

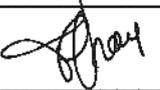
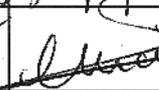
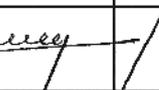
IRSNINSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Etude de la dynamique de drainage du ^{137}Cs présent sur les bassins versants des cours d'eau français

Etat d'avancement

Françoise Vray, Christophe Debayle, Jean-Michel Métivier

DIRECTION DE L'ENVIRONNEMENT
ET DE L'INTERVENTION
Service d'Etude et de Surveillance
de la Radioactivité dans l'Environnement

Demandeur					
Référence de la demande					
Numéro de la fiche programme					
<p>Étude de la dynamique de drainage du ¹³⁷Cs présent sur les bassins versants des cours d'eau français. État d'avancement.</p> <p>Rapport DEI/SESURE n° 2005-01</p>					
	Réservé à l'unité		Visas pour diffusion		
	Auteur(s)	Vérificateur*	Chef du SESURE	Directeur DEI	Directeur Général de l'IRSN
Noms	F. VRAY	Ph. RENAUD	N. LEMAITRE	D. CHAMPION	J. REPUSSARD
Dates	12/01/2005	13/01/2005	18/01/2005	P. 21/03/2005	
Signatures					

* rapport sous assurance de la qualité

HISTORIQUE DES MODIFICATIONS

Version	Date	Auteur	Pages ou paragraphes modifiés	Description ou commentaires
0	12/01/2005	F. Vray		Émission du document
1	04/02/2005	F. Vray		Prise en compte demande de modifications N. Lemaitre

Liste des participants

Nom	Organisme
Françoise VRAY	IRSN / DEI / SESURE / LERCM
Christophe DEBAYLE	IRSN / DEI / SESURE / LVRE
Jean-Michel MÉTIVIER	IRSN / DEI / SECRE / LME

Liste de diffusion

Nom	Organisme
J. REPUSSARD	IRSN/DIR
M. BRIERE	IRSN/DIR
JC NIEL	IRSN/DSDRE
J. LEWI	IRSN/DESTQ
MP BIGOT	IRSN/COM
F. SOULET	DESTQ/DISCT/CRIS
D. CHAMPION	DEI/DIR
G. LINDEN	DEI/DIR
B. DUFER	DEI/DIR
JM PERES	DEI/SARG
JC GARIEL	DEI/SECRE
P. DUBIAU	DEI/SESUC
JP MAIGNE	DEI/SIAR
MC ROBE	DEI/STEME
B. DESCAMPS	DEI/SESURE/LESE
O. PIERRARD	DEI/SESURE/LVRE
P. RENAUD	DEI/SESURE/LERCM

RESUME

Un modèle opérationnel décrivant le drainage des radionucléides a été sélectionné à partir d'une synthèse bibliographique. Ce modèle fournit une expression du flux dissous dans les cours d'eau en fonction du débit de la rivière et de l'activité déposée sur le bassin versant. Afin de caler ce modèle pour le ^{137}Cs issu de l'accident de Tchernobyl et les principaux cours d'eau français, des séries de données rendant compte de l'évolution temporelle de l'activité du ^{137}Cs dans l'eau sont nécessaires. La difficulté inhérente à la mesure de ce radionucléide dans l'eau a conduit à appréhender son activité au travers de celle, plus aisément mesurable, des sédiments et des plantes aquatiques. Des mesures sur ces indicateurs, en amont de tout rejet d'effluents industriels, ont notamment été réalisées depuis 1991 dans le cadre du suivi annuel des centrales électronucléaires françaises. Le modèle de drainage est donc calé essentiellement sur ces données à un facteur multiplicatif près (ce facteur étant un K_D ou un FC). Ceci nécessite cependant quelques adaptations préalables : le K_D étant dépendant des caractéristiques granulométriques des échantillons de sédiments, une standardisation de leur activité sur des critères granulométriques doit être effectuée. Pour les végétaux aquatiques, il est nécessaire de rechercher leur temps de réponse avant de pouvoir caler le modèle.

Les résultats obtenus, sur les plantes comme sur les sédiments, indiquent que pour les grands cours d'eau français, l'activité du ^{137}Cs en milieu aquatique diminue depuis 1987 avec une période effective de 4 à 7 ans. Si le niveau de contamination de chaque cours d'eau dépend de la contamination moyenne du bassin versant (dépôt moyen en Bq m^{-2}), il semble que ce niveau soit également influencé par d'autres paramètres comme la taille du bassin versant, voire certaines caractéristiques des sols drainés. Cette partie de l'étude reste à approfondir. Elle rejoint les travaux menés au LERCM sur la migration des radionucléides dans les sols.

Sur la partie amont du Rhône, les végétaux aquatiques indiquent que le débit joue un rôle de dilution de la radioactivité dissoute, induisant une variabilité autour de la tendance générale à la décroissance évoquée précédemment. Ce résultat ne semble pas généralisable à l'ensemble des sites puisque les données relatives à la Meuse en amont de Chooz témoignent d'une tendance inverse (augmentation de la radioactivité dissoute lorsque le débit augmente).

Une expérience complémentaire effectuée sur l'eau (fraction dissoute et particulaire) durant un cycle hydrologique complet en amont de Creys-Malville a confirmé les résultats précédents relatifs aux modalités d'influence du débit sur l'activité en ^{137}Cs dissoute dans le Rhône. Ce type d'expérience a également permis de montrer l'existence d'un équilibre entre activité dissoute et particulaire, c'est-à-dire de montrer la validité du concept du K_D dans ce cas d'étude (les apports de ^{137}Cs dissous et particulaire depuis le sol se faisant en régime stationnaire) et d'estimer la valeur de ce K_D pour les matières en suspension. Enfin, par recoupement avec les données sur l'évolution de l'activité des sédiments, une valeur du K_D pour un sédiment standard contenant 12% d'argiles et 20% de limons est également proposée. De la même façon, des valeurs de facteurs de concentration sont estimées pour les végétaux aquatiques. Ces valeurs permettent *in fine* d'explicitier le paramètre du modèle de drainage décrivant le niveau de contamination du Rhône par les retombées de l'accident de Tchernobyl. La valeur obtenue apparaît cohérente avec les données issues de la littérature.

MOTS-CLES

Modèle de drainage, bassins versants, ^{137}Cs , végétaux aquatiques, facteur de concentration (FC), sédiments, coefficient de distribution liquide-solide (K_D)

SOMMAIRE

1. INTRODUCTION.	6
2. ASPECTS THEORIQUES.	6
2.1. Choix d'un modèle.	6
2.2. Description du modèle retenu.	7
2.3. Adaptation de la formulation au cas des sédiments de fond.	8
2.4. Adaptation de la formulation au cas des plantes aquatiques.....	8
3. CINETIQUE DE DISPARITION DU ¹³⁷ Cs SUR LE LONG TERME : ACQUIS DE L'ETUDE SUR LES SEDIMENTS.	10
3.1. Standardisation de l'activité en ¹³⁷ Cs des sédiments étudiés sur critères granulométriques.....	10
3.2. Résultats obtenus et résultats attendus.	10
3.3. Mise en perspective des résultats obtenus avec les dépôts sur les bassins versants.	14
3.4. Synthèse et discussion.	17
4. VARIABILITE AUTOUR DE LA TENDANCE GENERALE : INFLUENCE DU DEBIT SUR L'ACTIVITE DISSOUTE ET LES INDICATEURS BIOLOGIQUES.	19
4.1. Étude des végétaux aquatiques (amont de Creys-Malville et de Chooz).....	19
4.2. Étude du compartiment « eau » en amont de Creys-Malville.....	22
4.2.1. Objectifs et méthode.	22
4.2.2. Résultats : relation entre les activités dissoute et particulaire dans l'eau et le débit.	23
4.2.3. Essai d'utilisation des résultats pour expliciter les paramètres du modèle de drainage.	24
5. SYNTHESE ET PERSPECTIVES.	26
6. LISTE DES TABLEAUX.....	28
7. LISTE DES FIGURES.....	29
8. REFERENCES.....	30

1. INTRODUCTION.

Bien que la migration du ^{137}Cs des sols vers les cours d'eau ait été jusqu'à présent peu étudiée en France, l'évaluation quantitative de ce phénomène est un enjeu essentiel.

D'une part, cette évaluation est indispensable pour pouvoir, à partir de mesures contemporaines, reconstruire correctement les stocks de ce radionucléide constitués dans les sols lors des événements radiologiques majeurs du siècle dernier (essais aériens d'armes nucléaires, accident de Tchernobyl). Il convient ici de savoir si la diminution du stock par migration horizontale est négligeable et à partir de quelle échelle spatio-temporelle d'observation.

D'autre part, la connaissance des activités en ^{137}Cs dans les différents compartiments des cours d'eau et de leur évolution temporelle en amont de tout rejet est requise pour quantifier l'impact réel des installations nucléaires sur le milieu aquatique. Le ^{137}Cs est en effet un élément non négligeable de leurs rejets radioactifs en rivière. Une connaissance précise des niveaux d'activité attendus en amont du rejet sera plus puissante qu'une simple comparaison ponctuelle entre deux échantillons (amont / aval).

