (un à deux rejets par semaine en moyenne), les activités en ^{137}Cs et en plutonium rejetées sont par contre très variables d'un rejet à l'autre (variabilité sur trois ordres de grandeur comme l'illustre la figure 3-5).

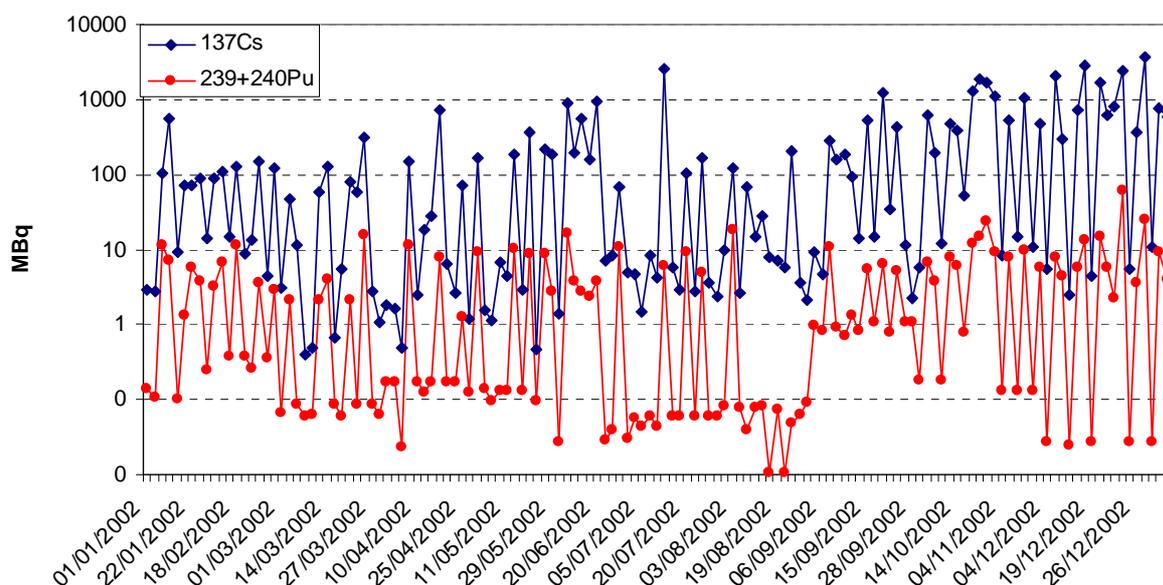


Figure 3-5. Fréquence des activités en ^{137}Cs et $^{239+240}\text{Pu}$ rejetées en 2002 par le centre de Marcoule (Rapport COGEMA, Contrôle des rejets du site, 4^{ème} trimestre 2002).

D'après *Dominik et al. (1987)*, la variabilité des activités observée pour les radionucléides naturels ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ peut s'expliquer à la fois par l'hétérogénéité des sols du bassin versant et par la variabilité saisonnière de la capacité d'érosion et de transport du fleuve qui les affecte. En outre, la courte période radioactive du ^7Be ne permet pas le lissage de son activité avec le temps d'où, selon *Matsunaga et al. (1995)*, une dépendance plus grande par rapport à des événements stochastiques tels que l'occurrence d'évènements pluvieux plus ou moins intenses.

3.1.2.2.2. Activités particulières en périodes de crues

Durant les périodes de crues, les activités massiques moyennes et les écarts types associés pour le ^{137}Cs , le ^{238}Pu , le $^{239+240}\text{Pu}$, le ^7Be et le $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ont été respectivement de $15\pm 3 \text{ Bq.kg}^{-1}$, $0,040\pm 0,025 \text{ Bq.kg}^{-1}$, $0,264\pm 0,103 \text{ Bq.kg}^{-1}$, $55\pm 41 \text{ Bq.kg}^{-1}$ et $34\pm 21 \text{ Bq.kg}^{-1}$. Ces moyennes ont été calculées à partir des données obtenues pour des débits supérieurs à $4000 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$ afin de ne prendre en compte que les échantillons non soumis aux rejets directs du centre de Marcoule. Globalement, la diminution des niveaux d'activité lors des évènements de crues est probablement due à des flux de particules plus grossières (*Antonelli et al., publication soumise, Annexe A7*) qui fixent moins facilement les radionucléides étudiés et entraînent une dilution des activités. L'augmentation de la concentration en particules disponibles pour la fixation des radionucléides peut aussi être à l'origine d'une dilution des activités. De plus, la modification des termes sources de radionucléides lorsque le fleuve est en régime de crue joue probablement aussi un rôle dans l'évolution des activités avec le débit. Concernant les radionucléides artificiels, étant donné l'arrêt réglementaire des rejets du centre de Marcoule au-delà de $4000 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$, les activités mesurées sont conditionnées par les apports provenant du drainage du bassin versant ainsi que par la contribution potentielle de la remobilisation de matériel marqué par les rejets du centre de Marcoule. La contribution des différents termes sources de radionucléides artificiels lors des crues de la période d'étude sera discutée dans la partie 6 de ce travail. Concernant les radionucléides naturels ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, l'évolution des niveaux d'activités mesurés en période de crues est fortement liée aux processus de lessivage de la colonne d'air par les précipitations (*Ishikawa et al., 1995; Caillet et al. 2001; Baskaran et al., 1993*) et à l'intensité du lessivage des sols du bassin versant. *Ishikawa et al. (1995)* a ainsi montré que lors d'un évènement pluvieux, la majorité du ^7Be présent dans la colonne d'air était entraîné par les eaux de pluie durant les premières heures de l'évènement. Outre l'effet de dilution par des matériaux plus grossiers, la diminution des activités massiques de ces deux radionucléides lors des crues peut être mise en rapport avec la diminution du ^7Be et du ^{210}Pb disponibles dans la colonne d'air ainsi qu'à la surface des sols du bassin versant lorsque le lessivage de ces deux compartiments devient plus intense et plus prolongé.

La variabilité de l'activité particulière des radionucléides ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ représente, en plus de la variabilité de la CSS, une source d'incertitude qui influera sur la qualité de l'estimation des flux de ces radionucléides. Nous verrons cependant que ce facteur de variabilité reste toutefois minime par rapport à celui lié à la CSS.

3.1.3. Résultats de flux associés à la phase particulaire

Les régressions activités-débits nécessaires à l'estimation des flux particulières de ^{137}Cs , le ^{238}Pu , le $^{239+240}\text{Pu}$, le ^7Be et le $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ sont illustrées sur la figure 3-6. Les meilleures régressions activités-débits ont été obtenues pour chacun des radionucléides en appliquant une régression non linéaire de type puissance ($y=ax^b$). Les régressions sont relativement bonnes avec des coefficients de détermination allant de $R^2=0,68$ pour le $^{239+240}\text{Pu}$ à $R^2=0,82$ pour le ^{137}Cs . En ce qui concerne le ^{238}Pu , la régression est caractérisée par un coefficient de détermination moins élevé ($R^2=0,40$), probablement dû au peu de mesures disponibles pour cet isotope du plutonium, étant donné la difficulté de mesurer les bas niveaux d'activité qui le caractérisent.

Les incertitudes associées à l'estimation des flux moyens annuels de ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ associés à la phase particulaire sont de l'ordre de 30%. Cette valeur d'incertitude est en accord avec celle de $\pm 30\%$ déterminée par *Thomas (1997)* pour les flux de ^{137}Cs et le $^{239+240}\text{Pu}$ du Rhône vers la Méditerranée sur la période 1983-1990. Les incertitudes associées aux flux de ^{238}Pu sont plus importantes, de l'ordre de 100%. Ceci est la conséquence du faible nombre de données disponibles pour ce radionucléide pour la détermination de la relation activité-débit de la figure 3-6.

Les valeurs de flux particulières obtenues lors des périodes de crues ont été augmentées de 13% afin de tenir compte de l'hétérogénéité de la CSS dans la section mouillée au droit de la station d'Arles (*Antonelli, 2004* ; paragraphe 2.4.1.2).

Les résultats de flux moyens annuels et de contribution moyenne des crues en Arles des radionucléides ^{137}Cs , le ^{238}Pu , le $^{239+240}\text{Pu}$, le ^7Be et le $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ en phase particulaire sont reportés dans le tableau 3-2.

Tableau 3-2. Flux particuliers F_{part} moyens annuels des radionucléides ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ en Arles. Contribution moyenne des crues à ces flux.

	^{137}Cs	^{238}Pu	$^{239;240}\text{Pu}$	^7Be	$^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$
F_{part} moyen annuel (GBq)	105±32	0,33±0,33	1,7±0,5	244±73	178±53
Contribution moyenne des crues (GBq)	81±24	0,22±0,22	1,3±0,4	160±48	121±36

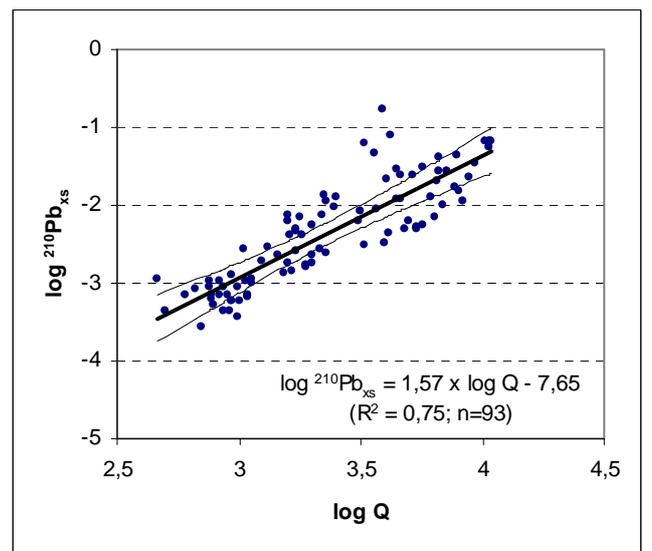
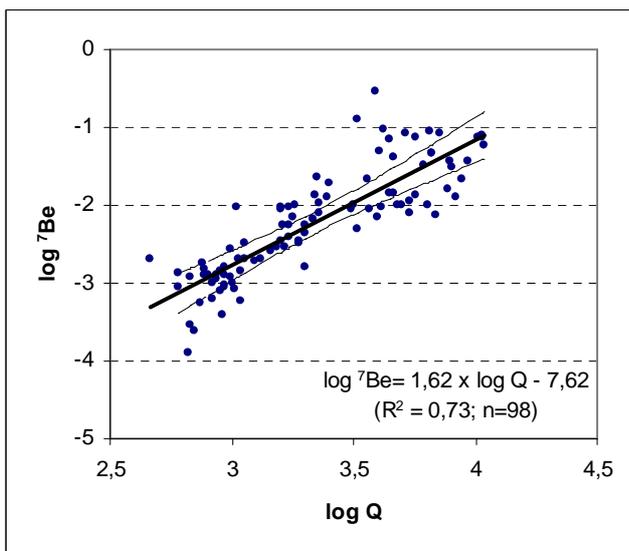
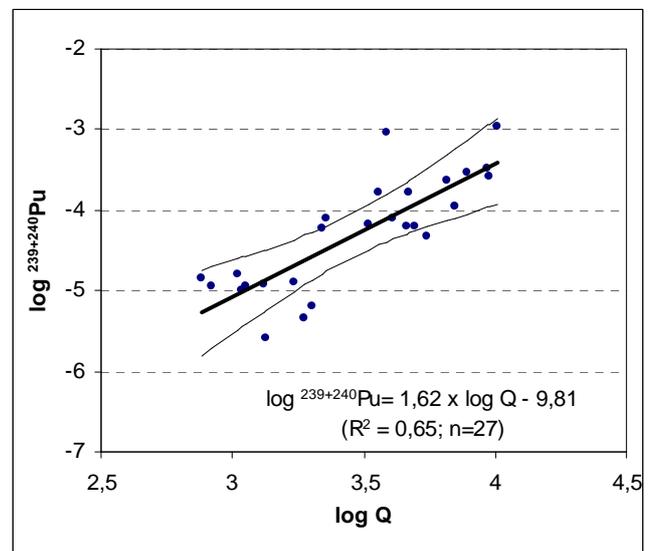
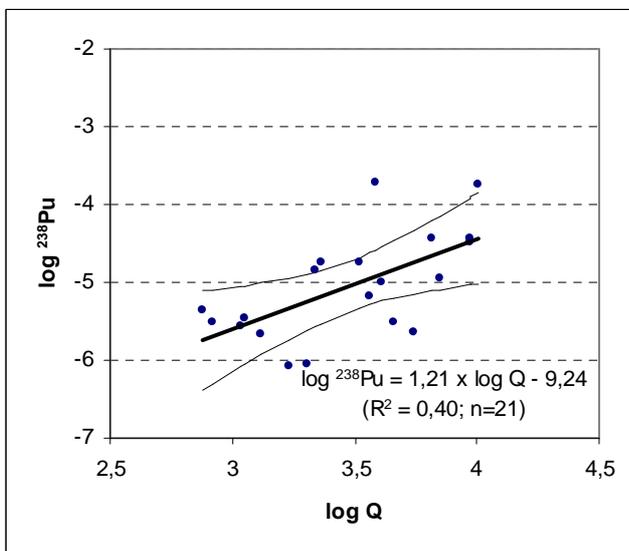
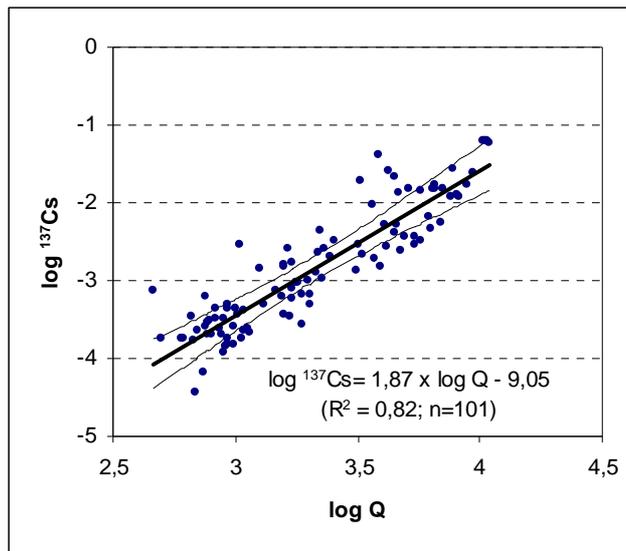


Figure 3-6. Régressions entre les activités volumiques (Bq.l^{-1}) de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ mesurées en Arles et le débit Q ($\text{m}^3.\text{s}^{-1}$). La droite représente à chaque fois la régression linéaire appliquée après transformation logarithmique des variables, et les courbes l'intervalle de confiance à 95%.

3.2. Estimation de la contribution du transport particulaire (CTP)

Bien que les radionucléides ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ aient de fortes affinités pour les matières particulaires, la détermination des flux totaux nécessite de tenir compte de la contribution des flux sous forme dissoute. En effet, les travaux de *Joshi et al. (1991)*, par exemple, ont montré que le transport particulaire pouvait contribuer pour moins de 30% du transport total du $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ dans des cours d'eau comme la rivière Ottawa (Japon), caractérisée par une gamme de variation de la CSS relativement faible (1,0 à 4,4 mg.l⁻¹). Ceci fait de la phase dissoute un vecteur de transport que l'on ne doit pas considérer comme négligeable a priori.

3.2.1. Description de la méthode

La contribution du transport particulaire (CTP) pour chaque radionucléide est calculée grâce à la méthode publiée par *Thomas (1997)* :

$$\text{CTP} = (\text{flux particulaire})/(\text{flux particulaire} + \text{flux dissous}) \quad (13)$$

Si Q et Q_s ($=Q \times \text{CSS}$) sont respectivement le débit liquide et le débit solide du Rhône, A_{part} et A_d les activités particulaires et dissoutes, et CSS la charge solide en suspension, l'équation (13) équivaut à :

$$\text{CTP} = (A_{\text{part}} \cdot Q_s)/(A_{\text{part}} \cdot Q_s + A_d \cdot Q) = (\text{Kd} \cdot \text{CSS})/(\text{Kd} \cdot \text{CSS} + 1) \quad (14)$$

L'équation (14) permet de déterminer la CTP connaissant la CSS du Rhône. L'estimation de la CTP au flux total annuel d'un radionucléide repose sur plusieurs étapes (figure 3-7):

Etape 0 : Détermination de la corrélation CSS-débit de la figure 3-2a).

Etape 1 : à partir de la corrélation CSS-débit est déduite une valeur de CSS pour chaque débit journalier de la période d'étude, grâce à la chronique des débits moyens journaliers du Rhône en Arles sur la période d'étude (2002-2004).

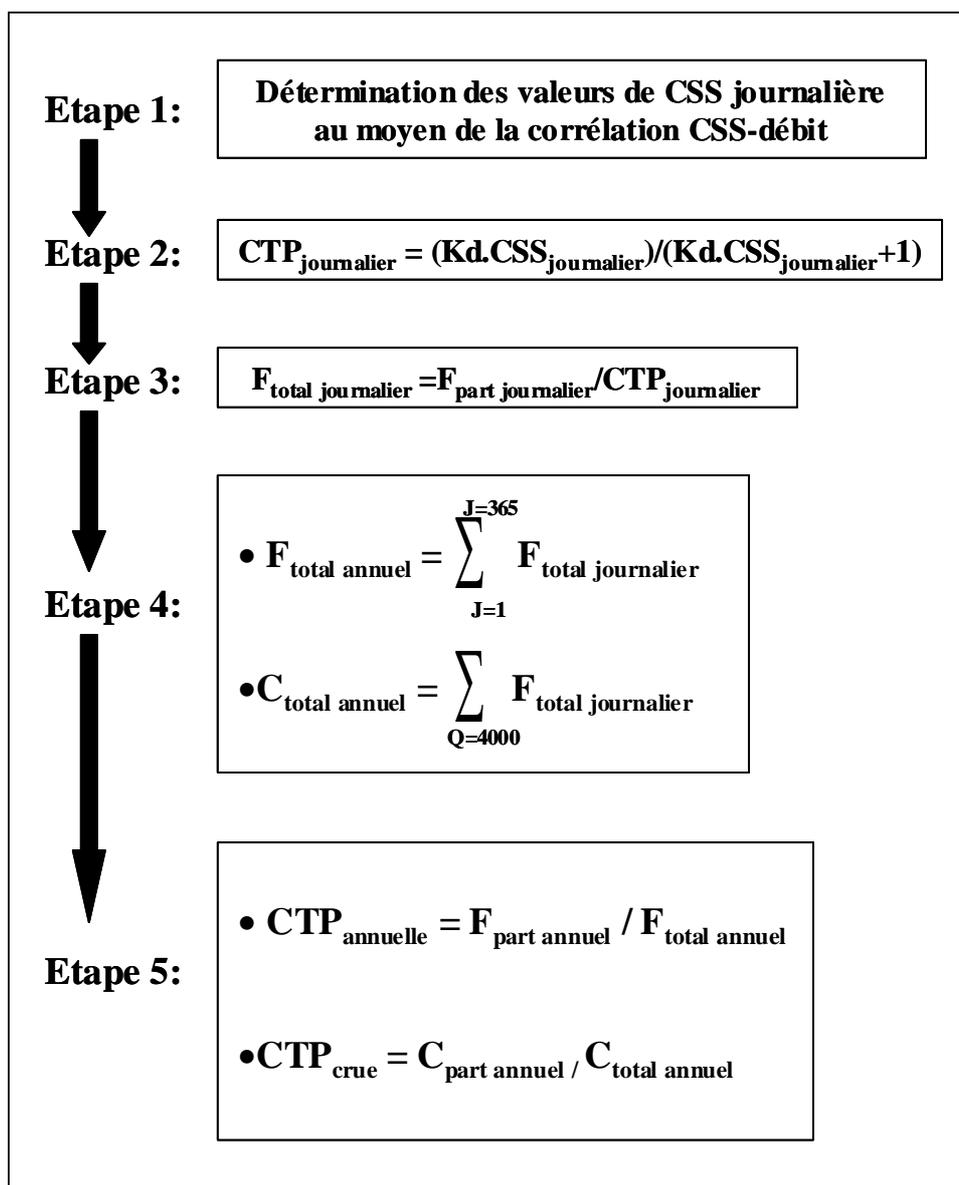


Figure 3-7. Principales étapes pour la détermination de la CTP au flux total annuel et au flux en crue d'un radionucléide.

Etape 2: l'équation (14) est appliquée pour chaque valeur de CSS journalière obtenue. On obtient une valeur de CTP pour chaque jour de la période d'étude ($CTP_{journalier}$).

Etape 3: l'équation (10) permet de déterminer des flux totaux journaliers ($F_{total\ journalier}$) du radionucléide étudié à partir de la CTP et du flux particulière pour chaque jour de la période d'étude.

Etape 4: La somme des flux totaux journaliers donne une valeur du flux total annuel ($F_{total\ annuel}$), tandis que la somme des flux totaux lors des jours de crues donne la contribution des crues au flux total annuel ($C_{total\ annuel}$).

Etape 5 : Le rapport du flux particulaire annuel sur le flux total annuel détermine la CTP au flux total annuel (CTP_{annuel}), tandis que le rapport du flux particulaire en crue sur le flux total en crue détermine la CTP lors des périodes de crue (CTP_{crue}).

3.2.2. Les coefficients de distribution (Kd) utilisés

3.2.2.1. Kd du ^{238}Pu , du $^{239+240}\text{Pu}$, du ^7Be et du $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$

L'équation (11) implique de connaître le coefficient de distribution Kd de l'élément étudié. Concernant les isotopes du plutonium ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$, nous avons utilisé une valeur moyenne de Kd de $2 \times 10^5 \text{ l.kg}^{-1}$, déterminée par Noël (1996) qui a effectué des mesures de $^{239+240}\text{Pu}$ particulaire et dissous en amont et en aval du centre de Marcoule. Cette valeur, déterminée en Arles, est proche des estimations antérieures de 3 à $6 \times 10^5 \text{ l.kg}^{-1}$ par Martin et Thomas (1990), et n'est pas, d'après Noël (1996), significativement différente de la valeur de $1,2 \times 10^5 \text{ l.kg}^{-1}$ déterminée en amont du centre de Marcoule par cet auteur.

Concernant les radionucléides naturels ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, les Kd utilisés sont ceux de la littérature. Bien que de nombreuses études aient montré d'importantes gammes de variations pour le Kd du ^7Be en eau douce (Olsen et al., 1986; Hawley et al., 1986), nous avons choisi d'utiliser une valeur moyenne de $5 \cdot 10^4 \text{ l.kg}^{-1}$ qui semble, de façon globale, être représentative des rivières françaises (Ciffroy et al., 2003; Bonté et al., 2000, Thomas, 1988). La plupart des études ont ensuite montré que le Kd du $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ en milieu aquatique continental pouvait être très variable et osciller entre 10^4 et 10^7 l.kg^{-1} . Néanmoins, il semble d'après les mêmes études que le Kd moyen du $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ dans ce milieu se situerait le plus souvent aux alentours de 10^5 l.kg^{-1} (Matsunaga et al., 1995; Dominik et al., 1987; Benoit et al., 1995; Nguyen et al., 2005; Carvalho et al., 1997). C'est donc cette valeur que nous avons utilisée dans le présent travail.

3.2.2.2. Kd du ^{137}Cs

Il a été possible dans ce travail d'effectuer des mesures de ^{137}Cs dissous. Tous les résultats de mesures du ^{137}Cs dissous obtenus durant la période de suivi en Arles sont reportés en Annexe A4. Ces résultats permettent, avec les activités particulières correspondantes, de

déterminer les valeurs de Kd du ^{137}Cs qui sont utilisées pour les calculs de CTP durant la période d'étude. Il est intéressant de traiter à part les périodes hors crues et les périodes de crues, afin d'étudier l'influence des rejets directs de Marcoule sur l'équilibre dissous-particulaire du ^{137}Cs pour les débits inférieurs à $4000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$.

3.2.2.2.1. Kd du ^{137}Cs hors périodes de crues

Les activités mesurées ont varié de $56 \mu\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ à $1026 \mu\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$. Hors périodes de crues, elles ont été comprises entre $131 \mu\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ et $1026 \mu\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$ ce qui correspond à une moyenne et un écart type associé de $527 \pm 277 \mu\text{Bq} \cdot \text{l}^{-1}$. Les coefficients de distribution (Kd) déterminés à partir des mesures de ^{137}Cs dissous et particulaires ont varié, quant à eux, de $4,6 \cdot 10^4 \text{ l} \cdot \text{kg}^{-1}$ à $1,27 \cdot 10^5 \text{ l} \cdot \text{kg}^{-1}$ ce qui correspond à une moyenne de $7,7 \cdot 10^4 \pm 2,3 \cdot 10^4 \text{ l} \cdot \text{kg}^{-1}$ ($n=20$). Cette valeur est significativement inférieure à la moyenne de $2,8 \cdot 10^5 \pm 0,5 \cdot 10^5 \text{ l} \cdot \text{kg}^{-1}$ déterminée en amont du centre de Marcoule par *Vray et al. (2005)*. La figure 3-8 représente la relation établie dans le présent travail entre les activités dissoutes et particulaires en ^{137}Cs en Arles. *Vray et al. (2005)*, qui ont établi ce type de relation en amont du centre de Marcoule afin de vérifier l'équilibre dissous-particulaire du ^{137}Cs , ont obtenu une droite de régression de pente égale à $1,6 \cdot 10^5 \pm 0,5 \cdot 10^5$ avec une ordonnée à l'origine de $6 \pm 4 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$. La pente est interprétée par les auteurs comme étant le Kd caractéristique de l'établissement d'un régime stationnaire d'alimentation des eaux en ^{137}Cs originaire des dépôts sur les sols du bassin versant et fixé de façon réversible. L'ordonnée à l'origine serait représentative d'une fraction de ^{137}Cs de même origine mais fixée de façon irréversible aux particules de sol. Cet équilibre dissous-particulaire du ^{137}Cs originaire du drainage des sols du bassin versant caractérise certainement le ^{137}Cs des eaux du Rhône avant leur entrée dans le bief Marcoule-Arles. Les rejets de Marcoule représentent alors un apport supplémentaire de ^{137}Cs sous forme dissoute qui modifie de façon significative l'équilibre dissous-particulaire du ^{137}Cs hors périodes de crues. La régression linéaire de la figure 3-8 donne une pente de $4,4 \cdot 10^4 \pm 1,5 \cdot 10^4 \text{ l} \cdot \text{kg}^{-1}$ et une ordonnée à l'origine de $13 \pm 8 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$. Cette valeur de pente est probablement issue de la mise à l'équilibre du ^{137}Cs rejeté par Marcoule 70 kilomètres en amont d'Arles. L'ordonnée à l'origine, quant à elle, semble représentative de l'activité particulaire caractéristique des apports dus au drainage du bassin versant rhodanien. Elle est cohérente, en effet, avec l'activité moyenne en ^{137}Cs des MES prélevées en amont du bief Marcoule-Arles dans le

cadre de cette étude ($15 \pm 5 \text{ Bq.kg}^{-1}$; paragraphe 4-1). Cette valeur représente donc l'activité en ^{137}Cs des MES avant leur entrée dans le bief Marcoule-Arles. Elle comprend probablement les deux composantes du ^{137}Cs issu des sols du bassin versant décrites par *Vray et al. (2005)*, à savoir le ^{137}Cs fixé de façon réversible et le ^{137}Cs fixé de façon irréversible avant l'entrée des MES dans le bief.

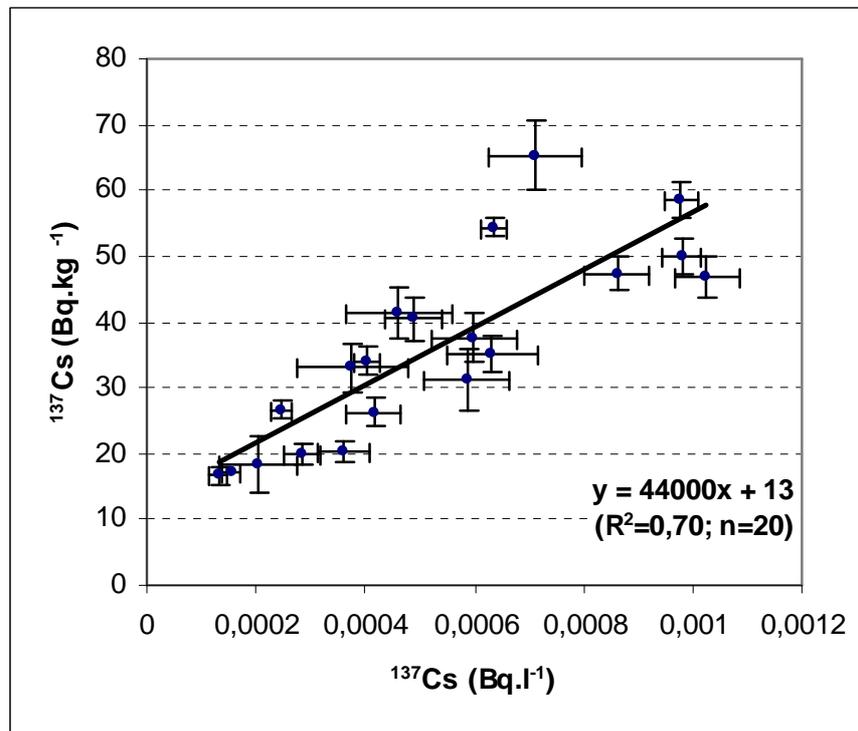


Figure 3-8. Régression entre les activités dissoutes et les activités particulières du ^{137}Cs mesurées en Arles.

La valeur de $7,7.10^4 \pm 2,3.10^4 \text{ l.kg}^{-1}$ est cohérente, étant donné les écarts types associés, avec celle de $3,1.10^4 \pm 1,7.10^4 \text{ l.kg}^{-1}$ déterminée en aval du centre de Marcoule dans les années 1980 par *Thomas (1997)*. La différence observée néanmoins entre la valeur déterminée ici et celle de *Thomas (1997)* peut s'expliquer par l'importance des rejets, sous forme dissoute, de ^{137}Cs originaire du centre de Marcoule avant 1990, par rapport aux rejets actuels. Ceci impliquerait une influence de la quantité de ^{137}Cs rejetée par le centre de Marcoule sur son équilibre dissous-particulaire dans le milieu aquatique, comme l'ont montré *Reynold et Gloyna (1963)* et *Benes et al. (1989)*.

Les valeurs de Kd du ^{137}Cs décrites dans ce paragraphe sont reportées dans le tableau 3-3 et mises en perspective avec les valeurs de la littérature.

Tableau 3-3. Récapitulatif des valeurs de Kd (en l.kg^{-1}) du ^{137}Cs dans le Rhône. A été rajoutée pour information la gamme de variation du Kd du césium en eau douce, déduite du travail bibliographique de *Fournier-Bidoz et al. (1994)*.

	Période d'étude	Lieu	Kd
Vray, 2005	1991-1992	Amont Marcoule	284000 ± 52000
Thomas, 1997	1983-1990	Aval Marcoule	30800 ± 17000
Rolland, 2006	2002-2004	Aval Marcoule	77000 ± 23000
Fournier-Bidoz et al., 1994	Etude bibliographique sur le césium en eau douce		2.10^3 à 10^6

3.2.2.2.2. Kd du ^{137}Cs en périodes de crues

Les activités en ^{137}Cs dissous mesurées sur trois échantillons prélevés durant les périodes de crues ont été comprises entre $56 \mu\text{Bq.l}^{-1}$ et $124 \mu\text{Bq.l}^{-1}$ ce qui correspond à une moyenne et un écart type associé de $98 \pm 24 \mu\text{Bq.l}^{-1}$. Des valeurs de Kd comprises entre $1,7.10^5 \text{ l.kg}^{-1}$ et $2,9.10^5 \text{ l.kg}^{-1}$ ont été déterminées à partir de ces activités dissoutes et des activités particulaires correspondantes, qui déterminent une valeur de Kd moyen de $2,4.10^5 \pm 0,6.10^5 \text{ l.kg}^{-1}$. Bien qu'une moyenne calculée à partir de 3 prélèvements seulement soit faiblement représentative du Kd moyen du ^{137}Cs lors des périodes de crues, cette valeur est la seule disponible pour déterminer les flux de ^{137}Cs dissous durant les crues de la période d'étude.

Ces résultats montrent que le Kd du ^{137}Cs lors des périodes de crues semble différent du Kd hors périodes de crues. Dans le cadre de l'estimation de la CTP aux flux totaux annuels de ^{137}Cs , nous utiliserons donc la valeur de Kd de $7,7.10^4 \text{ l.kg}^{-1}$ hors périodes de crues, et la valeur de $2,4.10^5 \text{ l.kg}^{-1}$ lors des périodes de crues.

3.2.3. Résultats de CTP

Les résultats de CTP aux flux moyens annuels de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, et de CTP au transport de ces radionucléides durant les crues sont reportés dans le tableau 3-4.

Tableau 3-4. Contribution du transport particulaire (CTP) aux flux moyens annuels, et aux flux en périodes de crues, des radionucléides ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ durant la période 2002-2004.

	^{137}Cs	^{238}Pu	$^{239;240}\text{Pu}$	^7Be	$^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$
CTP au flux moyen annuel	93%	94%	96%	82%	90%
CTP aux flux en crues	99%	99%	99%	96%	98%

Durant la période 2002-2004, le transport via la phase particulaire a été de loin le plus important avec des contributions comprises entre 82% pour le ^7Be et 96% pour le $^{239+240}\text{Pu}$. Ces valeurs sont de l'ordre de grandeur de celles déterminées pour le ^{137}Cs , le ^7Be et le $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ (~90%) par *Matsunaga et al. (1991)* et *Matsunaga et al. (1995)* dans la rivière Kuji au Japon. Ces auteurs avancent que de tels ordres de grandeur sont typiques des rivières ayant une forte capacité de transport des matières en suspension, telle que la rivière Kuji dont la CSS varie toute l'année entre 10^2 et 10^3 mg.l^{-1} . La figure 3-9 représente la contribution relative du transport en phase particulaire du ^{137}Cs dans le Rhône en fonction des valeurs de CSS mesurées dans le cadre de cette étude. Il apparaît que la forte variabilité de la CSS dans le Rhône aval, en fonction en particulier de l'occurrence et des caractéristiques des crues, entraîne de forts contrastes de la contribution du transport particulaire dans les flux totaux vers la Méditerranée, puisque celui-ci a varié de moins de 10% à quasiment 100%. C'est en effet lors des épisodes de crues que la contribution du transport particulaire est la plus importante, avec des valeurs proches de 100% déterminées pour chaque crue de la période d'étude.

Les valeurs de CTP ont été comparées à celles obtenues par *Thomas (1997)* en Arles sur la période 1983-1990. Cet auteur a déterminé des valeurs de CTP de 75% pour le ^{137}Cs et de 90% pour le $^{239+240}\text{Pu}$. Cette dernière valeur est cohérente avec la CTP de 94% déterminée dans le présent travail pour le $^{239+240}\text{Pu}$. Concernant le ^{137}Cs , la valeur de 75% est par contre significativement plus faible que la valeur de 93% obtenue ici. Cette différence est sans doute

due à la différence entre le K_d de $3,1 \cdot 10^4 \text{ l.kg}^{-1}$ utilisé par *Thomas (1997)* et le K_d de $7,7 \cdot 10^4 \text{ l.kg}^{-1}$ utilisé dans notre travail hors périodes de crues.

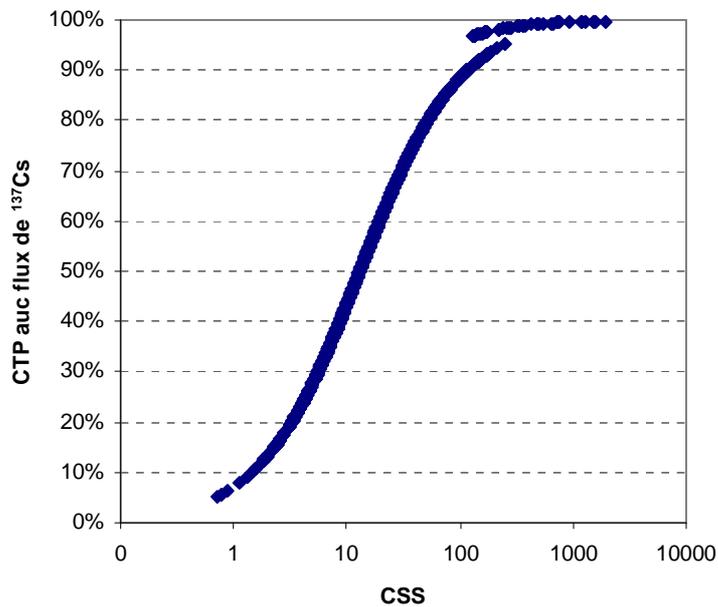


Figure 3-9. Evolution de la contribution du transport particulaire (CTP) au flux total de ¹³⁷Cs, en fonction de la charge solide en suspension du Rhône (CSS en mg.l^{-1}). Ces valeurs de contribution ont été calculées à partir de la CSS et du K_d du ¹³⁷Cs dans le Rhône en aval du centre de Marcoule, comme décrit au paragraphe 5.2.2.

3.3. Les flux totaux vers la Méditerranée

3.3.1. Contribution du Petit Rhône

L'objectif de l'étude est d'estimer les flux actuels totaux des radionucléides étudiés vers la mer Méditerranée. Cependant, le suivi de ces flux a été mis en place en Arles au départ du Grand Rhône, et aucune mesure de flux n'a été effectuée sur le Petit Rhône. Afin de prendre en compte les exports via ce bras du delta, il est communément admis d'utiliser une contribution moyenne de 10% des flux totaux d'eau, de matières solides et de contaminants associés. Cette valeur correspond à la contribution du Petit Rhône aux flux liquides vers la Méditerranée, que l'on extrapole ensuite aux flux solides et aux flux de contaminants. Cependant, étant donné la gamme de variation du débit du Rhône (de $256 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ à plus de $10000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$), la représentativité de cette valeur, en particulier lorsque le fleuve est en régime de crue est difficile à estimer.

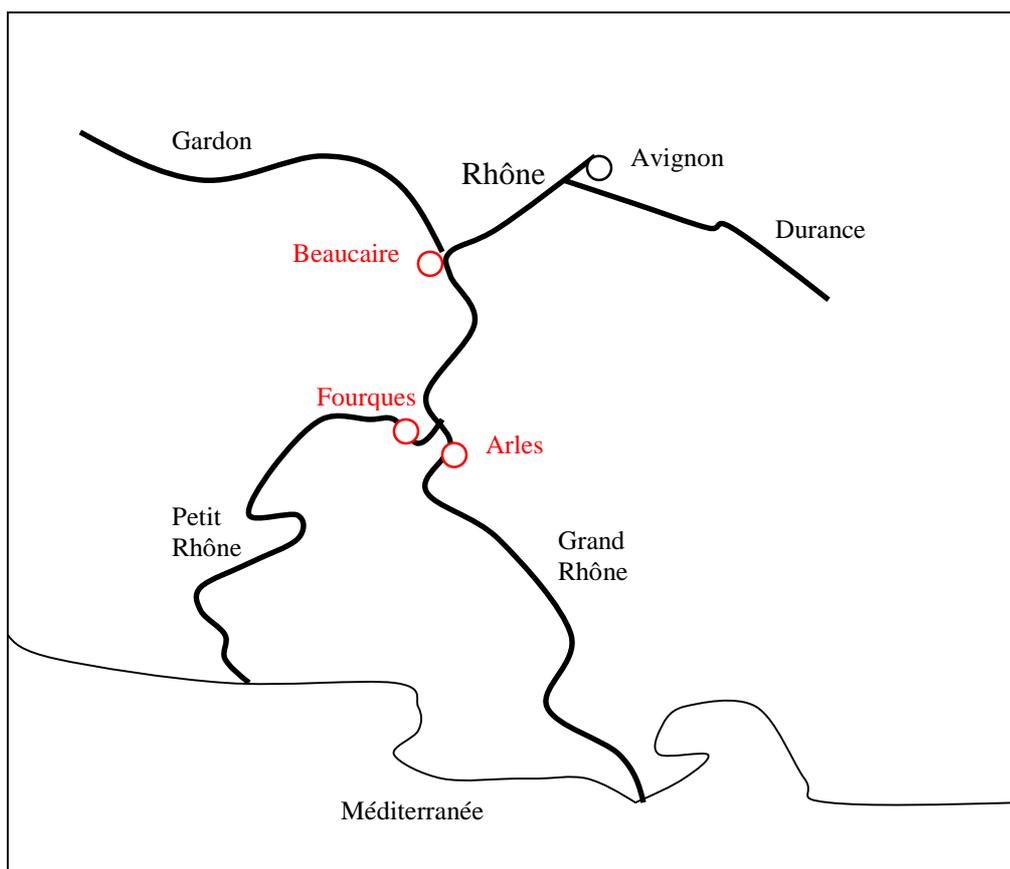


Figure 3-10 . Emplacement des stations de mesures du débit du Rhône de la CNR à Beaucaire, en Arles et à Fourques.

Pour estimer de manière plus précise la contribution du Petit Rhône, nous avons utilisé de la chronique des débits moyens journaliers du Rhône en Arles et à Beaucaire (avant la diffluence Grand Rhône - Petit Rhône, figure 3-10) sur les quinze dernières années (1990 à 2004, données CNR¹). A partir de ces données, il a été possible de comparer les débits mesurés en Arles avec ceux de Beaucaire et d'en déduire la contribution du Petit Rhône au débit liquide total vers la Méditerranée. Afin d'étudier l'évolution de cette contribution en fonction du débit, les données disponibles ont été réparties en classes de débits, et la contribution moyenne du Petit Rhône ainsi que l'écart type associé ont été calculés pour chacune des classes de débit (méthode 1). De la même manière, nous avons utilisé de la chronique des débits du Petit Rhône à Fourques, mais seulement sur la période d'étude (2002-2004). Cette chronique a permis de comparer directement les débits du Petit Rhône à ceux de Beaucaire sur cette période (méthode 2). Enfin, les débits à Fourques ont aussi été comparés à la somme des débits à Fourques et en Arles (méthode 3). Les résultats obtenus par ces différentes méthodes ont été reportés dans le tableau 3-5.

¹ Compagnie Nationale du Rhône

Tableau 3-5. Résultats de la contribution du Petit Rhône au débit liquide total vers la Méditerranée, en fonction des classes de débit. Les débits sont exprimés en $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$.

gamme de débits	Méthode 1: (Beaucaire - Arles)/Beaucaire (1990-2004)			Méthode 2: Fourques/Beaucaire (2002-2004)			Méthode 3: Fourques/(Arles+Fourques) (2002-2004)	
	Nombre données	Petit Rhône	Ecart type	Nombre données	Petit Rhône	Ecart type	Petit Rhône	Ecart type
<500	154	34%	13%	51	10%	1%	14%	8%
500-1000	1837	16%	8%	460	10%	1%	11%	1%
1000-1500	1430	11%	6%	296	11%	1%	11%	1%
1500-2000	830	10%	4%	114	11%	1%	11%	1%
2000-2500	513	11%	4%	65	11%	1%	11%	1%
2500-3000	296	12%	3%	58	11%	1%	12%	1%
3000-3500	164	12%	2%	26	12%	2%	12%	2%
3500-4000	98	12%	2%	9	12%	1%	13%	1%
4000-5000	76	12%	3%	4	10%	1%	11%	1%
5000-6000	28	13%	4%	13	10%	1%	11%	1%
>6000	25	12%	4%					
<500-4000	5322	13%	8%	1070	11%	1%	11%	2%
4000->6000	129	12%	4%	26	11%	1%	11%	1%
total	5451	13%	8%	1096	11%	1%	11%	2%

La contribution moyenne du Petit Rhône calculée à partir de la méthode 1 a été de l'ordre de $13 \pm 8\%$ sur la période 1990-2004, toutes plages de débits confondues. Cette valeur est la même que celle obtenue hors périodes de crues, ce qui est essentiellement dû au nombre de données acquises pour des débits inférieurs à $4000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ (5322). Etant donné les écarts types associés, la contribution moyenne obtenue en période de crue, $12 \pm 4\%$ pour les débits supérieurs à $4000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, est équivalente à la moyenne totale. On notera toutefois la forte contribution obtenue pour les débits d'étiages ($34 \pm 13\%$).

Les estimations de la contribution du petit Rhône à partir des mesures directes du débit à Fourques (méthode 2) indiquent quant à elles des valeurs globalement plus faibles et plus homogènes sur la période d'étude. Que l'on ait calculé ces valeurs moyennes de contribution à partir de la somme des débits en Arles et à Fourques, ou directement à partir du débit à Beaucaire, elles restent de l'ordre de 11% avec des écarts types associés de l'ordre de 1 à 2%. Les résultats de la méthode 3 sont très proches de ceux de la méthode 2 et amènent à penser que la contribution du Petit Rhône durant les périodes d'étiages serait de l'ordre de la moyenne totale, et posent donc la question de la validité de la valeur obtenue avec la méthode 1.

Il semble finalement que la contribution du Petit Rhône aux flux liquides totaux vers la Méditerranée reste relativement constante quel que soit le régime hydraulique du fleuve, de l'ordre de 11% à 13% selon la méthode employée. En ce qui concerne l'estimation des flux totaux de radionucléides vers la mer Méditerranée, nous avons utilisé la valeur de contribution moyenne de 13% obtenue avec la méthode 1 qui est sans doute la plus représentative de la réalité étant donné le nombre de données traitées. Il serait néanmoins intéressant, en perspective, de déterminer si ces valeurs de contribution du Petit Rhône aux flux liquides totaux vers la Méditerranée sont réellement transposables aux flux de matières solides et de contaminants associés.

3.3.2. Résultats de flux totaux

Les flux totaux annuels de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ en Arles, ainsi que la contribution des crues à ces flux, sont déterminés à l'étape 4 de la figure 3-7.

Une valeur de contribution du Petit Rhône de 13% des flux totaux vers la Méditerranée a été ajoutée aux résultats de flux totaux en Arles.

Les estimations finales de flux totaux annuels et de contribution des crues sur la période 2002-2004 sont reportées dans le tableau 3-6.

3.4. Discussion

3.4.1. Evolution des flux totaux avec le temps

3.4.1.1. Comparaison avec l'évolution des termes sources

L'estimation des flux actuels de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ permet de dresser un bilan de l'évolution des flux d'exportation de radioactivité artificielle vers la Méditerranée et de le comparer à l'évolution des termes sources. La figure 3-11 représente l'évolution des flux d'exportation annuels des radionucléides ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ du début des années 1960 à nos jours, mis en perspective avec l'évolution des termes sources d'apports issus des rejets

Tableau 3-6. Flux totaux annuels de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ du Rhône vers la Méditerranée, et contributions annuelles des périodes de crues à ces flux, sur la période 2002-2004. Les incertitudes associées sont de $\pm 30\%$.

	Année	Flux annuel (GBq)	Contribution annuelle des crues (GBq et %)
^{137}Cs	2002	194±58	140±42 (~72%)
	2003	158±47	113±34 (~71%)
	2004	67±20	29±9 (~43%)
	Flux moyen annuel		140±42
Contribution moyenne des crues		94±28 (~67%)	
	Année	Flux annuel (GBq)	Contribution annuelle des crues (GBq et %)
^{238}Pu	2002	0,62±0,62	0,38±0,38 (~61%)
	2003	0,47±0,47	0,28±0,28 (~58%)
	2004	0,26±0,26	0,09±0,09 (~34%)
	Flux moyen annuel		0,45±0,45
Contribution moyenne des crues		0,25±0,25 (~55%)	
	Année	Flux annuel (GBq)	Contribution annuelle des crues (GBq et %)
$^{239+240}\text{Pu}$	2002	3,2±1,0	2,3±0,7 (~73%)
	2003	2,5±0,8	1,9±0,6 (~73%)
	2004	1,0±0,3	0,4±0,1 (~42%)
	Flux moyen annuel		2,3±0,7
Contribution moyenne des crues		1,5±0,5 (~68%)	
	Année	Flux annuel (GBq)	Contribution annuelle des crues (GBq et %)
^7Be	2002	547±164	313±94 (~57%)
	2003	366±110	173±52 (~47%)
	2004	258±77	90±27 (~35%)
	Flux moyen annuel		389±117
Contribution moyenne des crues		191±57 (~49%)	
	Année	Flux annuel (GBq)	Contribution annuelle des crues (GBq et %)
$^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$	2002	349±104	215±65 (~62%)
	2003	261±78	154±46 (~59%)
	2004	149±45	57±17 (~38%)
	Flux moyen annuel		253±76
Contribution moyenne des crues		142±43 (~56%)	

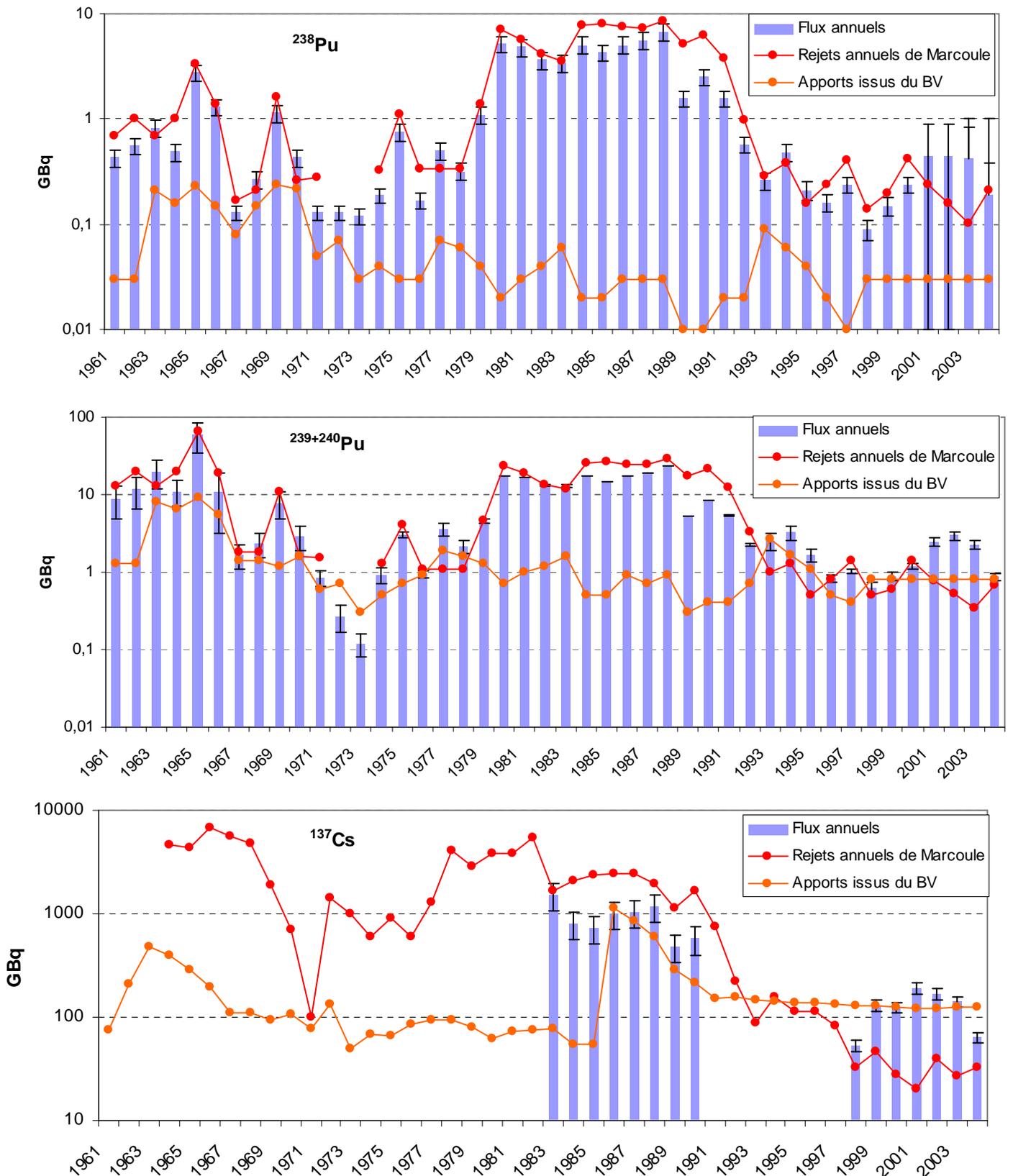


Figure 3-11. Evolution des flux annuels de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ vers la Mer Méditerranée. Comparaison avec les deux sources d'apports prépondérantes que sont les rejets du centre de Marcoule (Charmasson, 1998) et les apports issus du lessivage des retombées radioactives sur le bassin versant (BV) (Charmasson, 1998, Eyrolle et al., 2004). Les valeurs de flux annuels de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ jusqu'en 1997 sont issues de Eyrolle et al. (2004). Les valeurs de flux annuels de ^{137}Cs de 1983 à 1990 sont issues de Thomas (1997), elles représentent les seules valeurs de flux annuels de ^{137}Cs vers la Méditerranée disponibles dans la littérature. Les flux annuels de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{137}Cs de 1998 à 2004 ont été déterminés dans le présent travail.

du centre de Marcoule et du drainage des retombées radioactives sur le bassin versant. L'étude de ces chroniques montre qu'il existe une forte relation de cause à effet entre l'évolution des flux d'exportation et celle des rejets du centre de Marcoule, en particulier jusqu'à la fin des années 1990. Cette étude souligne particulièrement bien la baisse conséquente des flux depuis le début des années 1990, en liaison avec la diminution importante des rejets du centre de Marcoule.

3.4.1.2. Le bief Marcoule-Arles : source ou puits ?

La chronique des bilans annuels d'activités exportées et apportées dans le bief Marcoule-Arles permet d'étudier l'évolution du bief Marcoule-Arles en tant que puits ou source de radioactivité artificielle vers la Méditerranée. Les travaux de *Thomas (1997)*, qui a fait le bilan des apports et des exports de ^{137}Cs et de $^{239+240}\text{Pu}$ dans le bief Marcoule-Arles pour la période 1983-1990, ont montré une accumulation annuelle moyenne de l'ordre de $52\pm 20\%$ des activités apportées dans le bief (figure 3-12). De la même façon, les travaux d'*Eyrolle et al. (2004)* ont montré une accumulation nette de $30\pm 20\%$ du plutonium total introduit de 1961 à 2000, accumulation qui a principalement concerné le début des années 1960 et les années 1980, périodes de rejets maximums de ces radionucléides par le centre de Marcoule. Les processus d'accumulation ont été vraisemblablement la conséquence de l'incapacité du système à évacuer la totalité des rejets de Marcoule, qui ont contribué avant 1990 pour plus de 90% des apports totaux de ^{137}Cs et de plutonium. Sur la seule décennie 1980-1990 par exemple, 7298 ± 2189 GBq, 49 ± 9 GBq et 170 ± 2 GBq de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$, respectivement, ont en effet été exportés vers la Méditerranée, alors que les rejets du centre de Marcoule ont libéré dans le même temps 15750 GBq de ^{137}Cs , 72 GBq de ^{238}Pu et 241 GBq de $^{239+240}\text{Pu}$. Dans les années 1990, avec la baisse des rejets, le bief est passé d'un système qui accumulait systématiquement une partie de ces rejets à un système dans lequel ces derniers sont devenus minoritaires par rapport aux exports annuels (tableau 3-7). En considérant que les rejets se sont stabilisés à partir de 1998, les quantités totales de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ rejetées par Marcoule de 1998 à 2004 ont représenté respectivement $24\pm 4\%$, $69\pm 31\%$ et $41\pm 5\%$ de l'export total de ces radionucléides sur cette période.

La diminution drastique des rejets du centre de Marcoule semble donc avoir été accompagnée par une modification significative de la contribution des différents termes sources de radionucléides artificiels dans les eaux du Rhône aval. Si les rejets de Marcoule ont représenté avant 1990 le terme source prépondérant de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ vers la Méditerranée, les flux d'exportation actuels impliquent aujourd'hui d'autres termes sources significatifs. Nous avons discuté, dans le paragraphe précédent, de la capacité de stockage du Rhône en aval du centre de Marcoule. *Eyrolle et al. (2004)* ont ainsi estimé un stockage net de 29 ± 9 GBq de ^{238}Pu et 172 ± 35 GBq de $^{239+240}\text{Pu}$ entre 1945 et 2000, et 10900 ± 7700 GBq de ^{137}Cs se sont semble-t-il accumulés sur la même période (en considérant une accumulation nette de 31% du ^{137}Cs rejeté par le centre de Marcoule, voir paragraphe 4.2). Ce stockage n'ayant pu se faire que par l'intermédiaire de l'accumulation sédimentaire, est-il possible que ces stocks, formés en grande majorité par des radionucléides originaire du centre de Marcoule, contribuent aujourd'hui de façon significative aux flux annuels?

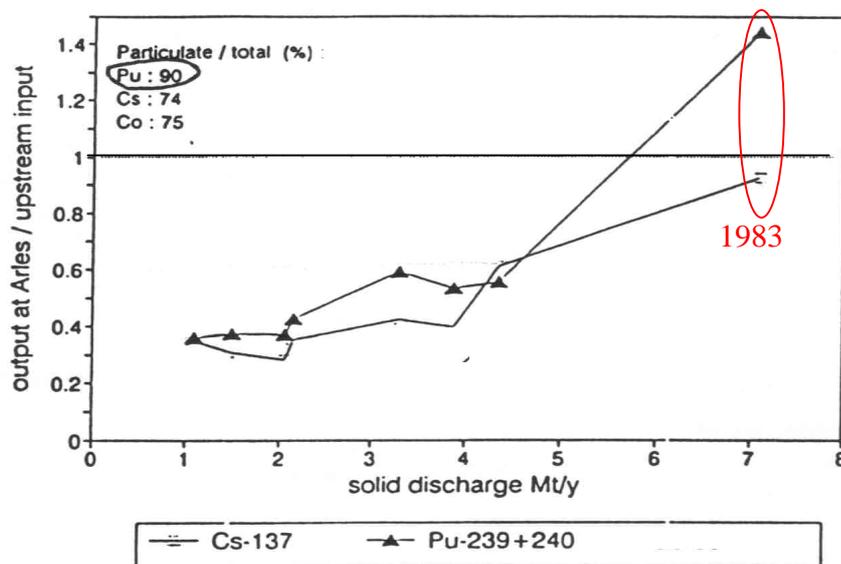


Figure 3-12. Transport total (dissous plus particulaire) de ^{137}Cs et de $^{239+240}\text{Pu}$ dans le Rhône sur la période 1983-1990 : Comparaison entre les apports totaux venant de l'amont du bief Marcoule-Arles, et les flux d'exportation annuels estimés en Arles. Les ratios inférieurs à 1 indiquent une accumulation nette. Seule l'année 1983 présente un ratio équilibré pour le ^{137}Cs , voire excédentaire pour le $^{239+240}\text{Pu}$, probablement dû à l'occurrence de périodes de crues relativement importantes cette année là. (figure publiée dans *Thomas, 1997*).

Tableau 3-7. Tableau synthétique des apports et des flux d'exportation de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ dans le Rhône aval (en GBq). Les apports dus aux rejets des centrales ont été considérés comme négligeables. Concernant les isotopes du plutonium, les apports dus au drainage du bassin versant (BV) et les flux d'exportation jusqu'en 1997 sont tirés de *Eyrolle et al. (2004)*. Concernant le ^{137}Cs , la période 1961-1990 correspond en fait à la période 1983-1990 (*Thomas, 1997*). Il n'existe pas de données de flux d'exportation du ^{137}Cs pour la période 1991-1997. Les données de rejets du centre de Marcoule jusqu'en 1997 sont issues de *Charmasson (1998)*.

^{137}Cs			
Période	Apports BV	Apports Marcoule	Flux d'exportation
1961-1990	3298	15753	7298
1991-1997	1008	1528	
1998-2004	875	226	874
^{238}Pu			
Période	Apports BV	Apports Marcoule	Flux d'exportation
1961-1990	2	85	60
1991-1997	0,3	6,3	3,5
1998-2004	0,2	1,5	2,0
$^{239+240}\text{Pu}$			
Période	Apports BV	Apports Marcoule	Flux d'exportation
1961-1990	55	418	318
1991-1997	8	21	17
1998-2004	6	5	11

3.4.2. Contribution des périodes de crues

Les crues de l'automne 2002 et de décembre 2003 ont contribué respectivement pour 47% à 73% des flux annuels de 2002 et 2003 (tableau 3-6). Sur la totalité de la période d'étude (2002-2004), la contribution moyenne des périodes de crues aux flux moyens annuels de radionucléides a été de 49%, 55%, 56%, 67% et 68% respectivement pour le ^7Be , le ^{238}Pu , le $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, le ^{137}Cs et le $^{239+240}\text{Pu}$. La durée cumulée des périodes de crues n'ayant représentée que 5% du temps de la période d'étude, ces nombres soulignent l'importance que ces événements, lorsqu'ils se produisent, peuvent avoir sur les exports de radioéléments vers la mer Méditerranée. Il ne faut cependant pas oublier, toutefois, que l'obtention de ces valeurs est fortement dépendante de l'occurrence des événements exceptionnels de 2002 et de 2003, dont la contribution surpasse celle que peuvent avoir les crues de faible à moyenne amplitude qui sont les plus fréquentes. Les flux totaux de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ vers la Méditerranée ont donc été ré-estimés pour une période de temps plus longue, à partir de la

chronique des débits moyens journaliers de 1974 à 2004, afin d'intégrer dans la détermination des flux moyens actuels la variabilité des événements de crues. Ceci ne permet pas d'obtenir des valeurs moyennes de flux représentatives des trente dernières années, mais des valeurs moyennes des flux actuels intégrant une contribution moyenne des périodes de crues plus représentative. Les résultats ont été reportés dans le tableau 3-8, et donnent une contribution moyenne des périodes de crues de l'ordre de 50% pour les cinq radionucléides.

Tableau 3-8. Flux moyens annuels et contributions moyennes annuelles des périodes de crues, estimés à partir de la chronique des débits ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ des trente dernières années.

	Flux moyen annuel (GBq)	Contribution moyenne des crues (GBq et %)
^{137}Cs	63±19	33±5 (~53%)
^{238}Pu	0,3±0,3	0,1±0,1 (~39%)
$^{239+240}\text{Pu}$	1,6±0,5	0,8±0,2 (~50%)
^7Be	254±76	121±36 (~47%)
$^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$	185±56	86±26 (~47%)

4-ETUDE DE LA REMOBILISATION SEDIMENTAIRE

4. Etude de la remobilisation sédimentaire

Cette partie s'attache à déterminer dans quelles mesures des stocks sédimentaires contaminés par les rejets du centre de Marcoule peuvent aujourd'hui constituer un terme source secondaire de radioactivité artificielle dans les eaux du Rhône aval. Les raisonnements exposés dans cette partie sont basés sur la comparaison des mesures effectuées en Arles, et donc soumises à l'influence du centre de Marcoule, avec celles réalisées en amont du bief Marcoule-Arles. Lors des périodes de crues, seule la crue exceptionnelle de décembre 2003 (événement 3 du tableau 2-1) a fait l'objet d'un suivi complet des activités particulières des matières en suspension (MES) en Arles et en amont du bief. La plus grande partie de l'étude sur la remobilisation sédimentaire est donc basée sur les résultats acquis lors de cette crue.

Dans cette partie, après avoir décrit les résultats d'activité en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ des MES en amont du bief Marcoule-Arles, nous nous intéresserons à la mise en évidence de l'accumulation de stocks sédimentaires contaminés par les rejets du centre de Marcoule dans le bief. Nous mettrons ensuite en évidence la remobilisation de ces stocks lors des événements de crues et nous estimerons la contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux annuels de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ vers la Méditerranée.

4.1. Résultats en amont du bief Marcoule-Arles

Les mesures effectuées dans les MES en amont du bief Marcoule-Arles sont représentatives des apports non contaminés par les rejets du centre de Marcoule. Les résultats d'activité particulière en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ acquis en amont du bief (annexe A5) ainsi que ceux acquis en Arles ont été reportés sur la figure 4-1 afin de pouvoir les comparer.

Les résultats d'activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ obtenus en amont du bief Marcoule-Arles hors périodes de crues ont été caractérisés par une variabilité moindre que celle observée en Arles, du fait probablement de l'absence de l'influence des rejets du centre de Marcoule. Les niveaux d'activité observés ont été plus faibles qu'en Arles, avec des moyennes et des écarts types associés de $15\pm 5 \text{ Bq.kg}^{-1}$ (n=34), $0,009\pm 0,002 \text{ Bq.kg}^{-1}$ (n=6) et $0,27\pm 0,10 \text{ Bq.kg}^{-1}$ (n=6) pour le ^{137}Cs , le ^{238}Pu et le $^{239+240}\text{Pu}$, respectivement. Durant les

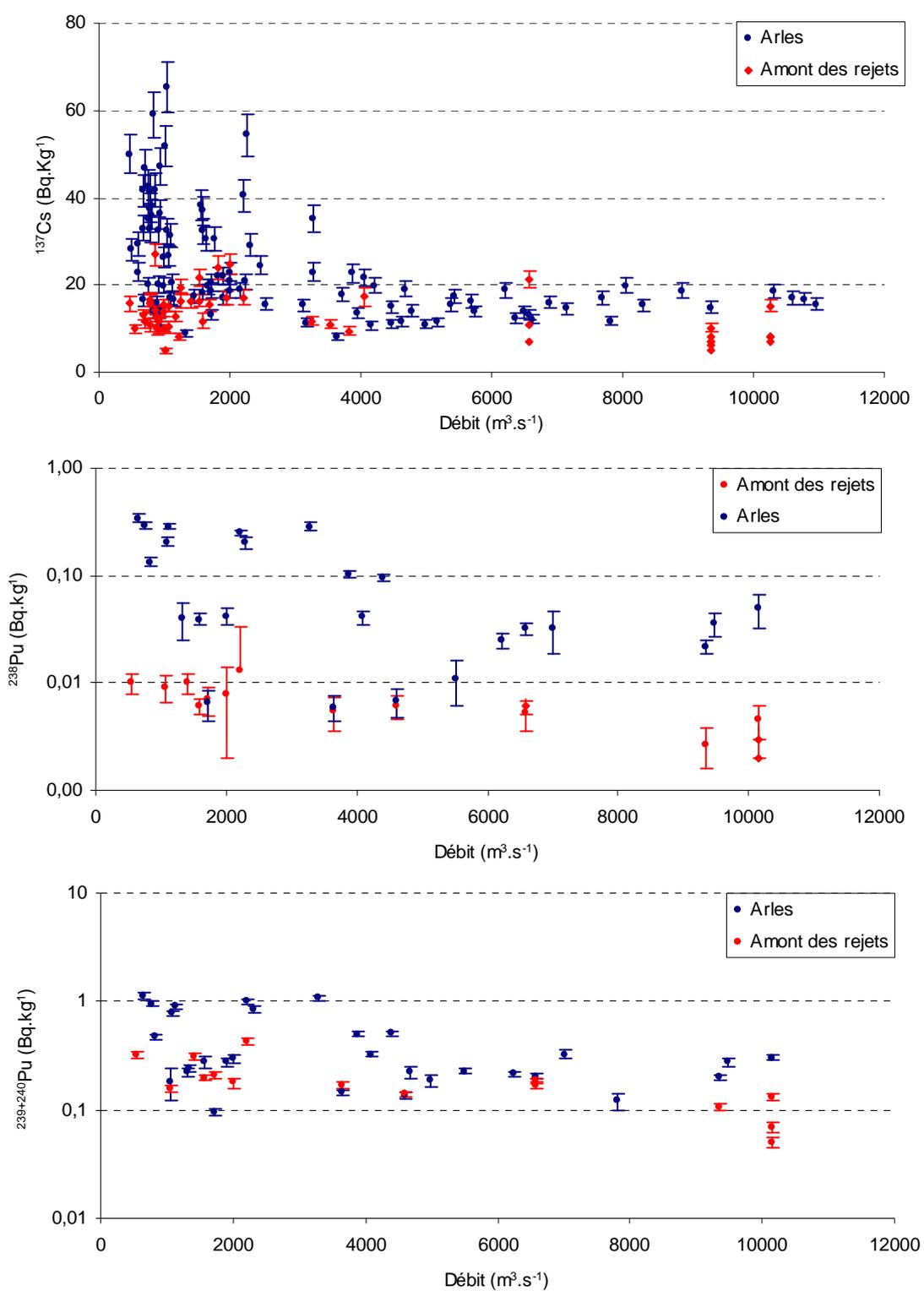


Figure 4-1. Résultats de mesures des activités en radionucléides artificiels ¹³⁷Cs, ²³⁸Pu et ²³⁸⁺²⁴⁰Pu acquises dans les matières en suspension en amont du bief Marcoule-Arles durant la période d'étude (2002-2004). Sont aussi reportées les activités mesurées en Arles sur la même période.

périodes de crues, l'activité moyenne du ^{137}Cs a peu varié avec une valeur de $14\pm 4 \text{ Bq.kg}^{-1}$ (n=7), tandis que les activités moyennes du ^{238}Pu et du $^{239+240}\text{Pu}$ ont baissé pour atteindre respectivement $0,005\pm 0,001 \text{ Bq.kg}^{-1}$ (n=6) et $0,16\pm 0,03 \text{ Bq.kg}^{-1}$ (n=6). Finalement, les moyennes déterminées tous régimes hydrauliques confondus ont été respectivement de $14\pm 5 \text{ Bq.kg}^{-1}$ (n=41), $0,007\pm 0,003 \text{ Bq.kg}^{-1}$ (n=12) et $0,21\pm 0,09 \text{ Bq.kg}^{-1}$ (n=12) pour le ^{137}Cs , le ^{238}Pu et le $^{239+240}\text{Pu}$.

Le tableau 4-1 récapitule l'ensemble des moyennes et des écarts types correspondant déterminés en Arles et en amont du Bief Marcoule-Arles.

Tableau 4-1. Activités moyennes et écarts types associés des radionucléides artificiels ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ déterminés en Arles et en Amont du bief Marcoule-Arles, hors périodes de crues (débit $Q < 4000 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$) et lors de ces périodes (débit $Q > 4000 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$). Sont indiquées aussi les activités moyennes tous régimes hydrauliques confondus en amont du bief.

^{137}Cs (GBq)			
	$Q < 4000 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$	$Q > 4000 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$	Tous régimes hydrauliques
Arles	$30\pm 19 \text{ Bq.kg}^{-1}$	$15\pm 3 \text{ Bq.kg}^{-1}$	
amont du bief Marcoule-Arles	$15\pm 5 \text{ Bq.kg}^{-1}$	$14\pm 4 \text{ Bq.kg}^{-1}$	$14\pm 5 \text{ Bq.kg}^{-1}$
^{238}Pu (GBq)			
	$Q < 4000 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$	$Q > 4000 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$	Tous régimes hydrauliques
Arles	$155\pm 113 \text{ mBq.kg}^{-1}$	$40\pm 25 \text{ mBq.kg}^{-1}$	
amont du bief Marcoule-Arles	$9\pm 2 \text{ mBq.kg}^{-1}$	$5\pm 1 \text{ mBq.kg}^{-1}$	$7\pm 3 \text{ mBq.kg}^{-1}$
$^{239,240}\text{Pu}$ (GBq)			
	$Q < 4000 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$	$Q > 4000 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$	Tous régimes hydrauliques
Arles	$534\pm 356 \text{ mBq.kg}^{-1}$	$264\pm 163 \text{ mBq.kg}^{-1}$	
amont du bief Marcoule-Arles	$260\pm 100 \text{ mBq.kg}^{-1}$	$150\pm 30 \text{ mBq.kg}^{-1}$	$210\pm 94 \text{ mBq.kg}^{-1}$

4.2. L'accumulation sédimentaire hors périodes de crues

Les travaux de *Thomas (1997)* mettent en évidence une accumulation nette des apports de ^{137}Cs et de $^{239+240}\text{Pu}$ dans le bief Marcoule-Arles de l'ordre de 50% sur la période 1983-1990. Cependant, comme nous pouvons le remarquer sur la figure 3-12, il est possible de

différencier sur cette période les années caractérisées par des débits solides annuels relativement faibles (inférieurs à 4×10^6 tonnes par an pour les années 1984 à 1990), de l'année 1983 caractérisée par un débit solide annuel plus élevé de 6×10^6 tonnes. L'année 1983, durant laquelle se sont produits des événements de crues importants par rapport au reste de la période 1983-1990, fût en outre caractérisée par un bilan équilibré entre les apports et les exports en ^{137}Cs et $^{239+240}\text{Pu}$ dans le bief. Au contraire, les années 1984 à 1990, relativement calme d'un point de vue hydrologique, ont été caractérisées par des accumulations annuelles nettes de l'ordre de $60 \pm 9\%$ du ^{137}Cs et du $^{239+240}\text{Pu}$ apportés dans le bief. Ces résultats mettent donc en évidence, pour la période 1983-1990, un processus d'accumulation nette des radionucléides apportés dans le bief Marcoule-Arles lors des périodes de calme hydrologique.

Il est probable que le processus d'accumulation mis en évidence pour la période 1983-1990 soit représentatif de ce qui se passe aujourd'hui hors périodes de crues, et que des proportions significatives de césium et de plutonium rejetés actuellement par le centre de Marcoule soient ainsi piégées dans le compartiment sédimentaire. Cette hypothèse est d'autant plus plausible que les débits solides annuels hors périodes de crues des années 2002, 2003 et 2004, respectivement 2,3 Mt, 1,6 Mt et 1,8 Mt, se placent au même niveau que les débits solides annuels des années 1984 à 1990.

Pour vérifier cette hypothèse, nous avons comparé les activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ rejetées annuellement par le centre de Marcoule aux flux annuels d'exportation liés à ces rejets lors des années 2002 à 2004 (tableau 4-2). Ceci a nécessité de s'affranchir des apports autres que les rejets du centre de Marcoule, qui contribuent aussi aux flux d'exportation totaux vers la Méditerranée. La contribution de ces apports venant de l'amont du bief Marcoule-Arles a été estimée en multipliant les valeurs de flux de MES en Arles, par les activités particulières moyennes de 15 Bq.kg^{-1} pour le ^{137}Cs , de $0,009 \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le ^{238}Pu et de $0,26 \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le $^{239+240}\text{Pu}$, déterminées grâce au suivi en amont du bief (tableau 4-1). Les valeurs de contribution ainsi déterminées ont ensuite été soustraites des flux d'exportation totaux afin de déterminer la part exportée correspondant aux rejets du centre de Marcoule.

Tableau 4-2. Estimation de l'accumulation nette de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ dans le bief Marcoule-Arles à partir des rejets du centre de Marcoule sur la période 2002-2004. L'export en Arles représente la quantité des rejets exportée. Le ratio export/rejet indique la proportion exportée des rejets.

^{137}Cs	2002	2003	2004	Accumulation nette moyenne
Rejets (GBq)	39	30	33	
Export en Arles (GBq)	28	21	22	~31%
Export / Rejets	0,71	0,70	0,67	
^{238}Pu	2002	2003	2004	Accumulation nette moyenne
Rejets (GBq)	0,16	0,1	0,21	
Export en Arles (GBq)	0,13	0,11	0,11	~25%
Export / Rejets	0,83	1,08	0,54	
$^{239+240}\text{Pu}$	2002	2003	2004	Accumulation nette moyenne
Rejets (GBq)	0,53	0,34	0,70	
Export en Arles (GBq)	0,44	0,37	0,38	~25%
Export / Rejets	0,83	1,08	0,54	

Avec des accumulations nettes de l'ordre de 30% des activités en césium et en plutonium rejetées, les résultats du tableau 4-2 indiquent que, hors périodes de crues, ce processus d'accumulation de la radioactivité artificielle originaire du centre de Marcoule caractérise toujours le Rhône en aval du centre. Ces résultats sont importants car ils confirment l'existence d'une formation de stocks de radioactivité artificielle, malgré la tendance nette à l'exportation durant les années 2002 à 2004. Ces résultats mettent aussi en évidence que les bilans d'exportation positifs observés aujourd'hui entre Marcoule et Arles ne peuvent pas être la conséquence de la dynamique de transport qui anime ce système hors périodes de crues. Il en découle logiquement que seuls les événements de crues du Rhône peuvent être à l'origine d'une remobilisation potentielle des stocks de radioactivité artificielle formés à partir des rejets du centre de Marcoule.

Ces stocks récemment formés seront pris en compte lors de l'estimation des quantités totales remobilisées durant les épisodes de crues de 2002 à 2004.

4.3. La remobilisation sédimentaire lors des périodes de crues

Il s'agit ici d'étudier l'évolution temporelle de la contribution des périodes de crues du Rhône dans le transfert des radionucléides artificiels vers la Méditerranée, qui marque la principale différence entre la contribution des différents termes sources de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ avant 1990 et leur contribution actuelle. Jusqu'en 1990, les rejets directs du centre de Marcoule ont contribué pour 90% environ de l'apport total de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ dans le Rhône aval et, en terme de bilan, ont masqué les autres termes sources de ces radionucléides, principalement les apports issus du drainage des retombées radioactives sur le bassin versant et la remobilisation des stocks sédimentaires. Concernant le rôle des crues à cette époque, *Thomas (1997)* a mis l'accent sur le fait que lors de l'année 1983, les évènements de crues ont seulement permis d'équilibrer le bilan entre les apports, principalement dus aux rejets du centre de Marcoule, et les flux d'exportation (figure 3-12). La diminution importante des rejets du centre de Marcoule au cours des années 1990 a modifié ce système pour en créer un nouveau, dans lequel le transport durant les périodes de crues rend les apports dus aux rejets du centre de Marcoule minoritaires par rapport aux autres termes sources de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ dans les eaux du Rhône aval.

Il convient maintenant de savoir, parmi les sources d'apports qui alimentent le Rhône aval en radionucléides artificiels durant les périodes de crues, quelle est la contribution de la remobilisation des stocks sédimentaires contaminés par les rejets du centre de Marcoule, notamment par rapport aux apports issus du drainage des retombées sur le bassin versant.

L'étude de la remobilisation sédimentaire dans le bief Marcoule-Arles est basée sur l'exploitation des résultats d'activité particulaire en radionucléides artificiels ^{137}Cs , ^{238}Pu , ^{239}Pu et ^{240}Pu des MES prélevées en Arles et en amont du bief. Les paragraphes 4.3.1. et 4.3.2. montrent comment il est possible de mettre en évidence et d'estimer la contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ vers la Méditerranée, à partir d'une part de l'étude des activités particulières en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ et d'autre part de l'étude du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$. Le paragraphe 4.3.1. comprend aussi une étude du rapport de masse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ qui, s'il ne permet pas d'étudier la remobilisation sédimentaire dans le bief Marcoule-Arles, est néanmoins intéressant du fait de l'absence de donnée le concernant dans le Rhône aval. Le paragraphe 4.3.3. montre comment il est possible d'estimer

la contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux de ^{137}Cs à partir des résultats d'activité en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$.

Ce travail de thèse a aussi compris l'étude du rapport d'activité $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ ainsi que l'étude des radionucléides naturels d'origine atmosphérique ^7Be et ^{210}Pb en excès ($^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$). Bien que le rapport $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ implique deux éléments différents, il a déjà été utilisé dans le cadre de travaux sur la caractérisation des flux sédimentaires en rivière, du fait de l'existence de valeurs caractéristiques du rapport pour les retombées globales suite aux essais nucléaires en atmosphère (Cochran *et al.*, 2000, Cornett *et al.*, 1995, Hong *et al.*, 1999, Baskaran *et al.*, 1996). La comparaison des valeurs du rapport $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ acquises en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles n'ayant pas montré de différence significative, l'étude de ce rapport n'a pas permis de mettre en évidence la remobilisation sédimentaire dans le bief. L'étude du rapport $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ ne sera donc pas présentée dans cette partie de la thèse, mais détaillée en annexe A6.

Une méthode d'estimation des temps de résidence des stocks sédimentaires avant leur remobilisation, basée sur l'utilisation des radionucléides naturels d'origine atmosphérique ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, a été développée dans le cadre de cette étude. La comparaison des activités particulières en ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ acquises en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles n'ayant pas montré de différence significative, l'étude de ces radionucléides n'a pas permis de mettre en évidence la remobilisation sédimentaire dans le bief, et la méthode d'estimation des temps de résidence n'a pas pu être appliquée. L'étude complète des radionucléides ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ effectuée dans le cadre de ce travail est détaillée en annexe A3.

4.3.1. Mise en évidence de la remobilisation des stocks de plutonium

4.3.1.1. Utilisation des activités particulières des MES

La comparaison des activités particulières en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ mesurées en Arles avec celles mesurées en amont du bief Marcoule-Arles durant la crue exceptionnelle de décembre 2003 (événement 3 du tableau 2-1) permet de mettre en évidence la contribution d'un autre terme source que les apports issus du drainage du bassin versant. La figure 4-2, qui illustre ces résultats, montre en effet des différences significatives entre les activités mesurées en Arles et

celles mesurées en amont du bief lorsque le Rhône est en régime de crue ($\text{débit} > 4000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$). Alors que les activités mesurées en amont du bief Marcoule-Arles évoluent à la baisse lorsque le débit augmente, dû à leur dilution par des matériaux plus grossiers, au contraire celles mesurées en Arles augmentent accentuant ainsi la différence entre l'aval et l'amont du bief. Dans le cas du ^{238}Pu comme dans celui du $^{239+240}\text{Pu}$, le rapport de l'activité en aval sur l'activité en amont du bief (rapport illustré sur la figure 4-3) vaut 1 avant la crue, pour atteindre progressivement une valeur maximum lors du pic de crue, puis décroître lors de la descente des eaux jusqu'à revenir à une valeur égale à 1 en fin de crue, et enfin augmenter à nouveau lors de la reprise des rejets du centre de Marcoule. Ceci est un premier indice en faveur de la remobilisation de sédiments marqués par les rejets du centre de Marcoule. En effet, les différences d'activité observées entre l'amont et l'aval du bief Marcoule-Arles sont probablement la conséquence de la remobilisation de matériel sédimentaire caractérisé par des activités assez fortes pour être diluées par les apports du bassin versant.

Ces différences sont plus importantes pour le ^{238}Pu que pour le $^{239+240}\text{Pu}$, en atteignant respectivement pour ces deux isotopes un facteur 10 et un facteur 2,5 lors du pic de crue, ce qui peut s'expliquer par la différence entre les rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ qui caractérisent respectivement les dépôts des retombées de plutonium sur le bassin versant (0,03) et le plutonium rejeté par le centre de Marcoule (0,30). Ces rapports d'activité impliquent en effet une contribution des apports du bassin versant plus importante pour le $^{239+240}\text{Pu}$ que pour le ^{238}Pu par rapport à ceux issus des stocks contaminés par les rejets du centre de Marcoule.

Il est aussi intéressant de souligner l'effet d'hystérésis qui a caractérisé l'évolution avec le débit des activités massiques de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ en Arles, effet absent en amont du centre de Marcoule. A l'image des processus qui peuvent affecter la variabilité de la charge solide en suspension lors des événements de crues, il est possible que cet effet soit représentatif de l'épuisement des stocks sédimentaires marqués par les rejets du centre de Marcoule au fur et à mesure de leur remobilisation durant la crue. Encore une fois, l'amplitude plus forte de cet effet observé pour le ^{238}Pu par rapport au $^{239+240}\text{Pu}$ est sans doute due à la différence des rapports d'activité entre les apports du bassin versant et ceux issus de la remobilisation sédimentaire.

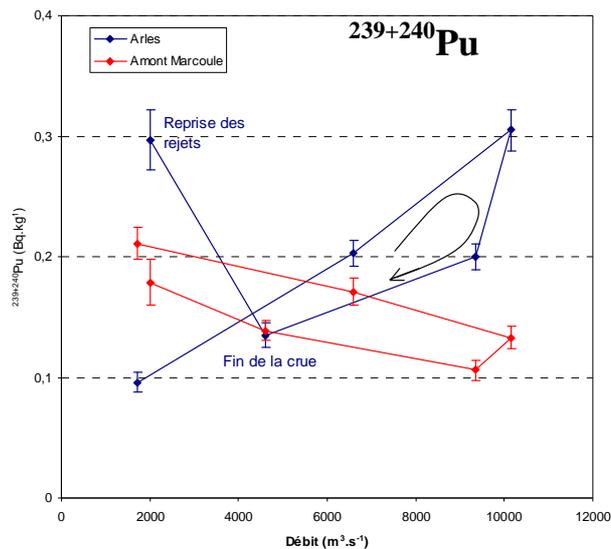
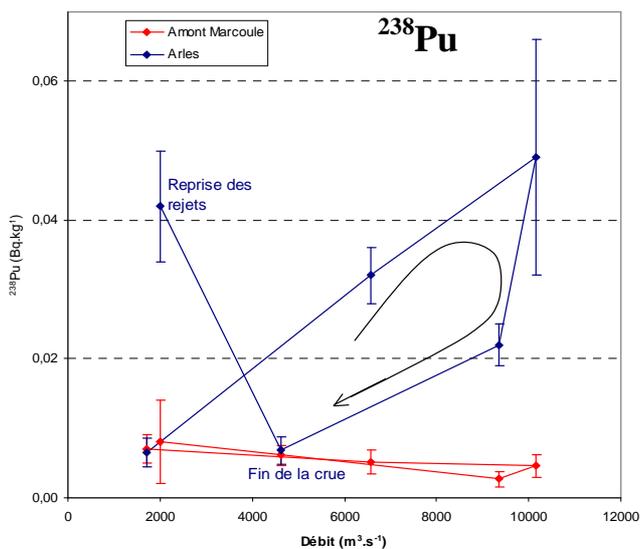


Figure 4-2. Résultats du suivi quotidien des activités massiques en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ des MES prélevées en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles durant la crue exceptionnelle de décembre 2003. Les flèches indiquent le sens du cycle d'hystérésis observé en Arles pour ces deux isotopes du début à la fin de la crue.

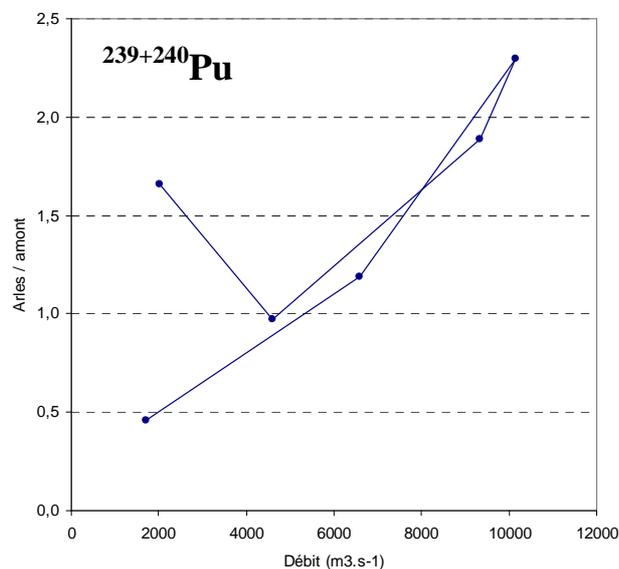
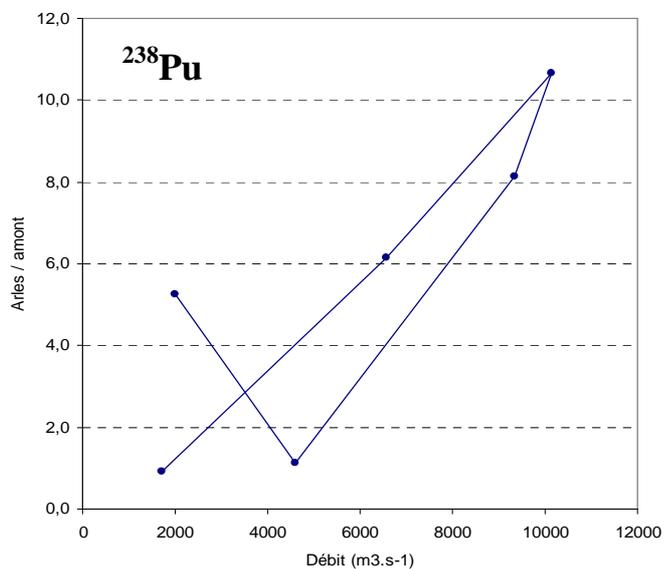


Figure 4-3. Evolution du rapport des activités mesurées en Arles sur les activités mesurées en amont du bief Marcoule-Arles en fonction du débit du Rhône durant la crue de décembre 2003.

4.3.1.2. Utilisation des rapports isotopiques du plutonium

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

L'avantage principal de l'utilisation des rapports isotopiques, tels que ceux des isotopes du plutonium, réside avant tout dans le fait que deux isotopes d'un même élément réagissent de manière quasi identique aux variations environnementales qui les affectent. La normalisation d'un isotope d'un élément à un autre isotope du même élément permet ainsi de s'affranchir implicitement de la variabilité, dans l'espace et dans le temps, des phases porteuses de ces isotopes, là où cette variabilité peut affecter des éléments différents.

La mise en évidence de la remobilisation sédimentaire en aval de Marcoule grâce à l'étude des activités particulières des isotopes du plutonium peut être confirmée par l'étude du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ (RA). Rappelons que les apports provenant du lessivage des retombées radioactives sur le bassin versant et ceux issus des rejets du centre de Marcoule sont caractérisés par des rapports respectifs de l'ordre de RA=0,03 et RA=0,30. La figure 4-4 représente la chronique des valeurs de RA déterminées en amont de Marcoule durant la période d'étude, tandis que la figure 4-5 représente la chronique des valeurs de RA déterminées en Arles.

Les résultats de la figure 4-4 montrent que les apports issus de l'amont du bief Marcoule-Arles ont bien été caractérisés par des RA compris dans la gamme de variation du rapport théorique des retombées globales, que ce soit en périodes de crues ou hors périodes de crues.

En Arles, les résultats de la figure 4-5 soulignent l'influence des rejets directs du centre de Marcoule sur les flux de plutonium hors périodes de crues. Les matériaux particuliers ayant transité hors période de crues ont été caractérisés par des RA oscillant autour de la valeur moyenne de $0,24 \pm 0,06$ (cadre rouge supérieur de la figure). Le fait que cette valeur soit inférieure au rapport théorique du plutonium issu du centre de Marcoule est une conséquence de la diminution des rejets, qui a entraîné une contribution plus importante des apports provenant du bassin versant, abaissant ainsi le RA.

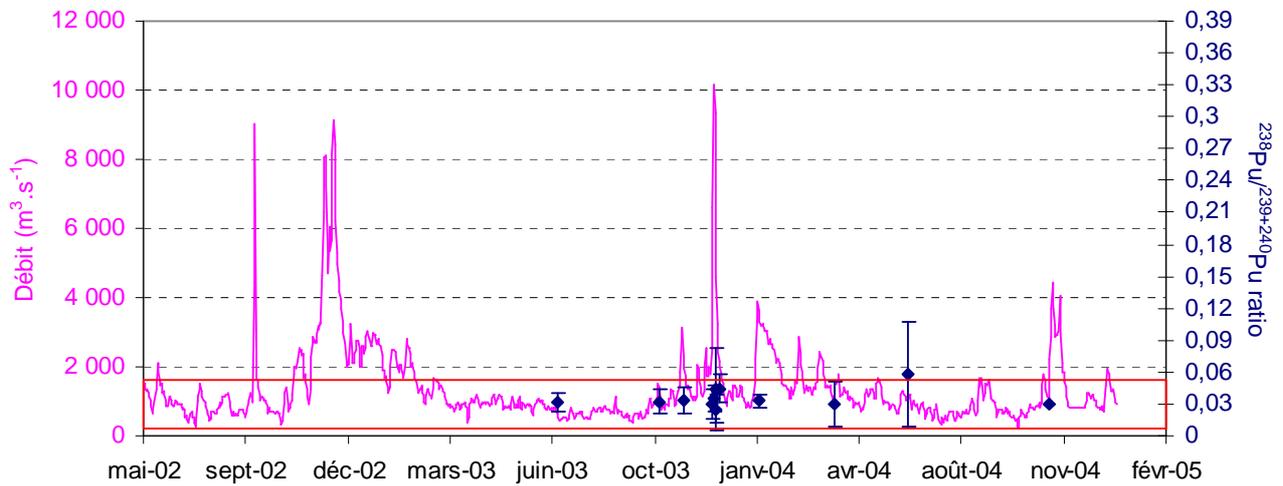


Figure 4-4. Résultats du suivi du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ en amont du bief Marcoule-Arles. Les résultats sont superposés à la courbe des débits de la période d'étude. Le cadre rouge représente la gamme de variation du rapport isotopique des apports issus du lessivage des retombées globales.

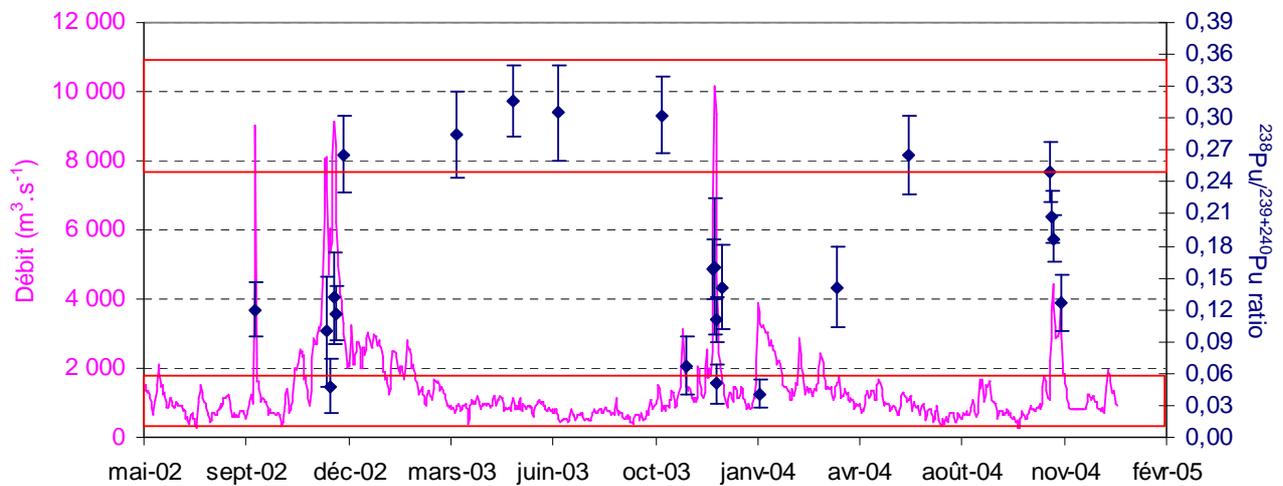


Figure 4-5. Résultats du suivi du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ en Arles. Le cadre rouge supérieur représente la gamme de variation du rapport caractéristique des rejets de Marcoule. Le cadre rouge inférieur représente celle du rapport issu des retombées globales.

En périodes de crues, le centre de Marcoule n'est pas autorisé à rejeter d'effluents liquides. Si nous faisons l'hypothèse de l'absence d'une contribution différée du plutonium issu du centre de Marcoule via la remobilisation de stocks sédimentaires, les RA déterminés en Arles auraient dû être égaux à ceux déterminés en amont du centre, c'est à dire représentatifs des seuls apports issus du lessivage du bassin versant. Au contraire, les RA provenant du suivi des épisodes de crues (événements 1, 2 et 3 du tableau 2-1) sont le plus souvent significativement à l'extérieur de la gamme de variation du RA théorique des retombées (entre 0,10 et 0,15). La comparaison de ces RA avec ceux mesurés en amont implique donc sans nul doute un mélange des apports provenant du lessivage du bassin versant avec ceux issus d'une remobilisation de sédiments contaminés par le centre de Marcoule.

Comme dans le cas des activités massiques du ^{238}Pu et du $^{239+240}\text{Pu}$, l'étude de l'évolution du RA $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ avec le débit lors de la crue de décembre 2003 (figure 4-6) met en évidence un effet d'hystérésis en Arles, non observé en amont de Marcoule. Alors qu'à Mornas, le RA est resté constant et proche de 0,03, en Arles il a augmenté significativement durant la montée de crue, pour décroître durant la phase de descente des eaux jusqu'à redevenir représentatifs des apports du bassin versant en fin de crue, puis finalement augmenter à nouveau suite à la reprise des rejets. L'occurrence de cet effet d'hystérésis concernant le RA $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ conforte l'hypothèse d'une reprise des stocks sédimentaires de plutonium, qui se produirait principalement durant la phase de montée de crue et dont la contribution diminuerait ensuite, à cause à la fois de l'épuisement des stocks et de la baisse du débit.

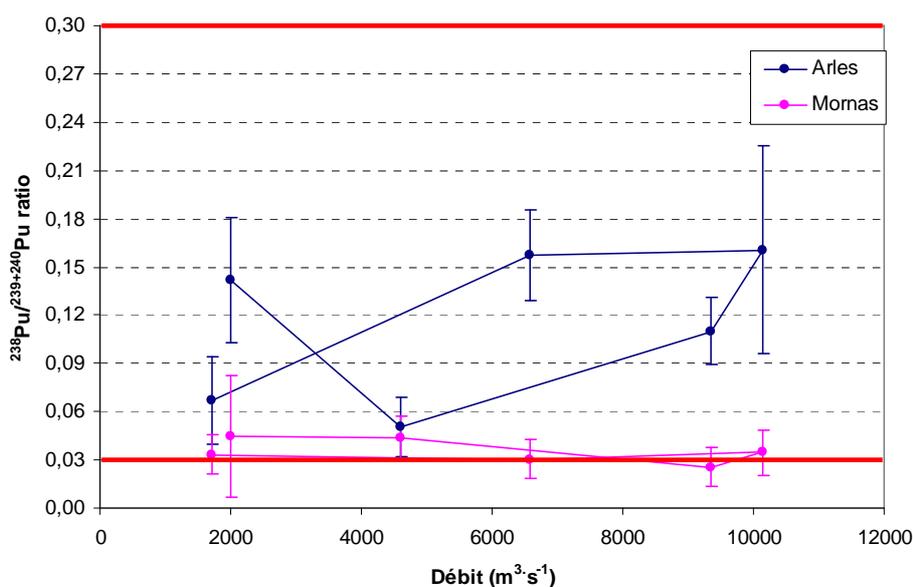


Figure 4-6. Résultats du suivi quotidien du rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ des MES prélevées en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles durant la crue exceptionnelle de décembre 2003. La flèche indique le sens du cycle d'hystérésis observé en Arles. Les traits rouges figurent les rapports caractéristiques des rejets du centre de Marcoule (0,30) et des retombées globales (0,03).

4.3.1.2.2. Le rapport de masse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$

L'utilisation de la technique de spectrométrie de masse couplée à un plasma par induction (ICPMS) a permis de déterminer le rapport de masse (RM) des isotopes du plutonium $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ sur des échantillons de MES prélevés en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles. Si la composition de ces deux isotopes dans les dépôts des retombées radioactives est relativement bien connue, il n'existe par contre aucune information publiée sur celle des rejets du centre de Marcoule. Puisque nous avons vu que, hors périodes de crues, les niveaux d'activité particulière des isotopes ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ ainsi que le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ reflétaient la contribution prédominante des rejets du centre sur le bief Marcoule-Arles, on peut penser que le RM $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ pourrait aussi caractériser cette contribution. La question est donc de savoir s'il est possible d'utiliser le RM $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ afin de mettre en évidence, lors des crues, la remobilisation sédimentaire de stocks de plutonium issu de Marcoule. Afin de caractériser le RM pour les rejets du centre de Marcoule, les résultats sont d'abord comparés aux valeurs de RM qui caractérisent les rejets des usines de retraitement du combustible irradié de La Hague et de Sellafield. Afin de définir le potentiel du RM dans le cadre de l'étude de la remobilisation sédimentaire en aval de Marcoule, les résultats sont ensuite comparés à la gamme de variation caractéristique des retombées globales (0,180±0,014 ; Kelley et al., 1999).

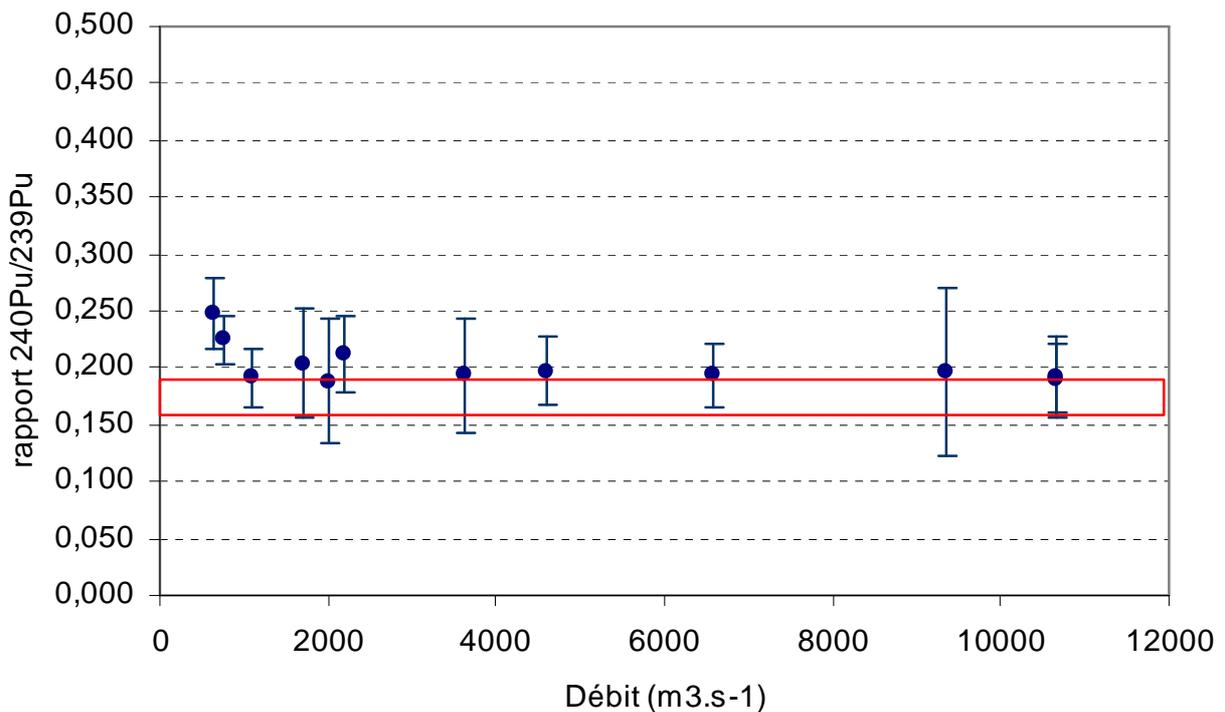


Figure 4-7. Rapports de masse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ des MES prélevées en amont du bief Marcoule-Arles. Le cadre rouge représente la gamme de variation du rapport des retombées globales selon Kelley et al. (1999).

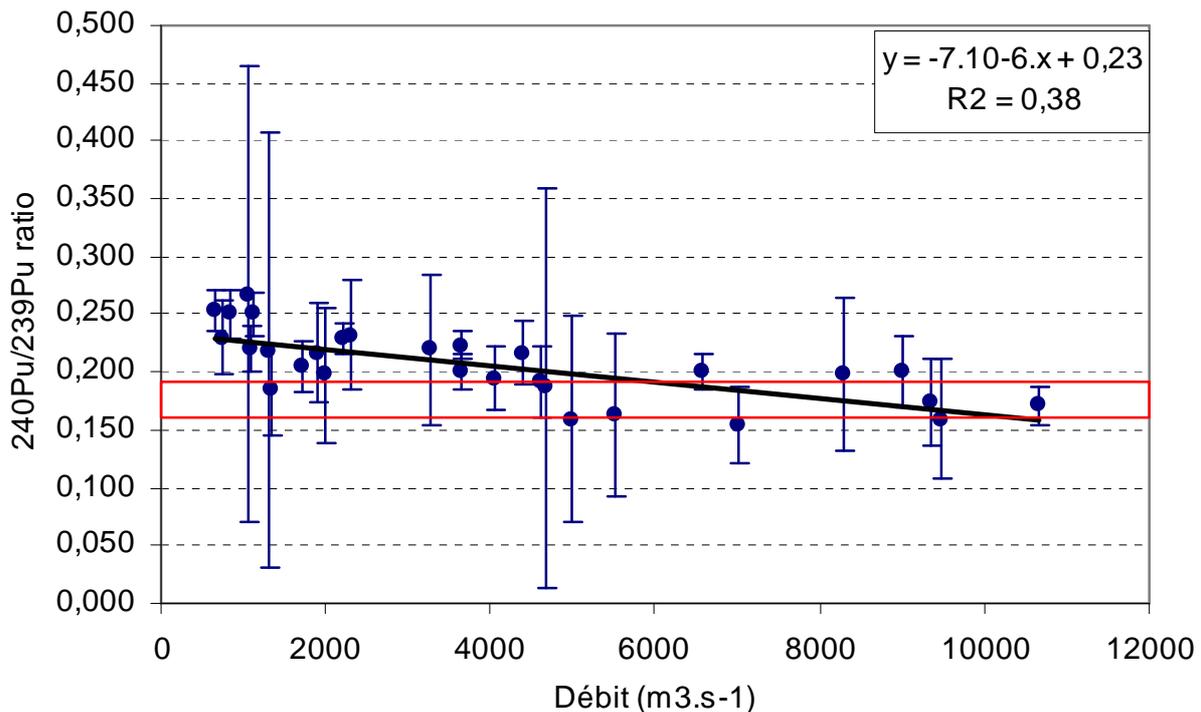


Figure 4-8. Rapports de masse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ des MES prélevées en Arles. Le cadre rouge représente la gamme de variation du rapport des retombées globales selon *Kelley et al. (1999)*.

Les résultats d'activité en ^{239}Pu et ^{240}Pu et de rapport de masse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ acquis dans ce travail sont reportés en annexe A4 et A5. La figure 4-7 présente les résultats du RM $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ déterminé sur les MES en amont du bief Marcoule-Arles et reporté en fonction du débit du Rhône. Ce rapport a varié de 0,188 à 0,248, définissant un rapport moyen et un écart type associé de $0,203 \pm 0,018$ ($n=12$). Cette valeur n'est pas significativement différente de la valeur de $0,180 \pm 0,014$ définie comme étant caractéristique des retombées globales de plutonium suite aux essais nucléaires en atmosphère.

La figure 4-8 présente les résultats du RM $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ déterminés en Arles et reportés en fonction du débit du Rhône. Ce rapport montre une tendance à la diminution lorsque que le débit du Rhône augmente. Hors période de crues, ce rapport a varié de 0,186 à 0,267, définissant une moyenne et un écart type associé de $0,225 \pm 0,022$ ($n=16$) qui s'écarte significativement du RM caractéristique des retombées globales. Bien que cette valeur ne s'écarte pas significativement de la valeur de $0,203 \pm 0,018$ déterminés sur les MES en amont du bief Marcoule-Arles, il semble qu'elle caractérise l'influence des rejets du centre de Marcoule sur les eaux du Rhône en aval du centre. Elle peut être en effet comparée au RM des

rejets de l'usine de retraitement du combustible irradié de La Hague en Manche, et de l'usine de Sellafield en mer d'Irlande. Selon *Bruneau (1999)*, le RM des rejets de l'usine de La Hague a augmenté de 0,04 à 0,25 sur la période 1966-1976, puis de 0,28 à 0,42 sur la période 1977 à 1996, l'augmentation du RM à partir de 1977 correspondant avec le début du retraitement du combustible de réacteurs à eau sous pression (REP). Selon cet auteur, le RM moyen des rejets totaux en ^{239}Pu et ^{240}Pu entre 1954 et 1996 s'élève à 0,24. *Agarande et al. (2004)* ont par ailleurs déterminé une valeur du RM $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ de $0,260\pm 0,003$ dans un échantillon de sédiment soumis aux rejets de l'usine de La Hague et prélevé dans la rade de Cherbourg. Concernant les rejets de l'usine de Sellafield, des mesures faites dans des sédiments de la mer d'Irlande ont aussi montré une augmentation du RM avec le temps : de 0,05 en 1960, il passe à des valeurs supérieures à 0,22 dans les rejets effectués dans le début des années 1990 (*Kershaw et al., 1995*). La valeur de $0,225\pm 0,022$ déterminée dans cette étude est ainsi cohérente avec les valeurs de 0,24 et de 0,22 déterminées respectivement pour les rejets des usines de La Hague et de Sellafield, du moins pour la période récente. Il ressort toutefois que le RM $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ des rejets de La Hague et de Sellafield a fortement varié avec le temps. Cette variabilité est probablement liée à la modification du type de combustible retraité dans ces usines. Le tableau 4-3 présente ainsi des valeurs caractéristiques du RM en fonction des termes sources de plutonium. Selon les données de ce tableau, le RM peut varier de 0,23 à 0,67 suivant le type de réacteur qui produisent du plutonium. Il se peut donc, au vu de ces données, que le RM des rejets du centre de Marcoule ait évolué avec le temps. Ne connaissant pas l'évolution du RM des rejets du centre de Marcoule avec le temps, il n'est a priori pas possible d'utiliser le RM $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ dans le cadre de l'étude de la remobilisation de stocks sédimentaires anciens.

Tableau 4-3. Valeurs du rapport de masse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ pour différentes sources de plutonium (données publiées dans *Warneke et al., 2002*).

Source	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$
Integrated weapon test fallout	0,18
Weapon production	0,01-0,07
Chernobyl accident	0,4
MAGNOX reactor (GCR)	0,23 ^a
Pressurised heavy water reactor (PHWR)	0,41 ^a
Advanced gas-cooled reactor (AGR)	0,57 ^a
Pressure tube boiling water reactor (RBMK)	0,67 ^a
Boiling water reactor (BWR)	0,40 ^a
Pressurised water reactor (PWR)	0,43 ^a

^a After fuel burn-up

Durant les périodes de crue, les prélèvements de MES ont été caractérisés par des RM qui ont oscillé entre 0,154 et 0,217, correspondant à une moyenne et un écart type de $0,182 \pm 0,020$ ($n=13$). Les rapports déterminés en Arles dans le cadre de ce travail ne semblent donc pas différents de ceux des apports issus du drainage des retombées globales. Le fait que contrairement au RA $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, le RM $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ne soit apparemment pas affecté par la remobilisation sédimentaire en aval du centre de Marcoule peut s'expliquer de la façon suivante. En considérant que le RM moyen déterminé hors périodes de crues est proche de celui qui doit caractériser les stocks de plutonium accumulés en aval du centre de Marcoule, la différence entre ce rapport et celui des apports du bassin versant n'est pas assez importante pour permettre à la remobilisation sédimentaire de modifier sensiblement le RM en Arles lors des crues. Cette modification est cependant possible avec le RA $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ étant donné la différence d'un facteur 10 qui existe entre le RA des stocks sédimentaires et celui des apports du bassin versant.

4.3.2. Contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$

Grâce en particulier à l'étude des isotopes du plutonium, la partie 4.3.1 a permis de montrer qu'il se produisait, lors des périodes de crues dans le Rhône aval, une remobilisation de stocks de sédiments représentant un terme source décalé de radioactivité artificielle originaire du centre de Marcoule. Il est maintenant nécessaire de déterminer si la contribution de cette remobilisation aux flux totaux de radioactivité artificielle vers la Méditerranée est significative ou non. La présente partie s'attache à estimer cette contribution pour les isotopes ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$, puisque ce sont les seuls radioéléments pour lesquels la remobilisation des stocks en aval de Marcoule a été démontrée. A partir de ces résultats, nous pourrions proposer des contributions de la remobilisation sédimentaire en aval de Marcoule aux flux de MES durant les crues, qui permettront ensuite d'estimer la contribution des stocks de césium 137 remobilisés.

4.3.2.1. Utilisation des activités particulières

Comme nous l'avons vu durant la crue de décembre 2003, le fait que les activités en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ des MES prélevées en Arles soient significativement supérieures à celles des

MES prélevées en amont du bief Marcoule-Arles est probablement dû à la remobilisation dans le bief de matériel contaminé par les rejets du centre de Marcoule. Ces différences d'activité entre l'amont et l'aval du bief permettent de déterminer la contribution des stocks de plutonium remobilisé au transport total durant cette crue.

Les sédiments stockés dans le bief Marcoule-Arles sont marqués d'une part par les dépôts des retombées radioactives sur le bassin versant et d'autre part par les rejets du centre de Marcoule. Puisque le centre de Marcoule n'est pas autorisé à rejeter des effluents liquides lors des périodes de crues du Rhône, les activités en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ mesurées sur les MES en Arles lors des crues représentent la somme des activités en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ des MES lors de leur entrée dans le bief et des activités en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ des stocks sédimentaires remobilisés. La contribution C de la remobilisation des stocks sédimentaires contaminés par du ^{238}Pu et du $^{239+240}\text{Pu}$ issus des rejets du centre de Marcoule à l'activité totale A_T en ^{238}Pu ou en $^{239+240}\text{Pu}$ mesurée en Arles est calculée avec l'équation suivante :

$$C = (A_T - A_{BV}) / A_T \quad (15)$$

Avec A_{BV} l'activité en ^{238}Pu ou en $^{239+240}\text{Pu}$ des MES lors de leur entrée dans le bief Marcoule-Arles. Les valeurs de C calculées avec l'équation (15) sont représentatives de la contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ vers la Méditerranée durant les crues du Rhône.

L'équation (15) a été utilisée pour estimer la contribution du plutonium issu du centre de Marcoule lors de la crue de décembre 2003. Le tableau 4-4 présente les résultats moyens quotidiens, ainsi que leur contribution. Ces résultats montrent le rôle très significatif que la remobilisation sédimentaire a joué dans les flux de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ lors de cette crue exceptionnelle. Durant la montée de crue et le pic de crue, c'est à dire du 2 au 4 décembre 2003, la remobilisation sédimentaire a ainsi contribué pour 84% à 90% des flux de ^{238}Pu , et pour 16% à 56% des flux de $^{239+240}\text{Pu}$. La phase de descente de crue (5 décembre 2003) a été caractérisée par une diminution de la contribution des stocks de plutonium remobilisés, avec une valeur de contribution de 14% du flux de ^{238}Pu et une contribution nulle concernant le flux de $^{239+240}\text{Pu}$. Au final, la remobilisation sédimentaire aura respectivement contribué pour environ 89% et 50% du transport total de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ durant la crue exceptionnelle de décembre 2003.

Tableau 4-4. Estimation de la contribution des stocks sédimentaires de ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ au transport total de ces deux isotopes durant la crue de décembre 2003. Les valeurs de contribution ont été estimées à partir des activités massiques mesurées en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles. A_{BV} est l'activité des MES mesurée en amont du bief Marcoule-Arles, A_{T} est l'activité des MES mesurées en Arles.

	^{238}Pu (mBq.kg ⁻¹)				$^{239+240}\text{Pu}$ (mBq.kg ⁻¹)		
	Débit (m ³ .s ⁻¹)	A_{BV}	A_{T}	Contribution stocks	A_{BV}	A_{T}	Contribution stocks
02/12/2003	6581	5±2	32±4	84%	171±11	203±11	16%
03/12/2003	10144	5±2	49±17	90%	133±9	305±17	56%
04/12/2003	9345	3±1	22±3	86%	106±8	200±11	47%
05/12/2003	4612	6±2	7±2	14%	139±8	135±10	-3%
Transport total durant la crue		0,28±0,04 GBq			1,9±0,2 GBq		
Contribution des stocks		0,24 GBq (89±13%)			0,89 GBq (50±5%)		

Cependant, il est délicat de travailler à partir des activités absolues comme nous venons de le faire. En effet, on ne peut complètement écarter l'hypothèse que les différences observées entre les activités mesurées en amont du bief Marcoule-Arles et celles mesurées en Arles ont pu être dues, au moins en partie, à d'autres facteurs que la remobilisation sédimentaire en aval de Marcoule, comme par exemple des facteurs de variation de nature et/ou de taille des particules. Les travaux d'Antonelli et al. (publication soumise, annexe A7), effectués en partie dans le cadre de ce travail de thèse, montrent l'évolution de la granulométrie des MES lors de la crues de décembre 2003 (figure 4-9). Il apparaît clairement une modification de la composition granulométrique des MES lors de la crue. Bien que la fraction argileuse soit relativement stable durant la crue, variant de 11% à 22% dans les échantillons prélevés, la fraction limoneuse, majoritaire dans les échantillons prélevés, décroît avec l'augmentation du débit avant de ré-augmenter avec la décrue. La fraction sableuse suit la tendance inverse, sa teneur passant de 2% à 29% lors de la montée de crue. Le peu de données d'activité en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ des MES obtenues lors de cette crue ne permet pas d'établir une relation avec les données granulométriques. L'augmentation de la fraction sableuse et la diminution de la fraction fine limoneuse des MES représentent néanmoins des facteurs de dilution des activités en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$. Si de tels facteurs influent de façon sensible sur la variabilité des activités en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ des MES, il est possible que les contributions estimées ci-dessus ne soient pas représentatives des contributions réelles de la remobilisation sédimentaire. Avant d'entamer une quelconque discussion sur la contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ vers la Méditerranée, nous

avons donc vérifié la validité des valeurs de contribution estimées par l'utilisation du rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$.