Le travail présenté ici a donc pour but de quantifier, à l'échelle nationale, les apports de ^{137}Cs aux cours d'eau à partir des sols et de déterminer la dynamique de l'évolution de ces apports, en s'appuyant sur un modèle systémique. L'objectif d'évaluation d'une composante cinétique nécessite de disposer de séries chronologiques dont l'origine temporelle est voisine de l'apport de radionucléide sur les sols français. C'est pourquoi ce travail est principalement axé sur l'étude du stock de ^{137}Cs issu de l'accident de Tchernobyl (les données plus anciennes relatives à la période des essais aériens d'armes nucléaires sont rarissimes pour les cours d'eau). De plus, en raison de cette contrainte majeure, ce travail ne peut être étendu qu'à un nombre limité de sites, ceux qui ont fait l'objet d'au moins une étude à la fin des années 80 ou au début des années 90.

Les données recueillies depuis 1991-92 dans le cadre du suivi annuel des centrales électronucléaires françaises (en amont des CNPE) répondent à ces critères et constituent une première base d'observations disponibles pour cette étude. Ces données ne concernent pas directement l'eau de rivière mais des indicateurs biotiques (végétaux aquatiques) ou abiotiques (sédiment) dont les activités en ^{137}Cs sont supposées refléter celle du milieu aquatique à un facteur multiplicatif près (coefficient de distribution liquide-solide, K_d , pour les sédiments, facteur de concentration, FC , pour les végétaux).

2. ASPECTS THEORIQUES.

2.1. Choix d'un modèle.

Le travail présenté ici a été initié en 1999 et a débuté par une analyse bibliographique (Claeys, 1999 ; Vray, 2001) qui a conduit à sélectionner, parmi les modèles décrivant le drainage des radionucléides sur les bassins versants, un modèle systémique à la formulation simple et aisé à paramétrer, donc bien adapté aux données disponibles (séries chronologiques constituées d'une dizaine d'observations sur la radioactivité du ^{137}Cs dans des indicateurs biotiques et abiotiques).

Ce modèle a été présenté par Monte, qui l'a appliqué à la détermination du flux de radionucléides déposés à la suite de l'accident de Tchernobyl vers différents cours d'eau (la rivière Pripiat, le Dniepr, la Teterev, l'Uzh, le Pô et le Rhin) à l'aide de données collectées par différents laboratoires européens (Monte, 1995), ainsi qu'à l'estimation des apports d'un bassin versant à un lac (Monte, 1993). Il a également été

appliqué par Hilton *et al.* (1993). Une formulation simplifiée de ce même modèle est également utilisée par Smith *et al.* (1997 ; 2000). Ce type de formulation est toujours d'actualité, les approches réductionnistes ou mécanistes du drainage des bassins versants étant toujours inopérantes en raison de la complexité des mécanismes influents (Monte *et al.*, 2004).

Il se présente sous la forme d'une fonction de transfert exprimant le flux de radionucléides qui s'échappe par l'exutoire d'un bassin versant ayant subi un apport unique de radionucléide, sous la forme d'un dépôt atmosphérique.

2.2. Description du modèle retenu.

La fonction de transfert totale, $\Phi(t)$, est définie comme la somme de n fonctions de transfert :

$$\Phi(t) = \sum_{i=1}^n \Phi_i(t) \quad \text{-E 1-}$$

Les fonctions $\Phi_i(t)$ représentent les $i^{\text{ème}}$ composantes du transport de radionucléide dissous, expliquées par des phénomènes propres aux bassins versants comme le lessivage immédiat du dépôt et l'érosion à long terme. Ces composantes s'écrivent :

$$\Phi_i(t) = \varepsilon \cdot D \cdot \beta_i \cdot Q(t)^{\alpha_i} \cdot A_i \cdot e^{-(\lambda_i + \lambda_r) \cdot t} \quad \text{-E 2-}$$

$$\sum_{i=1}^n A_i = 1 \quad \text{-E 3-}$$

Avec :

- $\Phi_i(t)$, la $i^{\text{ème}}$ fonction de transfert du radionucléide dissous, c'est-à-dire le flux d'apport au fleuve à la suite d'un dépôt unique sur le bassin versant au temps $t=0$ (Bq s^{-1}) ;
- t , le temps (s) ;
- D , le dépôt total supposé homogène sur le bassin versant (Bq m^{-2}) ;
- ε , le coefficient de transfert du dépôt vers le cours d'eau ; il est défini comme le rapport entre la concentration initiale du radionucléide dans l'eau (Bq m^{-3}) et le dépôt (D , en Bq m^{-2}) et est donc en m^{-1} ;
- $Q(t)$, le débit à l'exutoire à l'instant t ($\text{m}^3 \text{s}^{-1}$) ;
- α_i , les exposants du débit dans chaque fonction de transfert ; ils traduisent la non-linéarité de la relation entre le flux de radionucléide et le débit du cours d'eau et sont sans dimension ;
- β_i , des coefficients résultant de la prise en compte de la condition initiale $Q(t=0) \neq 0$; ils ont pour valeur $Q(0)^{1-\alpha_i}$ et contribuent à l'homogénéité dimensionnelle de l'expression des fonctions de transfert ;
- A_i les taux exprimant le poids relatif de chaque composante du flux dans la fonction de transfert totale (adimensionnels) ;
- λ_r , la constante de décroissance radioactive (s^{-1}) ;
- λ_i , les constantes de décroissance du radionucléide dans le cours d'eau par migration horizontale (s^{-1}), liées à chaque composante i du flux.

La grandeur $\Phi(t)$ est appréhendée par l'intermédiaire de l'activité mesurable dans la fraction dissoute de l'eau, $C_w(t)$ (Bq m^{-3}), en utilisant la relation :

$$C_w(t) = \Phi \cdot Q(t)^{-1} \quad \text{-E 4-}$$

À partir de données expérimentales, Monte (1995) a identifié deux composantes principales du flux, l'une relative à une période de quelques mois après l'accident de Tchernobyl (flux sur le court-terme), l'autre lui succédant (à partir de 240 jours) et s'étendant sur quelques années après l'accident (long-terme).

D'autres auteurs (Smith *et al.*, 2000 ; 2002) considèrent trois composantes pour ce flux, la première (« effet de chasse ») se confondant au flux rapide identifié par Monte (1995), la seconde lui succédant et s'étendant sur près de 2700 jours, c'est-à-dire jusqu'à mai 1994 environ (phase de fixation dans le sol et de redistribution) la troisième correspondant à un état quasi stationnaire.

Cette dernière solution n'a pas été retenue d'une part car nos données ne nous permettent pas de distinguer une modification des cinétiques de disparition du ^{137}Cs dans les cours d'eau qui s'amorcerait aux environs de 1994, d'autre part car il nous paraît illusoire de chercher à caractériser la dynamique d'un phénomène très lent (période voisine de 35 ans) avec des séries de données relativement courtes (16 ans environ). Les données disponibles ne nous permettent pas non plus de chercher à quantifier l'importance relative et la cinétique de la composante rapide du flux concernant l'année consécutive à l'accident de Tchernobyl. Par conséquent, seule sera abordée la deuxième composante du flux ($t > 240$ j après le dépôt, $i=2$), laquelle peut être traitée indépendamment des autres composantes éventuelles. Le fait que les données disponibles soient relatives à des indicateurs et non pas à l'eau nécessite de surcroît d'adapter le modèle retenu.

2.3. Adaptation de la formulation au cas des sédiments de fond.

Le recours à ce modèle pour décrire la contamination des sédiments d'un cours d'eau est envisageable pour le long terme en émettant l'hypothèse que les sédiments étudiés sont en équilibre avec la fraction dissoute de l'eau de la rivière. Ceci revient à introduire le coefficient de distribution liquide-solide, K_D ($\text{m}^3 \text{kg}^{-1}$) dans l'équation -E 2- modifiée en tenant compte de -E 4-, et à l'écrire sous la forme suivante :

$$C_{\text{sed}}(t) = K_D \cdot \varepsilon \cdot D \cdot \beta_2 \cdot Q(t)^{\alpha_2 - 1} \cdot A_2 \cdot e^{-(\lambda_2 + \lambda_r) \cdot t} \quad \text{-E 5-}$$

Cette hypothèse serait valide si les données disponibles étaient relatives à des matières en suspension ou à des dépôts très récents. Dans le cas des sédiments de fond avec une épaisseur de couche prélevée inconnue, cette hypothèse correspond à une approximation grossière. Seule la fiabilité des corrélations obtenues peut permettre d'apprécier l'erreur commise en admettant l'hypothèse d'un équilibre entre l'activité en ^{137}Cs des sédiments et celle présente sous forme dissoute dans le cours d'eau.

De plus, le recours à la grandeur K_D suppose l'existence d'un état d'équilibre entre l'eau et la fraction sédimentaire étudiée. Celui-ci ne peut être admis que si les variations de $Q(t)$ sont négligeables et si l'équilibre est atteint en un temps très court en comparaison de l'échelle d'observation de t .

En raison de l'ensemble des hypothèses à admettre pour pouvoir étudier le drainage bassin versant à partir de données relatives aux sédiments de fond, l'expression -E 5- sera réduite à :

$$C_{\text{sed}}(t) = K_D \cdot \varepsilon \cdot D \cdot A_2 \cdot e^{-(\lambda_2 + \lambda_r) \cdot t} \quad \text{-E 6-}$$

en considérant que $\alpha_2=1$, ce qui revient à négliger les variations saisonnières de l'activité de l'eau liées aux fluctuations du débit du cours d'eau et à approcher le phénomène à l'échelle annuelle.