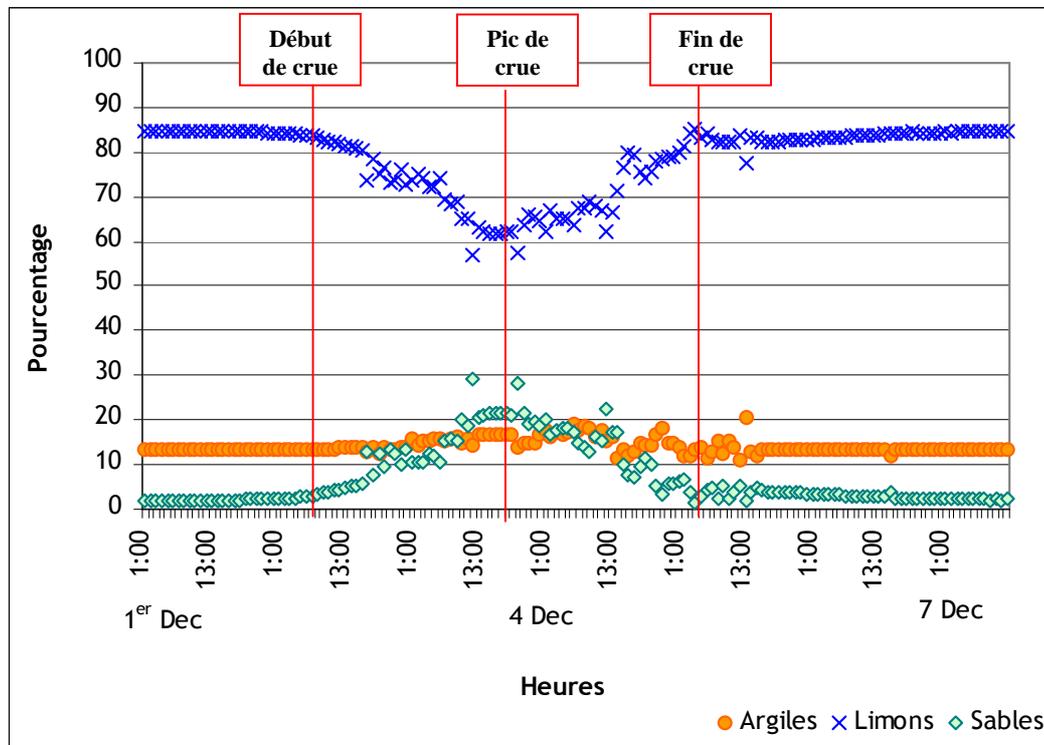


Figure 4-9. Evolution des teneurs en argiles, limons et sables au cours de la crue de décembre 2003 (figure publié dans Antonelli *et al.*, publication soumise, annexe A7).

4.3.2.2. Utilisation du rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$

Le principal avantage de l'utilisation d'un tel rapport d'activités est la possibilité de s'affranchir de l'influence des variations de nature et de taille des grains porteurs de la radioactivité. Comme avec les activités particulières du ^{238}Pu et du $^{239+240}\text{Pu}$, l'utilisation du rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ est possible grâce à l'observation, lors de la crue de décembre 2003, de différences significatives entre les valeurs mesurées en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles (figure 4-4 et 4-5). Le fait que les rapports déterminés en Arles s'écartent significativement du rapport RA=0,03 caractéristique des apports issus du lessivage du bassin versant pour se rapprocher du rapport RA=0,3 typique des rejets du centre de Marcoule est un argument décisif en faveur de la remobilisation de stocks de plutonium particulaire issus de

ces rejets. Ces deux termes sources représentent ainsi les termes de l'équation de mélange (4) dont le développement mathématique a été présenté au paragraphe 2.9.3.1 :

$$RA_A = x.RA_{RS} + (1-x).RA_{BV} \quad (4)$$

Avec RA_A le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ du mélange, RA_{RS} et RA_{BV} respectivement le rapport des stocks sédimentaires remobilisés et le rapport des apports du bassin versant, et x la proportion de $^{239+240}\text{Pu}$ issu de Marcoule et présent dans les stocks remobilisés. A partir de cette équation, il est possible de déterminer la proportion de $^{239+240}\text{Pu}$ issu du centre de Marcoule :

$$^{239+240}\text{Pu}_{\text{Marcoule}} = x = (RA_A - RA_{BV}) / (RA_{RS} - RA_{BV}) \quad (16)$$

Proportion à partir de laquelle on peut déduire celle du ^{238}Pu :

$$^{238}\text{Pu}_{\text{Marcoule}} = ^{239+240}\text{Pu}_{\text{Marcoule}} \cdot (RA_{RS} / RA_A) \quad (17)$$

Ayant mesuré le terme RA_A et en assumant $RA_{RS} = 0,30$ et $RA_{BV} = 0,03$, la contribution de la remobilisation sédimentaire en aval de Marcoule aux flux totaux de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ durant la crue de décembre 2003 a pu être déterminée. Les résultats obtenus ont été reportés dans le tableau 4-5. Ces résultats montrent une contribution qui s'est accentuée avec la montée de crue, pour atteindre respectivement 90% et 48% du flux d'exportation de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ durant le pic de crue. D'après cette méthode d'estimation, la remobilisation sédimentaire aurait contribué au final à hauteur de 89% et 44% du transport total de ces deux isotopes du plutonium lors de cette crue.

Tableau 4-5. Estimation de la contribution des stocks sédimentaires de ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ au transport total de ces deux isotopes durant la crue de décembre 2003. Les valeurs de contribution ont été estimées à partir des rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ déterminés en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles.

	Débit ($\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)	$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ en Arles	^{238}Pu Marcoule	$^{239+240}\text{Pu}$ Marcoule
02/12/2003	6581	0,16	90%	47%
03/12/2003	10144	0,16	90%	48%
04/12/2003	9345	0,11	81%	30%
05/12/2003	4612	0,05	44%	7%
Transport total durant la crue			0,28±0,04 GBq	1,9±0,2 GBq
Contribution des stocks			0,24 GBq (~89%)	0,79 GBq (~44%)

Ces résultats confirment ceux déterminés grâce à l'étude des activités particulières. Ils démontrent aussi qu'il est possible d'estimer la contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux de plutonium à partir du seul suivi en Arles du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$. Cette démonstration permet ainsi d'estimer les quantités de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ remobilisées lors des autres événements de crues de la période d'étude, pour lesquels aucune donnée n'a été obtenue en amont du bief Marcoule-Arles. Ces événements sont en particuliers ceux de l'automne 2002 et de l'automne 2004 (événements 1, 2, 4 et 5 du tableau 2-1), durant lesquels ont été mesurés des rapports d'activités en Arles similaires à ceux de la crue de décembre 2003. Le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ n'a pas fait l'objet d'un suivi journalier complet lors de ces événements. Les estimations de contribution de la remobilisation sédimentaire ont donc été déterminées en appliquant les équations (16) et (17) à des rapports d'activités moyens calculés à partir des quelques données acquises lors de ces événements (tableau 4-6).

Tableau 4-6. Estimation, à partir du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, de la contribution de la remobilisation sédimentaire en aval du centre de Marcoule aux flux totaux de plutonium durant les crues de 2002 et 2004. Les événements 1, 2, 4 et 5 font référence au tableau 2-1. Les incertitudes associées aux rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ moyens des événements 1, 2 et 5 sont des écarts types. Un seul prélèvement a pu être effectué durant l'évènement 4, l'incertitude associée représente l'erreur sur la mesure.

	$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ moyen		^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$
Evènement 1 et 2	0,10±0,04	Transport total durant la crue	0,38 GBq	2,3 GBq
		Contribution des stocks	0,30 GBq (~78%)	0,60 Bq (~26%)
Evènement 4	0,04±0,01	Transport total durant la crue	0,04 GBq	0,21 GBq
		Contribution des stocks	0,01 GBq (~28%)	0,01 GBq (~4%)
Evènement 5	0,17±0,03	Transport total durant la crue	0,04 GBq	0,21 GBq
		Contribution des stocks	0,037 GBq (~92%)	0,11 GBq (~52%)

Finalement, l'étude du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ permet d'estimer des valeurs de contribution de la remobilisation des stocks de plutonium issu de Marcoule aux flux totaux de plutonium vers la Méditerranée. Les crues à tendance méditerranéenne tels que les événements 1, 2, 3 et 5 de la période d'étude (tableau 2-1), ont été caractérisées par des valeurs de contribution de la remobilisation sédimentaire de l'ordre de 78% à 92% du flux

total de ^{238}Pu , et de l'ordre de 26% à 52% du flux total de $^{239+240}\text{Pu}$ vers la Méditerranée lors de ces évènements. Ces valeurs fortes sont la conséquence de l'ampleur et de la violence qui caractérisent le plus souvent les évènements à tendance Méditerranéenne. Au contraire, la crue de janvier 2004, d'origine océanique (évènement 4 du tableau 2-1), a été caractérisée par des valeurs faibles de la remobilisation sédimentaire, de l'ordre de 28% pour le ^{238}Pu et 4% pour le $^{239+240}\text{Pu}$. Ces dernières valeurs ont été calculées à partir d'un rapport isotopique de $0,04\pm 0,01$ qui n'est pas significativement différent du rapport caractéristique des retombées globales sur le bassin versant (0,03 à 0,05 selon *Barth et al., 1993*). Nous ne pouvons donc pas affirmer que la remobilisation sédimentaire a contribué de façon significative aux flux de plutonium durant la crue de janvier 2004.

4.3.3. Contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux de ^{137}Cs

Concernant le ^{137}Cs , aucune différence significative n'a pu être observée entre les mesures d'activités particulières obtenues en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles (figure 4-10). En amont comme en aval des rejets du centre de Marcoule, les activités massiques de ce radionucléide ont varié, en périodes de crues, entre 10 et 20 Bq.kg^{-1} , définissant en Arles une activité moyenne et un écart type associé de $15\pm 3 \text{ Bq.kg}^{-1}$ similaire à la valeur de $14\pm 5 \text{ Bq.kg}^{-1}$ déterminée en amont du bief toutes périodes confondues ($14\pm 4 \text{ Bq.kg}^{-1}$ en périodes de crues). Cela ne signifie pas que les processus de remobilisation de stocks de radionucléides artificiels piégés dans le compartiment sédimentaire n'intéresse pas le ^{137}Cs , mais simplement que cette remobilisation n'est pas assez importante, par rapport aux apports de ^{137}Cs venants du lessivage du bassin versant, pour permettre une différenciation significative de son activité particulière entre l'amont de Marcoule et Arles. Les résultats obtenus avec les isotopes du plutonium impliquent en effet la remobilisation de stocks sédimentaires, forcément contaminé par du ^{137}Cs originaire du centre de Marcoule étant donné son affinité pour les particules et les bilans d'accumulation mis en évidence en aval du centre.

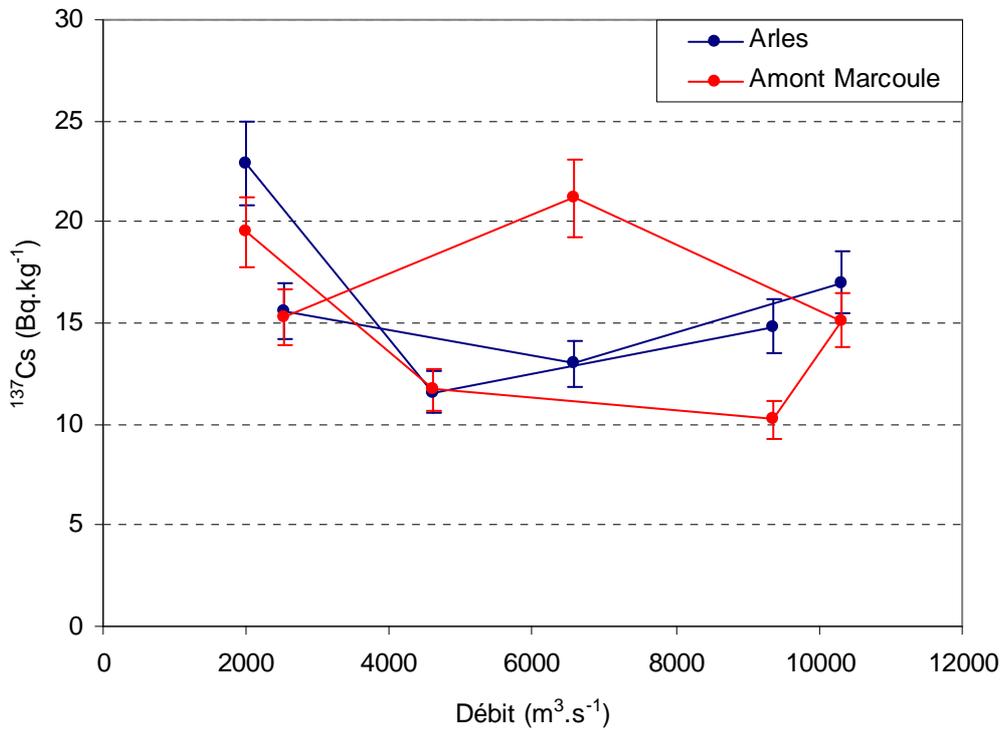


Figure 4-10. Résultats du suivi quotidien de l'activité massique en ^{137}Cs des MES prélevées en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles durant la crue exceptionnelle de décembre 2003.

4.3.3.1. Méthode d'estimation et résultats

Bien que nous n'ayons pas pu observer directement la participation de la remobilisation sédimentaire aux flux de ^{137}Cs durant les périodes de crues, il est possible d'estimer sa contribution via les résultats acquis pour les isotopes du plutonium.

L'équation de mélange suivante :

$$A_A = x.A_{RS} + (1-x).A_{BV} \quad (18)$$

permet de déterminer l'activité A_A (en Bq.kg^{-1}) de ^{137}Cs , ^{238}Pu ou $^{239+240}\text{Pu}$ des MES prélevées en Arles lors d'une crue, à partir de l'activité A_{RS} des stocks remobilisés et de l'activité A_{BV} des apports du bassin versant, connaissant la contribution x de sédiments remobilisés au flux d'exportation de MES. Dans cette équation, on considère que la proportion x de sédiments

remobilisés est la même pour les isotopes du plutonium ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ et pour le ^{137}Cs . Cette hypothèse peut être sujette à caution si l'on considère que les deux éléments césium et plutonium n'ont pas le même comportement physico-chimique vis à vis des particules, et que le terme x ne correspond donc pas au même type de phase porteuse pour ces deux éléments. Néanmoins, étant donné d'une part la forte affinité commune du plutonium et du césium pour les particules, et d'autre part les valeurs de K_d extrêmement proches qui les caractérisent dans les eaux du Rhône ($2,4 \cdot 10^5 \pm 0,6 \cdot 10^5 \text{ l.kg}^{-1}$ pour le ^{137}Cs ; $2 \cdot 10^5 \text{ l.kg}^{-1}$ pour le plutonium), nous considéreront cette hypothèse comme valable afin de proposer un ordre de grandeur de la contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux de ^{137}Cs vers le Méditerranée.

En utilisant les résultats de plutonium acquis en Arles (A_A), en amont du bief (A_{BV}), et en connaissant les activités en plutonium des stocks remobilisés (A_{RS}), l'équation (18) donne la proportion x de sédiments provenant de ces stocks. En multipliant la quantité de sédiments remobilisés par l'activité en ^{137}Cs des stocks, on obtient une estimation de la quantité de ^{137}Cs remobilisé en aval de Marcoule. Cette méthode implique cependant de faire des hypothèses sur les activités en isotopes du plutonium et en ^{137}Cs des stocks remobilisés.

Les activités des sédiments accumulés en aval de Marcoule ayant évolué avec le temps, il faut considérer que la remobilisation sédimentaire mise en évidence lors des crues peut concerner des stocks de tout âge, et que les activités mesurées en Arles durant ces crues sont le résultat d'un mélange entre des stocks récents et d'autres plus anciens. Il paraît donc prudent d'essayer d'encadrer la contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux de ^{137}Cs en raisonnant, par exemple, à partir de cas aux limites en faisant des hypothèses sur les activités les plus fortes et les plus faibles qui peuvent caractériser les stocks sédimentaires en aval de Marcoule. Ces hypothèses peuvent être construites à partir des chroniques de résultats de mesures acquis dans les sédiments du Rhône en aval de Marcoule (figure 1-12). Ces chroniques montrent que les niveaux d'activité les plus forts se retrouvent dans les stocks sédimentaires accumulés avant 1990, et que les stocks les plus faiblement marqués sont ceux qui se forment depuis 1998 et la stabilisation des rejets du centre de Marcoule.

Concernant les stocks formés avant 1990, des activités moyennes respectives de 400 Bq.kg^{-1} , $2,4 \text{ Bq.kg}^{-1}$ et $6,1 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ont ainsi été estimées pour le ^{137}Cs , le ^{238}Pu et le $^{239+240}\text{Pu}$, à partir des données d'activité des sédiments disponibles pour les années 1980. Les activités moyennes en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ des stocks récents ont été estimées à partir des données

acquises de 1998 à 2004. Depuis 1998, les apports en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ issus des rejets du centre de Marcoule et du drainage du bassin versant sont en effet caractérisés par une relative stabilité (figure 3-11), qui se répercute probablement sur les niveaux d'activité des stocks. Ces activités moyennes sont respectivement de 30 Bq.kg^{-1} , $0,37 \text{ Bq.kg}^{-1}$ et $0,80 \text{ Bq.kg}^{-1}$.

Tableau 4-7. Valeurs de contribution (%) de la remobilisation sédimentaire aux flux totaux de matières en suspension (MES) et de ^{137}Cs durant la crue de décembre 2003. Les activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ entre parenthèses représentent les hypothèses sur les activités moyennes des stocks utilisées pour le terme A_{RS} lors de l'application de l'équation (18).

		Remobilisation de stocks anciens ($^{137}\text{Cs}=400 \text{ Bq.kg}^{-1}$)			
		Utilisation du ^{238}Pu ($2,4 \text{ Bq.kg}^{-1}$)		Utilisation du $^{239+240}\text{Pu}$ ($6,1 \text{ Bq.kg}^{-1}$)	
Date de prélèvement	Débit ($\text{m}^3.\text{s}^{-1}$)	Contribution stocks MES	Contribution stocks ^{137}Cs	Contribution stocks MES	Contribution stocks ^{137}Cs
02/12/2003	6581	1%	34%	1%	17%
03/12/2003	10144	2%	44%	3%	68%
04/12/2003	9345	1%	22%	2%	42%
05/12/2003	4612	0%	1%	0%	0%
Transport total durant la crue		6,9 Mt	113 GBq	6,9 Mt	113 GBq
Contribution des stocks		0,10 Mt (1%)	41 GBq (36%)	0,15 Mt (2%)	61 GBq (54%)
		Remobilisation de stocks récents ($^{137}\text{Cs}=30 \text{ Bq.kg}^{-1}$)			
		Utilisation du ^{238}Pu ($0,37 \text{ Bq.kg}^{-1}$)		Utilisation du $^{239+240}\text{Pu}$ ($0,8 \text{ Bq.kg}^{-1}$)	
Date de prélèvement	Débit ($\text{m}^3.\text{s}^{-1}$)	Contribution stocks MES	Contribution stocks ^{137}Cs	Contribution stocks MES	Contribution stocks ^{137}Cs
02/12/2003	6581	7%	17%	5%	12%
03/12/2003	10144	12%	21%	26%	46%
04/12/2003	9345	5%	11%	14%	27%
05/12/2003	4612	0%	0%	0%	0%
Transport total durant la crue		6,9 Mt	113 GBq	6,9 Mt	113 GBq
Contribution des stocks		0,6 Mt (9%)	20 GBq (18%)	1,3 (19%)	41 GBq (36%)

Les valeurs de contributions de la remobilisation sédimentaire aux flux de MES et, donc, aux flux de ^{137}Cs durant la crue de décembre 2003 sont reportées dans le tableau 4-7. Si on considère la remobilisation de stocks d'avant 1990, l'utilisation respective des résultats de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ permet de déterminer des contributions de 36% et 54% de la remobilisation sédimentaire aux flux particulière de ^{137}Cs durant la crue de décembre 2003.

Si on considère la remobilisation de stocks récents, l'utilisation respective des résultats de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ permet de déterminer des contributions de 18% et 36% de la remobilisation sédimentaire aux flux particulaire de ^{137}Cs durant cette crue. Malgré les écarts observés entre elles, ces quatre valeurs semblent montrer que la remobilisation sédimentaire a contribué de façon significative aux flux de ^{137}Cs vers la Méditerranée durant la crue de décembre 2003. Elles permettent de calculer une contribution moyenne de $36\pm 15\%$ de la remobilisation sédimentaire dans le bief Marcoule-Arles au transport total de ^{137}Cs lors de cette crue.

Les valeurs de contribution de la remobilisation sédimentaire au transport de ^{137}Cs durant les autres crues de la période d'étude ont été estimées en appliquant l'équation (18) aux données acquises en Arles durant ces événements (terme A_A de l'équation). Pour cela, les données de plutonium de la crue de décembre 2003 en amont du bief ont été considérées comme représentatives des apports du bassin versant. Des activités moyennes en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ de $0,005 \text{ Bq.kg}^{-1}$ et $0,15 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ont donc été utilisées pour le terme A_{BV} de l'équation. Les résultats obtenus sont reportés dans le tableau 4-8.

Tableau 4-8. Valeurs de contribution (%) de la remobilisation sédimentaire aux flux totaux de matières en suspension (MES) et de ^{137}Cs durant les crues de 2002 et 2004. Les activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ entre parenthèses représentent les hypothèses sur les activités moyennes des stocks utilisées pour le terme A_{RS} lors de l'application de l'équation (18). Les résultats de contribution sont à chaque fois des moyennes des résultats acquis avec le ^{238}Pu et le $^{239+240}\text{Pu}$.

		Remobilisation de stocks anciens ($^{137}\text{Cs}=400 \text{ Bq.kg}^{-1}$; $^{238}\text{Pu}=2,4 \text{ Bq.kg}^{-1}$; $^{239+240}\text{Pu}=6,1 \text{ Bq.kg}^{-1}$)		Remobilisation de stocks récents ($^{137}\text{Cs}=30 \text{ Bq.kg}^{-1}$; $^{238}\text{Pu}=0,37 \text{ Bq.kg}^{-1}$; $^{239+240}\text{Pu}=0,8 \text{ Bq.kg}^{-1}$)	
		MES	^{137}Cs	MES	^{137}Cs
Evènements 1 et 2	Transport total durant la crue	9,4 Mt	140 GBq	9,4 Mt	140 GBq
	Contribution des stocks	0,1 Mt (1%)	38 GBq (27%)	0,8 Mt (9%)	24 GBq (17%)
Evènement 4	Transport total durant la crue	0,8 Mt	11 GBq	0,8 Mt	11 GBq
	Contribution des stocks	0%	0%	0%	0%
Evènement 5	Transport total durant la crue	0,8 Mt	11 GBq	0,8 Mt	11 GBq
	Contribution des stocks	0,03 Mt (4%)	8 GBq (71%)	0,3 Mt (33%)	5 GBq (46%)

Comme pour les radionucléides ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$, la remobilisation sédimentaire semble avoir contribué de manière importante aux flux de ^{137}Cs durant les événements 1, 2, 3 et 5 de la période d'étude, caractérisés par une influence méditerranéenne marquée. La remobilisation sédimentaire des stocks de ^{137}Cs originaire du centre de Marcoule aurait en effet contribué

pour 17% à 71% des flux totaux de ^{137}Cs selon les évènements de crues. Au contraire, la remobilisation sédimentaire ne semble pas avoir contribué au flux de ^{137}Cs durant l'évènement 4 d'origine océanique. Ces valeurs donnent un ordre de grandeur de la contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux de ^{137}Cs durant les crues. Il ne s'agit cependant pas de valeurs absolues puisqu'elles ont été déterminées sur la base des résultats de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$.

4.3.3.2. Influence de la remobilisation sédimentaire sur les activités en ^{137}Cs des MES

Nous avons vu que si les stocks remobilisés pouvaient modifier de façon significative les niveaux d'activités des isotopes du plutonium durant les périodes de crues, il n'en est pas de même pour le ^{137}Cs pour lequel aucune différence n'est observée entre l'aval et l'amont du bief Marcoule-Arles. La remobilisation sédimentaire implique donc des stocks dont les niveaux d'activité permettent de modifier le signal du plutonium mais pas celui du ^{137}Cs . Ayant estimé des valeurs de contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux de ^{137}Cs sur la base des résultats des isotopes du plutonium, nous devons vérifier que ces valeurs ne permettent pas de modifier de manière significative l'activité en ^{137}Cs des MES dans le bief Marcoule-Arles.

Dans l'équation (18), l'utilisation des valeurs de contribution x de la remobilisation sédimentaire aux flux de MES (paragraphe précédent) et des activités présumées en ^{137}Cs A_{RS} des stocks remobilisés, permet de calculer des valeurs d'activité théorique A_{A} en ^{137}Cs dans les MES en Arles. Ces valeurs d'activité ont été calculées pour la crue de décembre 2003 et sont comparées dans le tableau 4-9 aux valeurs mesurées en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles.

Lors des deux premiers jours de la crue, il semble que la remobilisation de stocks anciens aurait dû entraîner des activités en ^{137}Cs plus importantes que les activités mesurées en Arles. Cependant, les valeurs calculées pour le 2 décembre 2003 (25 Bq.kg^{-1}) ont certainement été influencées par l'activité des MES issus de l'amont du bief Marcoule-Arles ce jour là ($21 \pm 2 \text{ Bq.kg}^{-1}$). Les activités en ^{137}Cs calculées pour les 4 et 5 décembre ne s'écartent pas significativement de l'activité des MES en amont du bief. Seules l'activité

calculée pour le 3 décembre (22 Bq.kg^{-1}) s'écartent significativement de l'activité mesurée en amont du bief ($15 \pm 1 \text{ Bq.kg}^{-1}$). Ces valeurs d'activité calculées sont cohérentes avec la valeurs de $19 \pm 2 \text{ Bq.kg}^{-1}$ mesurée en Arles ce jour là. Finalement, malgré les niveaux d'activité en ^{137}Cs qui ont caractérisé les stocks formés avant 1990, il semble que la remobilisation des stocks de ^{137}Cs formés durant cette période soit possible aujourd'hui sans que cela ne se répercutent forcément de façon significative sur les activités mesurées en Arles.

Tableau 4-9. Estimation, à partir de la contribution des stocks de MES remobilisés en aval de Marcoule, des activités en ^{137}Cs mesurables en Arles durant la crue de décembre 2003. Comparaison avec les activités effectivement mesurées en Arles et en amont des rejets de Marcoule. Les activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ entre parenthèses représentent les hypothèses sur les activités moyennes des stocks utilisées pour le terme A_{RS} lors de l'application de l'équation (18).

			Remobilisation de stocks anciens ($^{137}\text{Cs}=400 \text{ Bq.kg}^{-1}$)			
			Utilisation du ^{238}Pu ($2,4 \text{ Bq.kg}^{-1}$)		Utilisation du $^{239+240}\text{Pu}$ ($6,1 \text{ Bq.kg}^{-1}$)	
	^{137}Cs mesuré en amont (Bq.kg^{-1})	^{137}Cs mesuré en Arles (Bq.kg^{-1})	MES	^{137}Cs Arles calculé (Bq.kg^{-1})	MES	^{137}Cs Arles calculé (Bq.kg^{-1})
02/12/2003	21 ± 2	13 ± 1	1%	25	1%	23
03/12/2003	15 ± 1	19 ± 2	2%	22	3%	26
04/12/2003	10 ± 1	15 ± 1	1%	13	2%	16
05/12/2003	12 ± 1	12 ± 1	0%	12	0%	11
Activité ^{137}Cs moyenne (Bq.kg^{-1})	14 ± 4	15 ± 3	21 ± 5			

			Remobilisation de stocks récents ($^{137}\text{Cs}=30 \text{ Bq.kg}^{-1}$)			
			Utilisation du ^{238}Pu ($0,37 \text{ Bq.kg}^{-1}$)		Utilisation du $^{239+240}\text{Pu}$ ($0,8 \text{ Bq.kg}^{-1}$)	
	^{137}Cs amont mesuré (Bq.kg^{-1})	^{137}Cs Arles mesuré (Bq.kg^{-1})	MES	^{137}Cs Arles calculé (Bq.kg^{-1})	MES	^{137}Cs Arles calculé (Bq.kg^{-1})
02/12/2003	21 ± 2	13 ± 1	7%	22	5%	22
03/12/2003	15 ± 1	19 ± 2	12%	17	26%	20
04/12/2003	10 ± 1	15 ± 1	5%	11	14%	14
05/12/2003	12 ± 1	12 ± 1	0%	12	0%	12
Activité ^{137}Cs moyenne (Bq.kg^{-1})	14 ± 4	15 ± 3	16 ± 5			

Les valeurs calculées en considérant la remobilisation des stocks récents confirment ces interprétations. Les 2, 4 et 5 décembre 2003, les valeurs d'activité calculées ne s'écartent pas significativement des valeurs mesurées en amont du bief Marcoule-Arles et sont cohérentes avec celles mesurées en Arles. Seules les valeurs d'activité calculées pour le 3 décembre (17 et 20 Bq.kg^{-1}) s'écartent de l'activité mesurée en amont du bief, à l'image de l'activité mesurée en Arles.

Il semble donc que l'activité en ^{137}Cs des MES issues de l'amont du bief Marcoule-Arles ait été modifiée de façon significative seulement lors du pic de la crue (3 décembre), lorsque la contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux de ^{137}Cs fut la plus forte (20% à 68%). Néanmoins, les valeurs moyennes d'activité en ^{137}Cs en Arles lors de cette crue, qu'elles soient calculées ($21\pm 5 \text{ Bq.kg}^{-1}$ et $16\pm 5 \text{ Bq.kg}^{-1}$) ou mesurées ($15\pm 3 \text{ Bq.kg}^{-1}$), ne sont pas significativement différentes des valeurs moyennes d'activité mesurées en amont du bief ($14\pm 4 \text{ Bq.kg}^{-1}$). Ces résultats confirment donc que la contribution des stocks sédimentaires de ^{137}Cs originaire du centre de Marcoule peut se produire sans influencer de façon importante sur les niveaux d'activité en ^{137}Cs des MES.

4.4. Discussion

D'après les résultats obtenus, il semble que la remobilisation sédimentaire en aval de Marcoule soit aujourd'hui un terme source significatif de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ lors des périodes de crues.

Durant la période d'étude (2002 à 2004), ce terme source s'est manifesté principalement lors d'évènements de crues intenses, le plus souvent d'origine méditerranéenne. Concernant la crue océanique de janvier 2004 (évènement 4 du tableau 2-1), il semble que la contribution de la remobilisation des stocks sédimentaires aux flux de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ en aval de Marcoule ait été négligeable. Ceci peut s'expliquer soit par l'épuisement des stocks disponibles lors de la crue de décembre 2003, soit par le caractère peu intense de cette crue océanique, qui n'aurait pas permis la remobilisation de stocks. On peut en effet penser que la forte contribution de la remobilisation sédimentaire lors des évènements 1, 2 et 3 a été directement liée à leur ampleur et donc à la capacité d'érosion qui les a caractérisés.

Sur la base des résultats de contribution des périodes de crues aux flux totaux annuels de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ vers la Méditerranée, des contributions moyennes annuelles de la remobilisation sédimentaire à ces flux ont été estimées, ce qui permet de dresser un tableau récapitulatif des contributions respectives des différents termes sources de radioactivités artificielles dans le Rhône aval (tableau 4-10).

La remobilisation sédimentaire de radionucléides originaires de Marcoule a ainsi contribué en moyenne pour 19%, 44% et 22% des flux annuels moyens de ^{137}Cs , ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ vers la Méditerranée sur la période 2002-2004, et représente donc aujourd'hui un terme source significatif de plutonium dans le Rhône aval. Le flux d'exportation lié aux rejets directs de Marcoule ne représente plus, quant à lui, que 16%, 20% et 17% des flux moyens annuels de ^{137}Cs , ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$, et est donc devenu minoritaire par rapport aux apports du bassin versant et de la remobilisation sédimentaire. Il est également intéressant de remarquer que les apports du bassin versant sont devenus un terme source significatif en ^{137}Cs , en ^{238}Pu et en $^{239+240}\text{Pu}$ dans les eaux du Rhône en aval de Marcoule, et représentent même aujourd'hui le terme source majoritaire de ^{137}Cs et de $^{239+240}\text{Pu}$. Il faut cependant remarquer que, malgré la diminution des rejets du centre de Marcoule, ce centre conserve une contribution non négligeable dans les flux actuels de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$, puisqu'en cumulant les flux issus des rejets directs et de la remobilisation sédimentaire, le centre de Marcoule contribue en moyenne pour 35%, 64% et 39% des flux moyens annuels de ces trois radionucléides respectifs.

La figure 4-11 représente l'évolution de la contribution de ces trois termes sources en fonction des flux totaux annuels vers la Méditerranée. Lors de l'année 2004, qui fut une année hydrologique relativement calme par rapport aux années 2002 et 2003 (tableau 2-1), la contribution des apports issus du drainage du bassin versant a été la plus forte, avec des valeurs de 57%, 65% et 68% des flux annuels totaux de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$, respectivement. La remobilisation sédimentaire de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ originaires du centre de Marcoule a contribué respectivement pour 10%, 20% et 12% des flux totaux annuels de ces radionucléides, tandis que les rejets directs du centre de Marcoule ont contribué respectivement pour 33%, 15% et 30% de ces flux. Durant l'année 2004, il semble donc que les apports issus du drainage du bassin versant aient été largement majoritaire par rapport aux apports originaires des rejets du centre de Marcoule qui ont représenté, rejets directs et remobilisation sédimentaire confondus, 43%, 35% et 42% des flux de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ vers la Méditerranée.

L'occurrence de crues exceptionnelles durant les années 2002 et 2003 a entraîné une augmentation de la contribution relative des apports du bassin versant aux flux annuels de ^{137}Cs (70% en 2002, 63% en 2003). Bien que la contribution des apports du bassin versant aux flux de $^{239+240}\text{Pu}$ ait été la plus forte en 2002 (68%), elle a été la plus faible en 2003

Tableau 4-10. Tableau récapitulatif de la contribution des différents termes sources actuels de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ aux flux totaux vers la Méditerranée, déterminée pour la période 2002 à 2004.

	^{137}Cs				^{238}Pu				$^{239+240}\text{Pu}$			
	Flux annuel (GBq)	Contribution stocks (GBq)	Contribution rejets Marcoule (GBq)	Contribution bassin versant (GBq)	Flux annuel (GBq)	Contribution stocks (GBq)	Contribution rejets Marcoule (GBq)	Contribution bassin versant (GBq)	Flux annuel (GBq)	Contribution stocks (GBq)	Contribution rejets Marcoule (GBq)	Contribution bassin versant (GBq)
2002	194±58	31 (16%)	27 (14%)	136 (70%)	0,62±0,61	0,30 (48%)	0,13 (21%)	0,2 (31%)	3,2±0,9	0,6 (19%)	0,4 (13%)	2,2 (68%)
2003	158±47	41 (26%)	17 (11%)	100 (63%)	0,47±0,47	0,24 (51%)	0,11 (23%)	0,12 (26%)	2,5±0,80	0,8 (32%)	0,4 (16%)	1,3 (52%)
2004	67±20	7 (10%)	22 (33%)	38 (57%)	0,26±0,26	0,05 (20%)	0,04 (15%)	0,17 (65%)	1,0±0,3	0,12 (12%)	0,30 (30%)	0,58 (58%)
Flux moyen annuel:	140±42 GBq.an ⁻¹				0,45±0,45 GBq.an ⁻¹				2,3±0,7 GBq.an ⁻¹			
Contribution moyenne des stocks:	26 GBq.an ⁻¹ (19%)				0,20 GBq.an ⁻¹ (44%)				0,50 GBq.an ⁻¹ (22%)			
Contribution moyenne des rejets:	22 GBq.an ⁻¹ (16%)				0,09 GBq.an ⁻¹ (20%)				0,4 GBq.an ⁻¹ (17%)			
Contribution moyenne du bassin versant:	92 GBq.an ⁻¹ (65%)				0,16 GBq.an ⁻¹ (36%)				1,4 GBq.an ⁻¹ (61%)			

(52%) malgré la crue exceptionnelle de décembre. Concernant le ^{238}Pu , il semble que les crues de 2002 et 2003 ait entraîné une diminution importante de la contribution de ce terme source aux flux annuels (31% en 2002 et 26% en 2003 contre 65% en 2004).

La contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux annuels totaux de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ vers la Méditerranée semble augmenter en 2002 et 2003 pour les trois radionucléides. Cette augmentation paraît moins prononcée pour le ^{137}Cs (16% en 2002, 26% en 2003) et le $^{239+240}\text{Pu}$ (19% en 2002, 32% en 2003) que pour le ^{238}Pu , pour lequel la remobilisation des stocks sédimentaires contaminés a contribué à hauteur de 48% de 51% des flux annuels totaux en 2002 et 2003, respectivement.

La contribution des rejets directs du centre de Marcoule diminue en 2002 et 2003 pour le ^{137}Cs (14% en 2002, 11% en 2003) et le $^{239+240}\text{Pu}$ (13% en 2002, 16% en 2003). Elle augmentent, au contraire, pour le ^{238}Pu (21% en 2002, 23% en 2003).

Finalement, il semble que les apports issus du drainage du bassin versant représentent aujourd'hui le terme source prépondérant de ^{137}Cs et de $^{239+240}\text{Pu}$, quel que soit le type et l'ampleur des crues du Rhône et malgré la remobilisation de sédiments contaminés durant ces évènements. Ceci ne semble pas être le cas pour le ^{238}Pu pour lequel, en 2002 et 2003, le terme source prépondérant a été la remobilisation sédimentaire. Ceci pourrait s'expliquer par l'importance des stocks de ^{238}Pu présents en aval du centre de Marcoule, plus important que ceux de ^{137}Cs et de $^{239+240}\text{Pu}$ relativement aux stocks disponibles dans les sols du bassin versant. L'illustration en est la différence entre le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ des rejets du centre (environ 0,30) et celui des retombées radioactives globales (environ 0,03). La remobilisation de sédiments marqués par les rejets du centre contribuerait alors, aujourd'hui, de façon plus significative pour le ^{238}Pu que pour le $^{239+240}\text{Pu}$ et, a priori, que pour le ^{137}Cs .

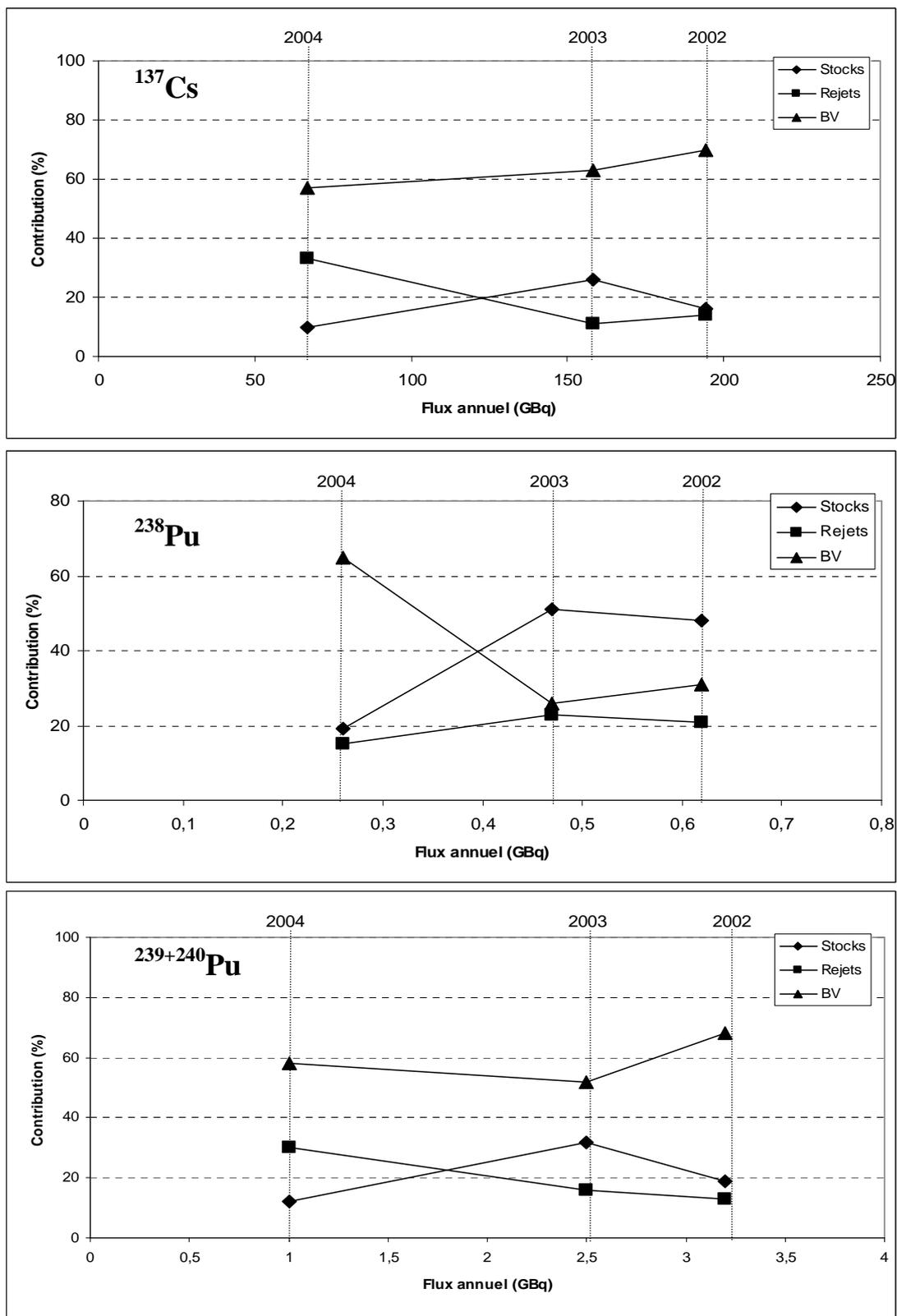


Figure 4-11. Evolution de la contribution des termes sources de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$, reportée en fonction des flux annuels de ces 3 radionucléides sur la période 2002-2004. Les 3 termes sources représentés sont la remobilisation sédimentaire en aval de Marcoule (Stocks), les rejets directs de Marcoule (Rejets), et les apports issus du lessivage du bassin versant (BV).

5-ESTIMATION DES TEMPS DE RESIDENCE

5. Estimation des temps de résidence

La question qui se pose maintenant est d'estimer les temps de résidence des stocks sédimentaires en aval de Marcoule avant leur remobilisation lors des crues. L'estimation de ces temps de résidence permettra de savoir si le processus de reprise sédimentaire que l'on observe actuellement lors des crues permet la remobilisation de stocks formés avant 1990, plus marqués que les stocks formés aujourd'hui. Il sera possible, ensuite, de proposer une estimation du temps nécessaire à l'évacuation totale des stocks sédimentaires de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ accumulés depuis que le centre de Marcoule est autorisé à rejeter des effluents liquides dans les eaux du Rhône.

5.1. Problématique

La détermination des temps de résidence des sédiments en aval du centre de Marcoule avant leur remobilisation lors des crues du Rhône est une question délicate. Puisque seule l'étude des radionucléides artificiels permet de mettre en évidence et de quantifier la contribution de la remobilisation sédimentaire, est-il possible de pousser plus avant leur étude afin d'appréhender les temps de résidence? *Thomas (1997)* a proposé des valeurs de temps de résidence des particules entre Marcoule et Arles de l'ordre de 3 à 5 ans, estimées à partir de bilans annuels entre les apports et les exports de ^{137}Cs et de ^{60}Co ($T_{1/2}=5$ ans). La détermination de ces temps de résidence était basée sur l'hypothèse que les différences de bilan observées entre ces radionucléides étaient dues à la décroissance radioactive du ^{60}Co plus rapide que celle du ^{137}Cs . Cependant, le travail de cet auteur a été réalisé pour la période 1983-1990 durant laquelle le rôle des périodes de crues, et donc de la remobilisation sédimentaire, n'a pas été aussi important que lors de la période étudiée dans ce travail.

Essayer de déterminer les temps de résidence des sédiments repris lors des crues s'avère très complexe car la remobilisation des stocks sédimentaires dépend à la fois de l'origine des crues, ainsi que d'autres facteurs tels que l'épuisement des stocks disponibles d'une crue à l'autre ou lors d'une même crue. Par exemple, la crue méditerranéenne de septembre 2002 était due essentiellement à celle d'un de ses affluents cévenols, le Gardon, et n'a sans doute

concerné que des stocks sédimentaires situés entre la confluence Gardon-Rhône et Arles, omettant ceux situés en amont. Qu'en était-il de l'âge des sédiments remobilisés dans cette zone par rapport à ceux du bief Marcoule-Arles ? D'autre part, les crues d'origine méditerranéenne, telles que celles de 2002 et 2003, sont généralement plus importantes et plus violentes que les crues océaniques, et sont donc probablement caractérisées par des capacités d'érosion plus importantes. La chronologie des événements de crues est aussi un facteur influençant la remobilisation sédimentaire. Ainsi, la succession des crues de l'automne 2002 a peut-être entraîné la remobilisation, durant la crue de septembre, des stocks récents plus facilement remobilisables, qui ne furent plus disponibles pour la crue de novembre. La crue de novembre 2002 aurait pu alors remobiliser préférentiellement des stocks plus anciens. Finalement, la combinaison de tous ces facteurs ne permet probablement pas d'établir une méthode d'estimation absolue des temps de résidence des sédiments en aval de Marcoule en fonction, par exemple, du régime hydraulique du fleuve. Nous allons voir cependant comment nous pouvons proposer des temps de résidence en faisant des bilans entre les activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ accumulées, remobilisées et exportées chaque année.

5.2. Conséquences à court et moyen termes

L'observation des activités de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ remobilisés durant les crues de la période d'étude permet d'entrevoir, à une échelle globale, le fonctionnement du système Marcoule-Arles concernant ces stocks de radionucléides artificiels. Il est en effet possible de comparer les activités remobilisées aux stocks formés récemment suite à l'accumulation sédimentaire hors périodes de crues. Cette comparaison se base sur l'hypothèse que les stocks récemment formés sont plus facilement remobilisables que des stocks plus anciens, et sont donc repris en premier par les crues. Afin de respecter la chronologie de la reprise des stocks, les crues de la période d'étude sont donc étudiées dans leur ordre d'occurrence.

Le tableau 5-1 représente les données d'estimation des activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ accumulés et remobilisés annuellement de 1998 à 2004. Les données de stockage ont été déterminées en considérant une accumulation annuelle moyenne de 31% des rejets de ^{137}Cs du centre de Marcoule et de 25% des rejets de plutonium (tableau 4-2). Les données de césium et de plutonium remobilisés ont été estimées en considérant les contributions

moyennes respectives de la remobilisation sédimentaire aux flux annuels de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ du tableau 4-10. Ces flux annuels ont été estimés depuis 1998 en considérant les rejets de plutonium relativement stables sur la période 1998-2004.

Tableau 5-1. Estimation des stocks de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ originaires de Marcoule, accumulés et remobilisés annuellement sur la période 1998-2004.

	^{137}Cs		^{238}Pu		$^{239+240}\text{Pu}$	
	Stockage annuel (GBq)	remobilisation annuelle (GbBq)	Stockage annuel (GBq)	remobilisation annuelle (GBq)	Stockage annuel (GBq)	remobilisation annuelle (GBq)
1998	10	0	0,04	0	0,13	0
1999	15	0	0,05	0	0,15	0
2000	9	4	0,11	0,06	0,35	0,21
2001	7	21	0,06	0,09	0,2	0,31
2002	12	31	0,04	0,18	0,16	0,59
2003	8	41	0,03	0,24	0,09	0,81
2004	10	17	0,05	0,08	0,17	0,22

En ce qui concerne les crues de 2002, les quantités de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ remobilisées ont largement dépassé les stocks potentiellement accumulés durant l'année. Il semble donc que le caractère exceptionnel de ces crues ait permis de remobiliser des stocks plus anciens. Afin d'obtenir un bilan équilibré entre les quantités de césium et de plutonium accumulées et remobilisées, il est ainsi nécessaire de prendre en compte les processus d'accumulation et d'exportation depuis 1998 jusqu'à 2002. Durant cette période, environ 53 GBq, 0,30 GBq et 0,99 GBq de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ ont été stockés, qui équilibrent globalement les 56 GBq, 0,33 GBq et 1,11 GBq remobilisés au total lors des crues de 2000 à 2002. Il semble aussi que les crues de 2000 et 2001 ont globalement repris des stocks formés dans l'année. La remobilisation sédimentaire lors des crues de 2002 a donc apparemment concerné des stocks de plutonium formés jusqu'à 5 ans en arrière.

Un an après, la crue de décembre 2003 a remobilisé 41 GBq, 0,24 GBq et 0,81 GBq respectivement de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$, alors que les stocks constitués dans l'année ne se sont élevés qu'à 8 GBq, 0,03 GBq et 0,09 GBq. 33 GBq, 0,21 GBq et 0,72 GBq de ces trois radionucléides sont donc issus de stocks plus anciens que l'année et, étant données les quantités de plutonium remobilisées sur la période 1998-2002, il semble donc que la

remobilisation sédimentaire durant cette crue exceptionnelle ait concerné des stocks antérieurs à 1998.

L'année 2004, caractérisée par des crues de périodes de retour annuelles, montre un bilan relativement équilibré entre les ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ remobilisés et accumulés dans l'année. Cela a également été le cas, apparemment, durant les années 2000 et 2001 dont les crues ont été d'une ampleur équivalente à celles de 2004. Il semblerait donc que des crues de périodes de retour de l'ordre de l'année ne soient capables de remobiliser que des stocks sédimentaires récents et dont on peut penser qu'ils sont plus facilement remobilisables.

5.3. Conséquences à long terme

L'évaluation des conséquences à long terme des processus de remobilisation sédimentaire sur les stocks de radionucléides artificiels en aval de Marcoule, permet équivalent à déterminer le temps nécessaire pour que les stocks sédimentaires marqués par les rejets du centre de Marcoule disparaissent totalement du bief Marcoule-Arles.

En considérant les résultats d'accumulation et de remobilisation des stocks de césium et de plutonium acquis dans le cadre de cette étude, il est possible de proposer une méthode d'estimation de ce temps en se basant sur la prédiction des bilans annuels de radioactivité remobilisée. Cette méthode implique cependant de faire certaines hypothèses sur le fonctionnement actuel du système apport/export dans le bief Marcoule-Arles. Ce système doit être considéré comme stable en terme d'apport provenant du centre de Marcoule aussi bien qu'en terme d'export, et ce jusqu'à l'épuisement des stocks, ce qui suppose :

- La stabilité des rejets en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ du centre. Il semble, en effet, que les rejets de ces radionucléides soient relativement stables depuis la fin des années 1990 (figure 3-11). Les valeurs de rejets moyens annuels en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ calculés sur la base des années 1998 à 2004 sont alors respectivement de 32 ± 9 GBq, $0,21\pm 0,10$ GBq et de $0,7\pm 0,3$ GBq.

- La stabilité des flux d'exportation de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ vers la mer Méditerranée. Les valeurs de flux moyens annuels d'exportation utilisées sont celles du tableau tableau 3-8.

Sur la base de ces hypothèses, nous pouvons calculer les bilans entre les quantités moyennes annuelles de radionucléides accumulées à partir des rejets, et remobilisées lors des périodes de crues. Pour cela, nous prendrons en compte les valeurs d'accumulation moyenne du ^{137}Cs et des isotopes du plutonium rejetés annuellement par Marcoule de 31% et de 25%, respectivement (tableau 4-2), et les valeurs moyennes de contribution de la remobilisation sédimentaire de 19%, 44% et 22% aux flux annuels de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$, respectivement (tableau 4-10). Le bilan moyen annuel B ($\text{GBq}\cdot\text{an}^{-1}$) est calculé pour chaque radionucléide grâce à l'équation suivante :

$$B = [F.C_{RS}] - [R_{jt}.C_{Acc}] \quad (19)$$

Avec F le flux d'exportation moyen annuel ($\text{GBq}\cdot\text{an}^{-1}$), R_{jt} le rejet moyen annuel venant de Marcoule ($\text{GBq}\cdot\text{an}^{-1}$), et C_{RS} et C_{Acc} respectivement la contribution de la remobilisation sédimentaire au flux moyen annuel et la proportion moyenne du rejet annuel accumulée en aval de Marcoule (en %).

L'estimation du temps t nécessaire à la remobilisation de la totalité des stocks sédimentaires contaminés par du césium et du plutonium originaire du centre de Marcoule peut finalement se calculer par le rapport des stocks totaux de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ disponibles dans le bief Marcoule-Arles sur B :

$$t = \text{Stocks}/B \quad (20)$$

Pour les isotopes du plutonium, les valeurs de stocks utilisées sont déterminées à partir des données de *Eyrolle et al. (2004)*, qui ont estimé une accumulation nette de 29 ± 9 GBq de ^{238}Pu et de 172 ± 35 GBq de $^{239+240}\text{Pu}$ entre 1945 et 2000, en corrigeant la valeur du ^{238}Pu par rapport à la décroissance radioactive depuis le début de la formation des stocks (stocks $^{238}\text{Pu} = 20\pm 6$ GBq). Le stock actuel de ^{137}Cs est estimé pour la même période à 10900 ± 7700 GBq en faisant le bilan des stocks de ^{137}Cs accumulés et remobilisés en aval de Marcoule, et

en corrigeant à la décroissance radioactive. Le stock de ^{137}Cs a été déterminé en considérant une accumulation de 31% des rejets du centre de Marcoule. Durant les années caractérisées par des périodes de crues importantes, l'accumulation de ^{137}Cs a été considérée comme nulle (Thomas, 1997).

Tableau 5-2. Estimations du temps de résidence t des stocks sédimentaires de radioactivité artificielle originaire du centre de Marcoule, accumulés de 1958 à 2004, dans le bief Marcoule-Arles. Sont reportés les termes nécessaires aux calculs des valeurs de t , avec F le flux moyen annuel vers la Méditerranée, R_{jt} le rejet moyen annuel par le centre de Marcoule, C_{RS} la contribution moyenne de la remobilisation sédimentaire au flux moyen annuel, C_{acc} l'accumulation moyenne annuelle des rejets du centre de Marcoule, et B le flux d'exportation moyen annuel des stocks. Sont aussi reportées les activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ rejetées par le centre de Marcoule de 1958 à 2004 et les stocks accumulés à partir de ces rejets (entre parenthèses la proportion que représentent les stocks par rapport aux activités totales rejetées).

	F (GBq.an ⁻¹)	R_{jt} (GBq.an ⁻¹)	C_{RS}	C_{acc}	B (GBq.an ⁻¹)	Rejets Marcoule (GBq)	Stocks (GBq)	t
^{137}Cs	63	32	19%	31%	2	72338	10900±7700 (~15%)	~5500 ans
^{238}Pu	0,31	0,21	44%	25%	0,08	93	20±6 (~21%)	~300 ans
$^{239+240}\text{Pu}$	1,6	0,7	22%	25%	0,2	444	172±35 (~39%)	~900 ans

Les estimations du temps t nécessaire à l'évacuation totale des stocks sédimentaires contaminés par du ^{137}Cs , du ^{238}Pu et du $^{239+240}\text{Pu}$ originaires du centre de Marcoule, ainsi que les paramètres nécessaires à leur calcul, sont reportés dans le tableau 5-2. Environ 15%, 21% et 39% des activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ rejetées par le centre de Marcoule entre 1958 et 2004 ont ainsi été stockés dans le compartiment sédimentaire du bief Marcoule-Arles. Les estimations du temps t nécessaire à l'évacuation des stocks sédimentaires contaminés par du ^{137}Cs , du ^{238}Pu et du $^{239+240}\text{Pu}$ rejetés par le centre de Marcoule sont déterminées à partir des résultats de ^{137}Cs , de ^{238}Pu , et de $^{239+240}\text{Pu}$ et sont respectivement de l'ordre de 5500 ans, 300 ans et de 900 ans. Bien qu'il y ait un écart conséquent entre ces estimations, il semble que le bief Marcoule-Arles ne puisse exporter entièrement ses stocks sédimentaires contaminés par les rejets du centre de Marcoule avant au minimum plusieurs siècles.

Ces valeurs de t concernent les stocks sédimentaires. Pour prédire la disparition des stocks de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ associés à ces stocks sédimentaires, il est nécessaire de prendre en compte la décroissance radioactive de ces radionucléides. Les valeurs de t reportées dans le tableau 5-2 sont applicables au $^{239+240}\text{Pu}$ pour lequel la diminution des stocks

par décroissance radioactive est négligeable sur cette période ($T_{1/2} = 24100$ ans pour le ^{239}Pu , $T_{1/2} = 6563$ ans pour le ^{240}Pu). Par contre, il est nécessaire d'introduire un facteur de décroissance radioactive pour le ^{137}Cs ($T_{1/2} = 30$ ans) et le ^{238}Pu ($T_{1/2} = 88$ ans). L'évolution des stocks de ces deux radionucléides suit la relation suivante :

$$\text{Stocks}_{(t+1)} = \text{Stocks}_{(t)} - B \cdot dt - \lambda \cdot \text{Stocks}_{(t)} \cdot dt \quad (21)$$

Avec t le temps en années et λ la constante radioactive du radionucléide étudié. Cette relation conduit à déterminer des valeurs de temps t de l'ordre de 200 ans et 100 ans, nécessaires à l'épuration des stocks respectifs de ^{137}Cs et de ^{238}Pu issus des rejets du centre de Marcoule et accumulés dans le compartiment sédimentaire du bief Marcoule-Arles jusqu'à aujourd'hui (figure 5-1).

5.4. Discussion

Nous avons montré que lors des crues de fréquence de retour d'une à quelques années, le bilan entre l'accumulation annuelle et la remobilisation des stocks sédimentaires marqués par des radionucléides originaires de Marcoule s'équilibre. Malgré cela, lorsqu'on s'intéresse aux bilans moyens d'exportation à long terme de ces stocks, il semble que le bilan accumulation/remobilisation annuelle penche en faveur de la remobilisation, ce qui soulignerait un export moyen annuel de stocks d'âges supérieurs à l'année. Cela est possible puisque ces bilans à long terme ont été estimés sur la base de flux moyens annuels déterminés sur une période de temps relativement longue (1974-2004, tableau 3-8), flux qui prennent donc en compte non seulement les crues annuelles, mais aussi des événements de crues plus importants, voire exceptionnels, qui se sont produits durant cette période. Sur notre période d'étude (2002 à 2004), il a semblé en effet que seuls les événements de crues exceptionnelles (fréquence de retour supérieure à 10 ans) ont été capables de remobiliser des stocks sédimentaires d'âge supérieurs à l'année, comme lors des crues extrêmes de 2002 et de 2003. Ceci pose aussi la question de la localisation des stocks dans le bief Marcoule-Arles. La dynamique de remobilisation des stocks sédimentaires récents ou anciens est-elle liée d'une quelconque façon à leur localisation dans le bief Marcoule-Arles ?

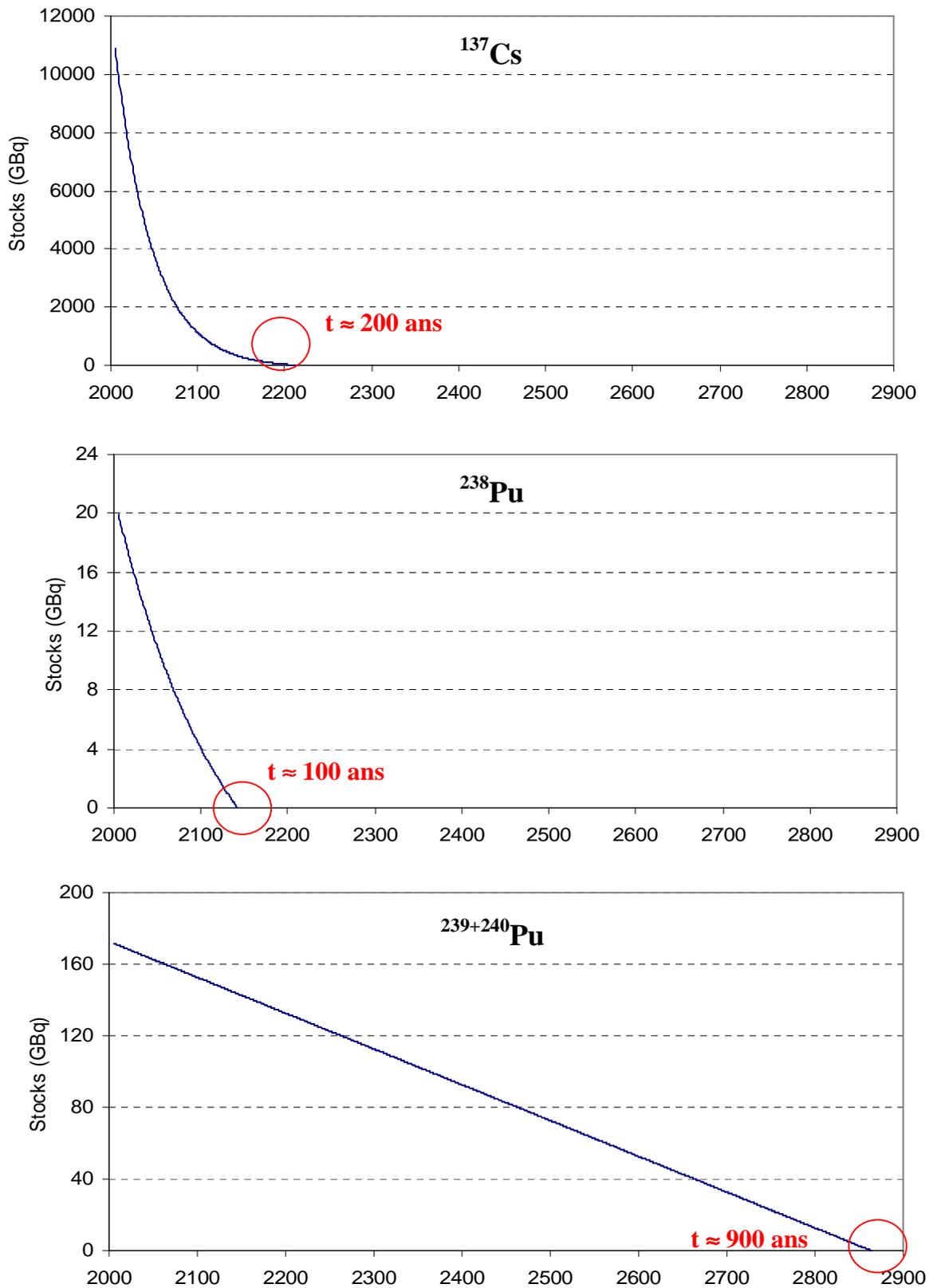


Figure 5-1. Prédications de l'évolution des stocks sédimentaires de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ piégés en aval de Marcoule de 1945 à nos jours. Ces prédictions tiennent compte de la décroissance radioactive du ^{137}Cs et du ^{238}Pu . Elles représentent l'évolution la plus rapide des stocks, et aboutissent à des temps de résidence t avant la disparition complète des stocks du bief Marcoule-Arles.

6-IDENTIFICATION DES ZONES DE STOCKAGE SEDIMENTAIRE

6. Identification des zones de stockage sédimentaire

Au sein d'un système fluvial, des accumulations sédimentaires sont observables à la fois dans les zones immergées (chenal principal) et dans les zones émergées (berges, bras morts, plaines d'inondation). Pour répondre à la question de la localisation des stocks sédimentaires contaminés par des radionucléides artificiels, deux compartiments distincts susceptibles d'accumuler puis de relarguer du matériel particulaire ont été considérés. Ces deux compartiments sont d'une part l'amont des ouvrages hydroélectriques dans le chenal du fleuve, et d'autre part le système de berges. Des résultats acquis dans un bras mort (lône) du Rhône seront aussi discutés.

6.1. Stockage dans le chenal

Le chenal du Rhône en aval du centre de Marcoule représente une zone de stockage transitoire des sédiments, en particulier de part la présence d'un certain nombre d'ouvrages hydroélectriques qui freinent le transport des matières en suspension (MES) et jouent le rôle de piège à particules (figure 2-11, paragraphe 2.6.1).

Ces ouvrages permettent le piégeage des matériaux à granulométrie fine, pour lesquels les radionucléides étudiés ont le plus d'affinité. *Lambrechts et Marchand (1994 b)* ont effectué en 1993 des mesures granulométriques sur des échantillons issus des dépôts sédimentaires dans les garages des écluses associées à toutes les retenues d'eaux du Bas-Rhône. Leurs résultats ont montré que l'amont des retenues de Caderousse, d'Avignon et de Vallabrègues, qui représentent les trois principaux ouvrages situés sur le Rhône entre Marcoule et Arles, piégeaient préférentiellement des sédiments ayant plus de 90% de particules fines inférieures à 50 μm . Les travaux de *Lambrechts et al. (1996 c)*, qui ont effectué en avril 1994 des carottages dans les sédiments accumulés au niveau des aménagements hydroélectriques d'Avignon (figure 6-1), montrent qu'il s'agit de sédiments fins constitués de 50% à 90% de particules inférieures à 50 μm (limons et argiles). *Cartier,(1984)*, qui s'est intéressé spécifiquement à ces sites potentiels de stockage de la radioactivité artificielle, souligne que « les résultats laissent apparaître que les dépôts superficiels des garages amonts des écluses de Caderousse, Avignon et Vallabrègues sont très voisins quant à leurs caractéristiques sédimentologiques. On note d'une part l'absence d'éléments de diamètre supérieur à 200 μm ,

d'autre part l'abondance d'éléments de diamètre inférieur à 50 µm (79 à 92%) dont les argiles qui, à elle seules, représentent 13 à 18% du poids total du sédiment. »

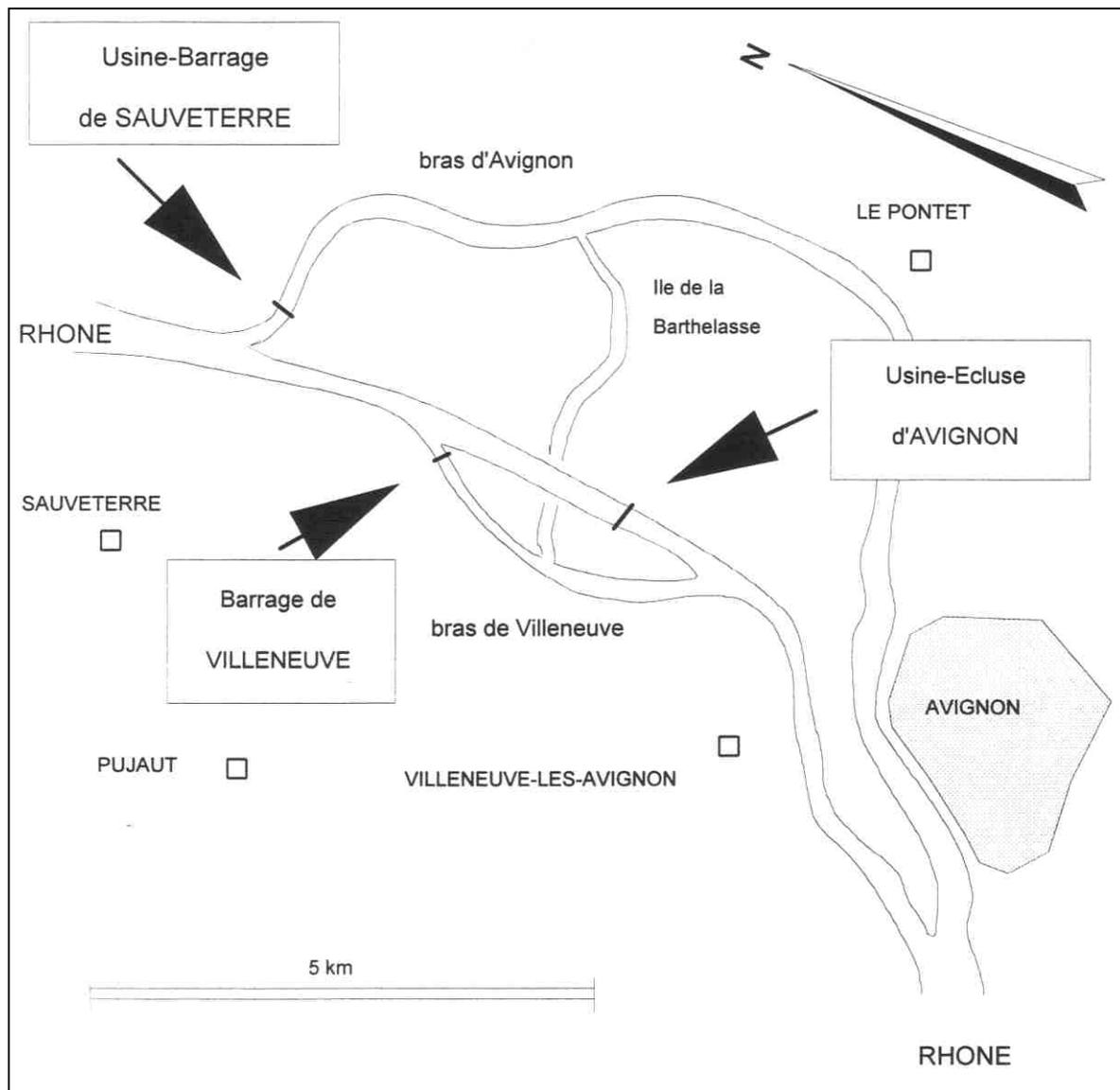


Figure 6-1. Aménagement de la chute d'Avignon et situation de l'usine-barrage de Sauveterre (figure publiée dans Lambrechts et al., 1996 c)

Les trois retenues d'eau (Caderousse, Avignon et Vallabrègues) représentent donc probablement des sites de stockage privilégiés des radionucléides artificiels, en particulier pour le ^{137}Cs , le ^{238}Pu et le $^{239+240}\text{Pu}$ originaires du centre de Marcoule. Lambrechts et Marchand (1994 b) ont montré que « la radioactivité artificielle était multipliée par un facteur

4 entre les ouvrages non influencés et ceux influencés par les effluents liquides du centre de Marcoule ». *Lambrechts et al. (1996 c)* ont ensuite déterminé, dans les sédiments retenus au niveau de ces ouvrages, des rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ caractéristiques des rejets du centre de Marcoule (0,30).

Par ailleurs, *Lambrechts et al. (1996 c)* ont mesuré des rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ proches de 0,05 à la base de leur carottage en amont de la retenue d'Avignon, qui sont caractéristiques des retombées globales sur le bassin versant. Dans cette zone, les sédiments les plus profonds ont vraisemblablement été déposés avant le démarrage de l'usine de retraitement du combustible irradié de Marcoule, c'est à dire antérieurement à 1958, ce qui donne une idée de la capacité de stockage à long terme de ce type d'ouvrages. De plus, les auteurs ont effectué leurs carottages en avril 1994, c'est à dire suite aux crues exceptionnelles de l'automne 1993 et de janvier 1994. Or, ils estiment que les niveaux sédimentaires superficiels des carottes auraient été déposés entre 1980 et 1985, et concluent que les événements de crues de 1993 et 1994 auraient emporté des dépôts accumulés depuis 10 à 15 ans.

6.2. Stockage dans les berges et les bras morts (lônes)

Les berges du Rhône constituent un second compartiment de stockage transitoire de matériaux particuliers et des radionucléides artificiels associés. Afin de mettre en évidence les stocks potentiellement en place sur les berges du bief Marcoule-Arles, des carottages ont été effectués sur trois sites particuliers du bief, deux sites de berges et une lône.

6.2.1. Le site de Barriol (figure 6-2)

Le site de Barriol représente une berge qui se retrouve en eau calme lors des épisodes de crues du Rhône. Cette berge est alimentée en matières particulières seulement lors des crues mais n'est pas soumise aux processus d'érosion lors de ces crues (figure 2-12, paragraphe 2.6.2.1).

L'absence de relation significative entre les activités de la figure 6-2 (annexe A8) et les facteurs granulométriques de CEC et la teneur en matière organique (figure 6-3) souligne que les valeurs d'activité observées sont principalement liées aux variations des apports de radionucléides artificiels. L'augmentation de l'activité du ^{137}Cs en profondeur peut être reliée aux niveaux d'activité importants émis par le centre de Marcoule jusqu'au début des années 1990. Cette hypothèse est confortée par l'augmentation de la fréquence d'apparition de deux autres radionucléides artificiels retrouvés dans les profils. Ces radionucléides sont le ^{60}Co et l' ^{241}Am (figure 6-4) rejetés avant 1990 par le centre de Marcoule en quantité environ 10 fois plus importante qu'aujourd'hui. Concernant les profils du ^{137}Cs et du ^{60}Co , les niveaux d'activité mesurés au delà de 100 cm de profondeur correspondent, une fois corrigés de la décroissance radioactive, à ceux mesurés dans les sédiments en aval du centre de Marcoule en 1990, soit de l'ordre de 300 Bq.kg^{-1} pour le ^{137}Cs , et de 10 Bq.kg^{-1} pour le ^{60}Co . De la profondeur vers la surface sur la carotte B3, les activités en ^{137}Cs diminuent aux alentours de 100 cm de profondeur, pour atteindre d'abord un palier d'environ 20 à 35 Bq.kg^{-1} , puis un niveau relativement constant jusqu'en surface, de l'ordre de 10 à 20 Bq.kg^{-1} , qui correspond au niveau d'activité que l'on mesure actuellement dans les MES du Rhône.

La figure 6-5 présente les valeurs du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ déterminées sur les sédiments de la carotte B3. La majorité de ces valeurs s'écartent significativement de la valeur caractéristique des retombées globales sur le bassin versant (0,03), pour se rapprocher de la valeur caractéristique des rejets du centre de Marcoule (0,30). Ceci confirme que les radionucléides artificiels détectés dans cette carotte proviennent, du moins en partie, des rejets du centre de Marcoule.

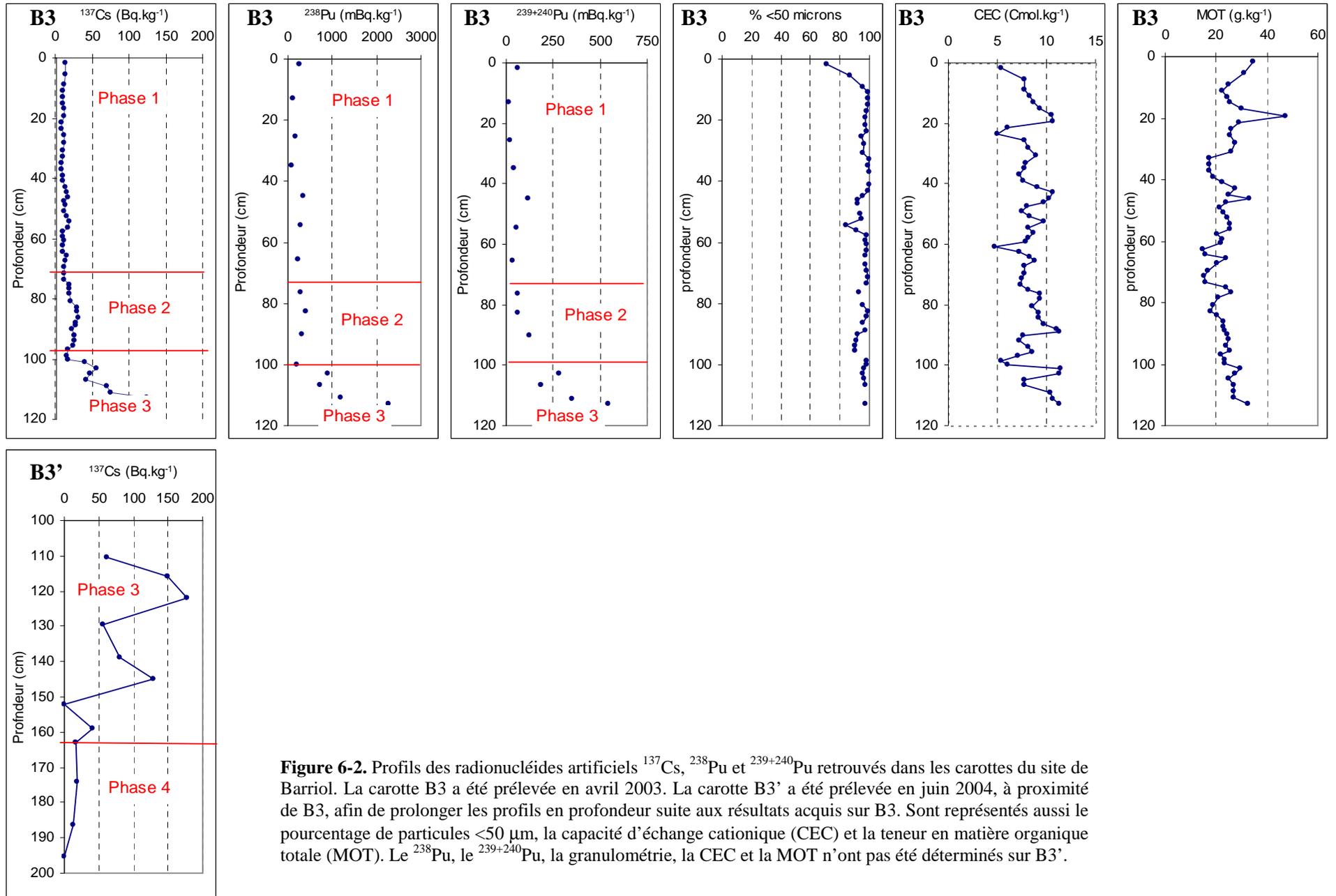


Figure 6-2. Profils des radionucléides artificiels ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ retrouvés dans les carottes du site de Barriol. La carotte B3 a été prélevée en avril 2003. La carotte B3' a été prélevée en juin 2004, à proximité de B3, afin de prolonger les profils en profondeur suite aux résultats acquis sur B3. Sont représentés aussi le pourcentage de particules <50 μm , la capacité d'échange cationique (CEC) et la teneur en matière organique totale (MOT). Le ^{238}Pu , le $^{239+240}\text{Pu}$, la granulométrie, la CEC et la MOT n'ont pas été déterminés sur B3'.

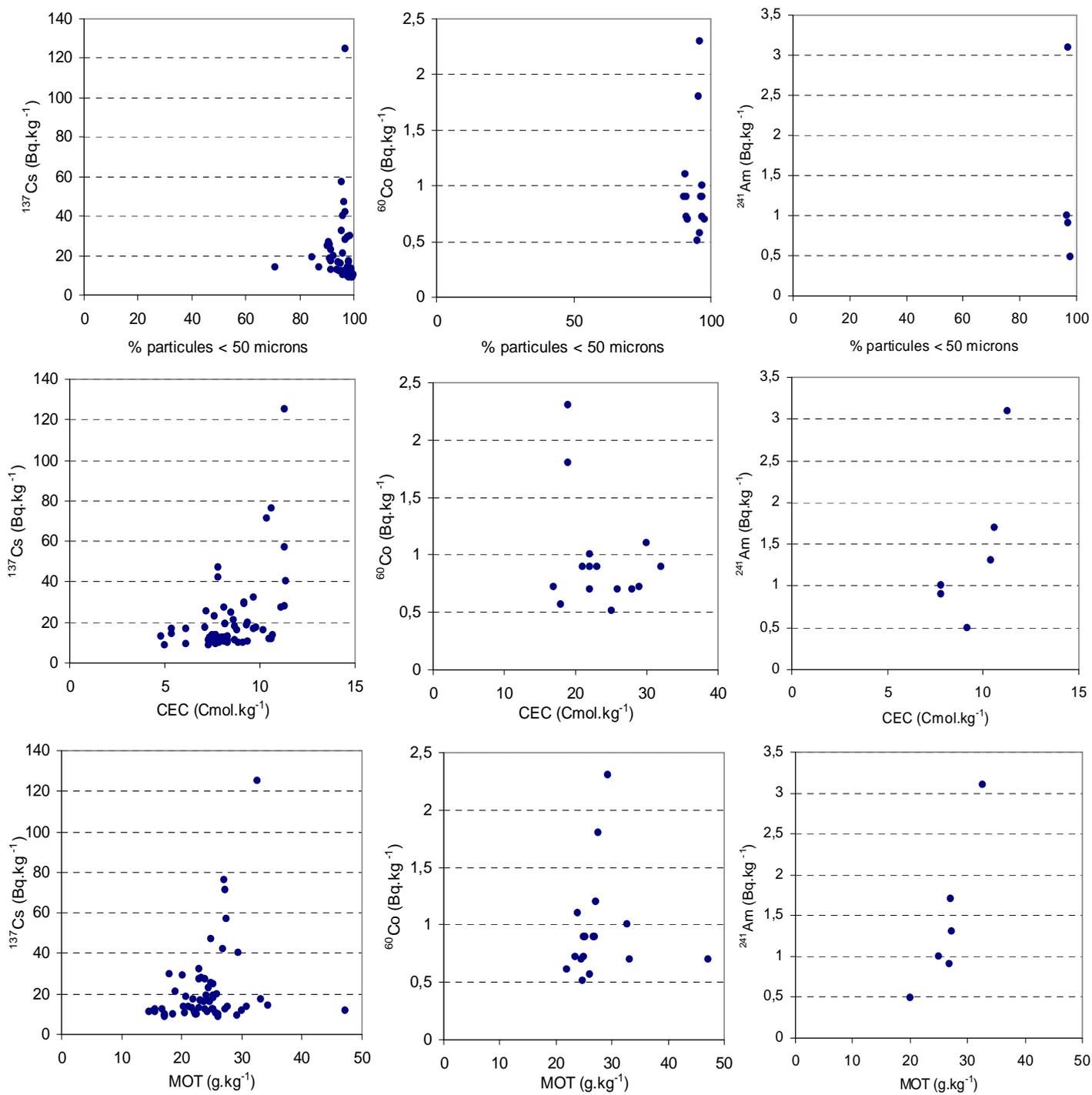


Figure 6-3. Corrélations entre les activités en ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co et ²⁴¹Am, et la teneur en particules fines des échantillons de la carotte B2, leur capacité d'échange cationique (CEC), et leur teneur en matières organiques totales (MOT).

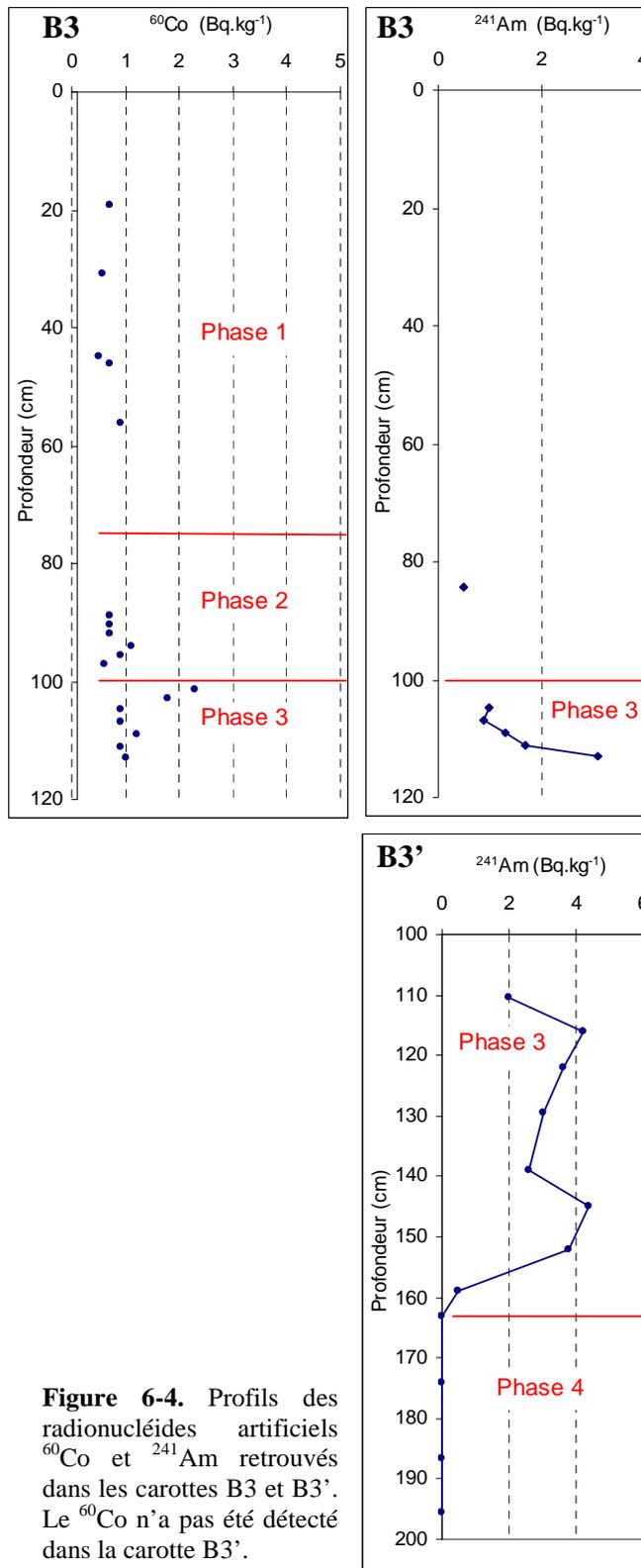


Figure 6-4. Profils des radionucléides artificiels ^{60}Co et ^{241}Am retrouvés dans les carottes B3 et B3'. Le ^{60}Co n'a pas été détecté dans la carotte B3'.

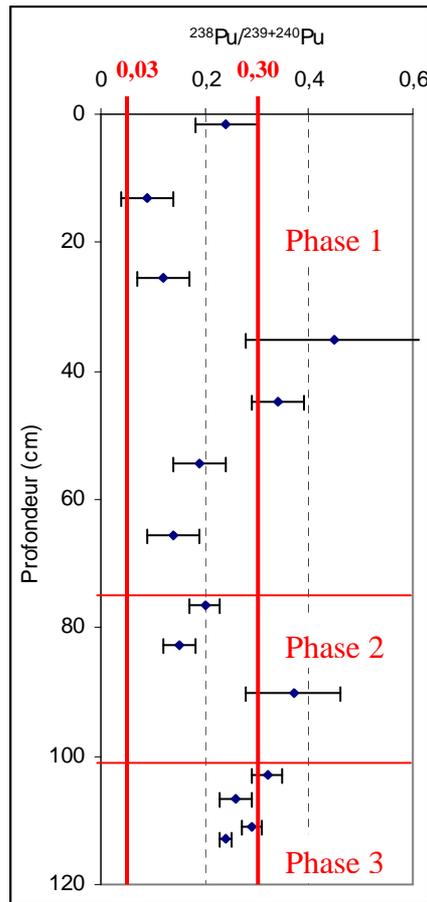


Figure 6-5. Profil du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ déterminé dans les carottes B3. La droite à 0,03 représente le rapport caractéristique des retombées globales, la droite à 0,30 représente le rapport caractéristique des rejets du centre de Marcoule.

Même si l'on ne peut pas placer des repères chronologiques absolus sur les profils des figures 6-2 et 6-4, il semble possible, de dresser un historique global des apports sur cette berge :

- Le chenal de l'écluse ayant été creusé au milieu des années 1970, les niveaux d'activité des sédiments de la phase 3 pourraient très bien être liés aux forts niveaux de rejets du centre de Marcoule des années 1980. Suite à l'installation de la station de traitement des effluents liquides du centre de Marcoule en 1990, les niveaux des rejets ont diminué ce qui expliquerait la diminution des niveaux d'activité de la phase 2.

- Le passage des niveaux d'activité de la phase 2 à ceux de la phase 1 pourrait refléter l'arrêt de l'usine de retraitement du combustible irradié de Marcoule en 1997. Les dépôts de la

phase 2 intègrent alors la contribution des crues exceptionnelles de 1993 et 1994, tandis que ceux de la phase 1 les dépôts des crues de 1997 à nos jours.

Puisque ces profils reflètent globalement l'évolution de rejets du centre de Marcoule, ils démontrent la présence de stocks de radioactivité artificielle provenant de cette installation, potentiellement remobilisables à partir des berges du Rhône. Il semble aussi que ces berges représentent un lieu de stockage à plus ou moins long terme de la radioactivité artificielle.

6.2.2. Le site de la peupleraie (figure 6-6)

Situé au niveau de la diffluence du Grand et du Petit Rhône, ce site représente un exemple de berge à la fois en accumulation et en érosion lors des événements de crues. Comme pour le site de Barriol, l'accumulation sédimentaire s'y effectue essentiellement par dépôts lorsque le site se retrouve en eau, c'est à dire durant les crues. Ces dernières y provoquent en parallèle une remobilisation sédimentaire par arrachement du bord (figure 2-13, paragraphe 2.6.2.2). Seuls les radionucléides artificiels émetteurs γ ^{137}Cs et ^{241}Am ont été détectés sur ce site. Le ^{238}Pu et le $^{239+240}\text{Pu}$ n'y ont pas fait l'objet de mesure.

Comme pour le site de Barriol, aucune relation n'est observée entre les activités en ^{137}Cs et ^{241}Am et le pourcentage de particules fines, la teneur en matière organique ou la CEC (figure 6-7, annexe A8), indiquant que les variations observées sont principalement liées aux variations des apports de radioactivité. Les profils d'activité présentent d'abord, de la surface vers la profondeur, des activités en ^{137}Cs relativement constantes et comprises entre 10 et 20 Bq.kg^{-1} (60 premiers centimètres, phase 1), de l'ordre des activités mesurées aujourd'hui dans le flux du Rhône. L'activité augmente ensuite pour être comprise entre 25 et 35 Bq.kg^{-1} de 60 cm à 100 cm de profondeur (phase 2), puis croît encore au-delà de cette profondeur pour atteindre deux pics à 125 et 145 Bq.kg^{-1} , respectivement à 110 et 150 cm de profondeur (phase 3 et 4). Cette portion est aussi marquée par l'apparition de ^{241}Am mais, contrairement au site de Barriol, le ^{60}Cs n'apparaît pas. Un écart apparaît entre la carotte B4 et la carotte B4'. Cette dernière montre la diminution du ^{137}Cs jusqu'à sa disparition totale à partir de 300 cm de profondeur, ainsi que la disparition de ^{241}Am (phase 5).

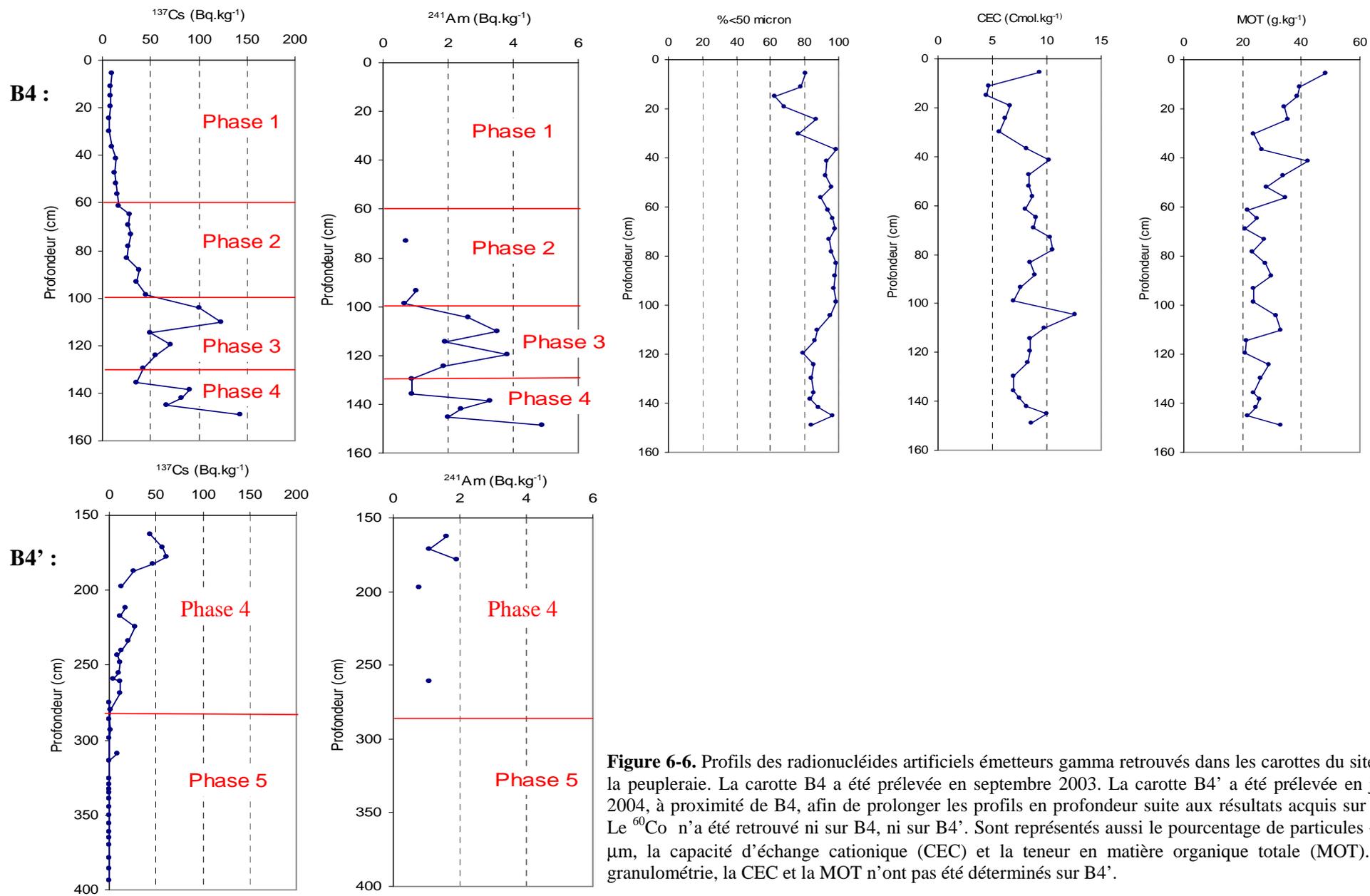


Figure 6-6. Profils des radionucléides artificiels émetteurs gamma retrouvés dans les carottes du site de la peupleraie. La carotte B4 a été prélevée en septembre 2003. La carotte B4' a été prélevée en juin 2004, à proximité de B4, afin de prolonger les profils en profondeur suite aux résultats acquis sur B4. Le ^{60}Co n'a été retrouvé ni sur B4, ni sur B4'. Sont représentés aussi le pourcentage de particules <50 μm , la capacité d'échange cationique (CEC) et la teneur en matière organique totale (MOT). La granulométrie, la CEC et la MOT n'ont pas été déterminés sur B4'.

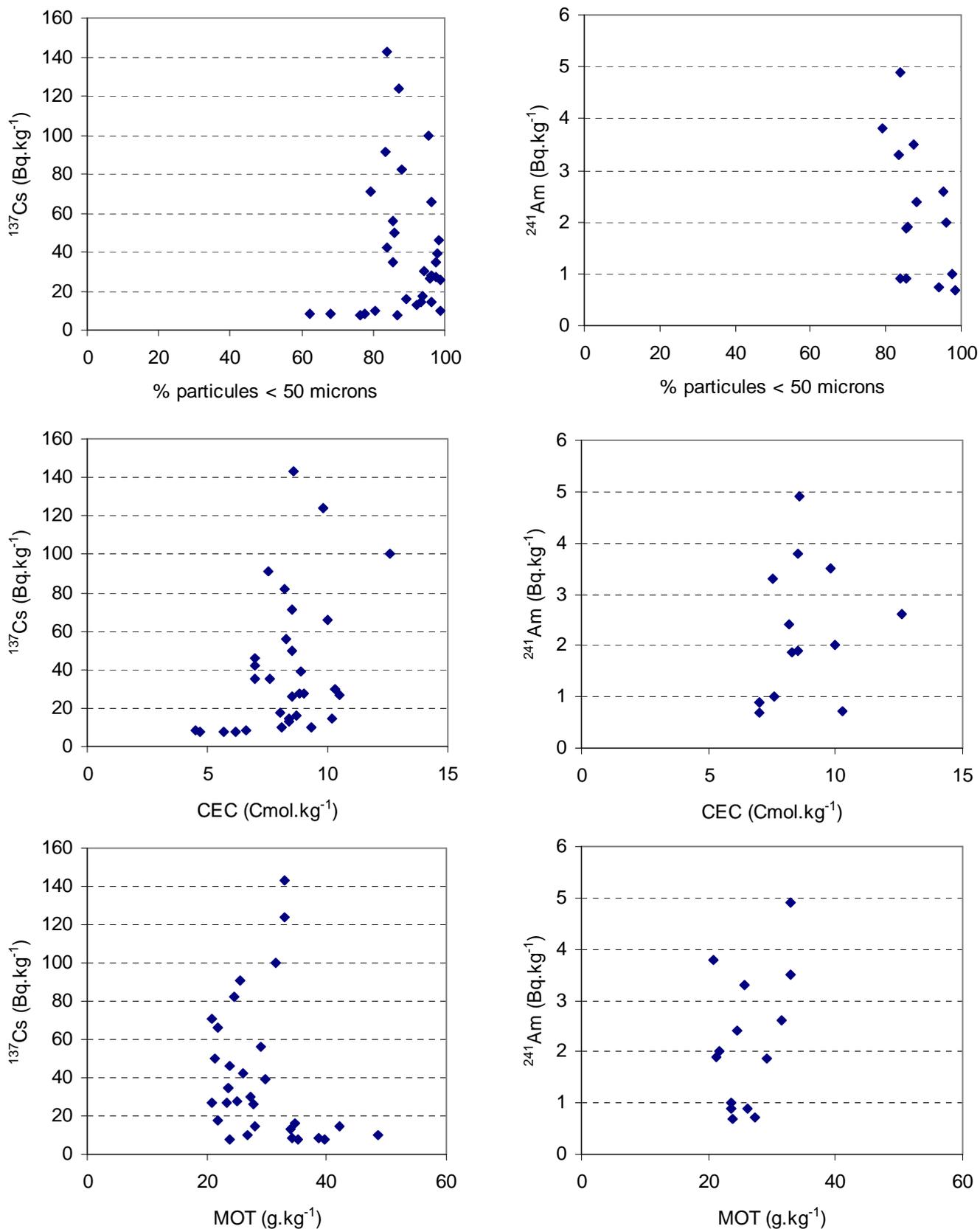


Figure 6-7. Corrélations entre les activités en ^{137}Cs et ^{241}Am , et la teneur en particules fines des échantillons de la carotte B4, leur capacité d'échange cationique (CEC), et leur teneur en matières organiques totales (MOT).

Il est possible, ici aussi, d'interpréter les profils d'activités obtenus afin de retracer, de façon globale et hypothétique, l'historique des apports et de la formation des stocks de radioactivité artificielle sur berges :

- L'absence de radioactivité artificielle au-delà de 3 m de profondeur indique la présence de stocks sédimentaires anciens datant d'avant les années 1950 (début de l'introduction de radioactivité artificielle dans l'environnement par les retombées des essais nucléaires en atmosphère).

- Le pic de la phase 4 correspondrait alors aux apports dus à la fois aux retombées atmosphériques des essais nucléaires dans les années 1960, et aux rejets du centre de Marcoule qui ont été maximums à cette époque.

- S'en suivrait une baisse des activités due à une diminution des rejets du centre de Marcoule dans les années 1970.

- Puis le pic de la phase 3 peut s'expliquer soit par les forts rejets qui eurent lieu de 1978 à 1982, dont les stocks sédimentaires auraient été déposés par les crues de 1983, soit par les apports dus aux retombées de Tchernobyl, déposés par les crues qui eurent lieu au moment de l'accident.

- La rupture entre la phase 2 et la phase 1 pourrait ensuite être due à la baisse des rejets engendrée par l'arrêt de l'usine de retraitement du combustible irradié de Marcoule en 1997. La phase 3 intègre aussi les apports des crues exceptionnelles de 1993 et 1994.

- Finalement, la phase 1 serait constituée des apports des crues ayant eu lieu de 1998 à 2002, période durant laquelle les apports en radionucléides artificiels semblent stables.

De tels profils confirme la présence de stocks de radionucléides artificiels originaires des rejets du centre de Marcoule dans les berges du Rhône, mais aussi de stocks plus anciens puisqu'ils couvrent toute l'histoire des apports de radionucléides artificiels dans l'environnement du Rhône aval. Comme on l'a déjà évoqué, la berge de la peupleraie est particulièrement intéressante car en plus d'accumuler des dépôts sédimentaires, elle est directement soumise au pouvoir érosif des crues du Rhône, et témoigne donc de la remobilisation possible de ces stocks durant les périodes de crue.

6.2.3. Le site de la lône du Mas des Tours (figure 6-8)

Le dernier site de carottage a été choisi, comme les autres, afin de mettre en évidence l'accumulation de stocks sédimentaires de radioactivité artificielle en aval du centre de Marcoule. Il s'agit d'un bras mort du Rhône, connecté toute l'année au fleuve par l'aval. Le carottage a été effectué dans l'amont de ce bras mort, zone submergée par les eaux seulement lors des crues. Il s'agit donc, comme le site de Barriol, d'une zone en accumulation stricte, alimentée seulement par les dépôts de crues. Seul le radionucléide artificiel émetteur γ ^{137}Cs est détecté sur ce site. Le ^{238}Pu et le $^{239+240}\text{Pu}$ n'y ont pas fait l'objet de mesure.

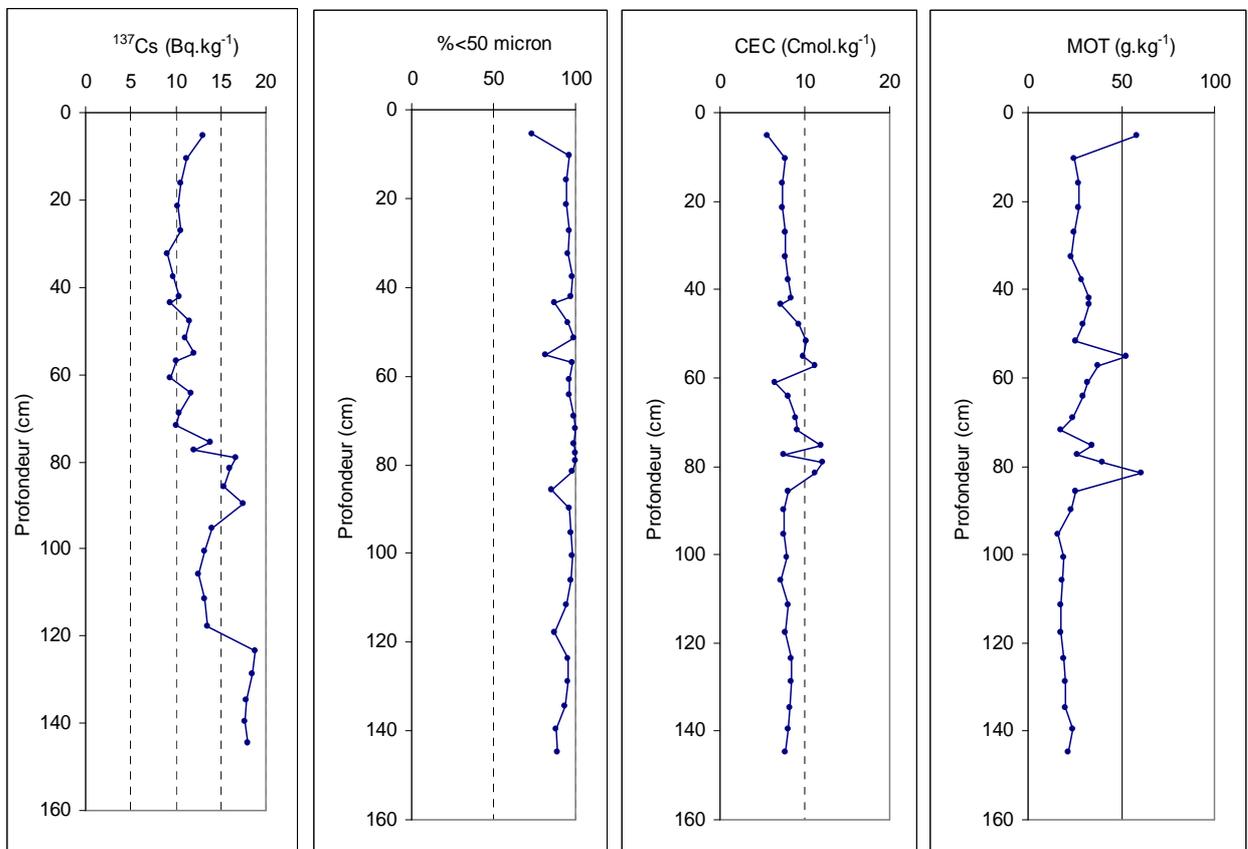


Figure 6-8. Profil de l'activité en ^{137}Cs retrouvée dans la carottes B5, prélevée en septembre 2003. Sont représentés aussi le pourcentage de particules <50 μm , la capacité d'échange cationique (CEC) et la teneur en matière organique totale (MOT). Ni le ^{60}Co , ni l' ^{241}Am n'ont été retrouvés dans cette carotte.

Comme sur les deux autres sites, aucune relation n'a été trouvée entre l'activité en ^{137}Cs et la teneur en particules fines, celle en matière organique ou la CEC (figure 6-9, annexe A8). Le ^{60}Co et l' ^{241}Am sont totalement absents de la carotte, et si l'activité en ^{137}Cs semble

augmenter avec la profondeur, elle reste néanmoins comprise entre 10 et 20 Bq.kg⁻¹ sur toute la profondeur carottée. Si l'on compare ce profil à celui des autres sites étudiés, il semblerait donc que la totalité de cette carotte corresponde à du matériel sédimentaire déposé depuis au plus 1997, ce qui expliquerait l'absence de ⁶⁰Co et d'²⁴¹Am, indétectable dans les dépôts de crues de cette période. Ce site serait donc caractérisé par des taux d'accumulation très importants lors des périodes de crues. En effet, de 1997 à 2002, seuls sept évènements de crues ont été recensés, dont deux seulement au-dessus de 6000 m³.s⁻¹, évènements qui auraient alors permis à eux seuls 2 mètres d'accumulation (sans tenir compte des effets de compaction dus à la technique de carottage). Ces résultats sont intéressants car ils pourraient montrer l'existence de zones caractérisées par de très forts taux d'accumulation des stocks de radioactivité artificielle.

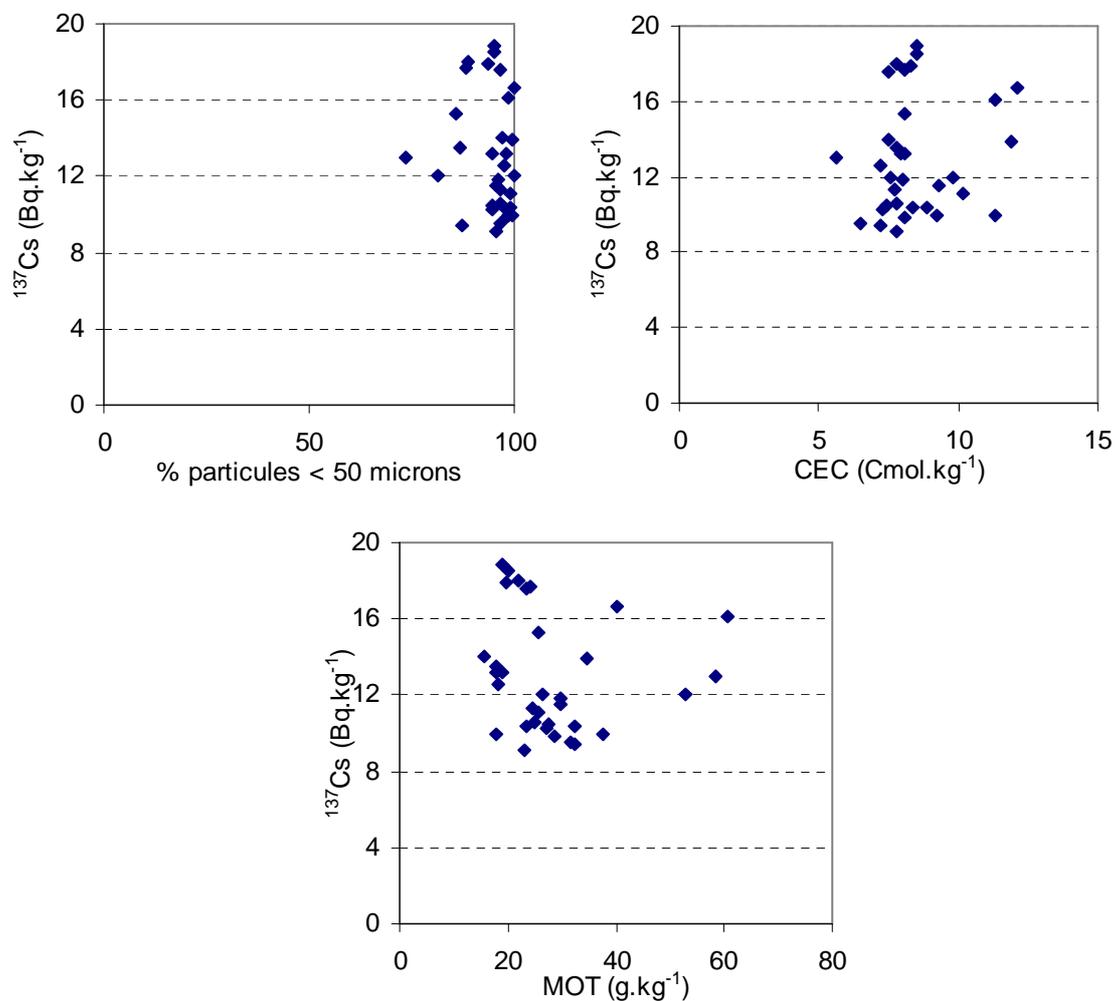


Figure 6-9. Corrélations entre les activités en ¹³⁷Cs et la teneur en particules fines, la capacité d'échange cationique (CEC), et la teneur en matières organiques totales (MOT) des échantillons de la carotte B5.

Il ne faut cependant pas écarter l'hypothèse de la migration verticale des radionucléides dans la colonne de sédiment. En effet, le site de la lône du Mas des tours est caractérisé par des fentes de dessiccation profondes de plusieurs dizaines de centimètres qui pourraient favoriser le dépôt des sédiments et des radionucléides associés en profondeur, ainsi que l'entraînement des radionucléides dans la colonne de sédiment.

6.3. Discussion

Nous pouvons présumer que les stocks accumulés annuellement hors périodes de crues se font préférentiellement dans le chenal même du fleuve, et plus particulièrement dans les pièges à sédiments que sont les ouvrages hydroélectriques. Les stocks sédimentaires présents dans ces zones représentent probablement des stocks plus facilement remobilisables que les stocks sur berges. Les stocks sédimentaires remobilisés lors des crues les plus fréquentes, de périodes de retour de l'ordre de l'année, proviennent sans doute en majorité de zones d'accumulation telles que l'amont des retenues.

Les stocks de radioactivité artificielle présents dans les berges du Rhône représentent des stocks probablement plus difficiles à remobiliser. Les stocks sur berges sont sans doute remobilisés préférentiellement lors des crues d'une certaine intensité comme celles de 2002 et 2003. Les stocks sédimentaires sur berges représentent donc des stocks remobilisés à long terme.

Le fait que les sites de berges étudiés ne soient alimentés en matériel particulaire qu'en périodes de hautes eaux informe sur la formation des stocks sur berges. Contrairement au chenal dans lequel se produit une accumulation continue toute l'année, les berges du Rhône ne peuvent former des stocks que lors des crues qui permettent leur immersion. En plus de leur rôle remobilisateur, ceci met l'accent sur le rôle que jouent les événements de crues dans la formation des stocks de berges. S'il se trouve que les profils des radionucléides artificiels retrouvés dans les carottes de Barriol et de la peupleraie correspondent à des apports issus des rejets du centre de Marcoule, on peut émettre l'hypothèse suivante sur les processus de formation des stocks de radioactivité artificielle sur berges : alors qu'en terme de bilan, les crues du Rhône représentent le facteur prépondérant d'export des stocks sédimentaires de radionucléides artificiels vers la Méditerranée, une partie des stocks remobilisés à partir du bief

Marcoule-Arles est néanmoins re-déposée localement sur les berges du bief, et alimente les stocks sur berges.

Les contributions respectives des stocks sédimentaires remobilisés à partir de l'amont des ouvrages hydroélectrique d'une part, et des berges du Rhône d'autre part, restent à quantifier. Concernant la contribution des stocks sur berges, *Villiet (2005)* a évalué le recul potentiel des berges lors des crues du Rhône sur le tronçon Beaucaire-Arles. La comparaison des photos prises lors de campagnes aériennes encadrant les évènements de 2002 et 2003 n'a toutefois pas permis à l'auteur de mettre en évidence des variations significatives des lignes de berges sur les zones étudiées.

7-SYNTHESE ET BILANS

7. Synthèse et bilans

7.1. Les flux actuels des radionucléides ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et ^{210}Pb

Afin d'estimer les flux actuels de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et ^{210}Pb vers la Méditerranée, il a été entrepris d'effectuer un suivi de ces cinq radionucléides dans le Rhône en Arles durant les années 2002 à 2004.

L'estimation des flux particulaires de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et ^{210}Pb a été basée sur la réalisation de régressions entre les activités particulaires et le débit liquide du Rhône. Ces régressions ont permis d'estimer des valeurs de flux des radionucléides en phase particulaire à partir de la chronique des débits moyens journaliers sur la période d'étude. Les estimations de flux totaux (particulaire + dissous) de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et ^{210}Pb ont été réalisées après avoir déterminé la contribution du transport particulaire (CTP) aux flux totaux. Le calcul des valeurs de CTP est effectué connaissant la charge particulaire en suspension (CSS) et le coefficient de distribution K_d des radionucléides étudiés. La détermination de la CTP permet d'estimer des valeurs de flux totaux sans effectuer de mesures d'activité des radionucléides en phase dissoute.

Les valeurs de CTP pour le ^{238}Pu , le $^{239+240}\text{Pu}$, le ^7Be et le ^{210}Pb ont été calculées en utilisant les valeurs de K_d disponibles dans la littérature. Les valeurs de K_d nécessaires au calcul de la CTP du ^{137}Cs ont été déterminées grâce à des mesures de ^{137}Cs dissous en Arles. Un K_d moyen de $77000 \pm 23000 \text{ l.kg}^{-1}$ a été déterminé hors périodes de crues. En périodes de crues, trois valeurs de K_d du ^{137}Cs ont été déterminées et sont comprises entre 174000 et 291000 l.kg^{-1} . Ces valeurs s'écartent du K_d moyen déterminé hors périodes de crues, à cause probablement de l'absence de rejet du centre de Marcoule lors des crues.

La station de prélèvement IRSN d'Arles se situant sur le Grand Rhône, il a été nécessaire de prendre en compte a posteriori la contribution du Petit Rhône afin d'estimer les flux totaux vers la Méditerranée. A partir des chroniques des débits moyens journaliers en Arles et à Beaucaire sur les quinze dernières années, une contribution moyenne de 13% du Petit Rhône aux flux liquides totaux vers la Méditerranée a été déterminée. Nous avons considéré que cette valeur de contribution pouvait être appliquée aux flux solides de matières en suspension (MES) et des radionucléides associés.

Les flux moyens annuels de ^{137}Cs , de ^{238}Pu , de $^{239+240}\text{Pu}$, de ^7Be et de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ déterminés pour la période 2002-2004 sont respectivement de 140 ± 42 GBq, de $0,45\pm 0,45$ GBq, de $2,3\pm 0,7$ GBq, de 389 ± 117 GBq et de 253 ± 76 GBq. Ces résultats de flux ont été replacés dans la chronique des flux annuels depuis 1960. Cette chronique met en évidence le lien existant entre les flux d'exportation de ces radionucléides et l'évolution des rejets du centre de Marcoule. Elle souligne la baisse conséquente de ces flux depuis le début des années 1990 suite à la diminution importante des rejets.

La diminution des rejets du centre de Marcoule a aussi entraîné une modification de la contribution des différents termes sources de radionucléides artificiels dans les eaux du Rhône. Si les rejets du centre ont représenté avant 1990 le terme source prépondérant de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ vers la Méditerranée, les flux d'exportation actuels impliquent aujourd'hui d'autres termes sources significatifs. La remobilisation de stocks sédimentaires contaminés par les rejets du centre de Marcoule représente ainsi un terme source différé de radioactivité artificielle dans le Rhône, avec les apports issus du drainage du bassin versant et les rejets directs du centre.

Les résultats de flux de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et ^{210}Pb acquis au cours de cette étude ont montré l'importance des événements de crues dans le transport de ces radionucléides vers la Méditerranée. En effet, la contribution des crues aux flux moyens annuels sur la période 2002-2004 est respectivement de 49%, 55%, 56%, 67% et 68% pour le ^7Be , le ^{238}Pu , le $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, le ^{137}Cs et le $^{239+240}\text{Pu}$, les crues n'ayant représenté que 5% du temps de la période d'étude. Toutefois, l'obtention de ces valeurs dépend fortement de l'occurrence des événements exceptionnels de l'automne 2002 et de décembre 2003. Les valeurs de flux annuels et de contributions moyennes des crues ont donc été ré-estimées à partir de la chronique des débits des trente dernières années. Ce calcul permet de prendre en compte une contribution moyenne plus réaliste des événements de crues. Cette ré-estimation permet l'obtention de valeurs de contribution des crues de 53%, 39%, 50%, 47% et 47% des flux moyens annuels de ^{137}Cs , de ^{238}Pu , de $^{239+240}\text{Pu}$, de ^7Be et de ^{210}Pb , respectivement.

L'importance des périodes de crues dans l'export des radionucléides ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et ^{210}Pb est essentiellement liée à l'importance du transport particulaire, la CTP étant proche de 100% durant les crues. Sur la totalité de la période 2002-2004, la CTP a été prépondérante avec des valeurs comprises entre 80% et 96% pour les cinq radionucléides.

Ces valeurs sont de l'ordre de celles déterminées pour les fleuves et les rivières caractérisés par une forte capacité de transport des matières en suspension.

7.2. Etude de la remobilisation des stocks sédimentaires de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$

7.2.1. Mise en évidence de la remobilisation des stocks de plutonium

La mise en évidence de la remobilisation sédimentaire dans le bief Marcoule-Arles est basée sur la comparaison des activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ des MES prélevées en amont et en aval du bief Marcoule-Arles.

Hors périodes de crues, le bilan entre les apports et les exports de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ originaires du centre de Marcoule montre une accumulation nette de ces radionucléides. En moyenne 31% du ^{137}Cs et 25% du ^{238}Pu et du $^{239+240}\text{Pu}$ rejetés par le centre de Marcoule sont accumulés dans le bief. Ces résultats démontrent la formation, encore aujourd'hui, de stocks de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ originaires du centre de Marcoule.