2.4. Adaptation de la formulation au cas des plantes aquatiques.

De même, il est possible d'utiliser ce type d'expression pour décrire la contamination des végétaux des cours d'eau car ceux-ci sont supposés être en équilibre avec la fraction dissoute de l'eau de la rivière. Ceci revient à transformer l'expression -E 5- en :

$$C_v(t) = FC \cdot \varepsilon \cdot D \cdot \beta_2 \cdot Q(t)^{\alpha_2 - 1} \cdot A \cdot e^{-(\lambda_2 + \lambda_r) \cdot t} \quad \text{-E 7-}$$

où FC est le facteur de concentration à l'équilibre entre l'eau et le végétal v ($\text{m}^3 \text{kg}^{-1}$).

Comme pour les sédiments, le recours au facteur de concentration suppose une situation d'équilibre entre l'eau et le végétal. Celle-ci est impossible à observer sauf si le débit du cours d'eau est à peu près constant sur une période de temps voisine ou supérieure à la période biologique du radionucléide dans le végétal. Néanmoins, Il a été montré (Vray, 2001) qu'en établissant des corrélations successives entre la concentration observée dans un organisme pouvant être considéré comme monocompartimental et la concentration moyenne dans l'eau sur 0 à n jours précédant son prélèvement, un optimum de corrélation devait être observé pour une période donnée. Cet optimum correspond approximativement à la période biologique de l'organisme.

L'activité du radionucléide dans la fraction dissoute de l'eau évoluant en fonction du débit et du temps avec des valeurs de paramètres qui sont à estimer, il est impossible de calculer la valeur moyenne exacte de $C_w(t)$ sur un intervalle de temps s'étendant par exemple de $t-\Gamma$ à t .

Celle-ci peut cependant être approchée en réduisant l'erreur liée à cette approximation par :

$$\text{Ln}(\overline{C_w(t-\Gamma,t)}) = A \cdot \text{Ln}(\overline{Q(t-\Gamma,t)}) - B \cdot \left(t - \frac{\Gamma}{2} \right) + C \quad \text{-E 8-}$$

où $\overline{Q(t-\Gamma,t)}$, le débit moyen sur la période s'étendant de $t-\Gamma$ à t , est approché par la moyenne géométrique des débits moyens journaliers.

Dans le cas de plantes aquatiques, il convient donc de rechercher pour quelle période de temps un optimum est observé dans la corrélation entre l'activité théorique de l'eau et celle des végétaux puis de caler le modèle (c'est-à-dire de rechercher les valeurs de $A=\alpha_2-1$, $B=\lambda_2+\lambda_r$ et $C=\text{Ln}[FC.\varepsilon.D.\beta_2.A_2]$) pour cet optimum.

Les limites de la méthode sont les suivantes :

- en cas d'absence de fluctuation de la concentration dans l'eau (si $A=0$), aucun optimum ne peut être décelé dans l'évolution de la corrélation entre l'activité dans l'organisme et la valeur moyenne de $C_w(t)$ en fonction des valeurs de $t-\Gamma$;
- si la période biologique de l'organisme est très longue, l'optimum de corrélation est difficile à discerner, les écarts entre les valeurs de $C_w(t-\Gamma,t)$ et $C_w(t-\Gamma+1,t)$ devenant de plus en plus faibles lorsque Γ augmente (l'ajout d'une nouvelle donnée dans le calcul de la moyenne est dilué dans les Γ données relatives aux jours précédents).

3. CINÉTIQUE DE DISPARITION DU ^{137}Cs SUR LE LONG TERME : ACQUIS DE L'ÉTUDE SUR LES SÉDIMENTS.

3.1. Standardisation de l'activité en ^{137}Cs des sédiments étudiés sur critères granulométriques.

En raison de la nette affinité du ^{137}Cs pour les particules fines et notamment les argiles, il est indispensable de réduire la variabilité des résultats de mesure de ce radionucléide dans les sédiments liée aux hétérogénéités granulométriques des échantillons. Pour cela, deux méthodes peuvent être envisagées :

- un tri des échantillons homogènes du point de vue granulométrique par une méthode statistique de type Analyse en Composantes Principales (Vray, 2001). Ceci revient cependant à exclure une partie des données, ce qui est gênant compte tenu du nombre déjà restreint d'observations disponibles ;
- une correction des activités mesurées permettant de les ramener à l'activité théorique qui aurait été mesurée dans un échantillon de granulométrie standard. Ceci nécessite la mise au point d'une méthode de standardisation, ce qui a été fait par Debayle (2002) et Vray *et al.* (2003).

La standardisation de l'activité du ^{137}Cs dans les sédiments s'appuie sur l'observation que 27% du ^{137}Cs mesuré dans un échantillon est associé aux limons fins et 73% aux argiles, les autres fractions contenant des quantités négligeables de radionucléide. Les fractions granulométriques utilisées sont mesurées selon la norme AFNOR NFX 31107, plus reproductible que les méthodes fondées sur le comptage de particules à l'aide de lasers pour la fraction argileuse (Debayle, 2002).

L'activité théorique en ^{137}Cs d'un échantillon de granulométrie standard, $[\text{}^{137}\text{Cs}]_{\text{std}}$, caractérisé par sa teneur en argiles $[A]_{\text{std}}$ (%) et sa teneur en limons fins $[\text{LF}]_{\text{std}}$ (%) est donc calculée à partir de l'activité mesurée dans un échantillon $[\text{}^{137}\text{Cs}]_{\text{obs}}$ dont les teneurs en argiles et en limons fins ($[A]_{\text{obs}}$ et $[\text{LF}]_{\text{obs}}$) sont connues, à l'aide de l'équation suivante :

$$[\text{}^{137}\text{Cs}]_{\text{std}} = [\text{}^{137}\text{Cs}]_{\text{obs}} \frac{(1,15 \pm 0,20)[A]_{\text{std}} + (0,43 \pm 0,16)[\text{LF}]_{\text{std}}}{(1,15 \pm 0,20)[A]_{\text{obs}} + (0,43 \pm 0,16)[\text{LF}]_{\text{obs}}} \quad \text{-E 9-}$$

Cette correction ne peut être appliquée qu'aux échantillons dont les teneurs en argiles et en limons fins ne sont pas nulles et dont la teneur en matière organique est cohérente avec celle en éléments fins. En règle générale, les échantillons dont la teneur en matière organique est inférieure à 1% ne peuvent être standardisés sans risque d'erreur.

Il a été proposé par Debayle (2002) d'adopter un échantillon standard dont les teneurs en argiles et en limons fins sont respectivement de 12% et de 20% (valeurs moyennes pour plus de 100 échantillons).

3.2. Résultats obtenus et résultats attendus.

La méthode de standardisation évoquée au chapitre précédent a été appliquée aux 5 sites d'étude qui ont permis sa mise au point (amont des centrales électronucléaires de Cattenom, Chooz, Creys-Malville, Golfech et Nogent-sur-Seine). Sur les données corrigées et s'étendant de 1987 à 2001, l'équation -E 6- a pu être ajustée avec des coefficients de détermination variant de 0,66 à 0,91 (Vray *et al.*, 2003). La prise en compte des données relatives aux années 2002 à 2004 tend à allonger les périodes de

disparition du ^{137}Cs dans le cours d'eau, les différences entre sites demeurant identiques. Les résultats actualisés sont présentés sur la Figure 1 et dans le Tableau 1, ainsi que ceux relatifs à Belleville-sur-Loire. Ce site a finalement été traité de la même manière, mais en excluant toutes les données relatives aux échantillons contenant moins de 1% de matières organiques ou contenant une teneur nulle en argiles (1997) ou en limons fins (1996). Ces critères étant respectés ; l'ajustement d'une exponentielle décroissante est possible pour ce site ($R^2 = 0,92$).

Afin d'augmenter le nombre de zones d'études pour pouvoir dégager de grandes règles sur les facteurs influençant les paramètres du modèle, il a été recherché dans la base de données SYLVESTRE si d'autres séries de données pouvaient être traitées de la même manière. Il est évident que ces autres séries de données ne peuvent compter un nombre d'observations aussi élevé que les séries constituées dans le cadre du suivi annuel des centrales électronucléaires françaises.

Cinq stations du bassin du Var ayant été prospectées en 1987, 1988 et 1995, ces ébauches de séries de données ont été complétées par des prélèvements annuels de sédiment entre 2002 et 2004. Ces séries comptent actuellement 6 à 7 observations chacune, certaines d'entre elles étant de plus non conformes du point de vue de leur teneur en matières organiques (moins de 1%). Il est néanmoins possible de juger de la pertinence des résultats qui peuvent en être attendus sur la Figure 2. Les résultats (encore provisoires) obtenus sur ces sites ont été groupés dans le Tableau 1.

L'amont du CNPE de Civaux peut également constituer un site d'étude. S'il n'a pas d'emblée été associé à l'étude initiée en 1999, c'est en raison du fait que le site de Civaux n'a fait l'objet d'un suivi régulier que depuis 1996. Le prélèvement le plus ancien sur ce site remonte seulement à 1991. En dépit de l'existence de 12 observations (jusqu'en 2004), l'ajustement d'une exponentielle décroissante est peu fiable ($R^2 = 0,51$) car la faiblesse de la pente de cette droite est conjuguée à une période d'étude courte et à une forte dispersion des observations (Figure 2, Tableau 1).