Lors des périodes de crues, les activités en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ des MES prélevées en Arles sont significativement supérieures à celles mesurées en amont du bief Marcoule-Arles. Alors que les activités mesurées en amont du bief sont caractérisées par une diminution avec le débit, les activités mesurées en Arles augmentent significativement avec le débit ce qui est probablement représentatif de la remobilisation de matériaux contaminés par les rejets du centre de Marcoule. L'évolution, en Arles, des activités en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ avec le débit montre un effet d'hystérésis caractérisant probablement l'épuisement des stocks de plutonium au fur et à mesure de la remobilisation.

L'hypothèse selon laquelle les différences d'activité en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ entre l'amont et l'aval du bief Marcoule-Arles seraient dues à la remobilisation de stocks sédimentaires contaminés par les rejets du centre de Marcoule est confirmée par l'étude du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ (RA). En amont du bief Marcoule-Arles, le RA est de l'ordre de celui des retombées globales sur le bassin versant (RA \approx 0,03). En Arles, lors des périodes de crues, le RA des MES s'écarte significativement du RA caractéristique des retombées globales pour tendre vers la valeur caractéristique des rejets du centre de Marcoule (RA \approx 0,30). L'évolution

du RA en Arles lors des crues montre aussi un effet d'hystérésis, qui conforte l'hypothèse d'une reprise des stocks de plutonium principalement durant la phase de montée de crue, dont la contribution diminue ensuite suite à l'épuisement des stocks et à la baisse du débit.

L'utilisation de la technique de spectrométrie de masse à plasma couplé inductivement haute résolution haute résolution (ICPMS HR) a permis de déterminer le rapport de masse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ des matières en suspension du Rhône en Arles. Bien qu'il existe des valeurs de référence de ce rapport pour le plutonium issu du combustible irradié des différents types de réacteurs industriels, aucune valeur caractéristique des rejets du centre de Marcoule n'est connue à ce jour. Les résultats acquis en Arles hors périodes de crues permettent de déterminer un rapport moyen et un écart type associé de $0,225 \pm 0,022$ qui semble caractéristique des rejets du centre. Le rapport de masse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ en Arles diminue avec l'augmentation du débit. Une valeur moyenne de $0,182 \pm 0,020$ a été déterminée lors des périodes de crues. Cette valeur n'est pas significativement différente du rapport des retombées globales ($0,180 \pm 0,014$). Il n'est pas possible de mettre en évidence la remobilisation de stocks sédimentaires contaminés par du plutonium originaire du centre de Marcoule avec le rapport de masse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$.

7.2.2. Contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$

L'étude des activités en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ et du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ des MES permet d'estimer la contribution de la remobilisation des stocks de plutonium originaire du centre de Marcoule aux flux totaux de plutonium vers la Méditerranée. Les valeurs de contribution moyenne annuelle sont respectivement d'environ $0,20 \text{ GBq.an}^{-1}$ et $0,5 \text{ GBq.an}^{-1}$, soit 44% et 22% des flux moyens annuels de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ durant la période 2002 à 2004.

Concernant le ^{137}Cs , aucune différence significative n'est mise en évidence entre les activités particulières mesurées en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles lors des crues du Rhône. Les résultats acquis avec les isotopes du plutonium ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ permettent cependant d'estimer la contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux de ^{137}Cs vers la

Méditerranée. La remobilisation des stocks sédimentaires contaminés par les rejets du centre de Marcoule contribue en moyenne pour 26 GBq.an⁻¹, soit 19% du flux moyen annuel de ¹³⁷Cs sur la période 2002-2004. Ces valeurs de contribution représentent cependant des valeurs globales qui ne prennent pas en compte les différences de spéciation du césium et du plutonium dans les sédiments du Rhône.

Avec des valeurs de contribution aux flux de ¹³⁷Cs, de ²³⁸Pu et de ²³⁹⁺²⁴⁰Pu respectivement de l'ordre de 19%, 44% et 22%, la remobilisation des stocks sédimentaires contaminés par les rejets du centre de Marcoule représente donc aujourd'hui un terme source différé de radioactivité artificielle dans le Rhône aval. Le flux d'exportation lié aux rejets directs du centre de Marcoule ne représente plus, quant à lui, que 16%, 20% et 17% des flux moyens annuels de ces radionucléides. Avec des contributions respectives de 65%, 36% et 61%, les apports du bassin versant sont devenus un terme source significatif de ¹³⁷Cs, de ²³⁸Pu et de ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, alors qu'ils étaient négligeables avant 1990. Malgré la diminution des rejets du centre de Marcoule, ce dernier conserve une influence certaine sur les flux actuels de ¹³⁷Cs, de ²³⁸Pu et de ²³⁹⁺²⁴⁰Pu. En effet, en cumulant la contribution des rejets directs du centre et celle de la remobilisation sédimentaire, le centre de Marcoule contribue pour 35%, 64% et 39% des flux moyens annuels de ¹³⁷Cs, de ²³⁸Pu et de ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, respectivement.

Il semble finalement que les apports issus du drainage du bassin versant représentent aujourd'hui le terme source prépondérant de ¹³⁷Cs et de ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, quel que soit le type et l'ampleur des crues du Rhône et malgré la remobilisation de sédiments contaminés durant ces événements. Ceci ne semble pas être le cas pour le ²³⁸Pu pour lequel, en 2002 et 2003, le terme source prépondérant a été la remobilisation sédimentaire.

7.3. Estimation des temps de résidence des stocks de plutonium

Il est possible d'estimer les temps de résidence des stocks sédimentaires dans le bief Marcoule-Arles en comparant les activités en ¹³⁷Cs, ²³⁸Pu et ²³⁹⁺²⁴⁰Pu remobilisées durant les crues aux activités accumulées avant les crues. Les crues exceptionnelles de l'automne 2002 ont apparemment remobilisé des stocks de ¹³⁷Cs, de ²³⁸Pu et de ²³⁹⁺²⁴⁰Pu accumulés depuis 1998, soit depuis 5 ans. Un an après, la crue exceptionnelle de décembre 2003 a remobilisé non seulement le stock accumulé depuis les crues de 2002, mais aussi, suite à l'occurrence de

ces dernières, des stocks antérieurs à 1998. Enfin, l'année 2004, durant laquelle se sont produits des crues de périodes de retour annuelles, est caractérisée par un bilan relativement équilibré entre les activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ accumulés et remobilisés dans l'année. Il semble que les crues de périodes de retour de l'ordre de l'année ne soient capables de remobiliser que des stocks sédimentaires récents et facilement remobilisables.

A plus long terme, une méthode de prédiction du temps nécessaire à la disparition de la totalité des stocks de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ originaires de Marcoule est proposée. Des temps de l'ordre de 200 ans, 100 ans et 900 ans ont été déterminés pour que les stocks respectifs de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ accumulés suite aux rejets du centre de Marcoule depuis 50 ans disparaissent totalement du bief Marcoule-Arles. Ces valeurs prennent en compte la décroissance radioactive des radionucléides étudiés.

7.4. Identification des stocks sédimentaires dans le bief Marcoule-Arles

Une étude des zones d'accumulation potentielle des stocks sédimentaires contaminés par des radionucléides artificiels dans le bief Marcoule-Arles a été réalisée. L'étude bibliographique menée dans ce travail met en évidence l'accumulation de sédiments contaminés dans les retenues d'eau des ouvrages hydroélectriques en aval du centre de Marcoule. Elle montre aussi le potentiel de remobilisation des stocks sédimentaires à partir de ces ouvrages.

Les berges du Rhône représentent un autre compartiment de stockage des sédiments marqués. Elles représentent une source de radioactivité artificielle lorsqu'elles sont érodées durant les événements de crues. Des carottages de plusieurs mètres ont été effectués sur deux sites de berges et un bras mort du Rhône en aval du centre de Marcoule. Les profils obtenus montrent une augmentation significative des activités particulières en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ en profondeur, qui démontre la présence de stocks de radionucléides artificiels dans ces zones. L'évolution des profils en ^{137}Cs de la profondeur vers la surface semble être corrélée à l'évolution temporelle des rejets du centre. Ceci semble corroboré par la présence en profondeur des radionucléides artificiels ^{60}Co et ^{241}Am . Elle est confirmée par la détermination du profil du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, dont les valeurs comprises entre 0,10 et 0,45 démontrent clairement l'influence des rejets du centre de Marcoule.

Le fait que les berges du Rhône ne soient alimentées en matériaux particulaires que lors des crues du Rhône met l'accent sur les processus d'accumulation des stocks sur berges. En plus de leur rôle remobilisateur, les périodes de crues jouent aussi un rôle dans la formation des stocks. Puisque les radionucléides artificiels présents dans les berges Marcoule-Arles sont en partie originaires du centre de Marcoule, il s'avère qu'une partie des stocks remobilisés à partir du bief Marcoule-Arles est re-déposée localement sur les berges du bief lors des crues du Rhône.

Les stocks de radioactivité artificielle présents dans les berges du Rhône représentent probablement des stocks difficilement remobilisables, remobilisés préférentiellement lors des crues d'une certaine intensité comme celles de 2002 et 2003. Les stocks sédimentaires sur berges représentent donc des stocks qui sont probablement remobilisés à long terme. Les stocks accumulés dans le chenal même du Rhône (amont des ouvrages hydroélectriques), constituent vraisemblablement des stocks plus facilement remobilisables. Ces stocks seraient préférentiellement remobilisés lors des crues ayant des périodes de retour de l'ordre de une à quelques années. Ils représentent probablement des stocks qui sont remobilisés à court et moyen terme.

Les stocks sédimentaires présents dans des zones telles que l'amont des ouvrages hydroélectriques représentent probablement des stocks plus facilement remobilisables que les stocks sur berges. Les stocks sédimentaires remobilisés lors des crues les plus fréquentes, de périodes de retour de l'ordre de l'année, proviennent sans doute majoritairement de zones telles que l'amont des ouvrages tandis que les stocks sur berges seraient remobilisés préférentiellement lors des crues plus importantes.

7.5. Les radionucléides ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ et le rapport $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ (annexes 3 et 6)

Dans le cadre de l'étude de la remobilisation sédimentaire, ce travail de thèse a aussi compris l'étude du rapport d'activité $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ ainsi que l'étude des radionucléides naturels d'origine atmosphérique ^7Be et ^{210}Pb en excès ($^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$). La comparaison des valeurs du rapport $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ acquises en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles n'ayant pas

montré de différence significative, l'étude de ce rapport n'a pas permis de mettre en évidence la remobilisation sédimentaire dans le bief.

L'étude des radionucléides naturels ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ était intéressante étant donné leur potentiel en tant que traceurs des matières solides. De part leurs périodes radioactives respectives, ces radionucléides étaient particulièrement intéressants dans le cadre de la détermination des temps de résidence des stocks sédimentaires. Une méthode d'estimation des temps de résidence a donc été développée. L'absence de différences significatives entre les résultats d'activités en ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ des MES prélevées en Arles et en amont du bief ne permet cependant pas d'utiliser ces deux radionucléides pour l'étude de la remobilisation sédimentaire dans le bief Marcoule-Arles.

CONCLUSION GENERALE

L'étude présentée s'inscrit dans la recherche d'une meilleure compréhension du devenir des contaminants à l'état de traces dans le milieu aquatique continental suite à un rejet chronique. Elle concerne le Rhône aval soumis pendant près de 50 ans aux rejets d'effluents liquides de faible radioactivité émis par les installations de retraitement du combustible irradié de Marcoule. Les rejets du centre de Marcoule ont ainsi représenté pendant de nombreuses années le terme source prépondérant de radioactivité artificielle dans les eaux du Rhône. La mise en place en 1990 d'un nouveau procédé de traitement des effluents liquides, puis l'arrêt et la mise en démantèlement de l'usine de retraitement fin 1997, ont conduit en une décennie à diminuer de façon importante les quantités de radionucléides artificiels rejetées dans les eaux du Rhône. L'étude présentée s'est intéressée aux conséquences de cette diminution sur la dynamique d'exportation des radionucléides artificiels ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ vers la mer Méditerranée. Une attention particulière a été portée sur le rôle des événements de crues du Rhône sur les processus d'exportation de ces radionucléides artificiels.

Afin de mieux comprendre la dynamique d'exportation des matières solides et des contaminants associés du milieu continental vers le milieu marin, plusieurs questions ont été posées concernant le devenir des radionucléides artificiels ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ dans le Rhône aval:

- Quels sont les flux actuels de radionucléides artificiels vers la mer Méditerranée depuis la diminution des rejets du centre de Marcoule?
- Quelle est la contribution des événements de 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 ?

Le travail présenté ici a permis d'apporter les éléments de réponses suivants :

Aujourd'hui, 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 sont respectivement de 140 ± 42 GBq, de $0,45\pm 0,45$ GBq, de $2,3\pm 0,7$ GBq, de 389 ± 117 GBq et de 253 ± 76 GBq (moyennes de 2002 à 2004). La chronique des flux d'exportation des radionucléides artificiels mesurés de manière discontinue au cours du temps par différents auteurs montrent qu'il existe une forte relation de cause à effet entre l'évolution des flux et celle des rejets du centre de Marcoule. Cette étude souligne particulièrement bien l'impact de la diminution importante des rejets du centre de Marcoule sur l'évolution des flux de radioactivité artificielle vers la Méditerranée.

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. Durant les années 2002 à 2004, nous avons en effet estimé que les épisodes de crues avaient transféré en moyenne 67%, 55%, 68%, 49% et 56% des flux annuels de ^{137}Cs , de ^{238}Pu , de $^{239+240}\text{Pu}$, de ^7Be et de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, bien qu'elles n'aient représenté que 5% du temps de la période d'étude. Ces valeurs témoignent de l'importance d'étudier les événements de crues lorsqu'on s'intéresse au devenir des contaminants à l'état de traces dans les fleuves et les rivières.

Les résultats acquis ont également permis de souligner l'évolution de la contribution des différents termes sources de radioactivité artificielle au cours du temps dans les eaux du Rhône aval. Cette évolution est principalement liée à la diminution significative des activités rejetées par le centre de Marcoule au cours des années 1990. 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 du drainage des retombées radioactives sur le bassin versant et de la remobilisation des stocks sédimentaires contaminés 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 contribue aujourd'hui en moyenne pour 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 contribuent en moyenne pour 65%, 36% et 61% des flux de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$. Les rejets directs du centre de Marcoule ne contribuent plus en moyenne que pour 16%, 20% et 17% de ces flux.

La détermination 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. Il apparaît 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 montre aujourd'hui une tendance à l'exportation des stocks sédimentaires contaminés par les rejets de Marcoule, ce qui témoigne de la dynamique d'épuration naturelle du Rhône vis à vis de ces stocks. La méthode appliquée pour la prédiction 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 donne des estimations 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 à l'amont des ouvrages hydroélectriques dressés le long du chenal du Rhône. Les résultats acquis par ailleurs sur des 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 semblent provenir en majorité du centre de Marcoule, étant donné les valeurs du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ obtenues proches du rapport caractéristique des rejets du centre (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.

Les stocks de radioactivité artificielle accumulés dans le chenal même du Rhône 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.

L'étude présentée ouvre plusieurs perspectives de recherche. L'étude de la contribution des périodes de crues aux flux annuels de radionucléides artificiels vers la Méditerranée mériterait d'être poursuivie en prenant en compte un plus grand nombre d'évènements de crues sur une plus longue période. Le nouveau poste de prélèvement dédié au suivi des crues installé dans la station IRSN d'Arles permettra d'approfondir cette étude. Il serait intéressant, aussi, de paramétrer les mécanismes de remobilisation des stocks identifiés dans cette étude en fonction de critères hydro-sédimentaires et géomorphologiques tels que les caractéristiques sédimentologiques ou la topologie des milieux. Ceci permettrait, par exemple, de définir un ou des débits seuil de remobilisation en fonction de la chronologie et de la typologie des crues.

Plusieurs axes de recherche permettraient d'étoffer l'étude initiée sur la localisation des stocks sédimentaires contaminés par des radionucléides artificiels et sur leur contribution aux flux vers la Méditerranée :

- L'identification des typologies remarquables fortement intégratrices de sédiments fins et leur reconnaissance sur le terrain permettrait de réaliser, in fine, une cartographie des zones d'accumulation des stocks contaminés. Une telle cartographie permettrait de mieux définir les zones potentielles de stockage et de remobilisation de certains radionucléides artificiels suite à des rejets radioactifs chroniques ou accidentels.

- La localisation des stocks sédimentaires pourrait être étendue au-delà du bief Marcoule-Arles. En effet, les deux bras du delta du Rhône que sont le Petit et le Grand Rhône comportent probablement des zones d'accumulation de sédiments contaminés par les rejets du centre de Marcoule.

- En amont des retenues d'eau, des carottages du même type que ceux effectués dans les berges, en parallèle avec des études bathymétrique des fonds sédimentaires avant et après

des évènements de crues, permettraient de quantifier la contribution de la remobilisation sédimentaire à partir de ces zones, par rapport à celle de la remobilisation sédimentaire à partir des berges du Rhône.

Enfin, il serait intéressant d'étendre l'étude du rôle des crues dans le transport des contaminants à l'état de traces à d'autres éléments que les radionucléides artificiels.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

Références bibliographiques:

Aarkrog A., 1988. Worldwide data on fluxes of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{238}Pu to the oceans. In: Inventory of selected radionuclides in the oceans, IAEA-TECDOC, **481**, 103-138.

AIEA (Agence Internationale de l'Energie Atomique), 2004. Sediment distribution coefficients and concentrations factors for biota in the marine environment. Technical Reports Series n°422, ed. AIEA, Vienne, 95 p.

Agarande M., Benzoubir S., Neiva-Marques A.N., Bouisset P., 2004. Sector field coupled plasma mass spectrometry, another tool for plutonium isotope ratios determination in environmental matrices. *Journal of Environmental Radioactivity*, **72**, Issues 1-2, 169-176.

Alberts J.J., Orlandini K.A., 1981. Laboratory and field studies of the relative mobility of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am from lake sediments under oxic and anoxic conditions. *Geochimica and Cosmochimica Acta*, **45**, 1931.

Allison M.A., Kineke G.C., Gordon E.S., Goni M.A., 2000. Development and reworking of a seasonal flood deposit on the inner continental shelf off the Atchafalaya River. *Continental Shelf Research*, **20**, 2267-2294.

Antonelli C., 1999. Quantification de la charge solide du Grand Rhône et du Petit Rhône à proximité de leur embouchure. Mémoire de DEA, Université Aix-Marseille I, 86 p.

Antonelli C., 2002. Flux sédimentaires et morphogenèse récente dans le chenal du Rhône aval. Thèse Université Aix-Marseille I, 279 p.

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

Arnaud-Fassetta G., 1998. Dynamiques fluviales holocènes dans le delta du Rhône. Thèse Université Aix-Marseille I, 329 p.

Asselman N.E.M., 1999. Suspended sediment dynamics in a large drainage basin: the River Rhine. *Hydrological processes*, **13**, 1437-1450.

Barth H., Ganz M., Heise M., Molzahn D., Brandt D., Klös H., 1993. Determination of plutonium traces in some German river sediments. *Isotopenpraxis*, **28**, 159-165.

Baskaran M., Coleman C.H., Santschi P.H., 1993. Atmospheric depositional fluxes of ^7Be and ^{210}Pb at Galveston and College Station, Texas. *Journal of Geophysical Research*, **98**, NO. D11, 20,555-20,571.

Baskaran M., Asbill S., Santschi P., Brooks J., Champ M., Adkinson D., Colmer M.R., Makeyev V., 1996. Pu, ¹³⁷Cs and excess ²¹⁰Pb in Russian Arctic sediments. *Earth and Planetary Science Letters*, **140**, 243-257.

Baskaran M., Ravichandran M., Bianchi T.S., 1997. Cycling of ⁷Be and ²¹⁰Pb in a high DOC, shallow, turbid estuary of south-east Texas. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **45**, 165-176.

Beaudouin B. et Rycx Y., 2000. L'identification des sources sédimentaires du bassin versant du Rhône par l'étude des matières en suspension (MES) de ses principaux affluents. Mémoire de maîtrise Université Paris VII - Denis Diderot, UFR de Géographie, 98p.

Beck H.L., Krey P.W., 1983. Radiation exposure in Utah from Nevada Nuclear tests. *Science*, **220**, 18-24.

Benes P., Lam Ramos P., Poliak R., 1989. Factors affecting interaction of radiocesium with freshwater solids. In: pH, composition of water and the solids, *Journal of Radioanalytical and nuclear Chemistry*, **133 (2)**, 359-376.

Benoit G., Oktay-Marshall S.D., Cantu S.D., 1995. Evidence of the particle concentration effect for lead and other metals in fresh water based on ultraclean technique analysis. *Geochimica and Cosmochimica Acta*, **59**, 2677-2687.

Bethemon J., 1988. Le thème de l'eau dans la vallée du Rhône. Essai sur la genèse d'un espace hydraulique. Thèse Université de Lyon, 642 p.

Blake W.H., Walling D.E., He Q., 1999. Fallout beryllium-7 as a tracer in soil erosion investigations. *Applied Radiation and Isotopes*, **51**, 599-605.

Bleichrodt J.F., 1978. Mean tropospheric residence time of cosmic-ray-produced beryllium-7 at north temperate latitudes. *Journal of Geophysical Research*, **83**, 3058-3062.

Bonniwell E.C., Matisoff G., Whiting P.J., 1999. Determining the time and distances of particle transit in a mountain stream using fallout radionuclides. *Geomorphology*, **27**, 75-92.

Bonté P., Mouchel J.M., Thomas A.J., Le Cloarec M.F., Dumoulin J.P., Sogon S., Tessier L., 2000. Buffering of suspended sediment transport in lowland river during low water stage : quantification in river Seine using environmental radionuclides. *Acta Geologica Hispanica*, **35**, n°3-4, 339-355.

Bouisset P., Calmet D., 1997. Hyper Pure Gamma-Ray Spectrometry applied to low-level environmental sample measurements. International workshop on the status of measurement techniques for the identification of nuclear signatures, Geel, 25-27 February, Proceedings, 1997.

Bruneau F., 1999. Mesure des isotope du plutonium des sédiments marins par spectrométrie de masse à plasma couplé inductivement haute résolution (HR ICP-MS). Thèse, Université de Caen/Basse-Normandie. 132 p.

Bryan E.A., Cowan G.A., Daniels W.R., Maeck W.J., 1976. Oklo, an experiment in long-term geologic storage. *In: Actinides in the environment, Series 35*, ed. Friedman A.M., 89-102.

Caillet S., Arpagaus P., Monna F., Dominik J., 2001. Factors controlling ^7Be and ^{210}Pb atmospheric deposition as revealed by sampling individual rain events in the region of Geneva, Switzerland. *Journal of Environmental Radioactivity*, **53**, 241-256.

Cartier Y., 1984. Etude de l'activité des dépôts sédimentaires des garages d'écluses de Caderousse, Avignon et Vallabrègues prélevés en surface en janvier 1984. Rapport IPSN/SERE/SRP n°07, 12 p.

Carvalho F.P., 1997. Distribution, cycling and mean residence time of ^{226}Ra , ^{210}Pb and ^{210}Po in the Tagus estuary. *Science of the Total Environment*, **196**, 151-161.

CEC (Commission of the European Community), 1989. The Chernobyl accident. Rapport CEA-IPSN 2/86, révision 3, 163p.

Charmasson S., Arnaud M., Bailly du Bois M., Bouisset P., Garcia K., Masson M., 1996. Concentrations en divers radionucléides dans les eaux du Rhône et en mer au voisinage de l'embouchure du Rhône. Rapport IPSN/SERE 96/022 (P), 24 p.

Charmasson S. 1998. Cycle du combustible nucléaire et milieu marin – Devenir des effluents rhodaniens en Méditerranée et des déchets immergés en Atlantique nord-est. Thèse de doctorat d'état, Université Aix-Marseille II, 365p.

Ciffroy P., Reyss J.L., Siclet F. , 2003. Determination of residence time of suspended particles in the turbidity maximum of the Loire estuary by ^7Be analysis. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **57**, 553-568.

Cigna A., Delfanti R., Serro L., 1994. The radiological exposure of the population of the European Community to radioactivity in the Mediterranean Sea. Marina-Med project. Acte d'un congrès tenu à Rome, 17-19 Mai 1994, Report EUR 15564 EN, 662 p.

Conférence de consensus, 2005. Débit maximal de la crue du Rhône de décembre 2003 à Beaucaire. Organisée par le Préfet coordonnateur du bassin Rhône Méditerranée à la demande du ministère de l'écologie et du développement durable. Lyon, 26-28 juillet 2005. <http://ccbr.lyon.cemagref.fr/>

Cochran J.K., Moran S.B., Fisher N.S., Beasley T.M., Kelley J.M., 2000. Sources and transport of anthropogenic radionuclides in the Ob river system, Siberia. *Earth and Planetary Science Letters*, **179**, 125-137.

Cornett R.J., Chant L., 1988. $^{239,240}\text{Pu}$ residence times in fresh waters and accumulation in shield lake sediments. *Canadian Journal of Fisheries and Aquatic Sciences*, **45**, 407.

Cornett R.J., Eve T., Docherty A.E., Cooper E.L., 1995. Plutonium in fresh waters: sources and behaviour in the Ottawa River basin. *Applied Radiation Isotopes*, **46**, No. **11**, 1239-1243.

Dasher D., Hanson W., Read S., Faller S., Farmer D., Efurud W., Kelley J., Patrick R., 2002. An assessment of the reported leakage of anthropogenic radionuclides from the underground nuclear test sites at Amchitka Island, Alaska, USA to the surface environment. *Journal of Environmental Radioactivity*, **60**, 165-187.

Deprés A., 1995. Les sources de plutonium dans l'environnement. *Revue Générale du Nucléaire*, **1**, 24-29.

Dominik J., Burrus D., Vernet J.P., 1987. Transport of the environmental radionuclides in an alpine watershed. *Earth and Planetary Science Letters*, **84**, 165-180.

Dossier S.I.E.E DIREN, 2004. Description des événements de décembre 2003. DIREN Languedoc-Roussillon, 9-16.

Duffa C., 2001. Répartition du plutonium et de l'américium dans l'environnement terrestre de la basse vallée du Rhône. Thèse de doctorat, Université Aix-Marseille III, 179p.

Dugas F., 1989. Etude du transit sédimentaire par charriage dans le Rhône entre Beaucaire et Arles. Institut Français de Recherche Scientifique pour le développement en Coopération. 65p.

Durana L., Chudy M., Masarik J., 1996. Investigation of Be-7 in the Bratislava atmosphere. *Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry*, **207**, 345-356.

Edgington D.N., 1984. Sediment-water interactions and models for the transport and fate of radionuclides in rivers. In: Sediments and pollution in waterways. General considerations, IAEA, Vienna, IAEA-TECDOC-302, 159-185.

Eisenbud M., Gesell T., 1997 a. Environmental Radioactivity. 4th edition, Academic Press, New York.

Eisenbud M., Gesell T., 1997 b. In: Environmental radioactivity from natural, industrial and military sources. San Diego, CA: Academic Press, p. 614.

Eyrolle F., Masson O., 2001. Validation de méthodes de traitement des échantillons d'eau douce et marine (Projet METHODEAU1) – Etat d'avancement. Rapport IPSN/DPRE/SERNAT/2001-0007, 21p.

Eyrolle F., Charmasson S., 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*, **74**, 127-138.

Feng H., Cochran J.K., Hirschberg D.J., 1999. ^{234}Th and ^7Be as tracers for the sources of particles to the turbidity maximum of the Hudson estuary. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **49**, 629-645.

Fournier-Bidoz V., Garnier-Laplace J., 1994. Etude bibliographique sur les échanges entre l'eau, les matières en suspension et les sédiments des principaux radionucléides rejetés par les centrales nucléaires. Document IPSN/DPEI/SERE 94/073 (P), 82p.

French IGBP-WCRP News letter N°11, Changement global, 2000. Solid fluvial transfers in the Adour-Dordogne-Garonne basins. 24-27.

Goodbred S.L., Kuehl S.A., 1998. Floodplain processes in the Bengal Basin and the storage of Gange-Brahmaputra river sediment: an accretion study using ^{137}Cs and ^{210}Pb geochronology. *Sedimentary Geology*, **121**, 239-258.

Goutelard F., Morello M., Calmet D., 1998. Alpha-spectrometry measurement of Am and Cm at trace levels in environmental samples using extraction chromatography. *Journal of Alloys and Compounds*, **271-273**, 25-30.

Hardy E.P., Krey P.W., Volchok H.L., 1973. Global inventory and distribution of fallout plutonium. *Nature*, **241**, 444-445.

Harley J.H., 1971. Worldwide plutonium fallout from weapons tests. In: Proceedings of Environmental Plutonium Symposium, Los Alamos, 4-5 August 1971, pp. 13-19. Los Alamos Scientific Laboratory Report LA-4756.

Harley J.H., 1980. Plutonium in the environment – A review. *Journal of Radiation Research*, **21**, 83-104.

Hawley N., 1983. ^7Be partitioning in natural fresh water system (abstr.). *EOS*, **64**, 1087.

Hawley N., Robbins J.A., Eadie B.J., 1986. The partitioning of ^7Be in fresh water. *Geochimica and Cosmochimica Acta*, **50**, 1127-1131.

He Q., Walling D.E., 1997. The distribution of fallout ^{137}Cs and ^{210}Pb in undisturbed and cultivated soils. *Journal of Applied Radiation Isotopes*, **48**, 677-690.

Holloway R.W., Hayes D.W., 1982. Mean residence time of plutonium in the troposphere. *Environmental Sciences Technology*, **16**, 127-129.

Hong G.H., Lee S.H., Kim S.H., Chung C.S., Baskaran M., 1999. Sedimentary fluxes of ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{210}Pb in the East Sea (Sea of Japan). *The Science of the Total Environment*, **237/238**, 225-240.

IRS (Institution Interdépartementale des bassins Rhône Saône), 2000. Etude globale pour une stratégie de réduction des risques dus aux crues du Rhône. Etude du transport solide, 1ère étape, rapport de synthèse. Institution interdépartementale des bassins Rhône-Saône, Valence, France. 5 volumes, 469 p.

Ishikawa Y., Murakami H., 1995. Precipitation scavenging studies of radionuclides in air using cosmogenic ^7Be . *Journal of Environmental Radioactivity*, **26**, 19-36.

Joshi S.R., Mcree M.C., Shukla B.S., Roy J.C., 1991. Partitioning and transport of lead-210 in the Ottawa river watershed. *Water, Air and Soil Pollution*, **59**, 311-320.

Kelley J.M., Bond L.A., Beasley T.M., 1999. Global distribution of Pu isotopes and ^{237}Np . *Science of the Total Environment*, **237/238**, 483-500.

Kershaw P.J., Sampson K.E., McCarthy W., Scott R.D., 1995. The measurement of the isotopic composition of plutonium in an Irish Sea sediment by mass spectrometry. *Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry*, **198**, 113-124.

Koide M. Griffin J.J., Goldberg E.D., 1975. Record of plutonium fallout in marine and terrestrial samples. *Journal of Geophysical Research*, **80 (30)**, 4153-4162.

Krey P.W., Hardy E.P., Pachucki C., Rourke C., Coluzza F., Benson W.K., 1976. Mass isotopic composition of global fallout plutonium in soil. Proceedings Transuranium Nuclides in the Environment, IAEA, Vienna, 671-678.

Krey P., 1967. Atmospheric burn-up of a plutonium-238 generator. *Science*, **158 (3802)**, 769-771.

Kuroda P.K., Hodges H.L., Fry L.M., Moore H.E., 1962. Stratospheric residence time of strontium-90. *Science*, **137**, 15-17.

Lal D., Malhotra, P.K., Peters B., 1958. On the production of radioisotopes in the atmosphere by cosmic radiation and their application in meteorology. *Journal of Atmospheric and Terrestrial Physics*, **12**, 306-328.

Lal D., Peters B., 1967. Cosmic ray produced activity on the Earth. In S. Flugge (Ed.) *Handbuch der Physik*, **46 (2)**, 551-612.

Lambrechts A., Foulquier L., Garnier-Laplace J., 1991. Natural radioactivity in the components of main french rivers. 5th. Symposium on the natural environment, Salzburg, Austria, September 22-28 1991, 4p.

Lambrechts A., Foulquier L., Pally M., 1992 a. Synthèse des connaissances sur la radioécologie du Rhône. Rapport IPSN effectué dans le cadre du Comité du bassin Rhône Méditerranée Corse, groupe de travail “Qualité des eaux du Rhône”, sous-groupe “Micropollution toxique”, 172 p.

Lambrechts A. Levy F., Foulquier L., Montreuil F., Jourd’Heuil L., Court G., Pecout L., 1992 b. Suivi radioécologique de l’impact de l’usine de Marcoule sur le fleuve Rhône (1990-1991) – Rapport définitif (Janvier 1992). Document IPSN/SERE 92/06 (I), 37 p.

Lambrechts A., Levy F., Foulquier L., Montreuil F., Jourd’Heuil L., Rozet M., Pecout L., 1993. Suivi radioécologique de l’impact de l’usine de Marcoule sur le fleuve Rhône (1991-1992). Document IPSN/SERE 93/008, 37p.

Lambrechts A., Foulquier L., 1994 a. Suivi radioécologique du Rhône de l’amont du site de Marcoule à l’embouchure (1992-1993). IPSN/DPEI/SERE, Document SERE/94/026 (P), 37 p.

Lambrechts A., Marchand S., 1994 b. Mesures radioactives des dépôts sédimentaires dans les garages des écluses du Bas-Rhône en 1993. IPSN/DPEI/SERE, Document SERE/94/053 (P), 36 p.

Lambrechts A., Foulquier L., Pally M., 1995. Suivi radioécologique du Rhône de l’amont du site de Marcoule à l’embouchure (1993-1994). IPSN/DPEI/SERE, Rapport SERE/95/023 (P), 43 p.

Lambrechts A., Foulquier L., Pally M., 1996 a. Suivi radioécologique du Rhône de l’amont du site de Marcoule à l’embouchure (Campagne d’octobre 1994). IPSN/DPRE/SERE, Rapport SERE/96/009 (P), 41 p.

Lambrechts A., Foulquier L., Pally M., 1996 b. Suivi radioécologique du Rhône de l’amont du site de Marcoule à l’embouchure (Campagne d’octobre 1995). IPSN/DPRE/SERE, Rapport SERE/96/037 (P), 24 p.

Lambrechts A., Jourd’Heuil L., Vial P., 1996 c. Etude de la radioactivité d’une carotte de sédiment prélevée en aval du site de Marcoule (ouvrage de Sauveterre). Rapport IPSN/SERE/96/025 (P), 29 p.

Lambrechts A., Duffa C., 1998. Concentrations des transuraniens dans les sédiments des deux bras du Rhône et de la Camargue prélevés en mars 1997. Rapport IPSN/SERE/98/009 (P), 16 p.

Lansard B., 2004. Distribution et remobilisation du plutonium dans les sédiments du prodelta du Rhône (Méditerranée nord-occidentale). Thèse de doctorat, Université de la Méditerranée Aix-Marseille II, 180 p.

Lévy F., Clech F., Giordani J.M., Mistral J.P., 1993. Control and discharge of radioactive liquid effluents from the Marcoule complex. Proceedings of a seminary on Environmental impacts of nuclear installations. Fribourg, 15-18 Septembre 1992, *Radioprotection*, special issue Février 1993, 37-41.

- Lewis D.M., 1977.** The use of ^{210}Pb as a heavy metal tracer in the Susquehanna River system. *Geochimica and Cosmochimica Acta*, **41**, 1557-1564.
- Lieser K.H., Steinkopff T.H., 1989.** Chemistry of radioactive cesium in the hydrosphere and in the geosphere. *Radiochimica Acta*, **46**, 39-47.
- Livingston H.D., Bowen V.T., 1979.** Pu and ^{137}Cs in coastal sediments. *Earth and Planetary Science Letters*, **179**, 125-137.
- Lorgeré, 1959.** Turbidité des eaux du Rhône. Rapport définitif, Sogreah., Rapport R7193, 18 p.
- Martin J.M., Thomas A.J., 1988.** Contamination radioactive de l'environnement par l'industrie nucléaire. Actes du Colloque Nucléaire-Santé-Sécurité organisé par le Conseil Général du Tarn et Garonne, Montauban, 21-23 janvier 1988, 347-389.
- Martin J.M., Thomas A.J., 1990.** Origins, concentrations and distributions of artificial radionuclides discharged by the Rhône River to the Mediterranean Sea. *Journal of Environmental Radioactivity*, **11**, 105-139.
- Masson O., Eyrolle F., Boullier V., Antonelli C., 2004.** Station observatoire « Rhône aval » - Réseau OPERA- Bilan du fonctionnement sur la période 2000 – 2003 et perspectives. Rapport IRSN/DEI/SESURE n° 2004-05.
- Masson O., 2005.** Radioecological impact of Saharian dust fallout. Poster pour: The changing chemical climate of the atmosphere - First Accent Symposium. Urbino, 12-16 septembre 2005.
- Matsunaga T., Amano H., Yanase N., 1991.** Discharge of dissolved and particulate ^{137}Cs in the Kuji River, Japan. *Applied Geochemistry*, **6**, 159-167.
- Matsunaga T., Amano H., Ueno T., Yanase N., Kobayashi Y., 1995.** The role of suspended particles in the discharge of ^{210}Pb and ^7Be within the Kuji River watershed, Japan. *Journal of Environmental Radioactivity*, **26**, 3-17.
- Measures C.I., Edmond J.M., 1983.** The geochemical cycle of ^9Be : a reconnaissance. *Earth and Planetary Science letters*, **66**, 101-110.
- Moore, H.E., Poet S.E., Martell E.A., 1973.** ^{222}Rn , ^{210}Pb , ^{210}Bi and ^{210}Po profiles and aerosols residence times versus altitude. *Journal of Geophysical Research*, **78**, 7065-7075.
- Mullenbach B.L., Nittrouer C.A., 2000.** Rapid deposition of fluvial sediment in the Eel Canyon, northern California. *Continental Shelf Research*, **20**, 2191-2212.

Muramatsu Y., Rühm W., Yoshida S., Tagami K., Ushida S., Wirth E., 2000. Concentrations of ^{239}Pu and ^{240}Pu and their isotopic ratios determined by ICP-MS in soils collected from the Chernobyl 30 km zone. *Environmental Sciences and Technology*, **34**, 2913-2917.

Nelson D.M., Lovett M.B., 1978. Oxydation state of plutonium in the Irish Sea. *Nature*, **276**, 599-601.

Nguyen H.L., Leermakers M., Elskens M., De Ridder F., Doan T.H., Baeyens W., 2005. Correlations, partitioning and bioaccumulation of heavy metals between different compartments of Lake Balaton. *Science of the Total Environment*, **341**, 211-226.

Noël M.H., 1996. Le plutonium comme traceur du transfert et de l'accumulation des apports particuliers du Rhône en Méditerranée nord occidentale. Thèse de doctorat, Université Paris XII – Val de Marne, 256 p.

NRCC (National Research Council Canada), 1983. Radioactivity in the Canadian aquatic environment. NRCC No. 19250.

Olsen C.R., Larsen I.L., Brewster R.H., Cutshall N.H., Bopp R.F., Simpson H.J., 1984. A geochemical assessment of sedimentation and contaminant distributions in the Hudson-Raritan estuary. NOAA Technical Report NOS OMS 2, U.S. Department of Commerce, Rockville, Md., 101p.

Olsen C.R., Larsen I.L., Lowry P.D., Cutshall N.H., Todd J.F., Wong, G.T.F., Casey W.H., 1985. Atmospheric fluxes and marsh-soil inventories of ^7Be and ^{210}Pb . *Journal of Geophysical Research*, **90**, NO. D6, 10,487-10,495.

Olsen C.R., Larsen I.L., Lowry P.D., Cutshall N.H., 1986. Geochemistry and deposition of ^7Be in river-estuarine and coastal waters. *Journal of Geophysical Research*, **91**, NO. C1, 896-908.

Onishi Y., Serne R.J., Arnold E.M., Cowan C.E., Thompson F.L., 1981. Critical review: radionuclides transport, sediment transport, and water quality mathematical modelling; and radionuclides adsorption/desorption mechanisms. Pacific Northwest Laboratory, Richland. NUREG/CR-1322, PNL-2901, RE, 490p.

Pardé M., 1925. Le régime du Rhône. Etude hydrologique. Thèse de Doctorat, Université de Grenoble, 887 et 440 p.

Perkins R.W., Thomas C.W., 1980. Worldwide fallout. Pages 53-82 in W.C. Hanson editor, "Transuranic elements in the environment", U.S. DOE, USA.

Picouet C., Hingray B., Olivry J.C., 2001. Empirical and conceptual modelling of the suspended sediment dynamics in a large tropical African river : the Upper Niger river basin. *Journal of Hydrology*, **250**, 19-39.

Pont D., 1992. Caractérisation de la charge solide en suspension du Rhône au niveau du Palier d'Arles lors d'une crue d'importance moyenne. Rapport final du groupe de travail « Apports à la Méditerranée », Agence de l'eau Rhône-Méditerranée-Corse. Laboratoire de biologie animale et écologie, Ecologie des systèmes fluviaux, 25 p.

Pont D. et Bombled B., 1995. Les débits solides du Rhône à proximité de son embouchure durant l'année hydrologique 1994-1995. 7^{ème} rencontre de l'Agence Régionale pour l'Environnement, PACA, 24-30 octobre 1995, Digne-les-Bains, 282-292.

Pont D., Simonnet J.P., Walter A.V., 2002. Medium-term changes in suspended sediment delivery to the ocean : consequences of catchment heterogeneity and river management (Rhône River, France). *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 54, 1-18.

Preiss N., Mélières M.A., Pourchet M., 1996. A compilation of data on lead 210 concentration in surface air and fluxes at the air-surface and water-sediment interface. *Journal of Geophysical Research*, **101**, NO. **D22**, 28,847-28,862.

Radakovitch O., Charmasson S., Arnaud M., Bouisset P., 1999. ²¹⁰Pb and caesium accumulation in the Rhône delta sediments. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **48**, 77-92.

Rapport COGEMA, Contrôle des rejets du site, 4^{ème} trimestre 2002.

Reiter E.R., 1975. Stratospheric-tropospheric exchange processes. *Review of Geophysics and Space Physics*, **13**, 459-474.

Renaud P., Pourcelot L., Métivier, J.M., Morello M., 2003. Mapping of ¹³⁷Cs deposition over eastern France 16 years after the Chernobyl accident. *The Science of the Total Environment*, **309**, 257-264.

Reynold T.D., Gloyna E.F., 1963. Radioactivity transport in water. Transport of strontium and cesium by stream and estuarine sediments. Technical report-1 to the USAEC, June 1, 1963, 117 p.

Ritchie J.C., Ritchie C.A., 2001. Bibliography of publications of ¹³⁷caesium studies related to erosion and sediment deposition. <http://hydrolab.arsusda.gov/cesium137bib.htm>

Robbins J.A., 1978. Geochemical and geophysical applications of radioactive lead. In: Nriagu J.O. (Ed.), The biogeochemistry of lead in the environment. Elsevier, Amsterdam, 285-393.

Roditis J.-C., 1993. Caractérisation de la charge solide en suspension et alluvionnement du Rhône en tête de l'aire deltaïque. Crues et modalité du transfert sédimentaire. Bilan actuel et évolution récente. Mémoire de D.E.A, Université Aix-Marseille I, 135 p.

Rogowsky A.S., Tamura T., 1965. Movement of ^{137}Cs by runoff, erosion and infiltration on the alluvial Captina silt loam. *Health Physic*, **11**, 1333-1340.

Roos P., Holme E., Persson R.B.R., 1994. Comparison of AMP precipitate method and impregnated $\text{Cu}_2[\text{Fe}(\text{CN})_6]$ filters for the determination of radiocaesium concentrations in natural waters. *Nuclear Instruments and Methods*, **339**, 282-286.

Rubio L., Linares-Rueda A., Duenas C., Fernandez M.C., Clavero V., Niell F.X., Fernandez J.A., 2003. Sediment accumulation rate and radiological characterisation of the sediment of Palmones estuary (southern Spain). *Journal of Environmental Radioactivity*, **65**, 267-280.

Sabatier L., 2004. Dynamique des berges du Rhône entre Beaucaire et Arles (2002-2003). Mémoire de Maîtrise, Institut de Géographie Université de Provence Aix-Marseille I, 150 p.

Sauvan et Magnet, 2003. Analyse de la crue du Rhône de décembre 2003. Mairie de Tarascon, Service Environnement/Synthèse Météo-Hydrologique de la CNR.

Schiff S.L., Beaty K.G., Anderson R.F., 1983. ^7Be mass balances of two small Precambrian shield lakes (abstr.). *EOS*, **64**, 1030.

Scott M.R., Rotter R.J., Salter P.F., 1985. Transport of fallout plutonium to the ocean by the Mississippi River. *Earth and Planetary Science Letters*, **75**, 321-326.

Simpson H.J., Olsen C.R., Trier R.M., Williams S.C., 1976. Man-made radionuclides and sedimentation in the Hudson estuary. *Science*, **194**, 179-182.

Skipperud L., Oughton D.H., Salbu B., 2000. The impact of plutonium speciation on the distribution coefficients in a sediment-sea water system, and radiological assessment of doses to humans. *Health Physics*, **79** (2), 147-153.

Smith J.N., Ellis K.M., 1982. Transport mechanism for Pb-210, Cs-137 and Pu fallout radionuclides through fluvial-marine systems. *Geochimica and Cosmochimica Acta*, **46**, 641-954.

Sommerfield C.K., Nittrouer C.A., Alexander C.R., 1999. ^7Be as a tracer of flood sedimentation on the northern California margin. *Continental Shelf Research*, **19**, 335-361.

Sommerfield C.K., Nittrouer C.A., 1999. Modern accumulation rates and a sediment budget for the Eel shelf: a flood-dominated depositional environment. *Marine Geology*, **154**, 227-241.

Steegeen A., Govers G., Nachtergaele J., Takken I., Beuselink L., Poesen J., 2000. Sediment export by water from an agricultural catchment in the Loam Belt of central Belgium. *Geomorphology*, **33**, 25-36.

Thomas A.J., 1988. Géochimie des radioéléments naturels et artificiels: application à l'étude de l'interface continent-océan. Thèse d'Etat, Université Pierre et Marie Curie, Paris, 409p.

Thomas A.J., 1997. Input of artificial radionuclides to the Gulf of Lions and tracing the Rhône influence in marine surface sediments. *Deep-Sea Research II*, **44**, N°3-4, 577-595.

UNSCEAR (United Nations Scientific Committee of the Effects of Atomic Radiation), 1982. Ionizing radiation: Sources and biological effects. 1982 report to the general assembly, United Nations Publication, sales N°E.82.IX.8 Vienne, 773p.

UNSCEAR (United Nations Scientific Committee of the Effects of Atomic Radiation), 1988. Sources, effects and risks of ionising radiation. 1988 report to the general assembly. United Nations Publication, sales N°E.88.IX.7 Vienne, 647p.

Vidal P., 1998. Géochimie. 2^{ème} édition, Dunod, Paris, 190 p.

Villiet J., 2005. Evolution topographique des berges du Rhône entre Arles et Beaucaire. Mémoire de Master 1, Institut de Géographie Université Aix-Marseille I, 52 p.

Vray F., Debayle C., Métivier J.M., 2005. Etude de la dynamique de drainage du ¹³⁷Cs présent sur les bassins versants des cours d'eau français. Etat d'avancement. Rapport IRSN/DEI/SESURE n° 2005-01, 31 p.

Wallbrink P.J., Murray A.S., 1994. Fallout of ⁷Be over south eastern Australia. *Journal of Environmental Radioactivity*, **25**, 213-228.

Wallbrink P.J., Murray A.S., 1996. Determining soil loss using the inventory ratio of excess lead-210 to caesium-137. *Soil Science Society of America Journal*, **60**, 1201-1208.

Walling D.E., Quine T.A., 1995. The use of fallout radionuclide measurements in soil erosion investigations. In: IAEA (Ed.), Proceedings of the International FAO/IAEA Symposium on Nuclear Techniques in Soil-Plant Studies for Sustainable Agriculture and Environmental Preservation, Vienna, 17-21 October 1995. IAEA Proc. Series STI/PUB/947. IAEA, Vienna, Austria, 597-619.

Warneke T., Croudace I.W., Warwick P.E., Taylor R.N., 2002. A new ground level fallout record of uranium and plutonium isotopes for northern temperate latitudes. *Earth and Planetary Science Letters*, **203**, 1047-1057.

Wilkening M.H., Clemens W.E., Stanley D., 1975. Radon-222 flux in widely separated regions, in *Natural Radiation Environment II*, ed J.A.S Adams, U.S. Energy Research and Development Administration, Oak Ridge, Tenn., 717-730.

Zapata F., 2003. The use of environmental radionuclides as tracers in soil erosion and sedimentation investigations :recent advances and future developments. *Soil and Tillage Research*, **69**, 3-13.

Liste des figures :

- Figure 1-1.** Géologie du bassin versant rhodanien (figure publiée dans *Arnaud-Fassetta, 1998*). **p20**
- Figure 1-2.** Périodes de retour théoriques des crues du Rhône en fonction du débit à Beaucaire (figure publiée dans *Arnaud-Fassetta, 1998*). **p22**
- Figure 1-3.** Les trois chaînes radioactives naturelles issues de la décroissance de l' ^{238}U , de l' ^{235}U et du ^{232}Th (figure publiée dans *Vidal (1998)*). **p25**
- Figure 1-4.** Les installations nucléaires rhodaniennes (figure publiée dans *Lambrechts et al., 1992 a*). **p26**
- Figure 1-5.** Evolution temporelle des rejets de Marcoule de 1964 à 2003 pour les rejets en émetteurs γ hors tritium, et de 1979 à 2003 pour les émetteurs α . **p34**
- Figure 1-6.** Composition isotopique moyenne des rejets du centre de Marcoule sur la période 1964-2003 (hors tritium) pour les radionucléides émetteurs β/γ , sur la période 1979-2003 pour les radionucléides émetteurs α . **p35**
- Figure 1-7.** Composition isotopique moyenne des rejets du centre de Marcoule sur la période 1998-2003 (hors tritium). **p36**
- Figure 1-8.** Evolution temporelle des rejets en émetteurs gamma totaux hors tritium, toutes centrales confondues, de 1977 à 2004. En rouge est représentée l'évolution des rejets de ^{137}Cs . **p38**
- Figure 1-9.** Chronique des charges totales annuelles ayant explosé suite aux essais nucléaires atmosphériques de charge supérieure à 500 kt sur la période 1945 à 1980 (figure publiée dans *Warneke et al., 2002*). **p41**
- Figure 1-10.** Activités en $^{239+240}\text{Pu}$ (en dpm : désintégrations par minute) mesurées dans l'air dans l'état de Washington, USA (figure publiée dans *Harley, 1980*). **p42**
- Figure 1-11.** Diagramme Eh-pH du plutonium à 25°C (le parallélogramme représente le domaine des eaux naturelles). **p48**
- Figure 1-12.** Evolution temporelle des activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ dans les sédiments du Rhône en aval du centre de Marcoule. **p50**
- Figure 1-13.** Corrélations des activités moyennes annuelles en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ des sédiments du Rhône en aval de Marcoule, avec les rejets annuels de Marcoule de 1979 à 2004. **p51**
- Figure 2-1.** Chronique des débits moyens journaliers du Rhône en Arles durant les années 2002 à 2004. **p56**
- Figure 2-2.** Courbe de tarage sur le Grand Rhône, fournie par la CNR. Cette courbe a été établie pour la station CNR d'Arles au point kilométrique 262,6, et a été valable pour la période de janvier 2001 à octobre 2002. **p57**
- Figure 2-3.** Contributions des principaux affluents du Rhône au débit en Arles durant les événements de crue 1 et 2. Sont représentés les contributions de la Saône, de l'Isère, et le cumul des affluents du sud du bassin versant rhodanien (CAM). **p58**
- Figure 2-4.** Contributions des principaux affluents du Rhône au débit en Arles durant l'évènement 3. Sont représentés les contributions de la Saône, de l'Isère, et de le cumul des affluents du sud du bassin versant rhodanien (CAM). **p60**
- Figure 2-5.** Contributions des principaux affluents du Rhône au débit en Arles durant l'évènement 4 de type océanique. Sont représentés les contributions de la Saône, de l'Isère, et le cumul des affluents du sud du bassin versant rhodanien (CAM). **p61**
- Figure 2-6.** Contributions des principaux affluents du Rhône au débit en Arles durant l'évènement 5. Sont représentées les contributions de la Saône, de l'Isère, et le cumul des affluents du sud du bassin versant rhodanien (CAM). **p62**

Figure 2-7. Localisation géographique sur une carte 1/25000 des sites de carottage de Barriol et de la peupleraie. La station de prélèvement pérenne implantée dans le cadre du projet OPERA de l'IRSN est aussi représentée. **p65**

Figure 2-8. Localisation géographique sur une carte 1/25000 du site de carottage de la lône du Mas des tour. **p66**

Figure 2-9. Situation géographique du site de prélèvement de Mornas par rapport au bief Marcoule-Arles. Cette carte illustre les sites d'échantillonnage de la COGEMA Marcoule dans le cadre du suivi que cette société effectue suite aux rejets du centre. Le site de Mornas est localisé au niveau du site S1 (Saint-Etienne des Sorts) de la COGEMA. **p68**

Figure 2-10. Les différents affluents du Rhône en aval de Lyon. Les affluents en rouge sont ceux dont la confluence avec le Rhône se situe dans le bief Marcoule-Arles. **p69**

Figure 2-11. Les aménagements hydroélectriques et nucléaires du Rhône (carte publiée dans Lambrechts et Marchand, 1994 b). **p72**

Figure 2-12. Illustration schématique du site de Barriol. **p74**

Figure 2-13. Illustration schématique du site de la peupleraie. **p75**

Figure 2-14. Principe schématique du système de prélèvement de la station OPERA d'Arles (schéma publié dans Masson *et al.*, 2004). **p77**

Figure 2-15. Photo de la pompe MP 1 Grundfos® fixée au bout de la perche servant à s'éloigner de la berge. **p78**

Figure 2-16. Banc de filtration de l'eau du Rhône utilisé dans cette étude. **p79**

Figure 2-17. Illustration schématique du carottier à percussion utilisé pour les carottages B3, B4 et B5. **p80**

Figure 2-18. Photos de la campagne de carottage d'avril 2003, sur le site de Barriol. Le carottier à percussion photographié a permis l'obtention des carottes B3, B4 et B5. **p81**

Figure 2-19. Photos de la campagne de carottage de juin 2004, sur le site de Barriol. Le carottier hydraulique photographié ici a permis l'obtention des carottes B3' et B4'. **p82**

Figure 2-20. Photos de carottes obtenues lors du carottage B5' effectué en juin 2004 sur le site de la peupleraie. **p83**

Figure 2-21. Les principales étapes du traitement radiochimique nécessaire à la spectrométrie α . **p88**

Figure 2-22. Chronique des résultats des rapports $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ mesurés par la COGEMA et l'IRSN dans les sédiments du Rhône en aval de Marcoule de 1979 à nos jours. Les points bleus foncés représentent les données acquises par COGEMA, les points bleus clairs par l'IRSN. Les droites rouges représentent le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ moyen et l'écart type associé calculés à partir de ces mesures ($0,29 \pm 0,15$). **p98**

Figure 2-23. Evolution du rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les sédiments prélevés de Marcoule à Fourques de 1989 à 1995 (figure publiée dans Lambrechts et Duffa, 1998). **p98**

Figure 2-24. Contributions en Arles du ^{238}Pu et du $^{239+240}\text{Pu}$ originaire du centre de Marcoule, calculées en fonction du rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ des apports issus du lessivage des retombées globale (0,03) et du rapport issu des rejets de Marcoule (0,30). **p99**

Figure 3-1. Principales étapes du calcul des flux de radionucléides associés à la phase particulaire. **p108**

Figure 3-2. Evolution de la charge solide en suspension (CSS) en fonction du débit du Rhône (Q) en Arles. a) Corrélation CSS-débit au moyen d'une régression linéaire simple après transformation logarithmique des deux variables. b) Discrétisation des différents événements de crues suivis pendant la période d'étude ; la

numérotation des évènements fait référence au tableau 4-1 ; les flèches indiquent le sens des deux cycles d'hystérésis observés lors des crues de la période d'étude. **p112**

Figure 3-3. Variabilité de la charge solide en suspension en fonction de l'origine hydro-sédimentaire des crues (figure publiée dans *Pont et Bombled, 1995 et Pont, 1997*). **p113**

Figure 3-4. Activités massiques des radionucléides artificiels ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$, et naturels ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ mesurés sur les échantillons de matières en suspension prélevés en Arles durant la période d'étude. **p115**

Figure 3-5. Fréquence des activités en ^{137}Cs et $^{239+240}\text{Pu}$ rejetées en 2002 par le centre de Marcoule (*Rapport COGEMA, Contrôle des rejets du site, 4^{ème} trimestre 2002*). **p116**

Figure 3-6. Régressions entre les activités volumiques (Bq.l^{-1}) de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ mesurées en Arles et le débit Q ($\text{m}^3.\text{s}^{-1}$). La droite représente à chaque fois la régression linéaire appliquée après transformation logarithmique des variables, et les courbes l'intervalle de confiance à 95%. **p119**

Figure 3-7. Principales étapes pour la détermination de la CTP au flux total annuel et au flux en crue d'un radionucléide. **p121**

Figure 3-8. Régression entre les activités dissoutes et les activités particulières du ^{137}Cs mesurées en Arles. **p124**

Figure 3-9. Evolution de la contribution du transport particulaire (CTP) au flux total de ^{137}Cs , en fonction de la charge solide en suspension du Rhône (CSS en mg.l^{-1}). Ces valeurs de contribution ont été calculées à partir de la CSS et du K_d du ^{137}Cs dans le Rhône en aval du centre de Marcoule, comme décrit au paragraphe 5.2.2. **p127**

Figure 3-10 . Emplacement des stations de mesures du débit du Rhône de la CNR à Beaucaire, en Arles et à Fourques. **p128**

Figure 3-11. Evolution des flux annuels de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ vers la Mer Méditerranée. Comparaison avec les deux sources d'apport prépondérantes que sont les rejets du centre de Marcoule (*Charmasson, 1998*) et les apports issus du lessivage des retombées radioactives sur le bassin versant (BV) (*Charmasson, 1998, Eyrolle et al., 2004*). Les valeurs de flux annuels de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ jusqu'en 1997 sont issues de *Eyrolle et al. (2004)*. Les valeurs de flux annuels de ^{137}Cs de 1983 à 1990 sont issues de *Thomas (1997)*, elles représentent les seules valeurs de flux annuels de ^{137}Cs vers la Méditerranée disponibles dans la littérature. Les flux annuels de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{137}Cs de 1998 à 2004 ont été déterminés dans le présent travail. **p132**

Figure 3-12. Transport total (dissous plus particulaire) de ^{137}Cs et de $^{239+240}\text{Pu}$ dans le Rhône sur la période 1983-1990 : Comparaison entre les apports totaux venant de l'amont du bief Marcoule-Arles, et les flux d'exportation annuels estimés en Arles. Les ratios inférieurs à 1 indiquent une accumulation nette. Seule l'année 1983 présente un ratio équilibré pour le ^{137}Cs , voire excédentaire pour le $^{239+240}\text{Pu}$, probablement dû à l'occurrence de périodes de crue relativement importantes cette année là. (figure publiée dans *Thomas, 1997*). **p134**

Figure 4-1. Résultats de mesures des activités en radionucléides artificiels ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ acquises dans les matières en suspension en amont du bief Marcoule-Arles durant la période d'étude (2002-2004). Sont aussi reportées les activités mesurées en Arles sur la même période. **p140**

Figure 4-2. Résultats du suivi quotidien des activités massiques en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ des MES prélevées en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles durant la crue exceptionnelle de décembre 2003. Les flèches indiquent le sens du cycle d'hystérésis observé en Arles pour ces deux isotopes du début à la fin de la crue. **p147**

Figure 4-3. Evolution du rapport des activités mesurées en Arles sur les activités mesurées en amont du bief Marcoule-Arles en fonction du débit du Rhône durant la crue de décembre 2003. **p147**

Figure 4-4. Résultats du suivi du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ en amont du bief Marcoule-Arles. Les résultats sont superposés à la courbe des débits de la période d'étude. Le cadre rouge représente la gamme de variation du rapport isotopique des apports issus du lessivage des retombées globales. **p149**

Figure 4-5. Résultats du suivi du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ en Arles. Le cadre rouge supérieur représente la gamme de variation du rapport caractéristique de rejets de Marcoule. Le cadre rouge inférieur représente celle du rapport issu des retombées globale. **p149**

Figure 4-6. Résultats du suivi quotidien du rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ des MES prélevées en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles durant la crue exceptionnelle de décembre 2003. La flèche indique le sens du cycle d'hystérésis observé en Arles. Les traits rouge figure les rapports caractéristiques des rejets du centre de Marcoule (0,30) et des retombées globales (0,03). **p150**

Figure 4-7. Rapports de masse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ des MES prélevées en amont du bief Marcoule-Arles. Le cadre rouge représente la gamme de variation du rapport des retombées globales selon Kelley et al. (1999). **p151**

Figure 4-8. Rapports de masse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ des MES prélevées en Arles. Le cadre rouge représente la gamme de variation du rapport des retombées globales selon Kelley et al. (1999). **p152**

Figure 4-9. Evolution des teneurs en argiles, limons et sables au cours de la crue de décembre 2003 (figure publié dans Antonelli et al., publication soumise, annexe A7). **p157**

Figure 4-10. Résultats du suivi quotidien de l'activité massique en ^{137}Cs des MES prélevées en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles durant la crue exceptionnelle de décembre 2003. **p161**

Figure 4-11. Evolution de la contribution des termes sources de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$, reportée en fonction des flux annuels de ces 3 radionucléides sur la période 2002-2004. Les 3 termes sources représentés sont la remobilisation sédimentaire en aval de Marcoule (Stocks), les rejets directs de Marcoule (Rejets), et les apports issus du lessivage du bassin versant (BV). **p170**

Figure 5-1. Prédiction de l'évolution des stocks sédimentaires de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ piégés en aval de Marcoule de 1945 à nos jours. Ces prédictions tiennent compte de la décroissance radioactive du ^{137}Cs et du ^{238}Pu . Elles représentent l'évolution la plus rapide des stocks, et aboutissent à des temps de résidence t avant la disparition complète des stocks du bief Marcoule-Arles. **p182**

Figure 6-1. Aménagement de la chute d'Avignon et situation de l'usine-barrage de Sauveterre (figure publiée dans Lambrechts et al., 1996 c). **p186**

Figure 6-2. Profils des radionucléides artificiels ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ retrouvés dans les carottes du site de Barriol. La carotte B3 a été prélevée en avril 2003. La carotte B3' a été prélevée en juin 2004, à proximité de B3, afin de prolonger les profils en profondeur suite aux résultats acquis sur B3. Sont représentés aussi le pourcentage de particules $<50\ \mu\text{m}$, la capacité d'échange cationique (CEC) et la teneur en matière organique totale (MOT). Le ^{238}Pu , le $^{239+240}\text{Pu}$, la granulométrie, la CEC et la MOT n'ont pas été déterminés sur B3'. **p189**

Figure 6-3. Corrélations entre les activités en ^{137}Cs , ^{60}Co et ^{241}Am , et la teneur en particules fines des échantillons de la carotte B2, leur capacité d'échange cationique (CEC), et leur teneur en matières organiques totales (MOT). **p190**

Figure 6-4. Profils des radionucléides artificiels ^{60}Co et ^{241}Am retrouvés dans les carottes B3 et B3'. Le ^{60}Co n'a pas été détecté dans la carotte B3'. **p191**

Figure 6-5. Profil du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ déterminé dans les carottes B3. La droite à 0,03 représente le rapport caractéristique des retombées globales, la droite à 0,30 représente le rapport caractéristique des rejets du centre de Marcoule. **p192**

Figure 6-6. Profils des radionucléides artificiels émetteurs gamma retrouvés dans les carottes du site de la peupleraie. La carotte B4 a été prélevée en septembre 2003. La carotte B4' a été prélevée en juin 2004, à proximité de B4, afin de prolonger les profils en profondeur suite aux résultats acquis sur B4. Le ^{60}Co n'a été retrouvé ni sur B4, ni sur B4'. Sont représentés aussi le pourcentage de particules $<50\ \mu\text{m}$, la capacité d'échange cationique (CEC) et la teneur en matière organique totale (MOT). La granulométrie, la CEC et la MOT n'ont pas été déterminés sur B4'. **p194**

Figure 6-7. Corrélations entre les activités en ^{137}Cs et ^{241}Am , et la teneur en particules fines des échantillons de la carotte B4, leur capacité d'échange cationique (CEC), et leur teneur en matières organiques totales (MOT). **p195**

Figure 6-8. Profil de l'activité en ^{137}Cs retrouvé dans la carottes B5, prélevée en septembre 2003. Sont représentés aussi le pourcentage de particules $<50\ \mu\text{m}$, la capacité d'échange cationique (CEC) et la teneur en matière organique totale (MOT). Ni le ^{60}Co , ni l' ^{241}Am n'ont été retrouvé dans cette carotte. **p197**

Figure 6-9. Corrélations entre les activités en ^{137}Cs et la teneur en particules fines, la capacité d'échange cationique (CEC), et la teneur en matières organiques totales (MOT) des échantillons de la carotte B5. **p198**

Liste de tableaux :

Tableau 1-1. Activités en GBq des éléments identifiés dans les effluents liquides du centre de Marcoule de 1961 à 2003. Les données de 1961 à 1997 sont tirées de *Charmasson (1998)*. De 1961 à 1963, les activités rejetés sont disponibles sous forme d'activités α et β globales. Ce n'est qu'à partir de 1979 que des informations plus complètes sur la composition des rejets sont disponibles. Avant cette date, les valeurs indiquées pour $^{239+240}\text{Pu}$ représentent en fait les valeurs cumulées de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am et $^{242+244}\text{Cm}$. **p33**

Tableau 1.2. Composition isotopique moyenne des rejets des centrales nucléaires dans le Rhône. **p37**

Tableau 1.3. Activités totales de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ libérées par les essais nucléaires en atmosphère (en $\text{PBq} : \times 10^{15} \text{ Bq}$) (*UNSCEAR, 1982*). **p42**

Tableau 1.4. Récapitulatifs des dépôts de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ cumulés en France. **p43**

Tableau 1.5. Périodes radioactives des radionucléides artificiels étudiés dans le présent travail. **p44**

Tableau 1.6. Propriétés nucléaires du ^{137}Cs et des isotopes du plutonium étudiés. **p47**

Tableau 2-1. Caractéristiques générales des événements de crues de 2002 à 2004. **p57**

Tableau 2-2. Historique des plus fortes crues du Bas-Rhône. (Sauvan et Magnet (2003), complétée pour la crue de décembre 2003 selon les conclusions de la conférence de consensus sur le débit maximal de la crue du Rhône de décembre 2003 à Beaucaire, 2005). **p60**

Tableau 3-1. Valeurs de CSS mesurées durant les pics de crue successifs des événements 2 (novembre 2002, tableau 2-1) et 5 (octobre 2004). Sont aussi notées, pour comparaison, les valeurs moyennes obtenues à partir de toutes les mesures effectuées lors de cette étude pour les débits compris entre 4000 et 5000 $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, et entre 7000 et 9000 $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. **p113**

Tableau 3-2. Flux particuliers F_{part} moyens annuels des radionucléides ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ en Arles. Contribution moyenne des crues à ces flux. **p118**

Tableau 3-3. Récapitulatif des valeurs de K_d (en $\text{l} \cdot \text{kg}^{-1}$) du ^{137}Cs dans le Rhône. A été rajoutée pour information la gamme de variation du K_d du césium en eau douce, déduite du travail bibliographique de *Fournier-Bidoz et al. (1994)*. **p125**

Tableau 3-4. Contribution du transport particulaire (CTP) aux flux moyens annuels, et aux flux en période de crues, des radionucléides ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ durant la période 2002-2004. **p126**

Tableau 3-5. Résultats de la contribution du Petit Rhône au débit liquide total vers la Méditerranée, en fonction des classes de débit. Les débits sont exprimés en $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. **p129**

Tableau 3-6. Flux totaux annuels de ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ du Rhône vers la Méditerranée, et contributions annuelles des périodes de crues à ces flux, sur la période 2002-2004. Les incertitudes associées sont de $\pm 30\%$. **p131**

Tableau 3-7. Tableau synthétique des apports et des flux d'exportations de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ dans le Rhône aval (en GBq). Les apports dus aux rejets des centrales ont été considérés comme négligeables. Concernant les isotopes du plutonium, les apports dus au drainage du bassin versant (BV) et les flux d'exportation jusqu'en 1997 sont tirés de *Eyrolle et al. (2004)*. Concernant le ^{137}Cs , la période 1961-1990 correspond en fait à la période 1983-1990 (*Thomas, 1997*). Il n'existe pas de données de flux d'exportation du ^{137}Cs pour la période 1991-1997. Les données de rejets du centre de Marcoule jusqu'en 1997 sont issues de *Charmasson (1998)*. **p135**

Tableau 3-8. Flux moyens annuels et contributions moyennes annuelles des périodes de crue, estimés à partir de la chroniques des débits ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ des trente dernières années. **p136**

Tableau 4-1. Activités moyennes et écarts types associés des radionucléides artificiels ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ déterminés en Arles et en Amont du bief Marcoule-Arles, hors périodes de crue (débit $Q < 4000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$) et lors de

ces périodes (débit $Q > 4000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$). Sont indiquées aussi les activités moyennes tous régimes hydrauliques confondus en amont du bief. **p141**

Tableau 4-2. Estimation de l'accumulation nette de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ dans le bief Marcoule-Arles à partir des rejets du centre de Marcoule sur la période 2002-2004. L'export en Arles représente la quantité des rejets exportée. Le ratio export/rejet indique la proportion exportée des rejets. **p143**

Tableau 4-3. Valeurs du rapport de masse $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ pour différentes sources de plutonium (données publiées dans *Warneke et al., 2002*). **p153**

Tableau 4-4. Estimation de la contribution des stocks sédimentaires de ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ au transport total de ces deux isotopes durant la crue de décembre 2003. Les valeurs de contribution ont été estimées à partir des activités massiques mesurées en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles. A_{BV} est l'activité des MES mesurée en amont du bief Marcoule-Arles, A_T est l'activité des MES mesurées en Arles. **p156**

Tableau 4-5. Estimation de la contribution des stocks sédimentaires de ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ au transport total de ces deux isotopes durant la crue de décembre 2003. Les valeurs de contribution ont été estimées à partir des rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ déterminés en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles. **p158**

Tableau 4-6. Estimation, à partir du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, de la contribution de la remobilisation sédimentaire en aval du centre de Marcoule aux flux totaux de plutonium durant les crues de 2002 et 2004. Les événements 1, 2, 4 et 5 font référence au tableau 2-1. Les incertitudes associées aux rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ moyens des événements 1, 2 et 5 sont des écarts types. Un seul prélèvement a pu être effectué durant l'évènement 4, l'incertitude associée représente l'erreur sur la mesure. **p159**

Tableau 4-7. Valeurs de contribution (%) de la remobilisation sédimentaire aux flux totaux de matières en suspension (MES) et de ^{137}Cs durant la crue de décembre 2003. Les activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ entre parenthèses représentent les hypothèses sur les activités moyennes des stocks utilisées pour le terme A_{RS} lors de l'application de l'équation (18). **p163**

Tableau 4-8. Valeurs de contribution (%) de la remobilisation sédimentaire aux flux totaux de matières en suspension (MES) et de ^{137}Cs durant les crues de 2002 et 2004. Les activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ entre parenthèses représentent les hypothèses sur les activités moyennes des stocks utilisées pour le terme A_{RS} lors de l'application de l'équation (18). **p164**

Tableau 4-9. Estimation, à partir de la contribution des stocks de MES remobilisés en aval de Marcoule, des activités en ^{137}Cs mesurables en Arles durant la crue de décembre 2003. Comparaison avec les activités effectivement mesurées en Arles et en amont des rejets de Marcoule. Les activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ entre parenthèses représentent les hypothèses sur les activités moyennes des stocks utilisées pour le terme A_{RS} lors de l'application de l'équation (18). **p166**

Tableau 4-10. Tableau récapitulatif de la contribution des différents termes sources actuels de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ aux flux totaux vers la Méditerranée, déterminée pour la période 2002 à 2004. **p169**

Tableau 5-1. Estimation des stocks de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ originaires de Marcoule, accumulés et remobilisés annuellement sur la période 1998-2004. **p177**

Tableau 5-2. Estimations du temps de résidence t des stocks sédimentaires de radioactivité artificielle originaire du centre de Marcoule, accumulés de 1958 à 2004, dans le bief Marcoule-Arles. Sont reportés les termes nécessaires aux calculs des valeurs de t , avec F le flux moyen annuel vers la Méditerranée, R_{jt} le rejet moyen annuel par le centre de Marcoule, C_{RS} la contribution moyenne de la remobilisation sédimentaire au flux moyen annuel, C_{acc} l'accumulation moyenne annuelle des rejets du centre de Marcoule, et B le flux d'exportation moyen annuel des stocks. Sont aussi reportées les activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ rejetées par le centre de Marcoule de 1958 à 2004 et les stocks accumulés à partir de ces rejets (entre parenthèses la proportion que représentent les stocks par rapport aux activités totales rejetées). **p180**

ANNEXES

ANNEXE A1

LA NOTION DE K_d

La notion de coefficient de distribution (K_d).

Le coefficient de distribution ou K_d est défini comme le rapport de la concentration, ou de l'activité dans le cas des radionucléides, en phase solide d'un élément (A_s) sur sa concentration en phase liquide (A_l):

$$K_d = A_s/A_l \quad (1)$$

Dans ce travail, le K_d est exprimé en l.kg⁻¹. Théoriquement, le fait d'utiliser une isotherme linéaire (A_s = K_d.A_l) pour décrire le processus de partage entre phase solide et liquide, implique que le seul mécanisme à l'origine de ce partage est une adsorption linéaire réversible (*Edgington, 1984*). Pour une utilisation correcte du K_d, les hypothèses relatives à l'application de la théorie de l'échange d'ions doivent être vérifiées (*Onishi et al., 1981*), soit la présence de l'élément à l'état de trace, l'équilibre entre les phases solide et liquide, et la réversibilité totale du processus d'adsorption. Cependant, le fait que dans les écosystèmes naturels l'équilibre soit rarement atteint ou encore que certains éléments, tel le ¹³⁷Cs, puissent se fixer de façon irréversible sur les particules, peut entraîner de nombreux problèmes concernant la validité théorique et la comparaison des données entre elles (*Fournier-Bidoz et al., 1994*). Néanmoins, le K_d reste le paramètre le plus utilisé lorsqu'il s'agit de définir l'affinité plus ou moins importante d'un élément pour la matière particulaire.

ANNEXE A2

ACTIVITE PARTICULAIRE DES SEDIMENTS DU RHONE (1979 – 2004)

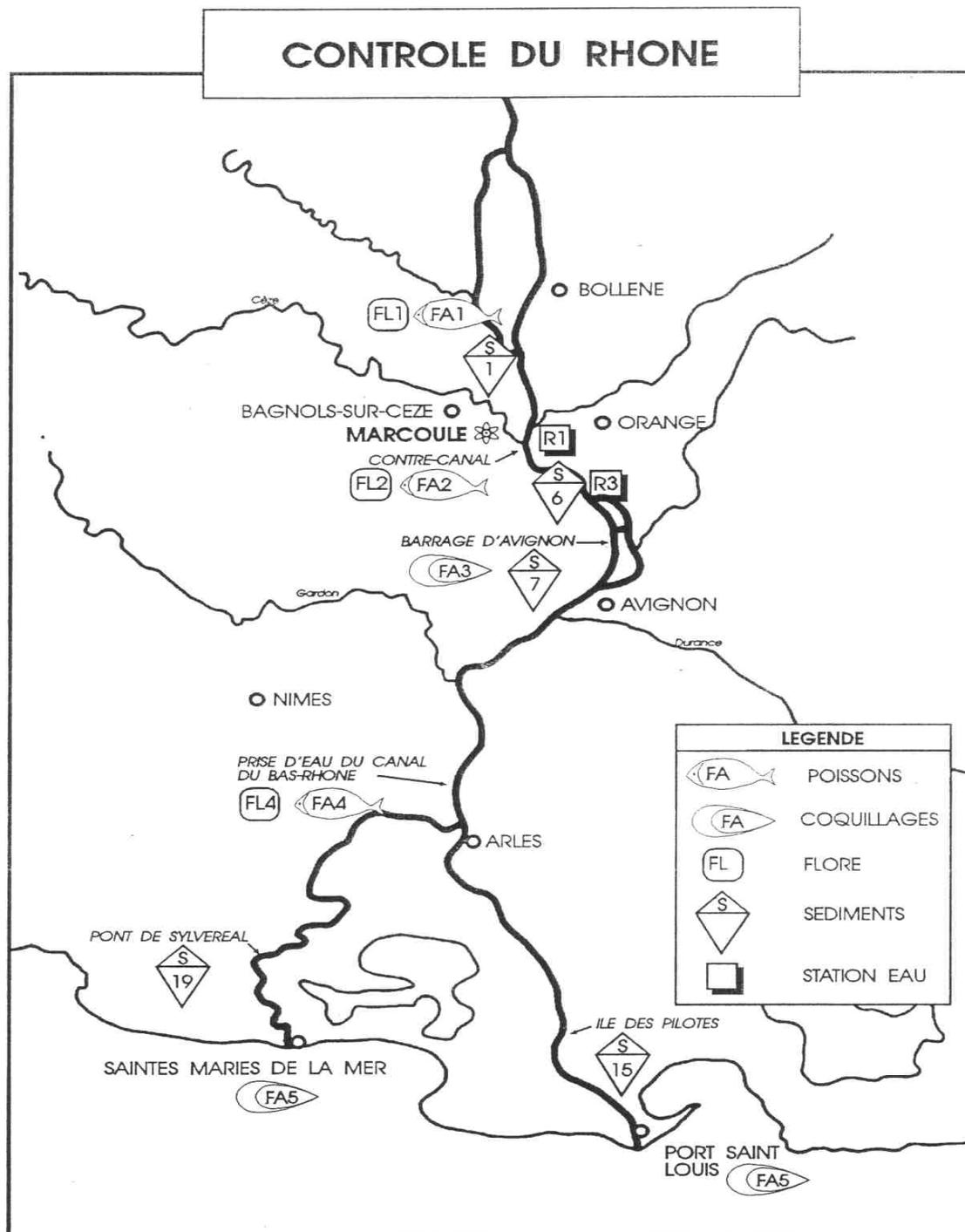


Figure A2-1. Situation géographique du site de prélèvement de Mornas par rapport au bief Marcoule-Arles. Cette carte illustre les sites d'échantillonnage de la COGEMA Marcoule dans le cadre du suivi que cette société effectue suite aux rejets du centre. Le site de Mornas est localisé au niveau du site S1 (Saint-Etienne des Sorts) de la COGEMA.

Activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ des sédiments de surface du Rhône en aval du centre de Marcoule. Ces données ont été acquises par COGEMA à la station S7 de la figure A2-1.

	^{137}Cs (Bq.kg ⁻¹)	^{238}Pu (Bq.kg ⁻¹)	$^{239+240}\text{Pu}$ (Bq.kg ⁻¹)	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
janvier-84	522			
février-84				
mars-84				
avril-84	54			
mai-84				
juin-84				
juillet-84	330			
août-84				
septembre-84				
octobre-84	567			
novembre-84				
décembre-84				
janvier-85				
février-85				
mars-85				
avril-85	102			
mai-85				
juin-85				
juillet-85	651			
août-85				
septembre-85				
octobre-85	260			
novembre-85				
décembre-85				
janvier-86	725			
février-86				
mars-86				
avril-86	714			
mai-86				
juin-86				
juillet-86	355			
août-86				
septembre-86				
octobre-86	325			
novembre-86				
décembre-86				
janvier-87	630			
février-87				
mars-87				
avril-87	575			
mai-87				
juin-87				
juillet-87				
août-87				
septembre-87				
octobre-87				
novembre-87				
décembre-87				

Activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ des sédiments de surface du Rhône en aval du centre de Marcoule. Ces données ont été acquises par COGEMA à la station S7 de la figure A2-1.
(Suite)

	^{137}Cs (Bq.kg ⁻¹)	^{238}Pu (Bq.kg ⁻¹)	$^{239+240}\text{Pu}$ (Bq.kg ⁻¹)	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
janvier-88	603			
février-88				
mars-88				
avril-88	412			
mai-88				
juin-88				
juillet-88	302			
août-88				
septembre-88				
octobre-88	334			
novembre-88				
décembre-88				
janvier-89	290			
février-89				
mars-89				
avril-89	643			
mai-89				
juin-89				
juillet-89	506			
août-89				
septembre-89				
octobre-89	340			
novembre-89				
décembre-89				
janvier-90	227			
février-90	113			
mars-90	450			
avril-90	224			
mai-90	478			
juin-90	126			
juillet-90	110			
août-90	154			
septembre-90	206			
octobre-90	242			
novembre-90	238			
décembre-90				
janvier-91	248			
février-91	319			
mars-91	301			
avril-91	358			
mai-91	369			
juin-91	330			
juillet-91	321			
août-91	194			
septembre-91	319			
octobre-91	218			
novembre-91	220			
décembre-91	191			

Activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ des sédiments de surface du Rhône en aval du centre de Marcoule. Ces données ont été acquises par COGEMA à la station S7 de la figure A2-1. **(Suite)**

	^{137}Cs (Bq.kg ⁻¹)	^{238}Pu (Bq.kg ⁻¹)	$^{239+240}\text{Pu}$ (Bq.kg ⁻¹)	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
janvier-92	185			
février-92	185			
mars-92	106			
avril-92	179			
mai-92	106			
juin-92	156			
juillet-92	150			
août-92	145			
septembre-92	94			
octobre-92	68			
novembre-92	22			
décembre-92	44			
janvier-93	25			
février-93	36			
mars-93	25			
avril-93	25			
mai-93	45			
juin-93	67			
juillet-93	316			
août-93	60			
septembre-93	26			
octobre-93	39			
novembre-93	38			
décembre-93	38			
janvier-94	37			
février-94				
mars-94	31			
avril-94	31			
mai-94	27			
juin-94	31			
juillet-94	30			
août-94	42			
septembre-94	35			
octobre-94	36			
novembre-94	35			
décembre-94	34			
janvier-95	32			
février-95	34			
mars-95	28			
avril-95	28			
mai-95	27			
juin-95	24			
juillet-95	26			
août-95	37			
septembre-95	29			
octobre-95	28			
novembre-95	23			
décembre-95	33			

Activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ des sédiments de surface du Rhône en aval du centre de Marcoule. Ces données ont été acquises par COGEMA à la station S7 de la figure A2-1. (Suite)

	^{137}Cs (Bq.kg ⁻¹)	^{238}Pu (Bq.kg ⁻¹)	$^{239+240}\text{Pu}$ (Bq.kg ⁻¹)	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
janvier-96	29			
février-96	41			
mars-96	29			
avril-96	207			
mai-96	336			
juin-96	355			
juillet-96	50			
août-96	50			
septembre-96	200			
octobre-96	442			
novembre-96	198			
décembre-96	24	0,04	0,20	0,19
janvier-97	284			
février-97	31			
mars-97	30			
avril-97	68			
mai-97	322			
juin-97	276			
juillet-97	40			
août-97	170			
septembre-97	129			
octobre-97	90			
novembre-97	64			
décembre-97	338			
janvier-98	64			
février-98	37		0,60	
mars-98	86	0,40	1,50	0,27
avril-98	228	1,00	3,80	0,26
mai-98				
juin-98	52	0,30	0,80	0,38
juillet-98	98	0,60	3,50	0,17
août-98	39		1,00	
septembre-98	53	0,30	0,90	0,33
octobre-98	218	0,50	2,40	0,21
novembre-98	160		1,70	
décembre-98	222		2,90	
janv-99	48	0,30	0,90	0,33
févr-99	33	0,20	0,80	0,25
mars-99	97	0,30	1,00	0,30
avr-99	213	0,40	1,30	0,31
mai-99	26		0,70	
juin-99	17			
juil-99	11			
août-99	19			
sept-99	15	0,30	1,30	0,23
oct-99	16	1,00	1,10	0,91
nov-99	19			
déc-99	19			

Activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ des sédiments de surface du Rhône en aval du centre de Marcoule. Ces données ont été acquises par COGEMA à la station S7 de la figure A2-1. **(Suite)**

	^{137}Cs (Bq.kg ⁻¹)	^{238}Pu (Bq.kg ⁻¹)	$^{239+240}\text{Pu}$ (Bq.kg ⁻¹)	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
janv-00	18		0,50	
févr-00	146	0,40	1,20	0,33
mars-00	140	0,60	1,30	0,46
avr-00	93	0,40	2,10	0,19
mai-00	49	0,40	1,10	0,36
juin-00	41	0,30	0,90	0,33
juil-00	43	0,50	1,10	0,45
août-00	47	0,50	1,30	0,38
sept-00	80	0,60	1,30	0,46
oct-00	52	0,60	1,20	0,50
nov-00	15			
déc-00	16			
janv-01	14		1,50	
févr-01	9		0,50	
mars-01	14		0,20	
avr-01	10			
mai-01	17	0,10	0,30	0,33
juin-01	13		0,30	
juil-01	5			
août-01	12	0,10	0,20	0,50
sept-01	30		0,60	
oct-01	105	0,40	0,90	0,44
nov-01	51	0,20	0,80	0,25
déc-01	16	0,30	0,50	0,60
janv-02	14	0,20	0,20	
févr-02	17	0,20	0,30	0,67
mars-02	28	0,50	0,60	
avr-02	23			
mai-02	22	0,40	0,50	
juin-02	19			
juil-02	23			
août-02	9			
sept-02	30	0,20	0,50	0,40
oct-02	18			
nov-02	16		0,20	
déc-02	19		0,40	
janv-03	15			
févr-03	14			
mars-03	14			
avr-03	15			
mai-03	15			
juin-03	14			
juil-03	17	0,10	0,40	0,25
août-03	15			
sept-03	17			

Activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ des sédiments de surface du Rhône en aval du centre de Marcoule. Ces données ont été acquises par l'IRSN et sont disponibles dans la base de données SYLVESTRE de l'IRSN.

	^{137}Cs (Bq.kg ⁻¹)	^{238}Pu (Bq.kg ⁻¹)	$^{239+240}\text{Pu}$ (Bq.kg ⁻¹)	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
13/03/79	181			
13/03/79	196			
13/03/79	926			
24/09/79	48			
24/09/79	178			
24/09/79	778			
01/04/80	100			
01/04/80	156			
01/04/80	593			
09/09/80	163			
09/09/80	315			
09/09/80	163			
12/01/81	248			
31/03/81	233			
31/03/81	244			
31/03/81	593			
24/04/81	519			
31/07/81	910			
10/09/81	160			
10/09/81	650			
10/09/81	710			
17/03/82	260			
17/03/82	170			
17/03/82	250			
08/09/82	480			
08/09/82	340			
08/09/82	1010			
05/04/83	530			
05/04/83	78			
05/04/83	810			
20/09/83	363			
20/09/83	274			
20/09/83	705			
16/01/84	430			
16/01/84	350			
18/01/84	490			
23/03/84	683			
23/03/84	303			
23/03/84	360			

Activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ des sédiments de surface du Rhône en aval du centre de Marcoule. Ces données ont été acquises par l'IRSN et sont disponibles dans la base de données SYLVESTRE de l'IRSN. **(suite)**

	^{137}Cs (Bq.kg ⁻¹)	^{238}Pu (Bq.kg ⁻¹)	$^{239+240}\text{Pu}$ (Bq.kg ⁻¹)	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
04/06/85	460			
04/06/85	1090			
04/06/85	130			
04/06/85	80		0,70	
04/06/85	610			
04/06/85	540			
04/06/85	6			
04/06/85	304			
31/07/85	226			
28/08/85	289			
16/09/85	326			
15/10/85	404			
02/11/85	450			
03/12/85	870			
03/12/85	1120			
14/05/86	520			
11/07/86	460			
11/07/86	330			
11/07/86	770	1,50	7,50	0,20
11/07/86	340			
11/07/86	720			
31/07/86	296			
26/08/86	285			
22/09/86	620			
23/09/86	770			
23/09/86	670			
29/09/86	314			
15/06/87	540			
15/06/87	830	2,10	7,20	0,29
15/06/87	420			
15/06/87	620			
15/06/87	800			
16/06/87	730			
16/06/87	280			
16/06/87	260			
16/06/87	158			
16/06/87	38			
16/06/87	430			
20/07/87	378			
17/08/87	321			
21/09/87	300			
23/10/87	320			

Activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ des sédiments de surface du Rhône en aval du centre de Marcoule. Ces données ont été acquises par l'IRSN et sont disponibles dans la base de données SYLVESTRE de l'IRSN . **(suite)**

	^{137}Cs (Bq.kg ⁻¹)	^{238}Pu (Bq.kg ⁻¹)	$^{239+240}\text{Pu}$ (Bq.kg ⁻¹)	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
29/08/88	217			
29/08/88	393			
29/08/88	58			
29/08/88	357			
29/08/88	110			
29/08/88	280			
29/08/88	177			
29/08/88	183			
29/08/88	650			
30/08/88	93			
30/08/88	24			
28/08/89	150	0,69	2,14	0,32
28/08/89	17			
28/08/89	24		0,20	
28/08/89	10		0,13	
28/08/89	44	0,16	0,43	0,37
28/08/89	130	0,43	1,11	0,39
28/08/89	150	0,17	0,81	0,21
29/08/89	260	1,07	3,65	0,29
29/08/89	820	2,13	7,83	0,27
29/08/89	650	1,97	6,96	0,28
29/08/89	360	1,24	4,27	0,29
01/09/89	250			
01/09/89	140	0,35	0,95	0,37
01/09/89	208	18,20	50,60	0,36
29/09/89	240	0,88	2,96	0,30
04/09/90	400	1,54	3,80	0,41
04/09/90	450			
04/09/90	172	0,73	1,49	0,49
04/09/90	71	0,54	0,77	0,70
04/09/90	132	0,66	1,26	0,52
05/09/90	157	0,84	1,99	0,42
05/09/90	3			
05/09/90	540	1,82	5,49	0,33
05/09/90	250	1,14	2,60	0,44
05/09/90	380	1,55	4,32	0,36
05/09/90	490			
05/09/90	165	0,79	1,91	0,41
06/09/90	7			
06/09/90	34			
06/09/90	8			
06/09/90	66	0,72	1,10	0,65
06/09/90	163			
06/09/90	142			

Activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ des sédiments de surface du Rhône en aval du centre de Marcoule. Ces données ont été acquises par l'IRSN et sont disponibles dans la base de données SYLVESTRE de l'IRSN. **(suite)**

	^{137}Cs (Bq.kg ⁻¹)	^{238}Pu (Bq.kg ⁻¹)	$^{239+240}\text{Pu}$ (Bq.kg ⁻¹)	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
03/09/91	310			
03/09/91	300	1,42	4,39	0,32
03/09/91	55		0,27	0,00
03/09/91	100			
04/09/91	170			
04/09/91	19			
04/09/91	230	0,71	2,92	0,24
04/09/91	240			
04/09/91	270	1,22	4,27	0,29
04/09/91	190			
05/09/91	120	0,59	2,00	0,30
05/09/91	140	0,63	1,83	0,34
05/09/91	25			
05/09/91	15		0,29	0,00
05/09/91	100			
05/09/91	89	0,24	0,91	0,26
12/03/92	78	0,32	0,95	0,34
18/03/92	79			
14/09/92	104	0,32	1,06	0,30
14/09/92	39	0,06	0,26	0,22
15/09/92	250	0,72	2,58	0,28
15/09/92	145	0,37	1,17	0,31
15/09/92	163	0,48	1,69	0,28
15/09/92	123			
16/09/92	81	0,27	0,96	0,28
16/09/92	27	0,03	0,14	0,20
16/09/92	4	0,00	0,11	0,04
18/09/92	12	0,02	0,30	0,06
18/09/92	61			
18/09/92	37	0,09	0,48	0,19
31/05/94	63			
31/05/94	23			
31/05/94	27	0,04	0,18	0,22
04/10/94	42	0,07	0,28	0,25
04/10/94	52	0,09	0,34	0,27
04/10/94	37	0,03	0,19	0,17
05/10/94	21			
06/10/94	33	0,02	0,17	0,12
06/10/94	74	0,17	0,63	0,27
07/10/94	46			
07/10/94	26	0,05	0,21	0,23
07/10/94	48	0,09	0,36	0,25
07/10/94	7	0,00	0,04	0,05
07/10/94	10	0,01	0,12	0,06

Activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ des sédiments de surface du Rhône en aval du centre de Marcoule. Ces données ont été acquises par l'IRSN et sont disponibles dans la base de données SYLVESTRE de l'IRSN . (suite)

	^{137}Cs (Bq.kg ⁻¹)	^{238}Pu (Bq.kg ⁻¹)	$^{239+240}\text{Pu}$ (Bq.kg ⁻¹)	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
07/03/95	78	0,07	0,55	0,13
07/03/95	209	0,64	2,39	0,27
08/03/95	32			
08/03/95	76	0,18	0,70	0,26
08/03/95	280	0,16	0,61	0,26
03/10/95	27	0,02	0,12	0,16
03/10/95	32	0,04	0,21	0,21
04/10/95	35	0,03	0,20	0,15
04/10/95	92	0,15	0,62	0,24
05/03/97	18	0,05	0,22	0,22
05/03/97	20	0,05	0,25	0,22
05/03/97	21	0,05	0,26	0,21
05/03/97	15	0,02	0,14	0,16
05/03/97	2	0,00	0,14	0,04
05/03/97	10	0,01	0,19	0,06
05/03/97	16	0,03	0,15	0,18
05/03/97	13	0,02	0,15	0,16
05/03/97	13	0,04	0,17	0,21
05/03/97	21	0,06	0,27	0,21
05/03/97	49	0,08	0,43	0,19
05/03/97	19	0,04	0,19	0,21
05/05/97	195			
05/05/97	135			
05/05/97	129			
06/05/97	17			
06/05/97	34			
12/05/01	7			
01/10/03	8			
01/10/03	53			
01/10/03	26			
01/10/03	5			
01/10/03	6			
09/10/03	9			
22/10/03	19			
22/10/03	6			
22/10/03	35			
26/08/04	35			

Activités moyennes annuelles des sédiments du Rhône en aval du centre de Marcoule. Les moyennes et les écarts types associés ont été calculés à partir des données recueillies dans la base de données SYLVESTRE de l'IRSN et dans les rapports de suivi environnemental fournis par COGEMA.

Année	¹³⁷ Cs			²³⁸ Pu			²³⁹⁺²⁴⁰ Pu		
	Activité moyenne (Bq.kg ⁻¹)	Ecart type	nombre de données	Activité moyenne (Bq.kg ⁻¹)	Ecart type	nombre de données	Activité moyenne (Bq.kg ⁻¹)	Ecart type	nombre de données
1979	385	369	6			0	0		0
1980	248	183	6			0	0		0
1981	474	263	9			0	0		0
1982	418	308	6			0	0		0
1983	460	275	6			0	0		0
1984	409	173	10			0	0		0
1985	440	327	18			0	0		0
1986	513	193	16	1,50		1	7,50		1
1987	449	225	17	2,10		1	7,20		1
1988	280	186	15			0	0		0
1989	275	232	19	2,48	5,26	11	6,31	13,54	13
1990	214	157	29	1,03	0,45	10	2,47	1,57	10
1991	206	108	28	0,80	0,44	6	2,11	1,64	8
1992	102	64	26	0,24	0,23	11	0,88	0,76	11
1993	62	81	12			0	0,00		0
1994	35	14	25	0,06	0,05	10	0,25	0,16	10
1995	58	66	21	0,16	0,20	8	0,67	0,73	8
1996	163	149	12	0,04		1	0,20		1
1997	89	102	29	0,04	0,02	12	0,21	0,08	12
1998	114	78	11	0,52	0,26	6	1,91	1,17	10
1999	44	58	12	0,42	0,29	6	1,01	0,23	7
2000	62	45	12	0,48	0,11	9	1,20	0,40	10
2001	23	27	13	0,22	0,13	5	0,58	0,40	10
2002	20	6	12	0,30	0,14	5	0,39	0,16	7
2003	17	12	18	0,10		1	0,40		1
2004	35		1			0			0

ANNEXE A3

LES RADIONUCLÉIDES ^7Be ET ^{210}Pb

Les radionucléides naturels d'origine atmosphérique ^7Be et ^{210}Pb en excès ($^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) sont connus pour leur potentiel en tant que traceurs du transport des particules dans l'environnement, La question posée dans le cadre de ce travail a été de savoir s'ils représentent un outil adéquat de mise en évidence de la remobilisation des stocks sédimentaires en aval de Marcoule.

Le ^7Be :

Le ^7Be est un radionucléide cosmogénique produit naturellement dans l'atmosphère terrestre lors de réactions de spallation entre les particules issues du rayonnement cosmique primaire, essentiellement des neutrons, et les principaux constituants de l'atmosphère, l'azote et l'oxygène (*Lal et al., 1958*). Cette réaction produit des molécules d'oxyde de béryllium BeO ou d'hydroxyde de béryllium $\text{Be}(\text{OH})_2$, qui s'associent rapidement avec des aérosols. Les dépôts à la surface terrestre s'effectuent principalement par dépôts secs et humides (*Olsen et al., 1985 ; Baskaran et al., 1993*), ces derniers contribuant de façon prépondérante par le biais des précipitations (*Wallbrink et Murray, 1994*).

De part son origine cosmogénique, la production de ^7Be est inversement proportionnelle à l'intensité du champ magnétique terrestre, et l'importance des flux vers la surface du globe dépend donc de la latitude (*Lal et Peters, 1967*). Son taux de production et sa concentration dans l'air augmentent avec l'altitude pour atteindre leur maximum dans la stratosphère. Etant donné le temps de résidence moyen des aérosols dans la stratosphère, environ 1 an (*Kuroda et al., 1962*), et la courte demi-vie du ^7Be (53,3 jours), la plus grande partie du ^7Be produit dans la stratosphère n'atteint pas la troposphère, excepté durant le

printemps lorsque l'amincissement de la tropopause intervient aux moyennes latitudes permettant cet échange. Le temps de résidence moyen du ^7Be dans la troposphère est alors estimé entre 22 et 48 jours (*Bleichrodt, 1978 ; Durana et al., 1996*).

Concernant son comportement dans les milieux aquatiques, *Measures et Edmond (1983)* ont montré que la solubilité du béryllium dans les eaux de rivière était fortement dépendante du pH, avec des concentrations en ^9Be (isotope stable du béryllium) dissous augmentant significativement en eau douce (pH \approx 6) par rapport à l'eau de mer (pH \approx 8). Cependant, *Hawley et al. (1986)* ont montré des valeurs de Kd du ^7Be en eaux douces plus fortes qu'en eau de mer. Selon *Sommerfield et al. (1999)*, le partage dissous-particulaire du ^7Be dans les eaux naturelles dépend de la charge solide en suspension, de la composition des particules et de la salinité. *Olsen et al. (1986)* insiste aussi sur l'importance que peut jouer le temps de contact des particules avec la phase dissoute sur l'augmentation du Kd du ^7Be .

Finalement, le ^7Be est un radionucléide possédant un fort potentiel en tant que traceur des processus de transport particulaire à court terme du fait, selon *Ciffroy et al., 2003*, de son abondance naturelle qui en fait un radionucléide facilement détectable par spectrométrie γ , de sa courte période radioactive, et de son affinité importante pour les particules. En effet, les différentes études menées sur la détermination du Kd du ^7Be en milieu d'eau douce ont montré des domaines de variation compris entre 10^4 et 10^6 (*Olsen et al., 1984 ; Schiff et al., 1983, Hawley, 1983 ; Hawley et al., 1986*). Dans les rivières françaises, le partage particulaire-dissous du ^7Be peut être caractérisé par une valeur de Kd moyen proche de 5.10^4 selon *Thomas, 1988*.

La courte période radioactive du ^7Be le destine à l'étude de processus sédimentaires à de faibles échelles de temps. Il peut par exemple être utilisé pour l'établissement de modèle d'érosion à l'échelle locale suite à des événements de tempête (*Walling et Quine, 1995 ; Blake et al., 1999*). En milieu estuarien, il sert à étudier des processus de dépôts rapides et à court terme des sédiments et à déterminer leurs termes sources (*Mullenbach et Nittrouer, 2000 ; Feng et al., 1999 ; Sommerfield et al., 1999*).

Le ^{210}Pb en excès ($^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$):

Le ^{210}Pb est un radionucléide naturel, produit de la chaîne radioactive de l' ^{238}U . C'est un descendant du radon 222 ($T_{1/2} = 3,82$ jours), lui-même étant le descendant direct du radium 226 ($T_{1/2} = 1620$ ans). Le ^{226}Ra est produit naturellement dans les roches et les sols de la surface terrestre à partir des atomes d' ^{238}U inclus dans la structure des minéraux les constituant. Selon le principe de l'équilibre séculaire des chaînes radioactives naturelles, le ^{210}Pb descendant de la production de ^{226}Ra est à l'équilibre avec tous les éléments de la chaîne dont il est originaire. Cependant, la diffusion de faibles quantités de ^{222}Rn à travers les interstices des roches jusqu'à l'air libre permet l'introduction de ^{210}Pb dans l'atmosphère terrestre. Ce ^{210}Pb atmosphérique est ensuite redéposé à la surface des sols et des sédiments modifiant ainsi l'équilibre avec les descendants de l' ^{238}U (Robbins, 1978). Dans les particules de sols et de sédiments, on retrouve donc du ^{210}Pb à l'équilibre produit in situ à partir de l'uranium inclus dans la structure de ces particules, dit ^{210}Pb supporté, ainsi que du ^{210}Pb d'origine atmosphérique adsorbé à la surface de ces particules, dit ^{210}Pb en excès ou $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$.

L'utilisation du ^{210}Pb dans tous les domaines touchant à l'érosion, au transport et à l'accumulation des sols et des sédiments impliquent exclusivement le $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$. Du fait de son origine, la concentration en ^{210}Pb dans l'air au-dessus des continents décroît avec l'altitude à cause de la diminution de la concentration en ^{222}Rn (Moore et al., 1973). Pour la même raison, le flux de ^{222}Rn à partir des sols est environ 100 fois plus important que le flux à partir des océans (Wilkening et al., 1975), entraînant de fortes différences de la concentration en ^{210}Pb dans l'air en fonction de la longitude. Preiss et al. (1996) ont compilé la plupart des concentrations en ^{210}Pb atmosphérique et des flux de ^{210}Pb de l'atmosphère vers la surface terrestre disponibles dans la littérature.

Concernant l'affinité du ^{210}Pb pour la matière particulaire dans les milieux aquatiques, Benoit et al. (1995) reportent des valeurs de K_d compris entre 5×10^5 à 10^7 en eaux douces pour des charges solides en suspension (CSS) allant respectivement de 10 mg.l^{-1} à $0,1 \text{ mg.l}^{-1}$, alors que Nguyen et al. (2005) ont déterminé des valeurs comprises entre 10^4 et 10^6 , toujours en eaux douces, pour des CSS diminuant respectivement de 40 à 10 mg.l^{-1} . Outre la démonstration de la forte affinité du ^{210}Pb pour les particules, ces travaux ont montré, comme dans le cas du ^7Be et de beaucoup de contaminants métalliques, l'influence de la CSS sur le domaine de variation du K_d . Carvalho (1997) met aussi en évidence cette influence et reporte

quant à lui un Kd moyen de $3 \times 10^4 \pm 10^4$ pour le ^{210}Pb en rivière. *Baskaran et al. (1997)* reportent eux des valeurs de Kd comprises entre 2600 et 37000 dans des eaux de milieu estuarien.

L'application la plus répandue du ^{210}Pb est la détermination de taux d'accumulation sédimentaire, en milieux lacustres ou estuariens par exemple (*Radakovitch, et al., 1999 ; Goodbred et Kuehl, 1998 ; Allison et al., 2000, Rubio et al, 2003 ; Sommerfield et Nittrouer, 1999*). Il est aussi utilisé dans le domaine de l'érosion des sols, soit en tant que traceur indépendant (*Walling et Quine, 1995 ; He et Walling, 1997*), soit combiné avec le ^{137}Cs (*Wallbrink et Murray, 1996 ; He et Walling, 1997*). Il peut aussi être employé comme traceur de certains contaminants en milieu fluvial (*Lewis, 1977*).

Détermination des temps de résidence :

L'affinité commune du ^7Be et du ^{210}Pb pour la phase particulaire et leurs nombreuses applications en matière de traçage sédimentaire a poussé *Bonniwell et al. (1999)* à utiliser ensemble ces deux radionucléides dans le cadre de l'étude du transport particulaire en rivière. Ces auteurs avancent qu'étant donné leur origine atmosphérique commune, leur affinité respective pour les particules et le fait qu'ils se retrouvent tous les deux en milieu aquatique continental majoritairement sous la valence $2+$, les distributions respectives du ^7Be et du $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ dans l'environnement peuvent être très similaires en regard de la composition et de la taille des grains sur lesquels ils sont adsorbés. Cette hypothèse permettrait selon eux l'utilisation du rapport d'activité $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ pour s'affranchir des variations de nature des grains et ne tenir compte que de la décroissance radioactive du ^7Be dans le cadre de la détermination de temps de résidence des particules en rivière. En acceptant cette hypothèse, une méthode d'estimation des temps de résidence des stocks sédimentaires avant leur remobilisation lors des crues a été développée.

1) Développement d'une méthode et limites :

Cette idée est basée sur le fait que des stocks sédimentaires suffisamment anciens pour avoir des niveaux d'activité en ^7Be et en $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ significativement plus faibles que les niveaux

actuels, pouvaient par leur remobilisation lors des périodes de crues diluer de manière significative les activités des apports issus de l'amont du bief Marcoule-Arles. Etant donné leurs périodes radioactives respectives, 54 jours pour le ^7Be et 20 ans pour le ^{210}Pb , l'utilisation de ces radionucléides pourrait permettre d'estimer des temps de résidence des particules dans le compartiment sédimentaire avant leur remobilisation durant les crues. La courte période radioactive du ^7Be permettrait de s'intéresser à des stocks récents de l'ordre de l'année, et celle du ^{210}Pb à des stocks plus anciens comme ceux, par exemple, formés avant 1990 et qui représentent la majorité des stocks.

Cette hypothèse, proposée suite au constat des faibles activités de ces deux radionucléides dans les matières en suspension en Arles lors des crues de l'automne 2002, implique donc que l'on puisse aussi observer des différences significatives entre ces activités et celles mesurées en amont des rejets de Marcoule. En faisant l'hypothèse que ces différences existent uniquement lors des crues, une méthode d'encadrement des temps de résidence des sédiments avant leur remobilisation dans le bief Marcoule-Arles a été proposée. Cette méthode utilise le rapport d'activité $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ (R), en supposant que les variations de composition et de taille des grains soient négligeables du fait de la forte affinité commune à ces deux radionucléides pour les particules. La méthode est alors basée sur la décroissance radioactive suivante :

$$R_s = R_0 \cdot e^{(\lambda_{210\text{Pb}_{\text{xs}}} - \lambda_{7\text{Be}}) \cdot t} \quad (1)$$

avec R_s le rapport d'activité $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ des stocks accumulés en aval de Marcoule lors de leur remobilisation, R_0 le rapport de ces stocks lors de leur formation, $\lambda_{210\text{Pb}_{\text{xs}}}$ et $\lambda_{7\text{Be}}$ les constantes radioactives, et t le temps de résidence des stocks sédimentaires.

Le terme R_0 correspond au rapport d'activité moyen des MES lors de la formation des stocks. Ce terme est approché par la mesure d'activité des MES lors du suivi en Arles hors périodes de crues. Le terme R_s est déduit de l'équation suivante qui met en jeu lors des crues le mélange des stocks remobilisés (R_s), avec les apports issus de l'amont des rejets, caractérisés par un rapport d'activité R_i , ce mélange définissant un rapport R_A en Arles (figure A3-1) :

$$R_A = x \cdot R_s + (1 - x) \cdot R_i \quad (1)$$

qui équivaut à :

$$R_s = \frac{1}{x} [R_A - (1-x) \cdot R_i] \quad (2)$$

x représente dans les équation (1) et (2) la contribution de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ remobilisé au flux total de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ particulaire en Arles.

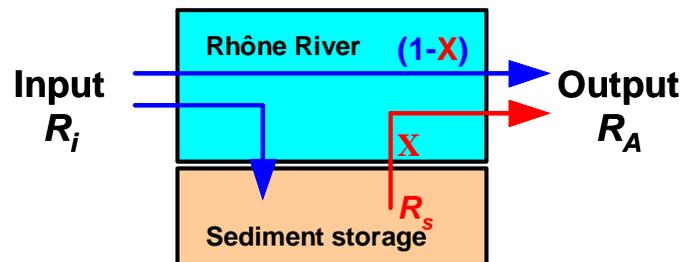


Figure A3-1. Illustration schématique du fonctionnement du système apport/export de radioactivité artificielle dans le bief Marcoule-Arles durant une crue du Rhône. R_i , R_s et R_A représentent respectivement le rapport d'activité des MES issues de l'amont du bief Marcoule-Arles, des stocks sédimentaires remobilisés dans le bief, et des MES en Arles. x est la contribution de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ issus des stocks sédimentaires au flux total de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ en Arles (voir texte).

A partir de cette équation, plusieurs hypothèses peuvent être faites qui permettent d'appréhender les temps de résidence, ainsi que la contribution de la remobilisation sédimentaire aux flux particuliers de radionucléides :

- Si $x = 1$ dans l'équation (2), alors $R_s = R_A$ ce qui correspond, pour l'équation (1), au cas limite permettant de calculer le temps de résidence minimum des sédiments remobilisés.
- Si nous faisons l'hypothèse que les sédiments remobilisés ont été stockés assez longtemps pour que le ^{7}Be des stocks ait décrépu complètement, alors $R_s = 0$ dans l'équation (2), ce qui conduit à $x = (R_i - R_o)/R_i$ qui représente la contribution minimum de la remobilisation sédimentaire au flux de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$.

Cette méthode de caractérisation de la remobilisation sédimentaire a néanmoins certaines limites:

- Etant donné la période radioactive du ^7Be , elle ne permet de s'intéresser qu'à la remobilisation de stocks récents. En effet, cette méthode tient compte seulement de la décroissance radioactive du ^7Be et pas de celle du $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, qui ne sert alors qu'à normaliser les activités en béryllium. La décroissance complète du ^7Be entraîne un R_s nul, à partir duquel il n'est plus possible de déterminer le temps de résidence des sédiments. En considérant l'activité en ^7Be des stocks à 150 Bq.kg^{-1} environ (valeur approchée par la moyenne des activités en ^7Be des MES en Arles hors périodes de crues) et en fixant la limite de détection du ^7Be des MES à 1 Bq.kg^{-1} , le temps de résidence limite au-delà duquel la méthode n'est plus utilisable serait de l'ordre de l'année. Cette méthode permet donc de ne s'intéresser qu'aux stocks formés dans l'année précédant les événements de crues.
- Cette méthode repose sur l'hypothèse d'un même comportement physico-chimique dans l'environnement de la part de deux éléments différents.
- L'équation (1) prend en compte un rapport de référence R_0 censé être celui des stocks sédimentaires lors de leur formation. Cependant, ce rapport de référence est une valeur qui recouvre une variabilité très importante des activités particulières en ^7Be observée en dehors des périodes de crues, la courte période radioactive du ^7Be ne permettant pas l'homogénéisation de ce R_0 avec le temps.
- La remobilisation sédimentaire de stocks anciens ne concerne probablement pas que le bief Marcoule-Arles. Il est donc possible que la comparaison du rapport $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ en amont des rejets de Marcoule et en Arles soit difficile à interpréter.

2) Résultats :

Sur la figure A3-2 sont représentés les résultats de mesures du ^7Be et du $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ acquis en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles. Il apparaît que la diminution globale des activités en ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ avec l'augmentation du débit en Arles est aussi caractéristique des activités mesurées en amont des rejets, et qu'elle est donc vraisemblablement liée à des facteurs de variabilité autre que la dilution par d'éventuels stocks sédimentaires remobilisés entre Marcoule et Arles. Il est toutefois probable que la remobilisation, à l'échelle du Rhône

en entier, de stocks de sédiments dont les temps de résidence auraient entraîné la décroissance du ^7Be et du $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, aient pu participer à cette diminution des activités lors des périodes de crues.

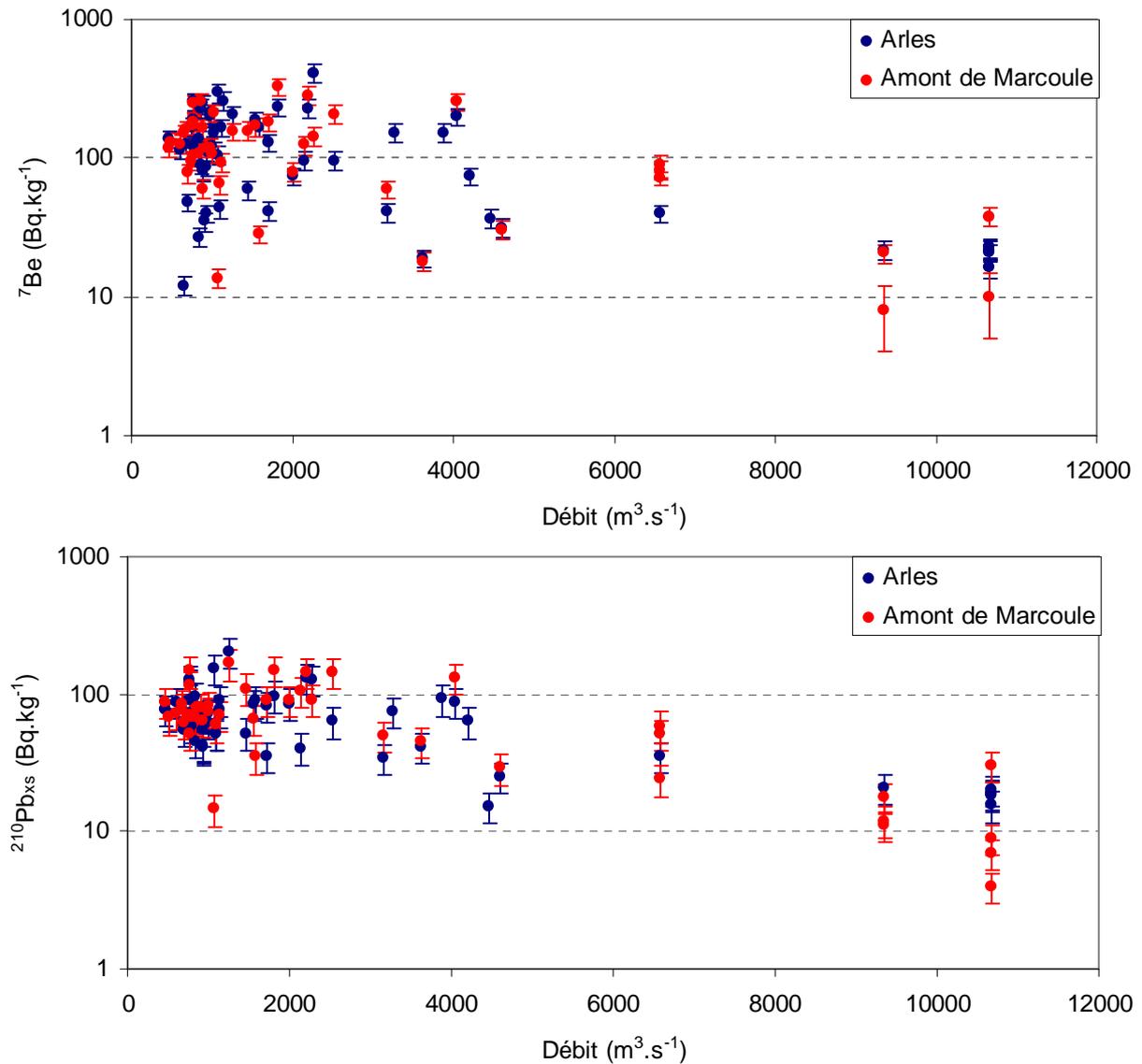


Figure A3-2. Résultats d'activités en ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ mesurés sur les MES prélevées en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles, et reportés en fonction du débit.

Néanmoins, cette hypothèse a aussi été regardée à l'échelle de la crue exceptionnelle de décembre 2003 durant laquelle il a été possible d'effectuer un suivi quotidien de l'évolution du ^7Be et du $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, à la fois en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles, durant toute la durée de la crue (figure A3-3). Alors que, pour le $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, ce suivi n'a mis en évidence

aucune différence significative entre les activités mesurées en Arles et celles en amont du bief, il semble cependant que la montée de crue ait été caractérisée par des activités en ^7Be significativement plus fortes en amont du bief qu'en Arles. Cette différence a en effet été visible le jour précédent le pic de crue, pour ensuite s'estomper durant le pic et la descente de crue. Ceci pourrait être le signe, durant la montée des eaux, d'une remobilisation de stocks suffisamment anciens pour avoir dilué l'activité en ^7Be , mais pas assez pour avoir dilué celle du $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$. L'évolution de l'activité en ^7Be n'est cependant pas tout à fait cohérente avec celle des isotopes ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$, qui ont montré eux aussi une accentuation de la contribution de la remobilisation sédimentaire lors de la phase de montée des eaux, mais avec une contribution maximum lors du pic de crue. De plus, l'étude du rapport d'activité $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ n'a pas montré de différence significative entre Arles et l'amont du bief Marcoule-Arles. Il semble donc que cette différence d'activité en ^7Be observée avant le pic de crue n'ait pas été due à la remobilisation des stocks sédimentaires, mais à d'autres facteurs de variabilité entre le site d'Arles et l'amont du bief Marcoule-Arles, tels par exemple des facteurs de nature et de taille des particules.