Tableau 1 - Résultats de l'ajustement du modèle de transfert du sol vers les cours d'eau à l'aide de données sur des sédiments « standards »

	Nombre d'obs.	R^2	$\text{Ln}(2)/\rho_2$	Intervalle de confiance autour de $\text{Ln}(2)/\rho_2$		$K_{DE}DA_2$	Intervalle de confiance autour de $K_{DE}DA_2$	
				à 95%	à 68%		à 95%	à 68%
Belleville-sur-Loire	11	0,92	6,6	5,2 ; 9,0	5,8 ; 7,5	45	32 ; 64	38 ; 53
Cattenom	18	0,68	5,7	4,0 ; 10	4,7 ; 7,2	55	30 ; 103	41 ; 75
Chooz	20	0,59	4,8	3,2 ; 9,0	3,9 ; 6,2	68	29 ; 160	45 ; 103
Creys-Malville	24	0,91	5,7	4,8 ; 6,8	5,2 ; 6,2	54	43 ; 67	48 ; 60
Golfech	18	0,65	8,4	5,6 ; 17	6,8 ; 11	12	7 ; 20	9 ; 15
Nogent-sur-Seine	24	0,66	5,2	3,8 ; 8,2	4,4 ; 6,3	26	14 ; 48	19 ; 35
Civaux	12	0,51	8,7	4,6 ; 76	6,1 ; 15	80	31 ; 206	52 ; 125
Estéron	6	0,82	5,6	3,2 ; 25	4,3 ; 8,3	9	3 ; 31	6 ; 15
Tinée	7	0,73	4,2	2,4 ; 21	3,2 ; 6,5	161	33 ; 781	82 ; 317
Vésubie	6	0,93	4,4	3,1 ; 7,7	3,8 ; 5,3	129	56 ; 298	91 ; 181
Var à Touët	7	0,62	5,1	2,5 ; +∞	3,5 ; 9,3	27	5 ; 151	13 ; 57
Var à la Manda	6	0,89	4,9	3,2 ; 11	4,0 ; 6,4	41	15 ; 112	27 ; 62

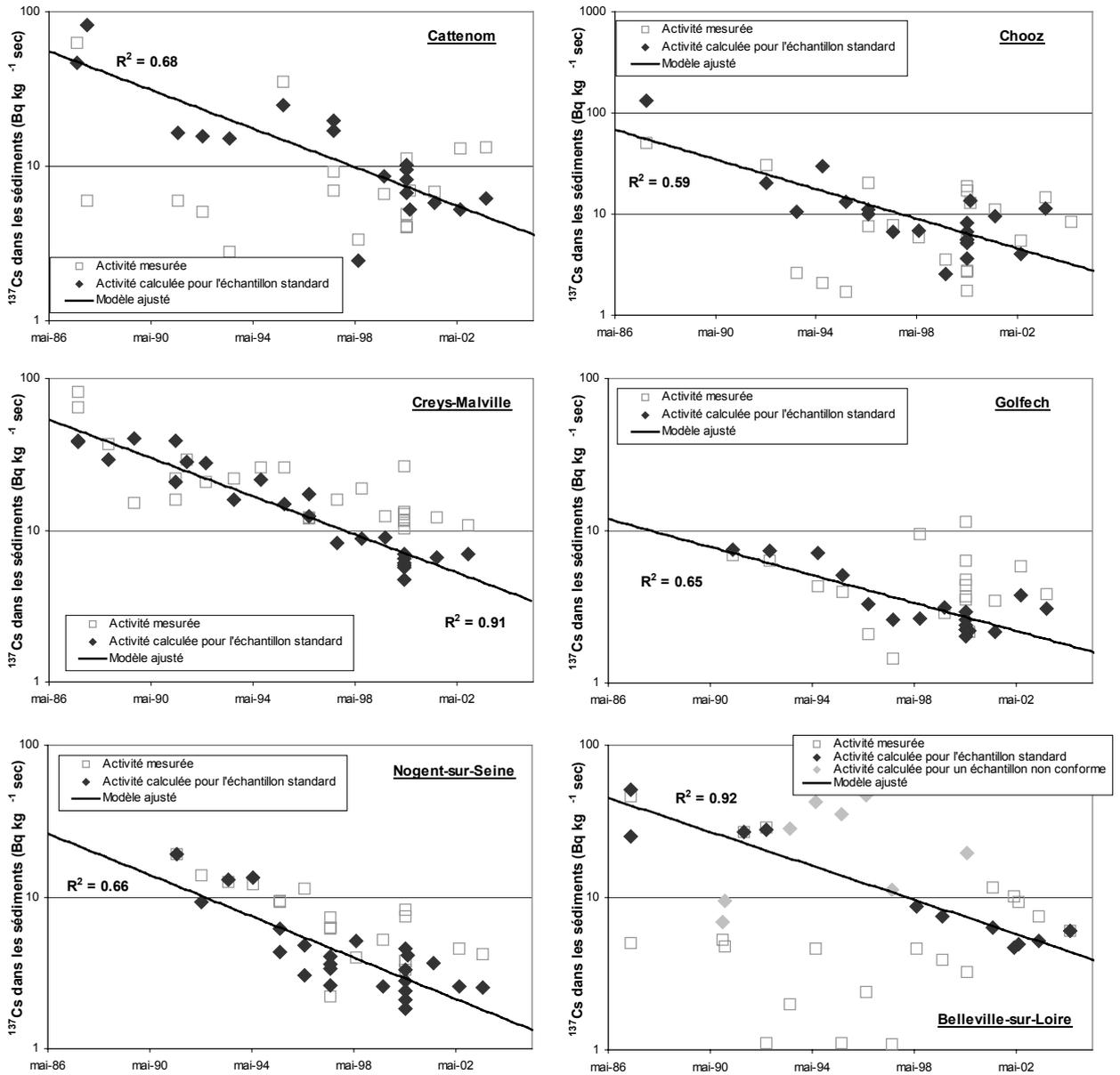
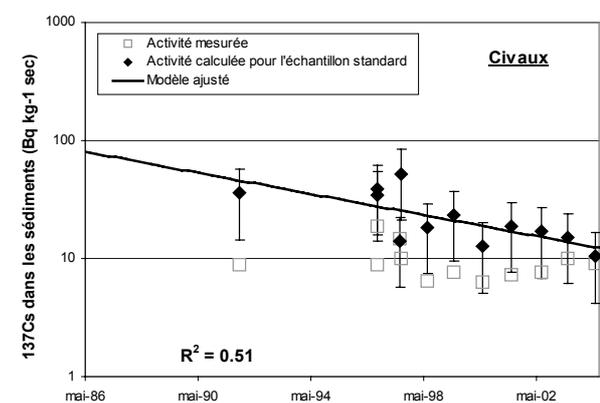
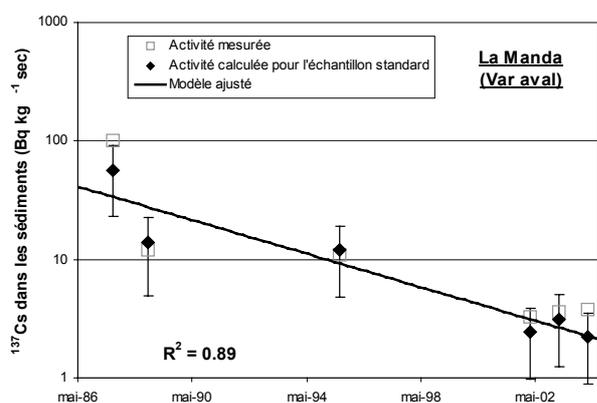
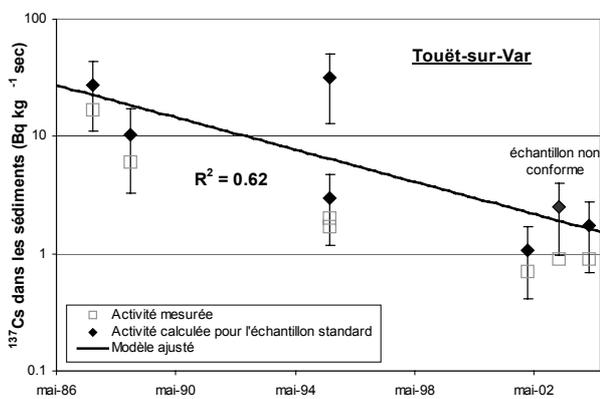
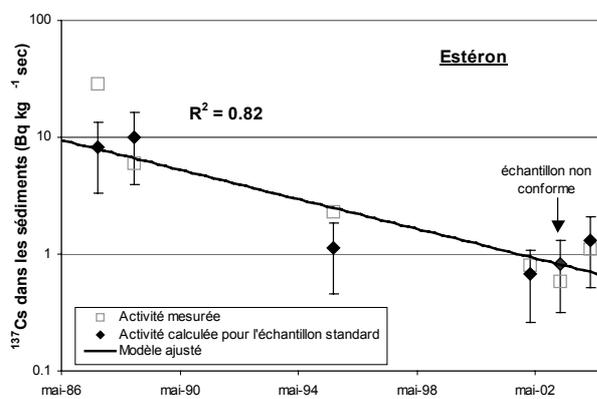
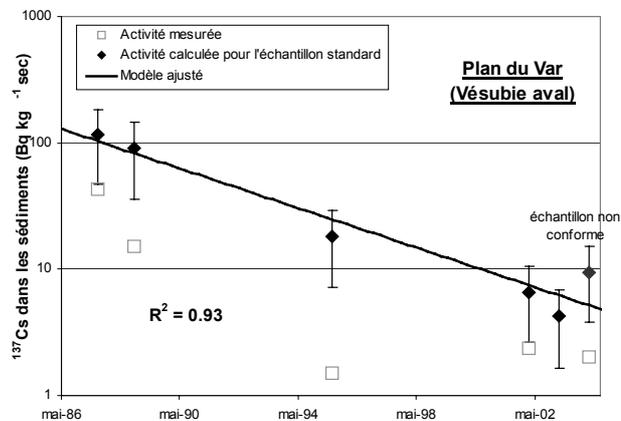
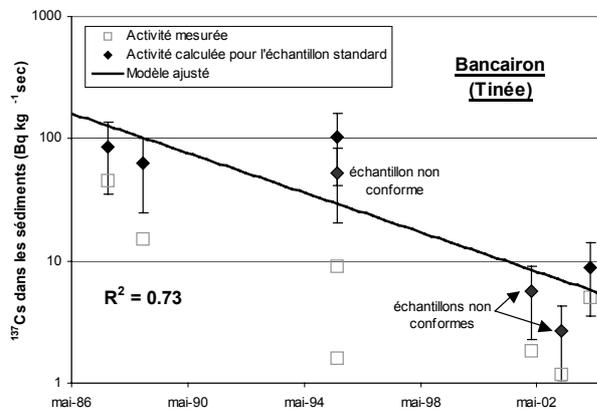


Figure 1 - Ajustement d'une fonction de transfert du sol vers les cours d'eau en amont de sites nucléaires. Données relatives à des sédiments « standard » du point de vue granulométrique.