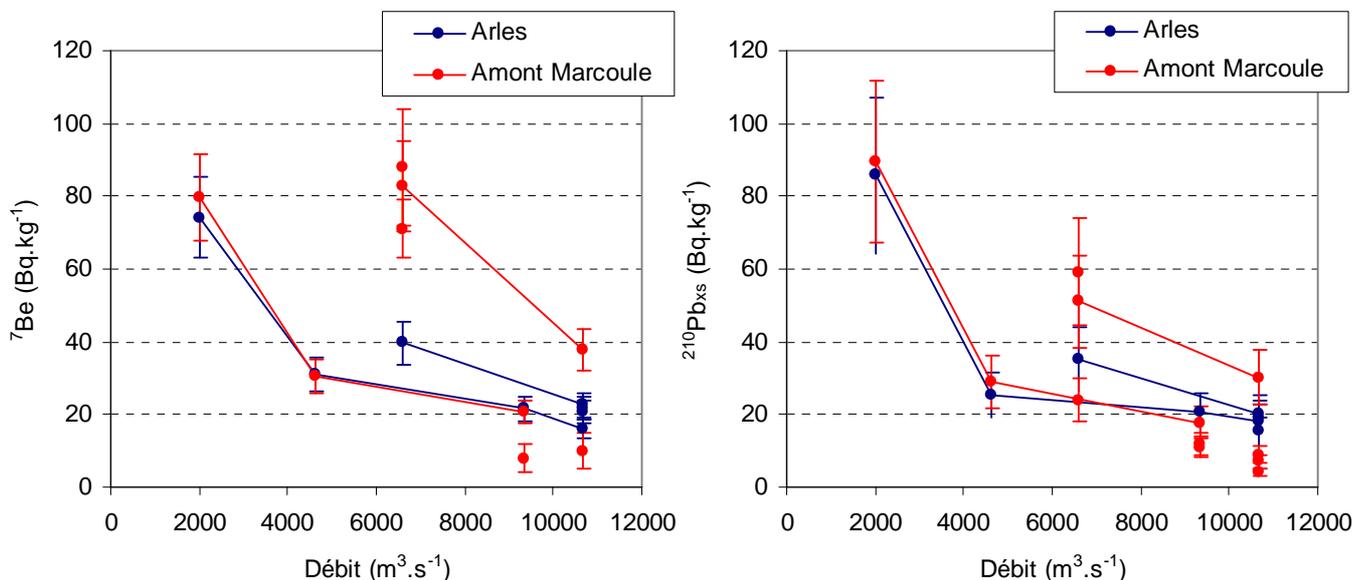


Figure A3-3. Suivi des activités en ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ mesurés sur les MES en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles lors de la crue de décembre 2003.

Finalement, l'utilisation des radionucléides naturels d'origine atmosphérique ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ne semble adaptée au traçage des stocks sédimentaires remobilisés en aval du centre de Marcoule lors des périodes de crues du Rhône. Ceci est sans doute principalement dû au fait que les processus de stockage et de remobilisation sédimentaire concernent le Rhône dans son intégralité, et qu'il n'est alors pas possible de différencier grâce à ces deux radionucléides les stocks sédimentaires accumulés dans le bief Marcoule-Arles de ceux formés sur l'ensemble du fleuve et de ses affluents. D'où la nécessité, pour étudier la dynamique sédimentaire du bief Marcoule-Arles, d'utiliser des traceurs qui peuvent caractériser spécifiquement les sédiments de ce bief, comme les radionucléides issus des rejets de Marcoule.

Ces résultats ont probablement été la conséquence de la petitesse du bief Marcoule-Arles en tant que source d'apport de ^7Be et de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ par rapport à l'ensemble du bassin versant rhodanien. La remobilisation des stocks sédimentaires dans le bief Marcoule-Arles ne permet probablement pas de diluer significativement les activités en ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ des matières solides venant de l'amont du bief, bien que les stocks remobilisés puissent être caractérisés par des activités en ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ plus faible que celles des MES venant de l'amont. Il serait cependant intéressant, en d'autres circonstances, d'appliquer la méthode développée en annexe à des sites de stockage sédimentaire à partir desquels la remobilisation sédimentaire serait suffisamment importante pour qu'elle puisse diluer significativement les activités en ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ des apports de MES.

ANNEXE A4

RESULTATS ACQUIS LORS DU SUIVI EN ARLES

Résultats acquis en Arles (LD: limite de détection; ND: non déterminé)

Date de prélèvement	débit (m ³ .s ⁻¹)	CSS (mg.l ⁻¹)	Activité des MES																Activité dissoute			
			¹³⁷ Cs (Bq.kg ⁻¹)	±	²³⁸ Pu (Bq.kg ⁻¹)	±	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu (Bq.kg ⁻¹)	±	²³⁹ Pu (g.g ⁻¹)	±	²⁴⁰ Pu (g.g ⁻¹)	±	⁷ Be (Bq.kg ⁻¹)	±	²¹⁰ Pb _{xs} (Bq.kg ⁻¹)	±	²³⁸ Pu/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	±	²⁴⁰ Pu/ ²³⁹ Pu	±	¹³⁷ Cs (mBq.l ⁻¹)	±
06/03/2001	3711	110	18	2	ND		ND		ND		ND		80	12	78	20	ND		ND		ND	
11/04/2001	3115	89	15	1	ND		ND		ND		ND		102	15	72	18	ND		ND		ND	
03/07/2001	1321	53	9	1	0,040	0,015	0,222	0,023	6,2E-14	2,7E-14	1,4E-14	5,8E-15	37	6	55	14	0,18	0,09	0,218	0,188	ND	
12/10/2001	1704	39	21	2	ND		ND		ND		ND		237	36	128	32	ND		ND		ND	
19/10/2001	1997	48	21	2	ND		ND		ND		ND		120	18	116	29	ND		ND		ND	
22/10/2001	1774	31	31	3	ND		ND		ND		ND		229	34	222	56	ND		ND		ND	
23/10/2001	1583	46	32	3	ND		ND		ND		ND		187	28	165	41	ND		ND		ND	
23/10/2001	1583	42	37	3	ND		ND		ND		ND		226	34	148	37	ND		ND		ND	
27/11/2001	677	4	42	4	ND		ND		ND		ND		290	44	<LD		ND		ND		ND	
28/11/2001	609	6	29	3	ND		ND		ND		ND		221	33	<LD		ND		ND		ND	
28/02/2002	2301	89	29	3	0,203	0,028	0,855	0,058	2,1E-13	2,2E-14	4,9E-14	5,0E-15	118	18	124	31	0,24	0,05	0,232	0,048	ND	
01/03/2002	2468	83	24	2	ND		ND		ND		ND		152	23	116	29	ND		ND		ND	
10/09/2002	5170	1303	11	1	ND		ND		ND		ND		64	10	18	5	ND		ND		ND	
10/09/2002	5751	1052	14	1	ND		ND		ND		ND		73	11	28	7	ND		ND		ND	
10/09/2002	6483	1128	14	1	ND		ND		ND		ND		78	12	18	5	ND		ND		ND	
10/09/2002	7135	1009	15	1	ND		ND		1,6E-14	1,3E-15	3,2E-15	2,4E-16	81	12	27	7	0,12	0,03	0,200	0,031	ND	
11/09/2002	2246	213	21	2	ND		ND		ND		ND		106	16	62	16	ND		ND		ND	
12/09/2002	1638	85	31	3	ND		ND		ND		ND		64	10	49	12	ND		ND		ND	
16/09/2002	1047	89	32	3	<LD		0,181	0,057	5,6E-14	2,0E-14	1,5E-14	5,7E-15	105	16	31	8	ND		0,267	0,197	ND	
14/10/2002	801	6	36	3	ND		ND		ND		ND		228	34	<LD		ND		ND		ND	
15/10/2002	935	5	36	3	ND		ND		ND		ND		187	28	<LD		ND		ND		ND	
15/11/2002	4671	722	19	2	<LD		0,224	0,027	6,0E-14	2,8E-14	1,1E-14	5,2E-15	58	9	34	9	ND		0,187	0,173	ND	
16/11/2002	6612	1383	12	1	ND		ND		ND		ND		33	5	19	5	ND		ND		ND	
17/11/2002	7814	2349	12	1	<LD		0,121	0,021	3,7E-14	6,1E-15	7,3E-15	1,2E-15	15	2	18	5	ND		0,199	0,066	ND	
18/11/2002	7679	698	17	2	ND		ND		ND		ND		23	3	25	6	ND		ND		ND	
19/11/2002	6880	341	16	1	0,033	0,014	0,327	0,027	9,3E-14	1,0E-14	1,4E-14	1,5E-15	22	3	30	7	0,10	0,05	0,154	0,033	ND	
20/11/2002	5382	191	15	1	ND		ND		ND		ND		41	6	27	7	ND		ND		ND	
21/11/2002	4776	175	14	1	ND		ND		ND		ND		57	9	28	7	ND		ND		ND	
22/11/2002	6209	345	19	2	ND		ND		ND		ND		92	14	36	9	ND		ND		ND	
23/11/2002	5421	210	17	2	0,011	0,005	0,228	0,014	6,3E-14	1,3E-14	1,0E-14	2,3E-15	53	8	24	6	0,05	0,02	0,163	0,070	ND	
25/11/2002	8064	656	20	2	ND		ND		ND		ND		48	7	23	6	ND		ND		ND	
26/11/2002	8897	925	19	2	0,036	0,009	0,275	0,023	8,3E-14	7,0E-15	1,3E-14	3,2E-15	23	4	25	6	0,13	0,04	0,159	0,052	ND	
27/11/2002	8305	793	15	1	ND		ND		ND		ND		16	2	14	4	ND		ND		ND	
28/11/2002	6353	376	12	1	0,025	0,004	0,214	0,012	ND		ND		26	4	18	5	0,12	0,03	ND		ND	
29/11/2002	5697	200	16	1	ND		ND		ND		ND		69	10	27	7	ND		ND		ND	
30/11/2002	4982	331	11	1	<LD		0,185	0,023	4,3E-14	1,2E-14	6,8E-15	1,9E-15	30	4	19	5	ND		0,159	0,089	ND	
01/12/2002	4462	275	15	1	ND		ND		ND		ND		53	8	42	11	ND		ND		ND	
02/12/2002	4145	255	11	1	ND		ND		ND		ND		36	5	18	4	ND		ND		ND	
03/12/2002	3961	112	14	1	ND		ND		ND		ND		64	10	29	7	ND		ND		ND	
05/12/2002	3285	63	35	3	0,287	0,024	1,079	0,055	2,6E-13	3,9E-14	5,8E-14	8,6E-15	78	12	48	12	0,27	0,04	0,219	0,065	ND	
14/01/2003	1888	29	22	2	ND		ND		ND		ND		119	18	57	14	ND		ND		ND	
21/01/2003	1893	16	17	2	ND		0,278	0,023	6,5E-14	6,5E-15	1,4E-14	1,4E-15	201	30	102	25	ND		0,217	0,044	ND	
28/01/2003	2007	36	18	2	ND		ND		ND		ND		124	19	64	16	ND		ND		ND	
03/02/2003	1670	18	20	2	ND		ND		ND		ND		164	25	78	19	ND		ND		ND	
11/02/2003	2151	69	19	2	ND		ND		ND		ND		96	14	41	10	ND		ND		ND	
18/02/2003	1341	10	<LD		ND		0,242	0,020	6,1E-14	3,5E-15	1,1E-14	1,8E-15	<LD		<LD		ND		0,186	0,040	ND	
04/03/2003	1719	31	19	2	ND		ND		ND		ND		129	19	83	21	ND		ND		ND	
17/03/2003	898	10	32	3	ND		ND		ND		ND		81	12	71	18	ND		ND		ND	
25/03/2003	835	23	14	1	0,134	0,012	0,471	0,025	1,1E-13	3,0E-15	2,8E-14	1,7E-15	27	4	46	11	0,28	0,04	0,250	0,022	ND	
01/04/2003	920	11	13	1	ND		ND		ND		ND		35	5	41	10	ND		ND		ND	
08/04/2003	930	32	14	1	ND		ND		ND		ND		40	6	41	10	ND		ND		ND	

Résultats acquis en Arles (LD: limite de détection; ND: non déterminé) (suite)

Date de prélèvement	débit (m ³ .s ⁻¹)	CSS (mg.l ⁻¹)	Activité des MES																		Activité dissoute	
			¹³⁷ Cs (Bq.kg ⁻¹)	±	²³⁸ Pu (Bq.kg ⁻¹)	±	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu (Bq.kg ⁻¹)	±	²³⁹ Pu (g.g ⁻¹)	±	²⁴⁰ Pu (g.g ⁻¹)	±	⁷ Be (Bq.kg ⁻¹)	±	²¹⁰ Pb _{xs} (Bq.kg ⁻¹)	±	²³⁸ Pu/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	±	²⁴⁰ Pu/ ²³⁹ Pu	±	¹³⁷ Cs (mBq.l ⁻¹)	±
16/04/2003	1003	8	52	5	ND		ND		ND		ND		122	18	72	18	ND		ND		ND	
23/04/2003	988	13	20	2	ND		ND		ND		ND		209	31	70	18	ND		ND		ND	
29/04/2003	938	14	10	1	ND		ND		ND		ND		112	17	42	11	ND		ND		ND	
05/05/2003	1086	14	17	2	ND		ND		ND		ND		105	16	52	13	ND		ND		ND	
13/05/2003	875	12	16	1	ND		ND		ND		ND		89	13	71	18	ND		ND		ND	
20/05/2003	1129	12	20	2	0,286	0,017	0,904	0,043	2,2E-13	7,4E-15	5,5E-14	2,3E-15	166	25	91	23	0,32	0,03	0,250	0,019	ND	
27/05/2003	1142	13	17	1	ND		ND		ND		ND		258	39	76	19	ND		ND		131	17
02/06/2003	860	6	42	4	ND		ND		ND		ND		229	34	78	20	ND		ND		ND	
06/06/2003	898	6	20	2	ND		ND		ND		ND		245	37	<LD		ND		ND		362	47
10/06/2003	746	3	20	2	ND		ND		ND		ND		168	25	<LD		ND		ND		283	34
13/06/2003	1033	6	65	6	ND		ND		ND		ND		150	23	<LD		ND		ND		711	85
16/06/2003	992	6	26	2	ND		ND		ND		ND		197	30	62	15	ND		ND		417	50
23/06/2003	760	7	35	3	ND		ND		ND		ND		<LD		119	30	ND		ND		632	82
03/07/2003	647	ND	ND		0,343	0,030	1,124	0,067	2,4E-13	7,4E-15	6,0E-14	2,4E-15	<LD		<LD		0,31	0,04	0,253	0,018	ND	
07/07/2003	502	6	28	3	ND		ND		ND		ND		<LD		72	18	ND		ND		ND	
21/07/2003	607	8	23	2	ND		ND		ND		ND		115	17	87	22	ND		ND		ND	
07/08/2003	782	9	33	3	ND		ND		ND		ND		<LD		58	14	ND		ND		ND	
25/08/2003	683	2	16	1	ND		ND		ND		ND		127	19	<LD		ND		ND		ND	
13/10/2003	763	15	43	4	0,289	0,020	0,954	0,046	2,2E-13	1,2E-14	5,1E-14	4,6E-15	121	18	73	18	0,30	0,04	0,230	0,032	ND	
05/11/2003	1711	131	13	1	0,006	0,002	0,096	0,008	2,5E-14	7,4E-16	5,2E-15	4,2E-16	42	6	36	9	0,07	0,03	0,205	0,023	ND	
25/11/2003	2534	203	16	1	ND		ND		ND		ND		96	14	63	16	ND		ND		ND	
02/12/2003	6581	1176	13	1	0,032	0,004	0,203	0,011	5,1E-14	1,3E-15	1,0E-14	5,3E-16	40	6	35	9	0,16	0,03	0,200	0,015	ND	
03/12/2003	10664	3353	19	2	ND		ND		ND		ND		23	3	20	5	ND		ND		ND	
03/12/2003	10664	3577	17	2	ND		ND		ND		ND		22	3	19	5	ND		ND		ND	
03/12/2003	10664	3689	17	2	ND		ND		ND		ND		21	3	15	4	ND		ND		ND	
03/12/2003	10664	3669	16	1	0,049	0,017	0,305	0,017	7,6E-14	3,2E-15	1,3E-14	6,9E-16	16	2	18	5	0,16	0,06	0,171	0,016	ND	
04/12/2003	9346	1679	15	1	0,022	0,003	0,200	0,011	5,3E-14	5,2E-15	9,2E-15	1,1E-15	22	3	21	5	0,11	0,02	0,174	0,038	ND	
05/12/2003	4612	462	12	1	0,007	0,002	0,135	0,010	3,2E-14	8,3E-16	6,2E-15	8,6E-16	31	5	25	6	0,05	0,02	0,192	0,032	ND	
11/12/2003	2007	21	23	2	0,042	0,008	0,297	0,025	7,2E-14	9,1E-15	1,4E-14	2,4E-15	74	11	86	21	0,14	0,04	0,197	0,058	93	15
16/01/2004	3636	1145	8	1	0,006	0,002	0,144	0,008	3,6E-14	1,3E-15	7,2E-15	2,8E-16	19	3	42	10	0,04	0,01	0,200	0,015	ND	
20/01/2004	3172	249	11	1	ND		ND		ND		ND		41	6	34	9	ND		ND		ND	
09/02/2004	1458	44	17	2	ND		ND		ND		ND		59	9	52	13	ND		ND		155	23
01/03/2004	1254	10	145	13	ND		ND		ND		ND		205	31	204	51	ND		ND		ND	
15/03/2004	2271	19	54	5	ND		ND		ND		ND		412	62	127	32	ND		ND		637	70
01/04/2004	1579	20	18	2	0,039	0,005	0,277	0,039	ND		ND		167	25	89	22	0,14	0,04	ND		203	18
15/04/2004	1068	7	27	2	ND		ND		ND		ND		296	44	154	39	ND		ND		246	22
13/05/2004	1547	16	38	3	ND		ND		ND		ND		186	28	84	21	ND		ND		403	32
28/05/2004	837	7	59	5	ND		ND		ND		ND		137	21	96	24	ND		ND		979	78
10/06/2004	1092	13	31	3	0,207	0,016	0,780	0,046	1,9E-13	6,1E-15	4,1E-14	2,3E-15	43	6	51	13	0,27	0,04	0,221	0,019	586	59
23/06/2004	927	10	47	4	ND		ND		ND		ND		87	13	55	14	ND		ND		862	78
07/07/2004	767	8	38	3	ND		ND		ND		ND		188	28	91	23	ND		ND		599	60
23/07/2004	703	5	47	4	ND		ND		ND		ND		48	7	55	14	ND		ND		1026	103
10/09/2004	665	11	33	3	ND		ND		ND		ND		12	2	79	20	ND		ND		377	34
24/09/2004	466	15	50	5	ND		ND		ND		ND		137	21	77	19	ND		ND		980	98
11/10/2004	768	5	41	4	ND		ND		ND		ND		252	38	127	32	ND		ND		462	51
26/10/2004	2205	57	41	4	0,252	0,015	1,009	0,055	2,3E-13	7,4E-15	5,3E-14	1,4E-15	228	34	131	33	0,25	0,03	0,230	0,014	488	68
28/10/2004	3278	841	23	2	ND		ND		ND		ND		153	23	75	19	ND		ND		ND	
28/10/2004	3882	1851	23	2	0,103	0,007	0,498	0,025	1,2E-13	2,7E-15	2,6E-14	9,0E-16	153	23	92	23	0,21	0,02	0,223	0,013	ND	
29/10/2004	4462	1922	11	1	0,095	0,007	0,508	0,023	1,3E-13	6,5E-15	2,7E-14	2,0E-15	37	6	15	4	0,19	0,02	0,217	0,027	ND	
29/10/2004	4219	1280	20	2	ND		ND		ND		ND		74	11	63	16	ND		ND		ND	
05/11/2004	4046	245	22	2	0,041	0,006	0,324	0,018	8,2E-14	5,2E-15	1,6E-14	1,3E-15	199	30	88	22	0,13	0,03	0,195	0,029	124	41
09/11/2004	1824	43	22	2	ND		ND		ND		ND		233	35	97	24	ND		ND		76	17

ANNEXE A5

RESULTATS ACQUIS LORS DU SUIVI

**EN AMONT DU BIEF MARCOULE-
ARLES**

Résultats acquis en amont du bief Marcoule-Arles (LD: limite de détection; ND: non déterminé)

Activité des MES																				
Date de prélèvement	débit (m ³ .s ⁻¹)	CSS (mg.l ⁻¹)	¹³⁷ Cs (Bq.kg ⁻¹)	±	²³⁸ Pu (Bq.kg ⁻¹)	±	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu (Bq.kg ⁻¹)	±	²³⁹ Pu (g.g ⁻¹)	±	²⁴⁰ Pu (g.g ⁻¹)	±	⁷ Be (Bq.kg ⁻¹)	±	²¹⁰ Pb _{xs} (Bq.kg ⁻¹)	±	²³⁸ Pu/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	±	²⁴⁰ Pu/ ²³⁹ Pu	±
25/02/2003	1130	4	14	1	ND		ND		ND		ND		124	17	106	12	ND		ND	
18/03/2003	925	5	12	1	ND		ND		ND		ND		60	16	80	11	ND		ND	
18/04/2003	999	7	14	1	ND		ND		ND		ND		107	12	82	11	ND		ND	
16/05/2003	890	10	10	1	ND		ND		ND		ND		93	20	71	23	ND		ND	
30/05/2003	965	9	15	1	ND		ND		ND		ND		254	43	78	12	ND		ND	
03/06/2003	919	7	10	1	ND		ND		ND		ND		164	28	<LD		ND		ND	
10/06/2003	746	7	27	2	ND		ND		ND		ND		212	36	<LD		ND		ND	
13/06/2003	1033	17	13	1	ND		ND		ND		ND		119	22	74	23	ND		ND	
20/06/2003	912	16	15	1	ND		ND		ND		ND		95	29	52	25	ND		ND	
04/07/2003	535	24	13	1	0,010	0,002	0,321	0,024	6,6E-14	3,7E-15	1,6E-14	1,1E-15	131	30	67	27	0,03	0,01	0,248	0,031
18/07/2003	635	11	12	1	ND		ND		ND		ND		127	27	72	23	ND		ND	
04/08/2003	460	8	10	1	ND		ND		ND		ND		171		68	10	ND		ND	
22/08/2003	773	9	16	1	ND		ND		ND		ND		159	23	84	29	ND		ND	
10/10/2003	1403	37	22	2	0,010	0,002	0,309	0,019	7,0E-14	3,0E-15	1,6E-14	8,0E-16	182	22	116	28	0,03	0,01	0,225	0,021
03/11/2003	2251	75	17	2	0,007	0,002	0,211	0,013	4,8E-14	4,1E-15	9,7E-15	1,4E-15	181	19	90	23	0,03	0,01	0,204	0,048
25/11/2003	2534	12	15	1	ND		ND		ND		ND		207	29	145	37	ND		ND	
02/12/2003	6581	609	21	2	0,005	0,002	0,171	0,011	ND		ND		83	11	51	15	0,03	0,01	ND	
02/12/2003 (Gardon)			11	2	0,005	0,002	0,171	0,011	3,9E-14	2,6E-15	7,5E-15	5,5E-16	88	16	59	25	ND		0,193	0,027
02/12/2003 (Durance)			7	1	ND		ND		ND		ND		71	8	24	11	ND		ND	
03/12/2003	10144	1212	15	1	0,005	0,002	0,133	0,009	3,2E-14	2,6E-15	6,1E-15	4,9E-16	38	7	30	13	0,03	0,01	0,191	0,031
03/12/2003 (Durance)			8	1	0,003	0,001	0,069	0,007	1,5E-14	1,2E-15	3,0E-15	3,4E-16	<LD		<LD		ND		0,192	0,036
03/12/2003 (Aygues)			7	1	ND		ND		ND		ND		<LD		<LD		ND		ND	
03/12/2003 (Ouvèze)			8	1	<LD		0,055	0,006	ND		ND		<LD		<LD		ND		ND	
04/12/2003	9346	1196	10	1	0,003	0,001	0,106	0,008	2,5E-14	4,1E-15	5,0E-15	1,1E-15	21	9	18	18	0,03	0,01	0,197	0,074
04/12/2003 (Gardon)			7	4	ND		ND		ND		ND		87	57	163	82	ND		ND	
04/12/2003 (Durance)			8	1	ND		ND		ND		ND		8	4	11	11	ND		ND	
04/12/2003 (Aygues)			7	1	ND		ND		ND		ND		<LD		11	11	ND		ND	
04/12/2003 (Ouvèze)			5	2	ND		ND		ND		ND		36	23	66	55	ND		ND	
04/12/2003 (Cèze)			6	3	ND		ND		ND		ND		59	44	66	55	ND		ND	
05/12/2003	4612	258	12	1	0,006	0,002	0,139	0,008	3,2E-14	2,0E-15	6,2E-15	5,9E-16	31	7	29	20	0,04	0,01	0,197	0,031

Résultats acquis en amont du bief Marcoule-Arles (LD: limite de détection; ND: non déterminé) (suite)

Activité des MES																				
Date de prélèvement	débit (m ³ .s ⁻¹)	CSS (mg.l ⁻¹)	¹³⁷ Cs (Bq.kg ⁻¹)	±	²³⁸ Pu (Bq.kg ⁻¹)	±	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu (Bq.kg ⁻¹)	±	²³⁹ Pu (g.g ⁻¹)	±	²⁴⁰ Pu (g.g ⁻¹)	±	⁷ Be (Bq.kg ⁻¹)	±	²¹⁰ Pb _{xs} (Bq.kg ⁻¹)	±	²³⁸ Pu/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	±	²⁴⁰ Pu/ ²³⁹ Pu	±
09/12/2003	2007	22	20	2	0,008	0,006	0,179	0,019	4,3E-14	6,5E-15	8,1E-15	1,1E-15	80	20	89	34	0,04	0,04	0,188	0,054
16/01/2004	3636	880	9	1	0,006	0,002	0,167	0,012	3,8E-14	4,8E-15	7,4E-15	9,8E-16	18	5	45	19	0,03	0,01	0,194	0,050
19/01/2004	3250	244	11	1	ND		ND		ND		ND		60	12	50	22	ND		ND	
06/02/2004	2033	20	25	2	ND		ND		ND		ND		157	21	110	33	ND		ND	
27/02/2004	1834	16	16	1	ND		ND		ND		ND		155	50	166	90	ND		ND	
12/03/2004	1521	13	16	1	ND		ND		ND		ND		144	33	91	36	ND		ND	
30/03/2004	1457	87	8	1	0,006	0,001	0,198	0,009	ND		ND		28	4	35	15	0,03	0,01	ND	
13/04/2004	1022	158	5	1	ND		ND		ND		ND		14	5	15	13	ND		ND	
11/05/2004	1594	20	12	2	ND		ND		ND		ND		169	27	66	23	ND		ND	
26/05/2004	896	12	13	1	ND		ND		ND		ND		109	15	67	24	ND		ND	
09/06/2004	1058	14	10	1	0,009	0,003	0,157	0,013	3,6E-14	2,7E-15	6,9E-15	4,2E-16	65	14	59	23	0,06	0,02	0,191	0,026
25/06/2004	873	11	10	1	ND		ND		ND		ND		117	20	64	26	ND		ND	
06/07/2004	777	10	11	2	ND		ND		ND		ND		103	19	69	27	ND		ND	
22/07/2004	697	9	12	2	ND		ND		ND		ND		78	20	62	27	ND		ND	
24/08/2004	1236	25	16	2	ND		ND		ND		ND		327	50	108	27	ND		ND	
08/09/2004	777	9	16	2	ND		ND		ND		ND		149	26	78	36	ND		ND	
24/09/2004	466	12	16	2	ND		ND		ND		ND		119	16	88	24	ND		ND	
11/10/2004	768	5	16	2	ND		ND		ND		ND		245	33	146	39	ND		ND	
26/10/2004	2205	111	17	2	0,013	0,020	0,425	0,028	9,2E-14	7,8E-15	1,9E-14	1,4E-15	282	30	143	30	0,03	0,05	0,211	0,034
05/11/2004	4046	99	17	2	ND		ND		ND		ND		255	40	132	35	ND		ND	
09/11/2004	1824	27	24	3	ND		ND		ND		ND		327	40	147	36	ND		ND	

ANNEXE A6

LE RAPPORT D'ACTIVITE



Utiliser un rapport d'isotopes de deux éléments distincts est délicat, puisque chacun d'eux a son propre comportement physico-chimique dans l'environnement. En effet, malgré leur forte affinité commune pour les particules fines, le césium et le plutonium ne réagissent pas de la même façon avec ces particules. De ce fait, d'autres facteurs que la variabilité des termes sources peuvent influencer sur le rapport d'activité $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$, comme par exemple la nature et la composition des grains qui les portent et auxquels ces deux éléments peuvent réagir de façon dissemblable. Malgré cela, certains travaux ont utilisé ce rapport d'activité $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ dans le cadre du traçage des termes sources de césium et de plutonium en milieu sédimentaire fluvial et marin (Cochran *et al.*, 2000, Cornett *et al.*, 1995, Hong *et al.*, 1999, Baskaran *et al.*, 1996). Comme pour les rapports isotopiques $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ et $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$, les retombées globales des essais nucléaires en atmosphère sont caractérisées par une valeur typique du rapport d'activité $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$. Le rapport moyen des retombées du début des années 1960 était ainsi approximativement de 0,012 d'après Livingston *et al.* (1979) et Beck *et al.* (1983). A partir des travaux de ces auteurs, cette valeur a été récemment ré-estimée à 0,025 par Cochran *et al.* (2000) en tenant compte de la décroissance radioactive du ^{137}Cs . Cornett *et al.* (1995), qui ont travaillé sur le comportement et les termes sources de plutonium en eau douce dans la rivière Ottawa aux Etats Unis, avance que, bien que plusieurs études montrent une affinité plus forte du plutonium sur les particules que le césium, et qu'on le retrouve ainsi préférentiellement au césium dans les sols et les sédiments (Alberts *et Orlandini*, 1981 ; NRCC, 1983), le rapport d'activité $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ dans les eaux de la rivière Ottawa, en amont de toutes les installations nucléaires de ce cours d'eau, reste constamment égal au rapport des retombées globales. Ces auteurs affirment alors que leurs observations ne sont pas uniques, et qu'en mettant en commun leurs résultats avec ceux acquis en eaux douces lors d'autres études (Cornett *et Chant*, 1988), il existe toujours une forte corrélation entre le

$^{239+240}\text{Pu}$ et le ^{137}Cs , le rapport $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ ne différant jamais significativement de celui des retombées globales (figure A6-1).

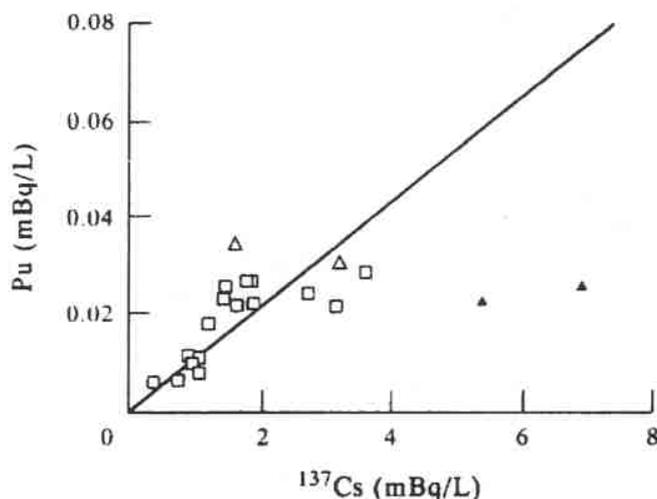


Figure A6-1. $^{239+240}\text{Pu}$ reporté en fonction du ^{137}Cs dans les eaux de la rivière Ottawa. La droite représente le rapport d'activité $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ issu des retombées globales (0,011, *Cornett et Chant, 1988*). Les carrés représentent les mesures acquises par *Cornett et Chant, 1988*. Les triangles vides et plein représentent respectivement les valeurs obtenues en amont et en aval du centre de recherche nucléaire de Chalk River par *Cornett et al., 1995* (figure publiée dans *Cornett et al., 1995*).

Utilisation du rapport $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ pour l'étude de la remobilisation sédimentaire :

L'étude du rapport d'activité $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ (RC) permet-elle de mettre en évidence la remobilisation sédimentaire dans le bief Marcoule-Arles ? S'il est possible de déterminer un RC représentatif des rejets de Marcoule, peut-on en déduire des informations sur la reprise de stocks de césium et de plutonium originaire de Marcoule lors des crues du Rhône ?

Sur la figure A6-2 sont reportés, en fonction du débit, les résultats du RC déterminés sur les matières en suspension en Arles et en amont du bief Marcoule-Arles. En amont des rejets, le RC a été compris entre 0,008 et 0,025, définissant un rapport moyen de $0,014 \pm 0,006$ ($n=11$), que l'on peut proposer comme caractéristique des apports issus du drainage des retombées radioactives sur le bassin versant rhodanien. Cette valeur est plus faible que la valeur caractéristique des retombées globales du début des années 1960 déterminée par *Cochran et al. (2000)* ($\text{RC} \approx 0,025$). Cet écart pourrait être dû à l'apport supplémentaire de ^{137}Cs lors des retombées de l'accident de Tchernobyl et/ou à des différences de spéciation de

deux éléments. Le RC issu de nos travaux est toutefois en accord avec la valeur de $0,021 \pm 0,013$ déterminée par *Baskaran et al. (1996)* dans des sédiments des rivières Ob et Yenisey (Russie), étant donné l'écart type associé à cette moyenne. L'importance de l'écart type montre par ailleurs la variabilité du rapport d'activité $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ dans les sédiments de rivière. Cependant, comme *Cornett et al. (1995)* avaient montré une forte corrélation entre les activités en $^{239+240}\text{Pu}$ et en ^{137}Cs dans la rivière Ottawa, avec des RC jamais significativement différents de celui des retombées globales, les activités particulières de ces deux radionucléides, acquises en amont du bief Marcoule-Arles et converties en activités volumiques, ont été corrélées et ont aussi montré une constance du RC autour de $\text{RC}=0,014$ (figure A6-3). Ceci tendrait donc à démontrer que malgré des modes de spéciation différents, le $^{239+240}\text{Pu}$ et le ^{137}Cs seraient animés par des comportements géochimiques globalement similaires dans l'environnement rhodanien, comme c'est apparemment le cas dans la rivière Ottawa ainsi que dans d'autres milieux d'eau douce (*Cornett et Chant, 1988*).

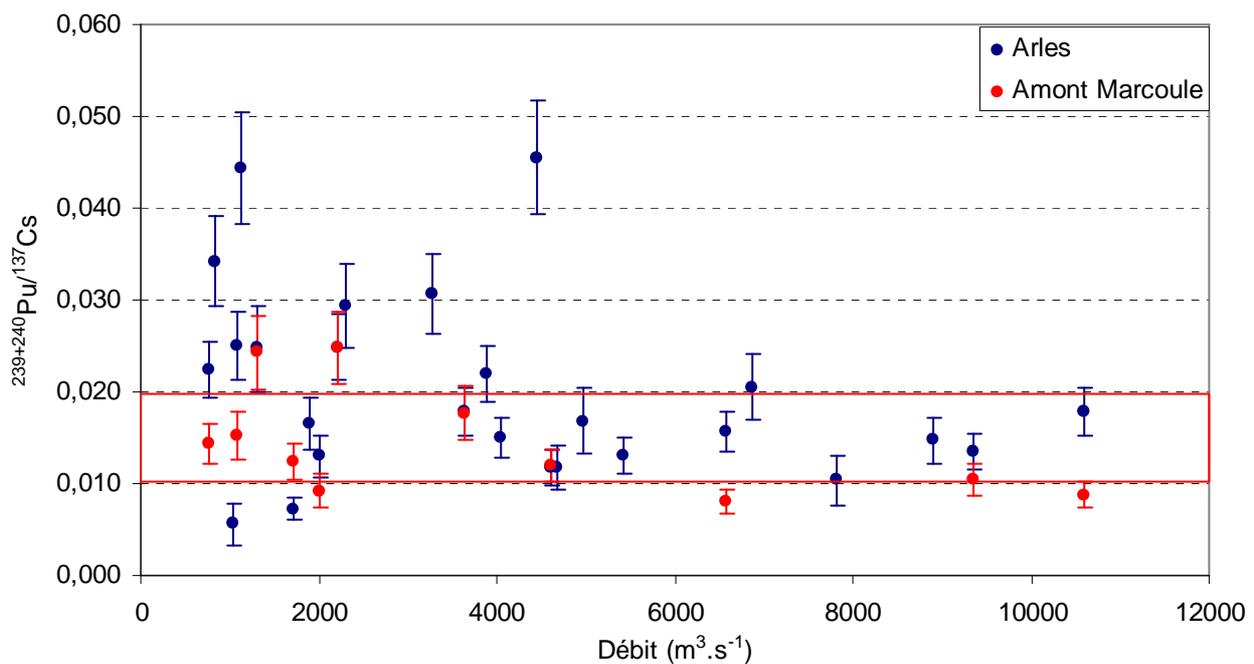


Figure A6-2. Résultats du rapport d'activité $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ reportés en fonction du débit du Rhône. Le cadre rouge représente la gamme de variation du rapport issu des retombées globales, déterminée à partir des résultats acquis en amont du bief Marcoule-Arles.

En Arles, les valeurs du RC varient de 0,006 à 0,046, correspondant à une moyenne de $0,026 \pm 0,009$ ($n=10$) hors périodes de crues. Lors des périodes de crues, le RC diminue pour

atteindre une moyenne de $0,017 \pm 0,009$ ($n=14$). Cette dernière valeur semble plus forte que celle de $0,010 \pm 0,002$ ($n=5$) obtenue en amont des rejets en périodes de crues, ce qui est peut-être représentatif du mélange des apports issus du lessivage du bassin versant avec ceux de la remobilisation de sédiments marqués par les rejets de Marcoule. Cependant, il ne s'agit que d'une tendance car la différence entre les deux valeurs n'est pas significative.

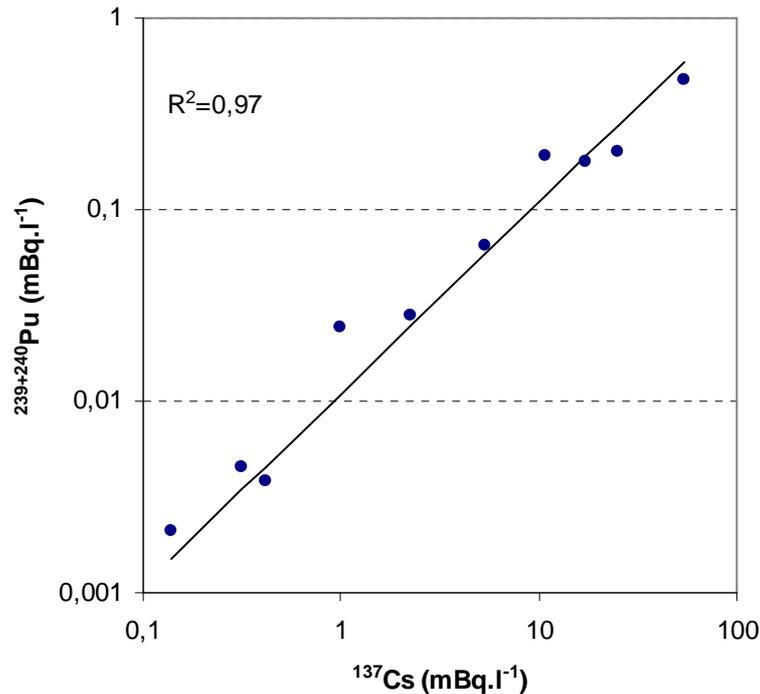


Figure A6-3. Corrélation des résultats de $^{239+240}\text{Pu}$ et de ^{137}Cs acquis en amont du bief Marcoule-Arles. La ligne en diagonale représente le rapport caractéristique des retombées globales (0,014/1).

Finalement, la différence entre le rapport d'activité $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ qui caractérise les stocks sédimentaires contaminés par le centre de Marcoule et celui des apports venant de l'amont, ne semble pas suffisamment importante pour que le RC global soit modifié de façon significative par la remobilisation sédimentaire lors des crues. Afin de vérifier cette hypothèse, il est possible d'estimer le RC moyen annuel des MES soumises aux rejets de Marcoule, à partir du calcul théorique des activités moyennes annuelles en ^{137}Cs et en $^{239+240}\text{Pu}$:

$$A = A_{\text{BV}} + [(R \times \text{FTP}) / \text{MES}] \quad (1)$$

Avec :

- A l'activité en ^{137}Cs ou en $^{239+240}\text{Pu}$ (Bq.kg^{-1}) des MES en Arles,
 - A_{BV} l'activité moyenne des MES issues du lessivage du bassin versant (ici 15 Bq.kg^{-1} pour le ^{137}Cs et $0,26 \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le $^{239+240}\text{Pu}$, déterminés de 2002 à 2004 en amont du bief Marcoule-Arles hors périodes de crues),
 - R le rejet annuel (en Bq),
 - FTP la fraction due au transport particulaire calculée avec l'équation (14) du paragraphe 3.2.1., en supposant un K_d de $7,7.10^4 \text{ l.kg}^{-1}$ pour le ^{137}Cs et un K_d de $2 \times 10^5 \text{ l.kg}^{-1}$.
- Dans cette équation, le terme CSS correspond alors au flux annuel de MES.

L'équation (1) a été appliquée pour les 25 dernières années et les résultats obtenus sont présents sur la figure A6-4. Cette figure représente l'évolution du RC $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ des MES en aval de Marcoule, MES à partir desquelles se sont formés des stocks sédimentaires durant ces quinze années. Le RC a ainsi varié de 0,003 à 0,028, définissant une valeur moyenne de $0,016 \pm 0,006$ qui n'est pas significativement différente des valeurs issues du lessivage des dépôts radioactifs sur le bassin versant.

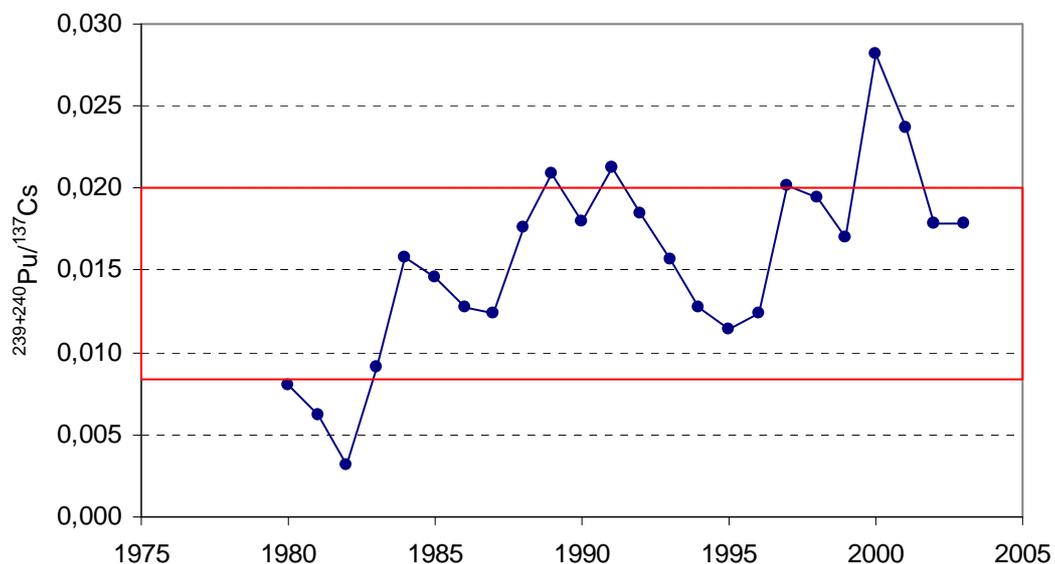


Figure A6-4. Evolution théorique du rapport d'activité $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ en aval de Marcoule depuis 1980. Le cadre rouge représente le rang de variation du rapport déterminé en amont de Marcoule dans le cadre de ce travail ($0,014 \pm 0,006$) et caractérise les apports issus des retombées sur le bassin versant.

ANNEXE A7

**Suspended sediment and ^{137}Cs fluxes during
exceptional floods.**

**Case study: The Rhone River (SE France) in
December 2003.**

Christelle Antonelli, Frédérique Eyrolle, Benoît Rolland,

Mireille Provansal, François Sabatier

Publication soumise à la revue Geomorphology

Suspended sediment and ^{137}Cs fluxes during exceptional floods.

Case study: The Rhone River (SE France) in December 2003.

Christelle Antonelli^{a*}, Frédérique Eyrolle^a, Benoît Rolland^a

Mireille Provansal^b, François Sabatier^b

^aIRSN/DEI/SESURE/LERCM – IRSN Cadarache – Bât 153 – BP 3 – 13115 Saint Paul-lès-Durance – France

^bCNRS-CEREGE – Europôle Méditerranéen de l'Arbois – BP80 – 13545 Aix-en-Provence Cedex 4 – France

* Corresponding author: IRSN/DEI/SESURE/LERCM – IRSN Cadarache – Bât 153 – BP 3 – 13115 Saint Paul-lès-Durance – France Tel: +33 4.42.25.31.67; Fax: +33 4.42.25.63.73;

E-mail addresses: christelle.antonelli@irsn.fr; frederique.eyrolle@irsn.fr; benoit.rolland@irsn.fr;

provansal@cerge.fr; sabatier@cerge.fr

Abstract

At the beginning of December 2003, one of the biggest floods for at least 150 years was recorded on the Rhone River. In the lower part of the river, the peak flood reached $11\,000\text{ m}^3\text{ s}^{-1}$. The geomorphological and radioecological consequences of such an event were investigated using measured and modelled fluxes and the total export of suspended sediment and associated artificial radionuclides. Results pointed out the major role played by large floods in the annual suspended sediment load, as 3.70×10^6 tons of silts, 0.85×10^6 tons of sands and 0.84×10^6 tons of clays were transferred towards the coastal environment. These solid loads were found to be lower than those expected and suggested that previous floods which occurred on the river and on its main tributaries during the last decade have probably led to the removal of available sediment from the channels and their banks. Besides, the ^{137}Cs

activity measured within the suspended load was estimated at $14.9 \pm 0.4 \text{ Bq kg}^{-1}$, which is a level characteristic of the suspended sediments from the Rhone catchment area and demonstrated that nuclear installations located along the Rhone valley do not significantly contribute to any increase in ^{137}Cs activity in the water during the flood. The total ^{137}Cs particulate export amounted to $77 \pm 17 \text{ GBq}$ and was mainly associated with the silt fraction which contributes to around 70% of the total ^{137}Cs export. However, results also highlight the fact that a not negligible proportion of the radioactivity is borne by the sandy fraction (9%).

Keyword: extreme flood, suspended sediment, ^{137}Cs , fluxes.

1. Introduction

The major role played by floods in annual sediment budgets is generally known and has been demonstrated in various case studies (Walling et al., 1992; Picouet et al., 2001).

In the Mediterranean area, floods are considered to be key moments for sedimentary fluxes and geomorphological evolution due to their suddenness and magnitude (Serrat et al., 2001; Pont et al., 2002).

In the last decade, 7 events superior to 50-year floods have been recorded on the Rhone River. The rising the frequency of these previously rare events has led the French authorities to take an overall look at the problem from the hydrological, geomorphological, ecological and economic point of view (IRS, 2000). However, the chemical impact was not studied in this case, even though it can play an important role in the ecological behaviour of the system and in the safety of agricultural land and human health. Moreover, soil erosion in the Rhone catchment area delivers artificial radionuclides resulting from the global atmospheric fallout from past nuclear tests and from the Chernobyl accident. In addition, since the sixties, low

level radioactive liquid effluents have been released by various nuclear installations located along the Rhone valley. All these radionuclide sources have led to permanent contamination of the Rhone's aquatic system.

Several authors have reported on the concentrations of artificial radionuclides in the waters of the Rhone over the last decades (Thomas, 1996; Charmasson, 1998; Eyrolle and Charmasson, 2001). Some of them have proposed an annual radionuclides budget by taking into account the variability in the flow discharge over time and using averaged or modelled values (Thomas, 1996; Eyrolle et al., 2004). Nevertheless, none of them reported data acquired during flood events and focussed on the contribution of such events on radionuclide fluxes for two main reasons: firstly, the difficulty of sampling during floods and secondly the absence of industrial radionuclide releases over $4\,000\text{ m}^3\text{s}^{-1}$. Eyrolle and Rolland (2004) have recently underlined the importance of flood events in radionuclides fluxes particularly for high particle reactive radionuclides such as ^{137}Cs ; it is thus valid to study radioactivity fluxes during the floods.

At the beginning of December 2003, the largest flood since the previous peaks of 1840 and 1856 were recorded on the Rhone River. At the Beaucaire gauging station, the peak flood reached $11\,000\text{ m}^3\text{ s}^{-1}$ (75-years return); moreover breaches appeared in dykes and led to the flooding of 500 km^2 around the lower reaches of the river. This exceptional flood event was monitored by taking measurements both of suspended sediments and flood plain deposits. This study aims to quantify and qualify the suspended sediment load exported during such an exceptional flood event. Finally, solid fluxes and associated artificial radionuclides transferred towards the marine environment are assessed and discussed.

2. Studied area and hydrological settings

The Rhone River is the most significant source of freshwater and sediment flowing into the Mediterranean Sea: its mean annual discharge is about $1\,700\text{ m}^3\text{ s}^{-1}$ at the Beaucaire gauging station while the annual suspended load ranges from 2 to 26 Mt yr^{-1} (Pont et al., 2002; Antonelli, 2002). The river is characterised by a major annual and inter-annual variability of the liquid flow due to the heterogeneity of the rainfall, which affect its large catchment area ($97\,800\text{ km}^2$).

This variability leads to 4 flood types (Pardé, 1925; Figure 1):

- Oceanic floods are characterised by low rising limb and moderate sediment concentrations largely influenced by the Saône River (the most important tributary of the Rhone River). These floods mainly occur in the winter.
- Cevenol floods (tributaries from the western side of the river: the Ardèche, the Gard, the Cèze, the Eyrieux) generate the most violent floods, with high liquid and solid fluxes (flash-flood type). They occur in the autumn and the spring.
- Mediterranean floods result from rains affecting both cevenol and sub-alpine tributaries (previous ones plus the Durance, the Ouvèze and, to a lesser extent, the Drôme). They are less rapid than the Cevenol floods but can also lead to high discharges in the lower reaches river.
- Generalised floods occur when all the tributaries are involved in the event. They generally occur in the autumn.

3. Materials and methods

3.1. Sampling

An automatic sampler located in the town of Arles (Figure 1) was switched on on the 2nd December at 17:30, i.e. during the rising limb of the flood. Water samples were collected at the water-surface and at 7 meters from the bank. A cross section heterogeneity of both the suspended load and particle size is generally observed in main river systems (Passega, 1957; Bravard and Petit, 1997) which consists in increasing load and coarse particles with depth. In the case of the Rhône River at the studied section Pont et al. (2002) concluded that the suspended sediment concentration (SSC) were constant at the cross section scale. Nevertheless, the data only concerned moderated flow rates ($< 4000 \text{ m}^3\text{s}^{-1}$). To our knowledge, no data are available regarding the variability of the suspended load and grain size over the whole studied cross section for higher flows. In this paper we thus consider that the sampling point is representative of the section.

500 ml was sampled every hour until the 5th December. As the liquid and solid discharges decreased, it has been decided to realise “time-integrated” samples, in the same location. These last samples were carried out at 2 hour-intervals (125 ml every 30 minutes) until the end of the event (7th December). This high sampling frequency limits the margin of error on the suspended sediment fluxes as mentioned by Coynel et al. (2004). Some samples could not be taken over the 5th and 6th December due to a power supply failure. Samples were stored at 4°C until their treatment. In addition one large water volume sample was collected each day over the flood period and simultaneously filtered (0.45µm nominal porosity) in order to attempt the sufficient mass of suspended sediment necessary to gamma spectrometry analyses (0.02 kg of dry matter). In addition, 25 floodplain deposits were sampled just upstream of

Arles, a few days after the water had receded. Particular attention was paid to the under layer in order to avoid mixing up sediments with older deposits.

3.2. Analyses

The measurement of the SSC was carried out as per the AFNOR NF (French standard) T 90-105-2 procedure which consists in measurement of the volume sampled, centrifugation of the sample during 20 minutes and drying at 40°C in a pre-weighed cup. The SSC is then obtained by calculating the dry matter obtained in the precise volume. The uncertainty for SSC measured in this study is estimated at 0,7% in average. For the flood deposits, grain-size analyses were carried out as per the AFNOR NFX 311017 standard (pipette method). For suspended sediments, grain-size analyses were carried out by laser granulometry (Coulter™ LS230) due to the low mass of sediment samples available. Dried samples were put into solution with distilled water and mechanically stirred for at least 2 hours to obtain a correct homogenisation of the solution. Three sub-samples taken from the same sample were passed through the laser granulometer. Sediment textures were calculated by taking an average of the results obtained on each sub-sample. Suspended sediments sampled after the 6th December were not analysed because they did not contain sufficient material for laser granulometry analysis. γ ray emitters were analysed both on suspended sediment collected through filtering and on flood-plain deposits by direct gamma spectrometry with Germanium HP detectors (Bouisset and Calmet, 1997).

3.3. Correction and calculation of SSC values

Three anomalous SSC were measured near the flood peak and are probably linked either to segregation of the suspended sediment due to the high water velocities or to vegetation fragments that prevent the automatic sampler operating correctly. Consequently, these values were ignored and replaced by calculated values for the analysis. The best mathematical fit to establish a relationship between discharge and SSC is generally obtained by a power function ($SSC = aQ^b$), which is frequently applied in fluvial studies (Bravard and Petit, 1997; Restrepo and Kjerfve, 2000; Pont et al., 2002). In our case, the relationships obtained either for the rising or falling limbs of the flood are shown in Figure 2a. Specific fittings focussed on the flood peak in order to have the best estimation of the missing values during unsteady flows (figure 2b). These relationships were used to calculate the missing SSC values at the beginning of the flood and during its peak.

3.4. Calculation of artificial radioactive fluxes

Floodplain deposits collected upstream of Arles offer a wide range of sediment texture as they were sampled over a large area, allowing natural segregation of particles. ^{137}Cs was the only artificial radionuclide systematically detected (Eyrolle et al., 2005). The Figure 3 shows positive relationships with clay and silt contents ($p < 0.05$ for both) while a negative relationship is observed for the sands ($p < 0.05$). Indeed, in the environment, ^{137}Cs tends more often to fix on fine clay-like particles and more generally on fine grain sediments (Abril and Fraga, 1996; Borovec, 2000), like many trace contaminants. It is thus consistent that higher ^{137}Cs specific activity should be found within the finer deposits. On the basis of the

relationships shown in Figure 3 we estimated the ^{137}Cs content and associated uncertainties for samples composed with 100 % of sand, silt or clay to attempt ^{137}Cs specific activities.

In addition, the specific hourly fluxes of ^{137}Cs associated with sand, silt and clay fractions (F_{sa} , F_{si} , F_c , in Bq h^{-1}) as well as the total hourly fluxes (F_T , in Bq h^{-1}) were obtained. The specific activity was also determined (A , in Bq kg^{-1}). Finally, the specific ^{137}Cs export (E_{sa} , E_{si} , E_c , in GBq) over the flood was calculated as well as the total particulate ^{137}Cs export (E_T in GBq). F_{sa} , F_{si} , F_c , F_T , A , E_{sa} , E_{si} , E_c and E_T were assessed by the following relations:

$$F_{sa} = (A_{sa} \times \text{HSF}_{sa}) ; F_{si} = (A_{si} \times \text{HSF}_{si}) \text{ and } F_{cl} = (A_{cl} \times \text{HSF}_{cl}) \text{ in } \text{Bq kg h}^{-1}$$

A_{sa} , A_{si} , A_{cl} are the specific activities measured respectively on sands, silts and clays and HSF is the hourly solid flux of each sedimentary fraction calculated by using the hourly SSC and the corresponding grain-size texture.

$$F_T = F_{sa} + F_{si} + F_{cl} \text{ in } \text{Bq h}^{-1}$$

$$E_{sa} = \sum_{i=1}^n F_{sa_i} ; E_{si} = \sum_{i=1}^n F_{si_i} \text{ and } E_{cl} = \sum_{i=1}^n F_{cl_i} \text{ in } \text{GBq}$$

$$E_T = \sum_{i=1}^n F_{T_i} \text{ in } \text{GBq}$$

4. Results

4.1. Discharge and suspended sediment concentrations

The event studied could be considered as a Mediterranean flood as floods of various magnitudes were recorded on all the tributaries downstream of Lyon. Table 1 highlights the major role played by the “cevenol” tributaries (the Eyrieux, the Ardèche, the Gard and the Cèze), which provided 31% of the total liquid flow during this event.

From the 1st December onwards, the discharge rose rapidly at the Beaucaire gauging station, as demonstrated by the rising gradient, showing the discharge rising hour after hour. On the 3rd December at 03:00 GMT, the river discharge reached its highest measured value at the Beaucaire gauging station with a liquid flow estimated at around 11 000 m³s⁻¹ according to the Compagnie Nationale du Rhone (Figure 4). This discharge was unusual both in its magnitude and its duration due to the succession of flood peaks on the different tributaries, as demonstrated by the rising gradient which then remained stable after its peak in the earlier part of the flood.

The SSC increased rapidly with discharge, from $77 \pm 0.3 \text{ mg l}^{-1}$ to $3\,689 \pm 0.05 \text{ mg l}^{-1}$ (Figure 5). These SSC are in the same range as the values reported for previous high floods (Sogreah, 1999; Pont et al., 2002). The SSC peak occurred 11 hours before the flow peak. This time-lag is probably linked to the origin of the sediments and of the water: as described above, the discharge increased under the impulse of the western tributaries which are usually the most highly loaded with suspended sediment (Pont et al., 2002), whereas the liquid flow increased continuously with the supply from the Saône and the Isère (time-lag for the water mass transfer) and with a second peak flow on the Gard and the Durance tributaries on the 3rd December. The SSC present a clockwise loop during this event (rising limb more loaded than

the falling limb, figure 2), typical of the earlier participation of the southern tributaries. If we consider the whole survey period, from 1st December to 7th December, we estimate that the Rhone River transported 5.4×10^6 tons of suspended sediment.

4.2. Sediment texture

The clay fraction ranges from 11 to 21% and does not show any particular trend during the flood (Figure 6). This stability is not in accordance with the results put forward by Pont (1997), who observed an increase in the finer fraction (clays) during the Rhone floods of 1993 and 1994 (50 to 100-years floods). This observation is probably linked to significant differences in the hydrology and origin of the various floods.