**Figure 2 - Ajustement d'une fonction de transfert du sol vers les cours d'eau.
Cas du bassin du Var et de la Vienne.
Données relatives à des sédiments « standard » du point de vue granulométrique.**

L'intérêt d'augmenter le nombre de sites d'études sera discuté dans le chapitre suivant. L'analyse succincte des quelques données disponibles sur le bassin du Var et sur le site de Civaux montre toutefois qu'il est préférable de disposer de données peu nombreuses mais anciennes (une ou deux observations antérieures à 1990) que d'une série courte contenant de nombreuses données récentes. Les sites d'études complémentaires potentiels répondant à ces critères sont donc les suivants :

- le lac Léman à Thonon (prélèvements en 1987, 1988 et 1989) ;
- la Besbre (prélèvements en juin 1987)
- différents cours d'eau et lacs en Corse : 40 prélèvements répartis entre juillet 1987 et septembre 1989, certaines stations ayant été échantillonnées à 5 reprises.

3.3. Mise en perspective des résultats obtenus avec les dépôts sur les bassins versants.

L'expression -E 6- qui décrit l'activité du ^{137}Cs dans les sédiments indique que celle-ci évolue en fonction du temps sous la forme d'une droite (cf. Figure 1 et Figure 2) dont l'ordonnée à l'origine (pour $t=0$ au 05/05/1986) a la valeur du produit $[K_D \cdot A_2 \cdot D \cdot \varepsilon]$ et est donc proportionnelle au dépôt moyen sur le bassin versant D (Bq m^{-2}), au K_D ($\text{m}^3 \text{kg}^{-1}$) au coefficient de transfert du dépôt vers le cours d'eau, ε (m^{-1}) et à la part de dépôt impliquée dans le long terme (A_2).

La valeur du paramètre D a été recherchée pour chaque bassin versant, ce qui nécessite tout d'abord de déterminer les surfaces drainées aux différents exutoires considérés. Le travail d'extraction des différents bassins versants a été réalisé à l'aide d'un logiciel de Système d'Information Géographique (ArcInfo v8.3). Deux bases de données géographiques ont été utilisées :

- BdAlti® de l'IGN (Institut Géographique National) pour le territoire métropolitain ;
- SRTM-Data (données issues du programme «Shuttle Radar Topography Mission») de l'USGS (U.S. Geological Survey) pour la partie amont du bassin versant du Rhône et la partie aval du bassin versant de la Meuse.

Ces deux bases de données sont en fait des Modèles Numériques de Terrain (MNT) qui décrivent le relief terrestre à partir de cotes d'altitude suivant un réseau régulier : maille de 50 m pour BdAlti® et maille de 3 secondes d'arc (environ 90 m) pour SRTM-Data.

La contamination des surfaces drainées a ensuite été estimée en s'appuyant sur les travaux de Renaud *et al.* (2004) qui proposent une cartographie des dépôts de ^{137}Cs en mai 1986. En raison de la taille des sous bassins versants du Var, il est apparu nécessaire d'augmenter la résolution du maillage (la maille de 10 km a été amenée à 1 km) sans changer en rien la méthode d'interpolation ni les données d'origine. Cette carte a été extrapolée à la zone belge du bassin versant de la Meuse laquelle suit la frontière. En revanche, la contamination de la zone suisse du bassin versant du Rhône a été reconstituée en s'appuyant sur la carte proposée par la Commission Européenne (CCE, 1998). Les résultats de ces travaux sont présentés sur la Figure 3.

Les caractéristiques des bassins versants étudiés (surfaces, dépôt moyen et dépôt total) sont également rassemblées dans le Tableau 2. On notera que le bassin versant le plus étendu parmi ceux étudiés est celui de la Loire à Belleville, les plus petits sont ceux de la Vésubie et de l'Estéron. Ces deux bassins sont également ceux qui présentent l'activité surfacique moyenne la plus élevée alors que la valeur la plus faible est observée pour la Garonne à Golfech.

La standardisation de l'activité mesurée dans les sédiments permet de réduire considérablement les différences inter-sites qui pourraient être attendues sur le paramètre K_D : après standardisation, seule persiste la variabilité éventuellement liée à la minéralogie et à la physico-chimie des cours d'eau, quantitativement moindre que celle liée à la granulométrie des échantillons. Si la variabilité de $\varepsilon \cdot A_2$ était également faible d'un site à un autre, les valeurs de $K_D \cdot A_2 \cdot D \cdot \varepsilon$ obtenues (ordonnées à l'origine des courbes $\text{Ln}[^{137}\text{Cs}]_{\text{sed}} = f(t)$) seraient proportionnelles à D . Il apparaît (Figure 4) que le dépôt n'explique qu'une partie des valeurs obtenues : le coefficient de corrélation caractérisant la droite de régression de $[K_D \cdot A_2 \cdot D \cdot \varepsilon]$ en D n'est que de 0,43 (après avoir exclu les données relatives à la Vienne à Civaux et à l'Estéron qui apparaissent comme des points « aberrants »).

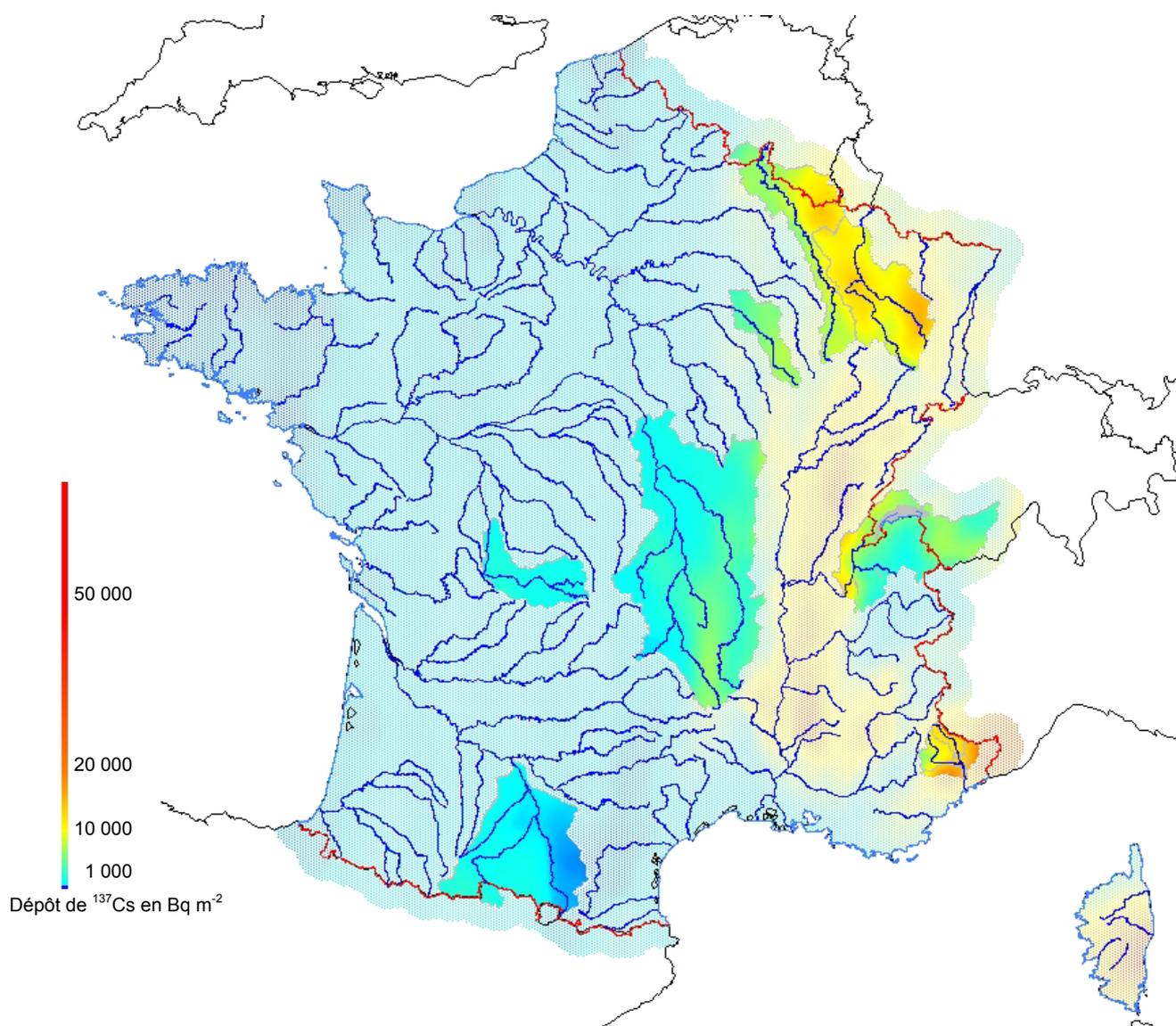


Figure 3 - Dépôts de ^{137}Cs sur les bassins versants étudiés.

Tableau 2 - Caractéristiques des bassins versants étudiés : surface et dépôt de ^{137}Cs en mai 1986.

	Surface (km ²)	Dépôt surfacique (Bq m ⁻²)		Dépôt total (TBq)
		Moyenne	Ecart-type	
Vienne à Civaux	5 630	1 700	190	9,58
Loire à Belleville	34 760	2 800	1 310	97,54
Garonne à Golfech	15 060	1 210	450	18,37
Moselle à Cattenom	10 720	11 160	1 730	120,05
Meuse à Chooz	10 110	8 600	2 200	87,29
Seine à Nogent	3 530	5 610	1 150	19,84
Rhône à Creys-Malville	11 660	5 190	2 370	64,48
Var à La Manda	2 750	12 680	3 090	34,93
Var à Touët	990	9 830	1 760	9,80
Estéron	440	15 260	2 610	6,71
Vésubie	390	16 660	1 960	6,48
Tinée à Bancairon	650	12 170	490	7,93

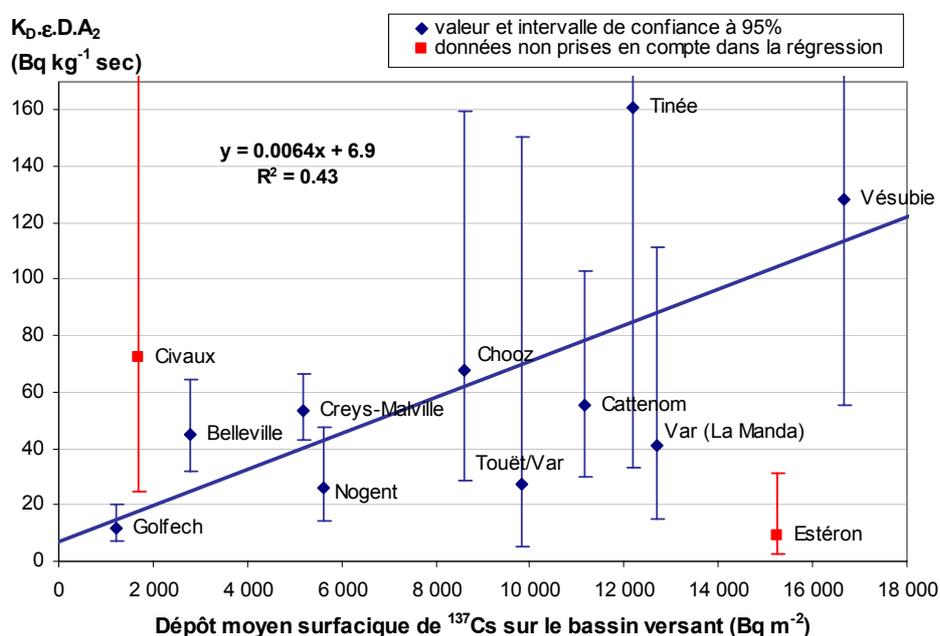


Figure 4 - Relation entre le dépôt surfacique moyen de ^{137}Cs (D) et les valeurs obtenues sur chaque site pour le paramètre $K_D \cdot \varepsilon \cdot D \cdot A_2$ (1).

Il semble donc nécessaire de rechercher les caractéristiques du bassin versant susceptibles d'expliquer la dispersion des valeurs autour de la droite $[K_D A_2 D \varepsilon] = f(D)$. À ce stade, seule la taille du bassin versant peut être avancée comme grandeur explicative. Il semble en effet que le niveau global de la contamination des sédiments des cours d'eau une fois pris en compte le dépôt moyen ($K_D A_2 \varepsilon$) augmente légèrement avec la taille du bassin versant (Figure 5).

(1) L'intervalle de confiance autour de $[K_D A_2 D \varepsilon]$ est calculé en prenant l'exponentielle des bornes de l'intervalle de confiance autour de l'ordonnée à l'origine des droites $[^{137}\text{Cs}]_{\text{sed}} = f(t)$. Ceci explique sa largeur et sa dissymétrie sur une échelle arithmétique.

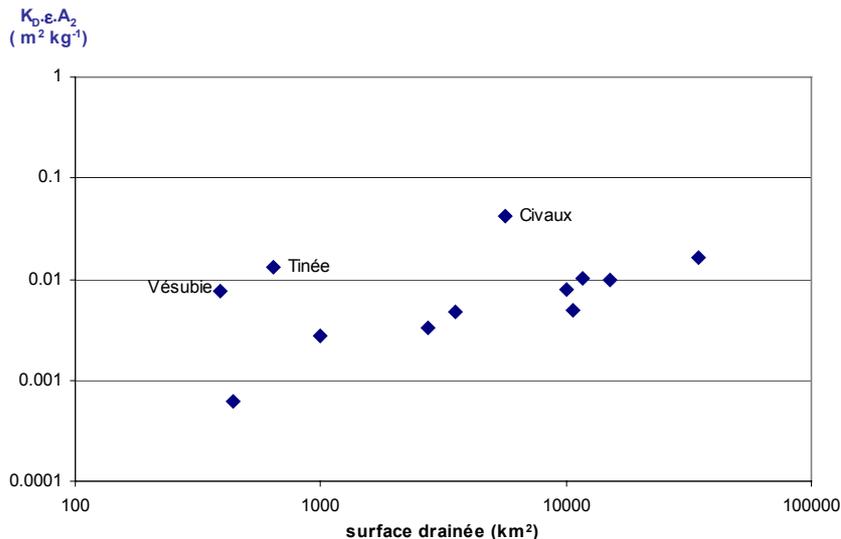


Figure 5 - Rapport entre l'activité dans les sédiments à l'exutoire en 1986 ($Bq \cdot kg^{-1} \cdot sec$) et l'activité surfacique déposée en 1986 ($Bq \cdot m^{-2}$) en fonction de la taille du bassin versant.

3.4. Synthèse et discussion.

À ce jour, des connaissances sont disponibles sur la dynamique d'élimination du ^{137}Cs déposé au sol suite à l'accident de Tchernobyl via 8 cours d'eau français, étudiés en 12 stations distinctes correspondant à 12 bassins versants de 400 à 35 000 km². La cinétique de disparition du radionucléide varie au maximum d'un facteur 2 d'un site à un autre. Elle est caractérisée par des périodes de disparition (hors élimination physique) comprises approximativement entre 4 et 8 ans. L'estimation de ces périodes tend à s'allonger avec la durée de l'étude, ce qui traduit une imperfection du modèle et pourra justifier, à terme, de chercher à caractériser une composante du flux sur le très long terme en choisissant une date de coupure entre moyen et long terme.

Les facteurs susceptibles d'expliquer les variations de la cinétique d'élimination du ^{137}Cs par les cours d'eau sont à rechercher dans les caractéristiques des surfaces drainées. Il en est de même pour le paramètre permettant d'expliquer le niveau global de la contamination de chaque cours d'eau, lequel n'est pas expliqué uniquement par le dépôt moyen sur le bassin versant. La taille du bassin versant semble intervenir : le niveau global de la contamination du cours d'eau tend à augmenter avec la taille du bassin versant. Les autres facteurs influents sont encore inconnus.

Smith *et al.* (1998 ; 2002) ont cherché à établir des corrélations entre le niveau global de la contamination résiduelle de 27 lacs de Cumbria en 1990 et les caractéristiques paysagères de leurs bassins versants (de 0,15 à 180 km²). La proportion de sols organiques (type tourbière) sur le bassin versant (identifiée par trois types de paysages) semble expliquer à elle seule 90% de la variabilité observée dans l'activité résiduelle mesurée dans les lacs. Il est peu envisageable d'étendre ce résultat à l'échelle de la France en raison de la faible représentation de ce type de sol sur notre territoire. Néanmoins, une approche similaire pourrait être testée en s'intéressant à d'autres caractéristiques du sol, comme celles disponibles auprès de l'INRA (<http://www.inra.fr/Internet/Hebergement/afes/snas/index.html>) et rassemblées dans la synthèse nationale des analyses de terres issue des travaux de Walter *et al.* (1995 ; 1997). Ces caractéristiques sont par exemple le pH, la texture du sol (teneur en argiles notamment), sa teneur en matière organique, etc... Si les données rassemblées par l'INRA ne couvrent pas la totalité du territoire national (Figure 6), elles peuvent néanmoins servir de base à une interpolation sur certains bassins versants.

Il est raisonnable de supposer qu'il existe un continuum entre le sol et les exutoires (Debayle, 2002) : la cinétique de disparition du ^{137}Cs dans la rivière est une moyenne des cinétiques de disparition de ce radionucléide dans les sols du bassin versant. Par conséquent, les études portant sur la migration du césium dans le sol devraient permettre d'identifier les caractéristiques de ce compartiment influençant la mobilité du radionucléide. L'approche bassin versant-exutoire est complémentaire à ce type d'étude ; elle permet de s'assurer de la sensibilité du mécanisme ainsi identifié à grande échelle et fournit une valeur moyenne de la période de disparition du césium par migration horizontale.