The silt fraction, which represents the main fraction, decreases during the rising limb of the flood and then increases. As expected, the sand fraction follows an opposite trend regarding the constancy of the clay fraction. The missing data during the flood peak were calculated using the relationships between the amount of each fraction and the SSC (Figure 7). The clay fraction does not vary with SSC, but the sands increase from 2% to 29% as the SSC ranges from 80 to 3 689 mg l⁻¹. The silt fraction exhibits a quasi-inverse behaviour. The increase in coarser sediments during the rising flood could originate from the remobilisation of sediments from the river banks or bed. Similar observations after major floods have been reported (Ciszewski, 2001; Davide et al., 2003). Indeed, at Arles, the bed-material is composed of Pleistocene alluvium which could deliver a large amount of sands and the river-banks are sands composed as the results of previous deposits from Mediterranean floods.

4.5. Artificial radionuclide fluxes

The specific activities calculated for each sedimentary fraction using the methodology presented above are shown in table 2 as well as the specific fluxes and specific export estimates.

The ^{137}Cs specific activities calculated during the event range from $15.9 \pm 3.4 \text{ Bq kg}^{-1}$ to $13.7 \pm 3.3 \text{ Bq kg}^{-1}$ (Figure 8), with an average value of about $15.2 \pm 3.4 \text{ Bq kg}^{-1}$. Our results exhibit no significant trend in activity levels over the flood. This range of values are consistent with ^{137}Cs activities measured in the suspended sediments collected by water filtering that present an averaged value of $15 \pm 3 \text{ Bq kg}^{-1}$. This highlights that flood plain deposits can be used as a surrogate for suspended sediment samples in the frame of extreme event monitoring.

The total ^{137}Cs particulate export is evaluated at $77 \pm 17 \text{ GBq}$, which is consistent with the results reported by Rolland et al. (2005) based on monitoring gamma emitters associated with suspended sediments over the 2002-2003 period. Specific ^{137}Cs export is $16 \pm 2 \text{ GBq}$ with clays, $54 \pm 13 \text{ GBq}$ with silts and $7 \pm 2 \text{ GBq}$ with sands. This underlines the importance of silts in the global export of ^{137}Cs as this fraction may export 70 % of the total particulate ^{137}Cs (Figure 9).

5. Discussion

5.1 The significance of the exceptional flood of December 2003 in the long term

This extreme flood follows two other major events, which occurred during the two previous years: in September and November 2002, discharges reached 9034 and 10 000 m³ s⁻¹ (respectively 40 and 50-years return). In the context of global climate change, several models have predicted an increase in high magnitude events in the Mediterranean area (Otlé et al., 2001). This could be confirmed by this succession of flood events. However, Starkel (2002) demonstrated that, on several European rivers during the Holocene, floods were often clustered during a decade. However, this exceptional event did not contribute to an increase in the mean annual water flow of the year 2003; this reached 1387 m³ s⁻¹, whereas the mean annual discharge measured at the Arles gauging station during the last 30 years is 1500 m³ s⁻¹.

5.2. Consequences on the solid fluxes

The amount of suspended sediment transported by the Rhone River between the 1st December and 7th December, 5.4x10⁶ tons, is in accordance with the previous reported data. Indeed Pont (1997) reported that 10.7x10⁶ tons were exported during the flood of October 1993 (flood peak at 9800 m³s⁻¹) and that the flood of January 1994 (11 000 m³s⁻¹) exported 6.3x10⁶ tons. Recently, Eyrolle and Rolland (2004) calculated an export of 0.6x10⁶ tons for the September 2002 flood (10 500 m³s⁻¹) and 7.2x10⁶ tons during the November 2002 flood (9800 m³s⁻¹). Given the magnitude and the origin of this flood event, a higher solid supply might have been expected. Besides, Arnaud-Fassetta (1998) demonstrated that the effect of previous floods play an significant role in the sediment delivery of each event: the December

2003 flood occurred after a long period of low to moderate flows, consistent with a higher sediment load than those calculated in this study (Figure 10). However, the catchment area recorded intense rains in November 2003 which have saturated soils in waters and could have eroded a part of the available sediment on the soils that were transported by low to moderate flows ($Q < 4000 \text{ m}^3\text{s}^{-1}$). They could also reflect a lack of sediment available either in the river bed or its banks as a consequence of the previous major events of 1993 and 1994. Moreover, some of the tributaries also recorded large floods during the last decade (the Ardèche River in 1992; the Gard River in 2002). These previous transfers of sediment through the river may have led the system to a dynamic steady-state over this period of time.

Rolland et al. (2005) estimate that this event contributed to 83% of the solid load exported by the Rhone River in 2003. As previously demonstrated, this highlights the fact that flood events play a major role in the solid transport to the sea (see Meybeck et al., 2003). Our results also suggest that 3.70×10^6 tons of silts (68 %), 0.85×10^6 tons of sands (16 %) and 0.84×10^6 tons of clays (16 %) were transferred towards the coastal environment. Antonelli (2002) summarized a lot of studies devoted to the Rhone River to put forward an estimate of the mean annual sandy load ranging from 0.3 to 1.2×10^6 tons over the last 10 years, with exceptional values of 4.8×10^6 and 3.1×10^6 tons for 1993 and 1994 respectively.

On the basis that 83% of the annual solid load was exported during the flood and considering that sands are exported in the same ratio, the annual sandy load is estimated at about 1.0×10^6 tons for 2003. However, as coarser materials are mainly transferred during flood events, this estimate could be considered as an upper limit. This value is far lower than the exceptional sandy load of 1993 and 1994. It reinforces the previous hypothesis of a less loaded flood (hydrologic and sedimentary origins) and/or that a significant proportion of the previous sediment is not yet available for suspended transit in the river. However, Antonelli (2002) presumed that 20% of sands could be transported within the bed load during high floods. As

bed material is entirely composed of sands in the lower reaches of the river (Arnaud-Fassetta et al., 2003; Georges and Antonelli, 2003), about 1.1×10^6 tons of sands possibly could have been exported as bed load during this event.

Indeed, even though the river mouth is located 50 km downstream of our investigation point, the channel morphology (wide and straight) downstream of Arles favours sediment export to the coast (Antonelli et al., 2004). Sabatier et al., (2003) estimated that 6.42×10^6 tons per year of sediment were accumulated at the Rhone River mouth between 1895 and 1988 on the basis of the comparison of bathymetric records between 0 and -20 m. On the basis that this accumulation on the prodelta is composed of about 30 to 40% sands (Charmasson, 1998), we estimate that the mean sandy load during the last century, characterised by the decrease of the solid and liquid flow, is between 1.9 and 2.5×10^6 tons per year. The sandy load exported during the flood of December 2003 is slightly lower than the estimated average in the long term and also underlines the significance of the events of high energy but low frequency in the supply for the littoral of the Rhone delta. Paradoxically, sands still arrive at the coast today in spite of widespread erosion of the beaches (Sabatier and Suanez, 2003).

5.3. Impact of the flood on the environmental radioactivity

The average ^{137}Cs specific activity ($14.9 \pm 0.4 \text{ Bq kg}^{-1}$) is of the same order of magnitude as the values characterizing the solid particles issued the soils of the Rhone catchment area (Thomas, 1996 and Rolland et al., 2005). This observation may imply that nuclear installations located along the Rhone valley do not significantly contribute to any increase in ^{137}Cs activities within the suspended sediments. These results may allow further exploration of the origin and contributions of the ^{137}Cs sources at the Rhone basin scale. Indeed, Ansari et al. (2000) and Ciszewski (2001), looking at heavy metal concentrations

within aquatic systems, concluded that the removal of sediments from formerly polluted areas may play a key role in the contamination of waters during floods. Davide et al. (2003) also demonstrated that during floods, soil erosion plays an important role in the observed heavy metal concentrations in the waters of the Po River. Further analyses could be carried out in order to determine whether similar phenomena are possible on the Rhone River for higher SSC in the waters.

The sandy sediments only contribute to 9 % of the ^{137}Cs particulate export due to both their low exchange capacities for trace elements and their low proportion of the suspended load they represent. Nevertheless, we are aware that the suspended load is not the only transfer pathway for coarse particles. Indeed, as previously mentioned, an important part of the sand export towards the sea is achieved within the bed load. This could lead to a significant underestimation of ^{137}Cs particulate fluxes to the sea and consequently to the beaches. Considering the previous data of 1.1×10^6 tons and the fact that ^{137}Cs activity associated with sands is similar within the suspended and the bed load, an estimated revaluation of ^{137}Cs fluxes can be made. Thus, during the exceptional flood event of December 2003, almost 9 ± 2 GBq of additional ^{137}Cs would have been transferred to the marine environment. Sands are generally neglected in the context of contaminant transfer as they are low reactive particles. Nevertheless due to the high proportions of sands encountered in many aquatic systems this solid load may be responsible for a significant export of trace elements as demonstrated in the case of ^{137}Cs in this study.

6. Conclusions

At the beginning of December 2003, one of the biggest floods for 150 years was recorded on the Rhone River. Analyses carried out both on suspended sediments and flood plain deposits showed that 3.70×10^6 tons of silts, 0.85×10^6 tons of sands and 0.84×10^6 tons of clays were transferred toward the coastal environment. Thus 5.4×10^6 tons of suspended sediment was exported. This result highlighted the significance of large floods in the annual solid export. These values are of the same order of magnitude as the ones previously reported despite of the high discharge recorded. This difference illustrates the fact that the relationship between liquid and solid flows is not a straightforward one, as the latter are dependent on the condition of the active source area for each flood (lithology, soil condition, records of previous floods) Floodplain deposits were shown to be a useful tool to assess the trace level of contamination in water. ^{137}Cs activity within the suspended load calculated from floodplain deposits analyses did not vary significantly during the event and range around $14.9 \pm 0.4 \text{ Bq kg}^{-1}$. These levels are characteristic of the suspended sediments from the Rhone catchment area.

The total ^{137}Cs particulate export was estimated at $77 \pm 17 \text{ GBq}$; the silt fraction contributing 70 % of the global particulate export.

This study may provide key data in the context of radioecological surveys, bioavailability assessment and coastal management.

Acknowledgments

Authors are grateful to the Compagnie Nationale du Rhone who provided the hydrological data. They also wish to thank Jacques Marquet, Gilles Salaün and Vincent Boullier for their excellent assistance during field data sampling and laboratory work. This study was partly

supported by the national and European programs ORME, PNEC and EUROSTRATRAFORM (number EVK3-CT-2002-00079).

References

- Abril JM, Fraga E., 1996. Some physical and chemical features of the variability of Kd distribution coefficient for radionuclides. *J. Environ. Radio.*, 30-3, 253-270.
- Ansari AA, Singh IB, Tobschall HJ., 2000. Importance of geomorphology and sedimentation processes for metal dispersion in sediment and soils of the Ganga Plain: identification of geochemical domains. *Chem. Geol.* 162, 245-266.
- Antonelli C., 2002. Flux sédimentaires et morphogenèse récente dans le chenal du Rhône aval. Ph.D. thesis, University of Aix-Marseille I., France, 272 pp.
- Antonelli C, Provansal M, Vella C., 2004. Recent morphological changes of a channel in a deltaic environment. The case of the Rhône River, France. *Geomorphology*, 57, 385-402.
- Arnaud-Fassetta G., 1998. Dynamiques fluviales holocènes dans le delta du Rhône. Ph.D. thesis, University of Aix-Marseille I., France, 329 pp.
- Arnaud-Fassetta G, Quisserne D, Antonelli C., 2003. Downstream grain-size distribution of superficial bed material and its hydro-geomorphological significance in a large and regulated river: the Rhône River in its delta area (France). *Géomorphologie*, 1, 33-50.
- Borovec Z., 2000. Element in size-fractionated bottom sediment of the Elbe River in its Czech part. *Aquat. Sci.* 62, 232-251.
- Bouisset P, Calmet D., 1997. Hyper Pure Gamma-Ray Spectrometry applied to low-level environmental sample measurements. International workshop on the status of measurement techniques for the identification of nuclear signatures, Geel, Belgium,.

- Bravard JP, Petit F., 1997. Les cours d'eau. Dynamique du système fluvial. Armand Colin/Masson, Paris.
- Charmasson S., 1998. Cycle du combustible nucléaire et milieu marin - Devenir des effluents rhodaniens en Méditerranée et des déchets immergés en Atlantique Nord-Est. Ph. D. thesis, University of Aix-Marseille II, 359 pp.
- Ciszewski D., 2001. Flood-related changes in heavy metal concentrations within sediments of the Biala Przemsza River. *Geomorphology*, 40, 205-218.
- Coyne A, Schäfer J, Hurtez JE, Dumas J, Etcheber H, Blanc G., 2004. Sampling frequency and accuracy of SPM flux estimates in two contrasted drainage basin. *Sci. Total Environ.* 330, 233-247.
- Davide V, Pardos M, Diserens J, Ugazio G, Thomas R, Dominik J., 2003. Characterisation of bed sediments and suspension of the river Po (Italy) during normal and high flow conditions. *Water Res.* 37, 2847-2864.
- Eyrolle F, Charmasson S, Louvat D., 2004. Plutonium isotopes in the lower reaches of the River Rhône the period 1945-2000: fluxes towards the Mediterranean Sea and sedimentary inventories. *J. Environ. Radioactiv.* 74, 127-138.
- Eyrolle F, Charmasson S., 2001. Distribution of organic carbon, selected stable elements and artificial radionuclides among dissolved, colloidal and particulate phases in the Rhône River (France): Preliminary results. *J. Environ. Radioactiv.* 55, 145-155.
- Eyrolle F., Rolland B, 2004. Radioactivité artificielle dans les eaux du Rhône aval. Conséquences des crues sur les niveaux d'activité des eaux et sur les flux à la mer. Bilan 2000 – 2003. Report IRSN/DEI/SESURE 2004-16, 21pp.
- Eyrolle F, Duffa C, Antonelli C, Rolland B, Leprieur F., (in press). Radiological consequences of the extreme flooding at the lower course of the Rhône valley (December 2003, South east France). *Sci. Total Environ.*

- Georges K, Antonelli C., 2003. Characterisation of the Rhône River bed-material by SEM analysis and evaluation of flood impact on bedload. 3rd IAHR Symposium on River Coastal Estuarine Morphodynamics, Barcelona, Spain, 187-196.
- IRS., 2000. Etude globale pour une stratégie de réduction des risques dus aux crues du Rhône. Etude du transport solide, 1ère étape, rapport de synthèse. Institution interdépartementale des bassins Rhône-Saône, Valence, France. 469 pp.
- Meybeck M, Laroche L, Dürr HH, Syvitski JPM. 2003. Global variability of daily total suspended solids and their fluxes in rivers. *Global Planet Change*, 39, 65-93.
- Ottlé C, Etchevers P, Golaz C, Habets E, Noiihan J, Martin E, Ledoux E, Leblois E, Sauquet E, Amraoui N, Artinian E, Champeaux JL, Guérin C, Lacarrère P, Le Moigne P, Saulnier M, Thiéry D, Vidal-Madjar D, Voirin S., 2001. Hydro-meteorological modelling of the Rhône Basin : general presentation and objectives. *Phys. Chem. Earth (B)* 26, 5-6, 443-453.
- Pardé M., 1925. Le régime du Rhône. Etude hydrologique. Thesis, University of Grenoble, France, 887 pp.
- Passega R., 1957. Texture as characteristic of clastic deposition. *Bulletin of the American Association of Petroleum Geologists*, 41-9, 1952-1984.
- Picouet C, Hingray B, Olivry JC., 2001. Empirical and conceptual modelling of the suspended sediment dynamics in a large tropical African river: the Upper Niger river basin. *J. Hydrol.* 250, 19-39.
- Pont D., 1997. Les débits solides du Rhône à proximité de son embouchure : données récentes (1994-1995). *Revue de Géographie de Lyon*, 72-1, 23-43.
- Pont D, Simonnet JP, Walter AV., 2002. Medium-term changes in suspended sediment delivery to the ocean: consequences of catchment heterogeneity and river management (Rhône River, France). *Estuar. Coast. Shelf. S.* 54, 1-18.

- Restrepo JD, Kjerfve B., 2000. Magdalena river: interannual variability (1975–1995) and revised water discharge and sediment load estimates. *J. Hydrol.*, 235, 137-149.
- Rolland B., Antonelli C., Eyrolle F., Arnaud M., Charmasson S., Masson O., Morello M., Bouisset P., 2005. Solid fluxes and associated ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239};^{240}\text{Pu}$, ^7Be and ^{210}Pb s from the Rhône river towards the Mediterranean Sea over the 2002-2004 period. “EUROSTRATAFORM - PROMESS Joint Meeting”, 24-27 October 2005 Salamanca, Spain.
- Sabatier F, Suanez S., 2003. Evolution of the Rhône delta coast since the end of the 19th century. *Géomorphologie : relief, processus, environnement*, 4, 283-300.
- Sabatier F, Antonelli C, Maillet G, Fleury TJ., 2003. River-shoreface-shelf sediment budget of a deltaic system. The case of the Rhone delta during the 20th century (France). *International Hydraulics Association Research, 3rd Symposium on River, Coastal and Estuarine Morphodynamics*, Barcelona, Spain, 913-923.
- Serrat P, Ludwig W, Navarro B, Blazi JL., 2001. Variabilité spatio-temporelle des flux de matières en suspension d’un fleuve côtier méditerranéen : la Têt (France). *CR Acad Sci II A*, 389-397.
- Sogreah., 1999. Aqueduc du Rhône à Barcelone, investigations supplémentaires. RMC8, Impacts sur les sédiments du Rhône. Report 55 0470/JLR/R3 VA, 82 p.
- Starkel L., 2002. Clustering of flood event in the context of increasing human activity. In: Thorndycraft V.R., Benito G., Barriendos M., Llasat C. (Eds), *Int. Workshop on Palaeofloods, Historical Data and Climatic Variability: Application in Flood Risk Assessment*, Barcelona, Spain, 79-84.
- Thomas AJ., 1996. Input of artificial radionuclides to the Gulf of Lions and tracing the Rhône influence in marine surface sediments. *Deep-Sea Res PT II*, 3-4, 557-595.
- Walling DD, Webb DW, Woodward JC., 1992. Some sampling considerations in the design of effective strategies for monitoring sediment-associated transport. *IAHS Publ.*, 210, 279-288.

Figure caption

Figure 1: Catchment area of the Rhone River and sampling point location

Figure 2: Relationships between SSC and discharge for the rising and falling limbs of the flood.

Figure 3: Relationships between sedimentary fraction and ^{137}Cs activity within floodplain deposits.

Figure 4: Evolution of the discharge and the rising gradient over the flood, from 1st December to 7th December 2003.

Figure 5: Evolution of the SSC measured during the flood. Note the three anomalous data during the peak flood.

Figure 6: Variation in sand, silt and clay fractions over the flood.

Figure 7: Relationships between sand, silt and clay fractions and the SSC.

Figure 8: ^{137}Cs activities calculated from 1st December 00:00 to 7th December 24:00 (A, in Bq kg^{-1}).

Figure 9: Specific fluxes of ^{137}Cs associated with sand, silt and clay fractions (F_{sa} , F_{si} , F_{cl} , in Bq h^{-1}) from 1st December 00:00 to 7th December 24:00.

Figure 10: Discharges of the Rhône River recorded at Arles gauging station over 2003 (m^3s^{-1}).

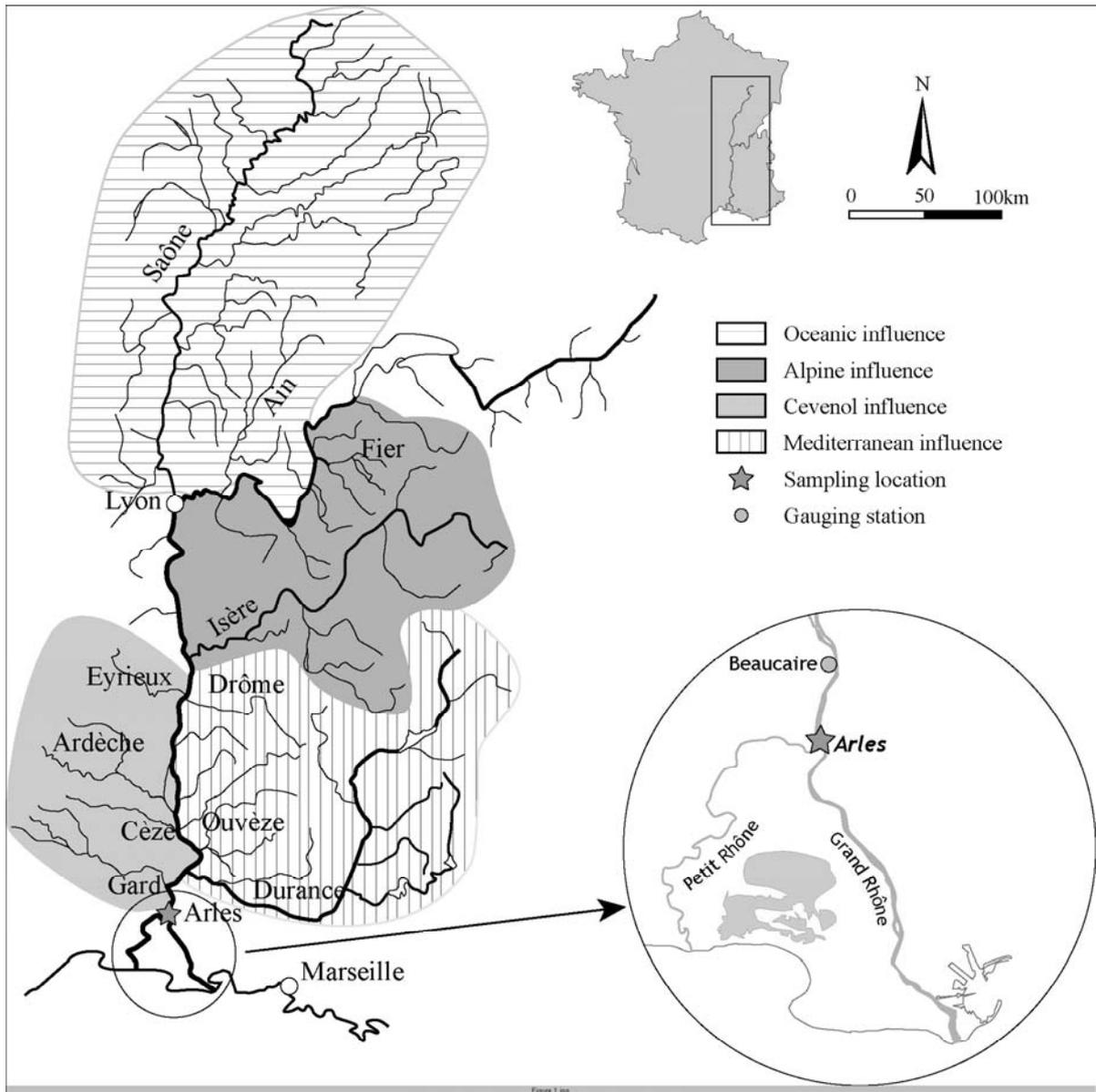


Figure 3: Catchment area of the Rhone River and sampling point location

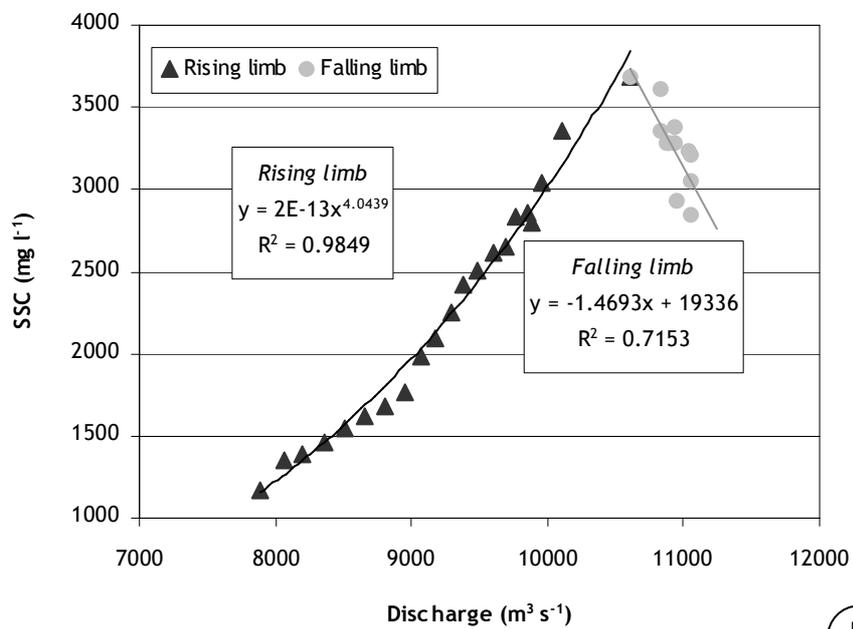
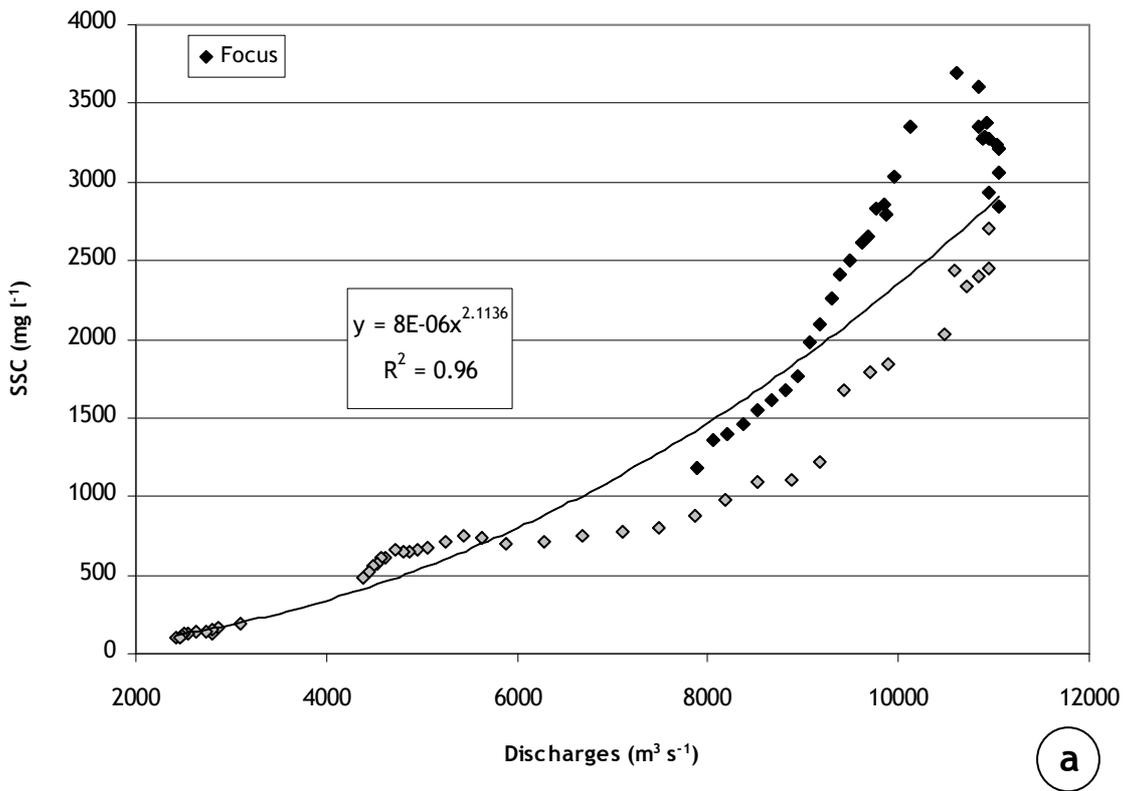


Figure 4: Relationships between SSC and discharge for the rising and falling limbs of the flood.

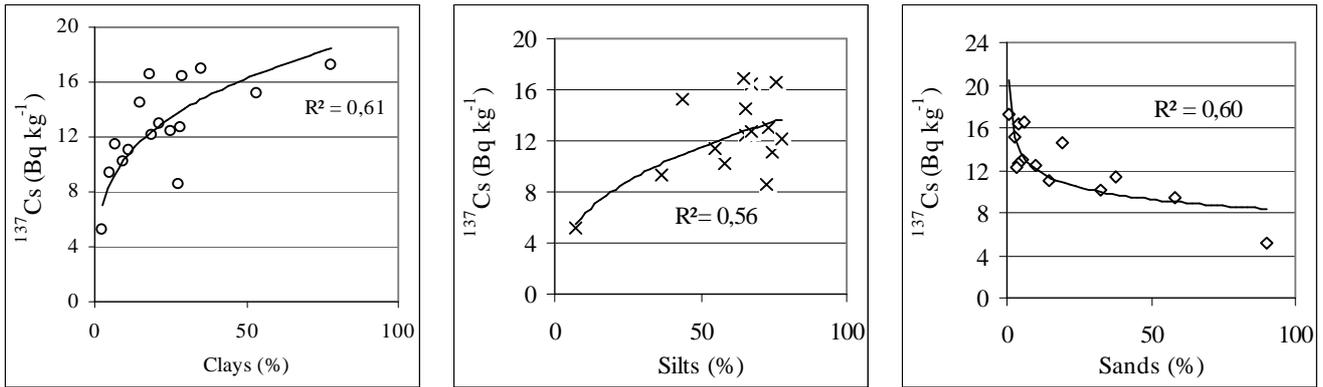


Figure 3: Relationships between sedimentary fraction and ^{137}Cs activity within floodplain deposits.

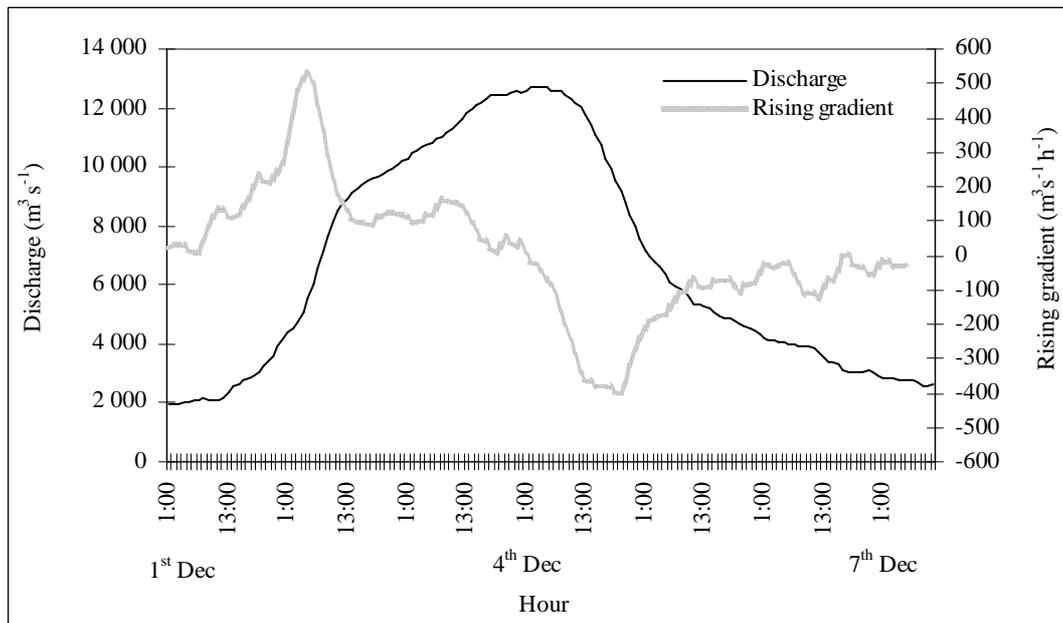


Figure 4: Evolution of the discharge and the rising gradient over the flood, from 1st December to 7th December 2003.

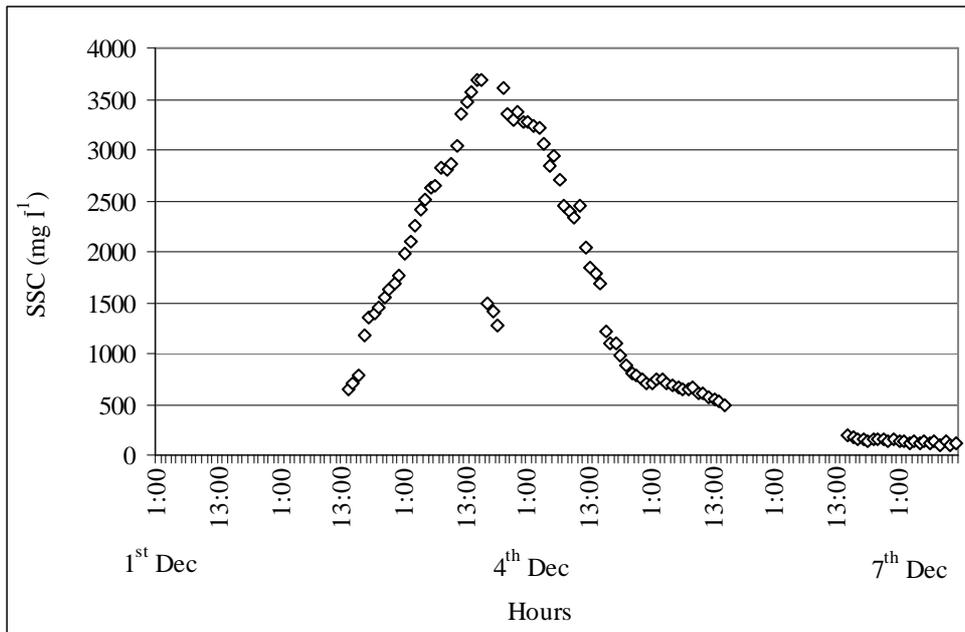


Figure 5: Evolution of the SSC measured during the flood. Note the three anomalous data during the peak flood.

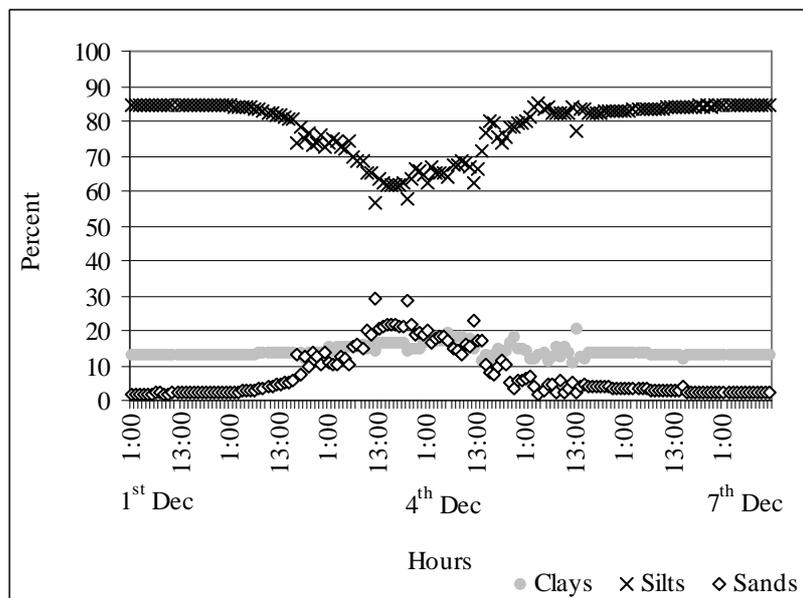


Figure 6: Variation in sand, silt and clay fractions over the flood.

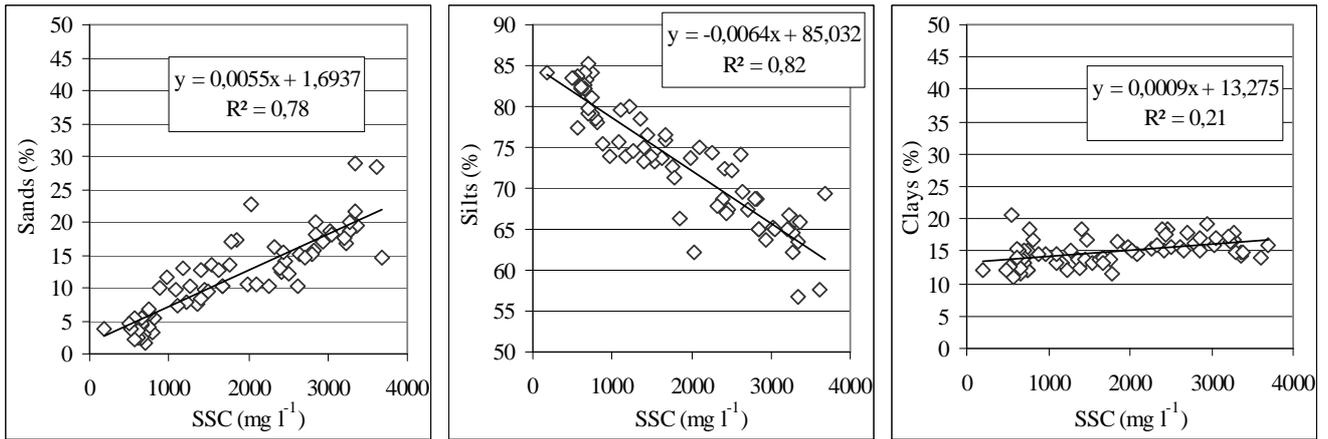


Figure 7: Relationships between sand, silt and clay fractions and the SSC.

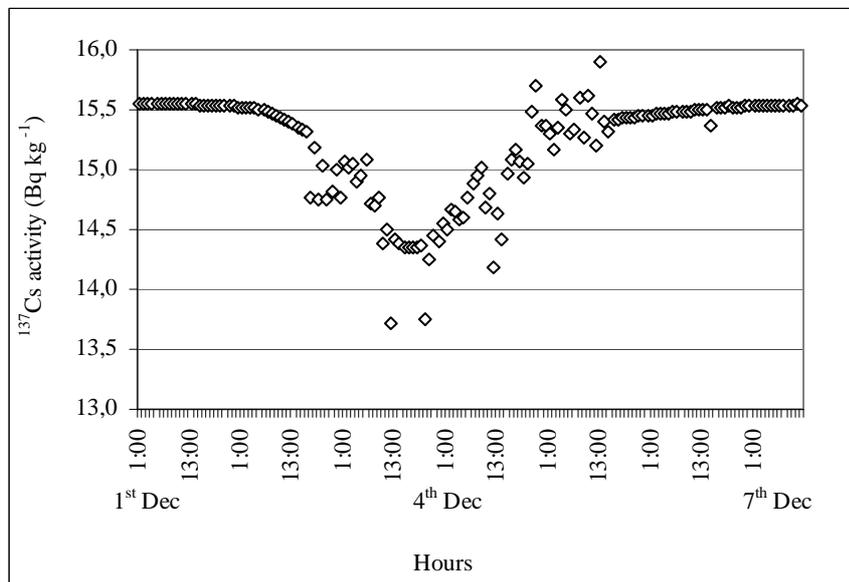


Figure 8: ^{137}Cs activities calculated from 1st December 00:00 to 7th December 24:00 (A, in Bq kg^{-1}).

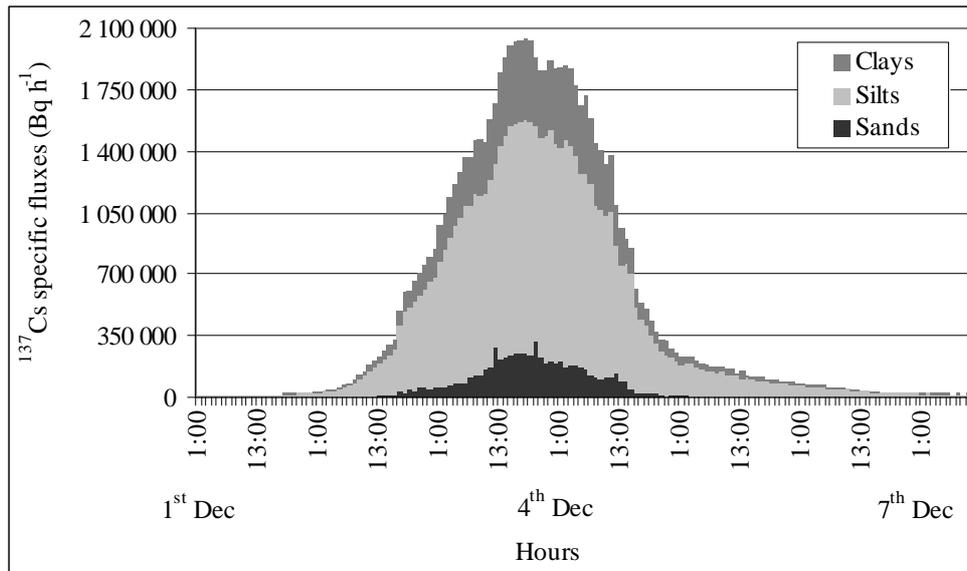


Figure 9: Specific fluxes of ^{137}Cs associated with sand, silt and clay fractions (F_{sa} , F_{si} , F_{cl} , in Bq h^{-1}) from 1st December 00:00 to 7th December 24:00.

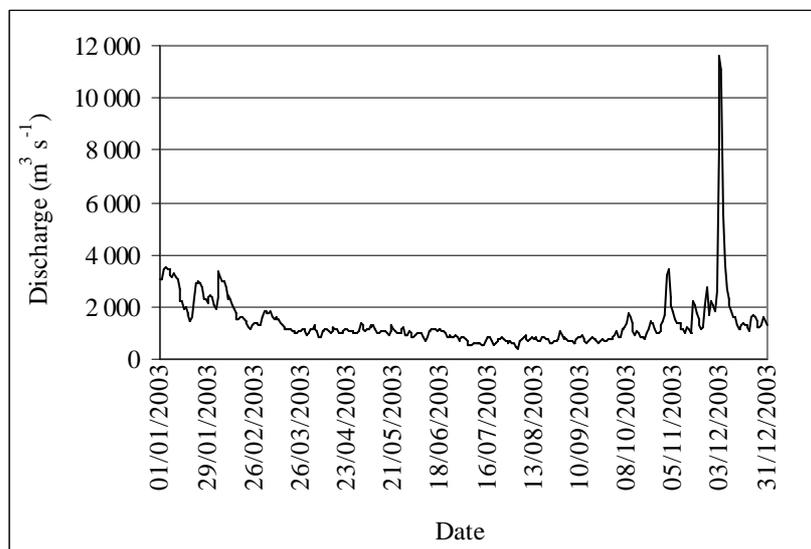


Figure 10: Discharges of the Rhône River recorded at Arles gauging station over 2003 ($\text{m}^3 \text{s}^{-1}$).

Tributary	Total 2003 (%)	December flood (%)
Saône	20,76	13,71
Isère	24,03	8,08
Fier	2,92	0,66
Ain	6,26	1,36
Drome	1,76	1,66
Eyrieux	1,18	4,56
Ardèche	5,33	18,58
Gard	1,57	7,44
Cèze	1,51	5,24
Ouvèze	2,27	4,74
Durance	3,25	7,35

Table 1: Contribution (percentage) of each tributary in the total discharge recorded at Arles gauging station.

	Sands	Silts	Clays
Modelled activity in Bq kg ⁻¹	8.1 ± 2.9	15.1 ± 3.5	20.7 ± 3.1
Specific fluxes in Bq h ⁻¹ (min-max)	93 – 322 278	7 419 – 1 328 643	9027 – 2 042 776
¹³⁷ Cs Export in GBq	7 ± 2	54 ± 13	16 ± 2

Table 2: Specific activity, fluxes and export of ¹³⁷Cs during the flood. Uncertainties correspond to one standard deviation.

ANNEXE A8

RESULTATS ACQUIS SUR LES CAROTTES

Résultats d'activité en ¹³⁷Cs, ²³⁸Pu, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, ⁶⁰Co et ²⁴¹Am déterminés sur la carotte B3. Sont aussi reportés le rapports ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu, le pourcentage de particules inférieures à 50 µm, la capacité d'échange cationique (CEC) et la teneur en matière organique totale (MOT)

Profondeur (cm)	¹³⁷ Cs (Bq.kg ⁻¹)	±	²³⁸ Pu (mBq.kg ⁻¹)	±	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu (mBq.kg ⁻¹)	±	²³⁸ Pu/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	±	⁶⁰ Co (Bq.kg ⁻¹)	±	²⁴¹ Am (Bq.kg ⁻¹)	±	%<50µm	CEC (Cmol.kg ⁻¹)	MOT (g.kg ⁻¹)
1,5	14	2	64	15	263	31	0,24	0,06	<LD		<LD		71	5,4	34,4
5,5	14	2							<LD		<LD		87,1	7,7	30,8
9,0	12	1							<LD		<LD		95,5	7,7	25,1
11,0	10	1							<LD		<LD		99,5	8,3	22,4
13,0	11	1	11	6	119	20	0,09	0,05	<LD		<LD		98,8	8,7	24,4
15,0	11	1							<LD		<LD		98,9	9,4	25,6
17,0	12	1							<LD		<LD		98,6	10,5	30,1
19,3	12	2							0,7	0,4	<LD		97,6	10,6	47,3
21,5	9	1							<LD		<LD		97,8	6,1	29,2
23,5	9	1							<LD		<LD		98,4	5	26
25,5	12	1	22	9	181	26	0,12	0,05	<LD		<LD		94,7	7,8	25,3
28,0	12	1							<LD		<LD		96,3	8,1	27,3
30,8	10	1							0,57	0,3	<LD		95,9	8,9	26
33,0	10	1							<LD		<LD		99,6	7,9	17,2
35,0	9	1	38	12	85	18	0,45	0,17	<LD		<LD		99,2	7,7	17,2
37,0	9	1							<LD		<LD		99,7	7,3	17,2
39,0	10	1							<LD		<LD		7,6	18,6	
41,0	10	1							<LD		<LD		99,9	9,1	22,5
43,0	14	2							<LD		<LD		99,3	10,7	27,7
44,8	16	2	116	16	344	29	0,34	0,05	0,51	0,3	<LD		95,3	10,2	24,8
46,3	17	2							0,7	0,3	<LD		91,8	9,8	33,2
47,5	13	1							<LD		<LD		91,8	8	23,9
49,0	13	2							<LD		<LD		7,5	21,2	
50,8	13	2							<LD		<LD		94	8,3	23
52,5	17	2							<LD		<LD		94,4	9,7	24,4
54,5	19	2	53	13	283	30	0,19	0,05	<LD		<LD		84,6	8,2	25,3
56,3	18	2							0,9	0,4	<LD		91	8,7	25,3
57,8	11	1							<LD		<LD		98,4	8,1	20,5
59,3	11	1							<LD		<LD		97	7,9	22,2
60,8	13	2							<LD		<LD		98,3	4,8	21,7
62,5	11	2							<LD		<LD		98,3	7,3	14,6
64,3	11	2							<LD		<LD		97,6	8,3	15,7
65,5	16	2	31	11	231	30	0,14	0,05	<LD		<LD		8,8	23,7	
67,3	14	2							<LD		<LD		97,6	7,7	20,3
69,5	12	1							<LD		<LD		98,4	7,7	16,7
71,5	12	1							<LD		<LD		98,9	7,5	15,5
73,5	12	2							<LD		<LD		97,9	7,4	15,7
75,3	19	2							<LD		<LD		8,2	24,1	
76,5	20	2	60	9	294	21	0,2	0,03	<LD		<LD		92,7	9,4	25,8
78,3	19	3							<LD		<LD		9,3	20,8	
80,8	21	3							<LD		<LD		96	8,6	18,9
82,8	30	3	62	10	411	26	0,15	0,03	<LD		<LD		98,8	9,2	17,9
84,3	29	4							<LD		0,49	0,2	97,9	9,2	20,1
86,3	32	3							<LD		<LD		95,7	9,7	23
88,0	28	3							<LD		<LD		11,1	22,9	
89,0	28	4							0,72	0,3	<LD		97,1	11,3	23,4
90,3	23	3	121	25	328	41	0,37	0,09	0,7	0,4	<LD		91,7	7,6	24,6
92,0	26	3							0,72	0,3	<LD		91,2	7,2	24,9
94,0	27	3							1,1	0,4	<LD		90,6	8,1	23,9
95,5	25	3							0,9	0,4	<LD		90,4	8,5	25,3
97,0	18	2							0,61	0,3	<LD		7,1	22	
98,8	17	2							<LD		<LD		98,1	5,4	23,2
100,0	17	2			205	20			<LD		<LD		98,2	6,1	23,2
101,3	40	5							2,3	4	<LD		96,2	11,4	29,4
103,0	57	6	282	26	889	48	0,32	0,03	1,8	0,5	<LD		95,7	11,3	27,5
104,8	47	5							0,9	0,4	1	0,5	96,6	7,8	24,9
106,8	42	5	189	18	722	37	0,26	0,03	0,9	0,4	0,9	0,5	97,1	7,8	26,8
109,0	71	8							1,2	0,5	1,3	0,5	10,4	27,2	
111,0	76	8	350	22	1208	44	0,29	0,02	0,9	0,4	1,7	0,5	10,6	27	
113,0	125	13	542	24	2267	57	0,24	0,01	1	0,4	3,1	0,5	97	11,3	32,7

LD: Limite de détection

Résultats d'activité en ¹³⁷ Cs et ²⁴¹ Am édtérminés sur la carotte B3'				
Profondeur (cm)	¹³⁷ Cs (Bq.kg ⁻¹)	±	²⁴¹ Am (Bq.kg ⁻¹)	±
110,5	61	6	2,0	0,8
116,0	150	14	4,2	0,9
122,0	177	17	3,6	0,8
129,5	56	6	3,0	0,5
139,0	81	8	2,6	0,5
145,0	129	12	4,4	0,9
152,0	<LD	10	3,8	0,6
159,0	42	5	0,5	0,21
163,0	17	2	<LD	
174,0	19	2	<LD	
186,5	14	2	<LD	
195,5	<LD		<LD	

LD: Limite de détection

Résultats d'activité en ¹³⁷ Cs et ²⁴¹ Am détermnés sur la carotte B4. Sont aussi reportés le pourcentage de particules inférieures à 50 µm, la capacité d'échange cationique (CEC) et la teneur en matière organique totale (MOT)							
Profondeur (cm)	¹³⁷ Cs (Bq.kg ⁻¹)	±	²⁴¹ Am (Bq.kg ⁻¹)	±	%<50µm	CEC (Cmol.kg ⁻¹)	MOT (g.kg ⁻¹)
5,4	10	1	<LD		80,3	9,3	49
11,1	8	1	<LD		77,6	4,7	40
15,1	8	1	<LD		62,4	4,5	39
19,3	9	1	<LD		68,0	6,6	34
24,4	8	1	<LD		86,9	6,2	35
30,0	8	1	<LD		76,3	5,7	24
36,6	10	1	<LD		98,8	8,1	27
41,4	14	2	<LD		93,4	10,2	42
47,2	13	2	<LD		92,2	8,4	34
51,9	14	2	<LD		96,1	8,4	28
56,2	16	2	<LD		89,4	8,7	35
61,4	17	2	<LD		93,9	8,0	22
64,8	28	3	<LD		96,2	9,0	25
69,1	27	3	<LD		97,7	8,8	21
73,1	30	4	0,7	0,2	94,2	10,3	27
78,2	27	3	<LD		95,8	10,5	23
83,2	26	3	<LD		98,7	8,5	28
88,2	39	4	<LD		98,1	8,9	30
93,4	35	4	1,0	0,5	97,5	7,6	24
98,9	46	5	0,7	0,4	98,3	7,0	24
104,4	100	10	2,6	0,6	95,4	12,6	32
110,0	124	13	3,5	0,6	87,3	9,8	33
114,5	50	5	1,9	0,5	86,0	8,5	21
119,4	71	8	3,8	0,6	79,3	8,5	21
124,3	56	7	1,9	0,3	85,5	8,3	29
129,8	42	5	0,9	0,4	83,7	7,0	26
135,6	35	4	0,9	0,4	85,5	7,0	24
138,5	91	10	3,3	0,6	83,4	7,5	26
141,9	82	9	2,4	0,5	88,0	8,2	25
145,1	66	8	2,0	0,5	96,2	10,0	22
148,8	143	15	4,9	0,8	83,8	8,6	33

LD: Limite de détection

Résultats d'activité en ¹³⁷ Cs et ²⁴¹ Am édterminés sur la carotte B4'				
Profondeur (cm)	¹³⁷ Cs (Bq.kg ⁻¹)	±	²⁴¹ Am (Bq.kg ⁻¹)	±
162,5	44	5	1,6	0,5
171,5	57	6	1,1	0,3
178,0	62	6	1,9	0,5
182,5	47	5	<LD	
187,5	27	3	<LD	
197,5	13	1	0,8	0,4
203,5	hiatus			
211,5	17	2	<LD	
217,5	12	1	<LD	
224,5	28	3	<LD	
233,5	20	2	<LD	
240,0	13	1	<LD	
243,5	9	1	<LD	
248,0	12	1	<LD	
255,5	10	1	<LD	
259,5	5	1	<LD	
261,0	11	1	1,1	0,4
269,0	12	1	<LD	
279,5	1,4	0,3	<LD	
286,0	0,7	0,2	<LD	
293,0	1	0,3	<LD	
298,5	<LD		<LD	
304,0	hiatus			
309,0	9,0	1,0	<LD	
314,0	0,4	0,2	<LD	
275,0	<LD		<LD	
325,5	<LD		<LD	
329,5	<LD		<LD	
332,5	<LD		<LD	
335,5	<LD		<LD	
339,0	<LD		<LD	
344,5	<LD		<LD	
350,0	<LD		<LD	
356,0	<LD		<LD	
361,5	<LD		<LD	
365,0	<LD		<LD	
370,0	<LD		<LD	
378,5	<LD		<LD	
386,0	<LD		<LD	
394,0	<LD		<LD	

LD: Limite de détection

Résultats d'activité en ¹³⁷Cs déterminés sur la carotte B5. Sont aussi reportés le pourcentage de particules inférieures à 50 µm, la capacité d'échange cationique (CEC) et la teneur en matière organique totale (MOT)

Profondeur (cm)	¹³⁷ Cs (Bq.kg ⁻¹)	±	%<50µm	CEC (Cmol.kg ⁻¹)	MOT (g.kg ⁻¹)
5,4	13	2	73,7	5,6	59
10,5	11	1	96,5	7,7	25
16,0	11	1	94,5	7,4	28
21,6	10	1	94,5	7,3	27
27,2	11	1	96,7	7,8	25
32,5	9	1	95,5	7,8	23
37,7	10	1	98,1	8,1	29
42,1	10	1	97,4	8,4	33
43,5	9	1	87,3	7,2	33
47,9	12	1	95,5	9,3	30
51,6	11	1	98,8	10,2	26
55,2	12	1	81,6	9,8	53
57,1	10	1	98,4	11,3	38
60,9	10	1	96,8	6,5	32
64,2	12	1	96,1	8,0	30
69,0	10	1	99,0	8,9	24
71,7	10	1	99,7	9,2	18
75,5	14	2	99,5	11,9	35
77,5	12	1	99,9	7,6	26
79,2	17	2	99,9	12,1	40
81,7	16	2	98,3	11,3	61
85,8	15	2	85,9	8,1	26
89,7	18	2	96,6	7,5	23
95,3	14	2	97,3	7,5	16
100,6	13	2	97,9	7,9	19
105,9	13	1	97,5	7,2	18
111,5	13	2	94,4	8,1	18
117,8	14	2	87,0	7,8	18
123,6	19	2	95,1	8,5	19
128,8	19	2	95,3	8,5	20
134,5	18	2	93,6	8,3	20
139,7	18	2	88,2	8,1	24
144,7	18	2	88,8	7,8	22

Transfert des radionucléides par voie fluviale : conséquences sur les stocks sédimentaires rhodaniens et les exports vers la Méditerranée

Résumé :

Les travaux développés s'inscrivent dans la recherche d'une meilleure compréhension du devenir des contaminants à l'état de traces en milieu fluvial suite à un rejet chronique. L'étude présentée ici s'intéresse aux conséquences de la diminution des rejets du centre de retraitement du combustible nucléaire irradié de Marcoule sur les flux de radioactivité artificielle du Rhône vers la Méditerranée. Elle souligne ainsi l'impact de cette diminution sur l'évolution des flux des radionucléides artificiels ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$.

Une attention particulière est portée au rôle des crues dans les processus d'exportation. Durant les années 2002 à 2004, ces événements ont ainsi participé pour 67%, 55%, 68%, 49% et 56% des flux moyens annuels de ^{137}Cs , de ^{238}Pu , de $^{239+240}\text{Pu}$ et des radionucléides naturels ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, bien qu'ils n'aient représenté que 5% du temps de la période d'étude.

La remobilisation, lors des crues, de stocks de sédiments marqués par les rejets du centre de Marcoule contribue en moyenne pour 19%, 44% et 22% des exports annuels de ^{137}Cs , de ^{238}Pu et de $^{239+240}\text{Pu}$ vers la Méditerranée. La reprise sédimentaire représente donc aujourd'hui un terme source différé non négligeable de radioactivité artificielle pour les eaux du Rhône..

Les temps de résidence du ^{137}Cs , du ^{238}Pu et du $^{239+240}\text{Pu}$ originaires du centre de Marcoule et accumulés depuis près de 50 ans dans le compartiment sédimentaire du fleuve sont estimés à 200 ans, 100 ans et 900 ans, respectivement.

Des zones d'accumulation des sédiments marqués ont été identifiées. Ces zones sont représentées d'une part par l'amont des ouvrages hydroélectriques, et d'autre part par les berges et les bras morts du système fluvial. Les stocks de radioactivité artificielle accumulés en amont des ouvrages constituent vraisemblablement des stocks plus facilement remobilisables que ceux constitués dans les berges et les annexes fluviales.

Mots clefs : radionucléides ; Rhône ; flux ; crue ; stock sédimentaire; remobilisation, temps de résidence.

Fluvial export of radionuclides : impact on sediment storages of the Rhone river and fluxes towards the Mediterranean Sea

Abstract:

This study deals with the behaviour of trace contaminants originating from chronic liquid releases within fluvial aquatic systems. It focuses on some particle reactive artificial radionuclides that were released by the Marcoule nuclear fuel reprocessing plant during several years mainly prior the end of the nineties and that are still detected in the lower Rhône river. It underlines the decrease of ^{137}Cs , ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ fluxes to the Mediterranean Sea in relation with the variations in the chronic liquid releases from Marcoule.

The role of flood events on radionuclides exports processes is particularly considered. Over the years 2002 to 2004, floods contributed for 67%, 55%, 68%, 49% and 56% of the mean annual fluxes of ^{137}Cs , ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ and natural ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, although these events only represented 5% of time.

The removal, during floods, of sediments contaminated by the Marcoule releases contributes on the average for 19%, 44% and 22% of the annual exports of ^{137}Cs , ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ towards the Sea. Thus, such sedimentary stocks act as a delayed source term of artificial radioactivity that is currently significant.

Determination of the sediments residence times before removal allows to evaluate the Rhône capacity to clear its contaminated stocks. Residence times of 200 years, 100 years and 900 years are estimated to be necessary to totally remove the accumulated ^{137}Cs , ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$, respectively.

The location typologies of sediment storages within fluvial systems are also specified. These location are represented on one hand by dams, and on the other hand by riverbanks and oxbow lakes. Stocks accumulated in dams seem to be removed more easily than those trapped in banks.

Keywords : radionuclides, Rhône river, flux, flood, sediment stock, removal, residence time.