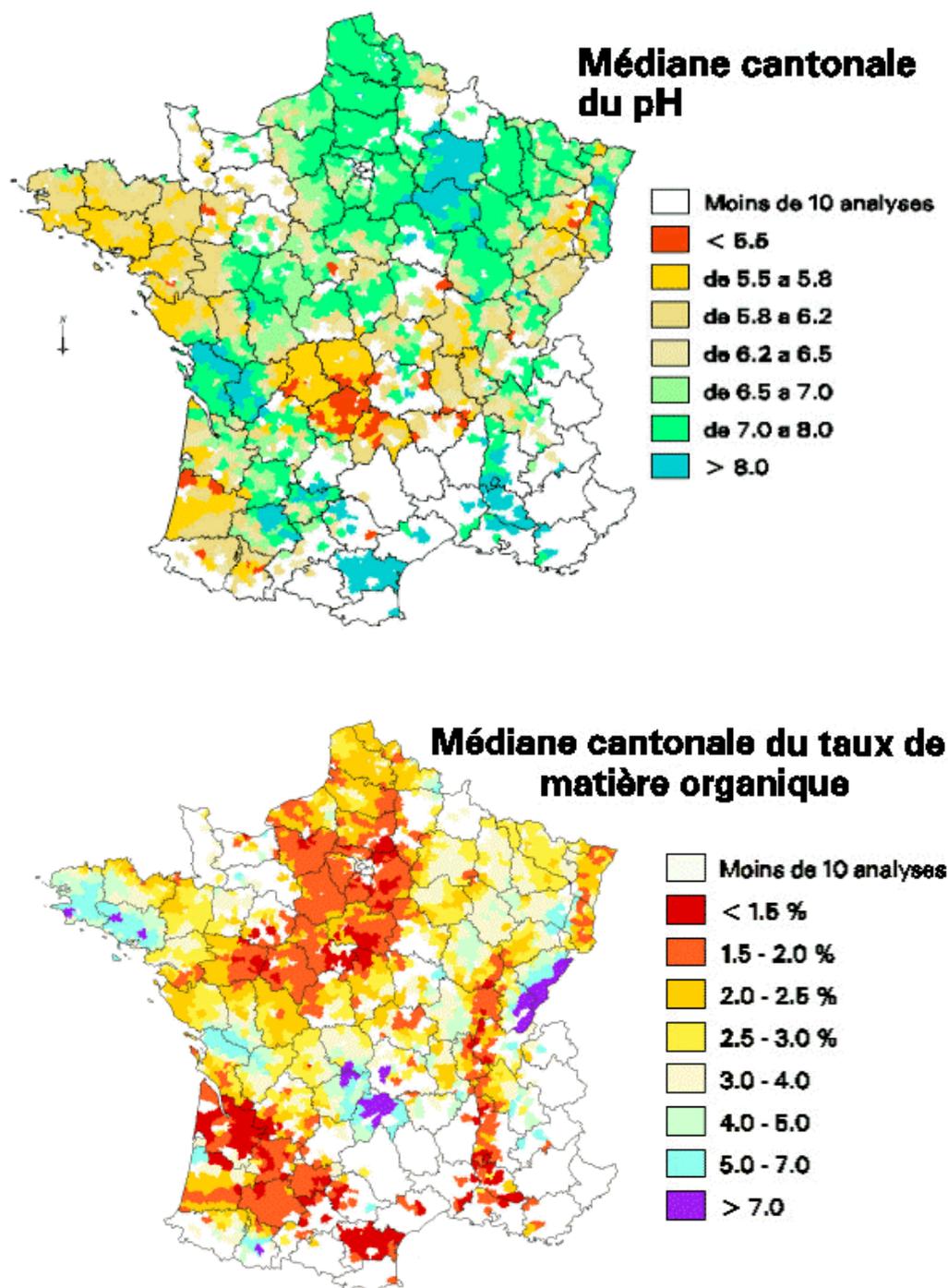


Figure 6 - Cartes de la distribution de quelques caractéristiques du sol tirées de la synthèse nationale des analyses de terres (Walter et al. 1995 ; 1997).

4. VARIABILITE AUTOUR DE LA TENDANCE GENERALE : INFLUENCE DU DEBIT SUR L'ACTIVITE DISSOUE ET LES INDICATEURS BIOLOGIQUES.

Les résultats présentés au chapitre précédent montrent que la tendance générale d'évolution de l'activité des cours d'eau est connue et ouvrent des pistes pour mieux comprendre / prédire le niveau global de contamination des cours d'eau par le ^{137}Cs . Les paragraphes qui suivent sont consacrés à l'étude de l'influence des variations saisonnières du débit du cours d'eau sur la remobilisation du césium : lors d'un épisode de pluie important sur le bassin versant, engendrant une crue dans le cours d'eau, quel est le phénomène prépondérant ? une dilution de la radioactivité dans la rivière ou au contraire une remobilisation du radionucléide présent dans les sols ? Si une crue provoque un flux important de radionucléide de l'amont vers l'aval du cours d'eau, cette migration se fait-elle par entraînement de matières solides contaminées ou/et par élévation des concentrations dans les phases solides et liquides ? Pour répondre à ces questions, des indicateurs biologiques à réponse « rapide » ont été étudiés et les résultats obtenus ont été confrontés à ceux obtenus sur le compartiment « eau ».

4.1. Étude des végétaux aquatiques (amont de Creys-Malville et de Chooz).

Afin de pouvoir étudier l'influence des variations de l'activité du ^{137}Cs dissous sur l'activité des plantes aquatiques, il est nécessaire d'évaluer préalablement le temps de réponse de l'organisme (cf. §2.4). Ceci se fait en recherchant quelle période de calcul de l'activité moyenne théorique du césium dans l'eau permet d'observer un optimum dans la corrélation entre cette activité moyenne théorique de l'eau et celle des végétaux. Pour cela, on observe l'allure des corrélogrammes $R^2=f(\tau)$ où τ est la période précédant les prélèvements sur laquelle est calculé le débit moyen et donc l'activité moyenne de l'eau et R^2 est le coefficient de corrélation obtenu en ajustant l'équation - E 7- (p. 8) aux activités en ^{137}Cs mesurées dans les végétaux.

Les paramètres du modèle de drainage ($A=\alpha_2-1$, $B=\lambda_2+\lambda_r$ et $C=\text{Ln}[FC \varepsilon D \beta_2 A_2]$) sont alors estimés pour cet optimum. Les valeurs obtenues pour λ_2 doivent être comparables à celles estimées à l'aide des données sur les sédiments (période de disparition du ^{137}Cs dans le cours d'eau par migration horizontale). Les valeurs de $[FC \varepsilon D \beta_2 A_2]$ sont à rapprocher du terme $[K_D A_2 D \varepsilon]$ obtenu pour les sédiments, lequel est un indicateur du niveau global de contamination du cours d'eau. Le paramètre α_2 permet de savoir comment les variations de débit influencent l'activité de la fraction dissoute.

Les résultats obtenus pour une plante immergée, la myriophylle (*Myriophyllum spicatum*) montrent que celle-ci a un temps de réponse voisin de 10 jours et que son activité varie de façon quasi inversement proportionnelle au débit du cours d'eau (Figure 7). Ceci se traduit par $\alpha_2-1 = -0,56$. Le débit apparaît bien comme un facteur de dilution de la radioactivité dissoute dans le cours d'eau. La corrélation est bonne ($R^2 = 0,68$ pour le débit moyenné sur les dix jours précédant le prélèvement avec 22 observations) et la cinétique de disparition du césium par migration horizontale obtenue avec le modèle complet est cohérente avec celle estimée pour le Rhône avec les sédiments ($T = 5,0$ ans ici contre 5,7 ans pour les sédiments). Par ailleurs, ces résultats sont confirmés par les données acquises sur les mousses aquatiques (*Cinclidotus sp.*, Figure 8). Ce type d'organisme ne permet pas de discerner clairement un temps de réponse, d'autant plus que le nombre d'observations est encore faible (11 données). Un optimum de corrélation étant observé pour le débit au jour du prélèvement, c'est cette corrélation qui est étudiée ($R^2 = 0,63$). Elle confirme que le débit est un facteur de dilution de la radioactivité dissoute dans la rivière ($\alpha_2-1 = -0,30$). La cinétique de disparition du césium par migration horizontale obtenue avec les mousses aquatiques est cohérente avec celles déjà mises en évidence pour les autres indicateurs ($T = 7,2$ ans).

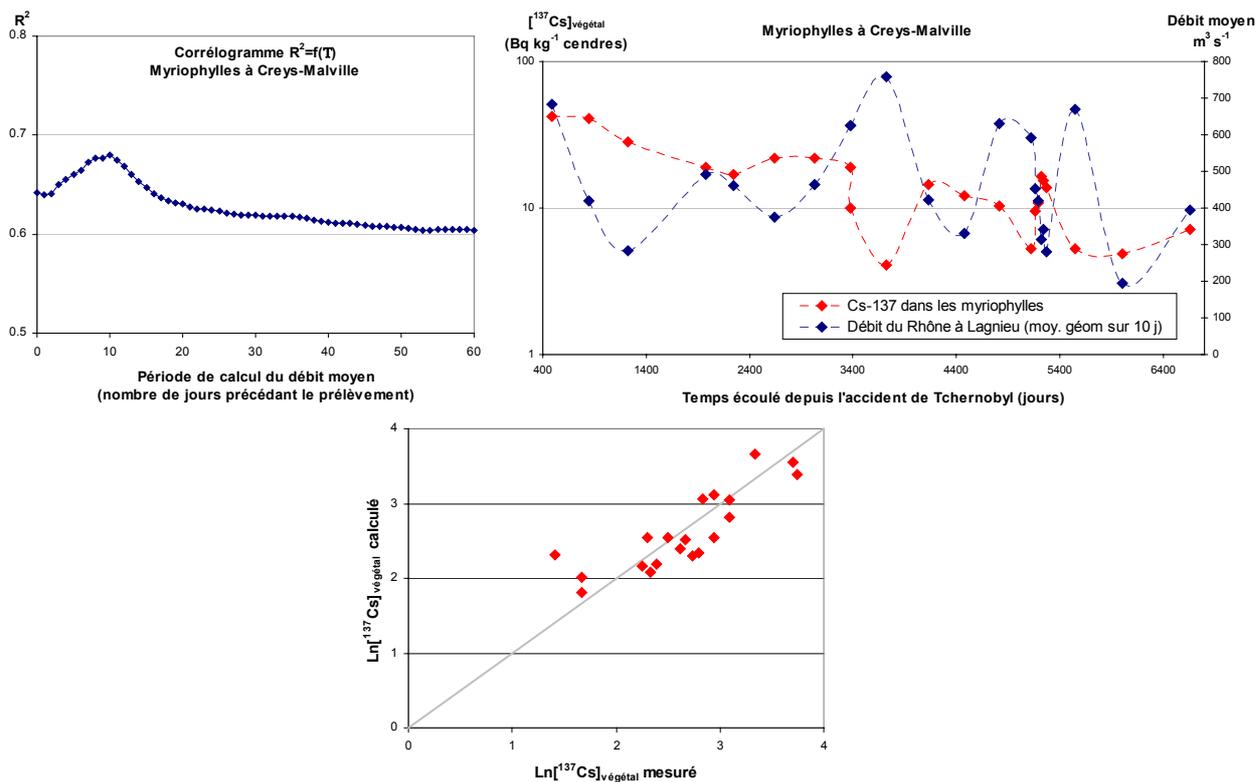


Figure 7 - Ajustement du modèle de drainage du bassin versant du Rhône à Creys-Malville à l'aide de données relatives aux myriophylles.

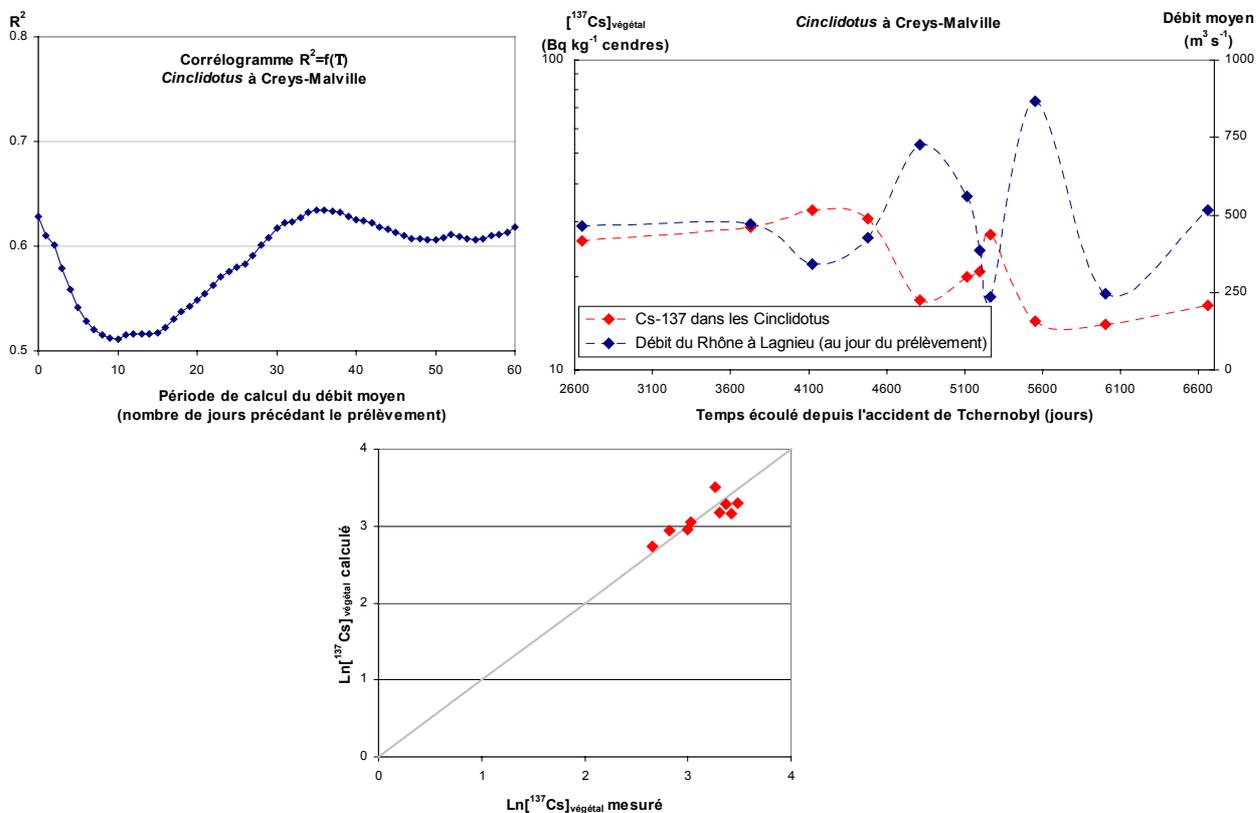


Figure 8 - Ajustement du modèle de drainage du bassin versant du Rhône à Creys-Malville à l'aide de données relatives aux mousses aquatiques.

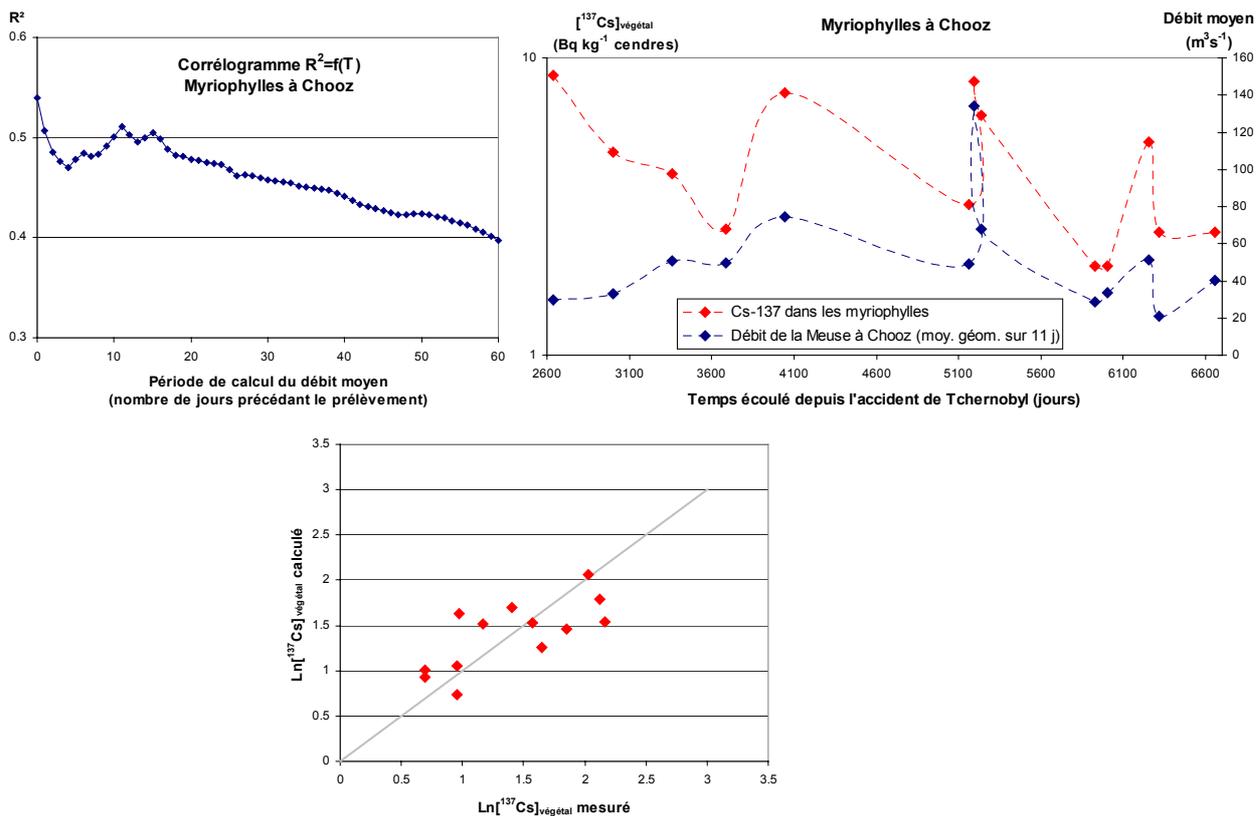


Figure 9 - Ajustement du modèle de drainage du bassin versant de la Meuse à Chooz à l'aide de données relatives aux myriophylles.

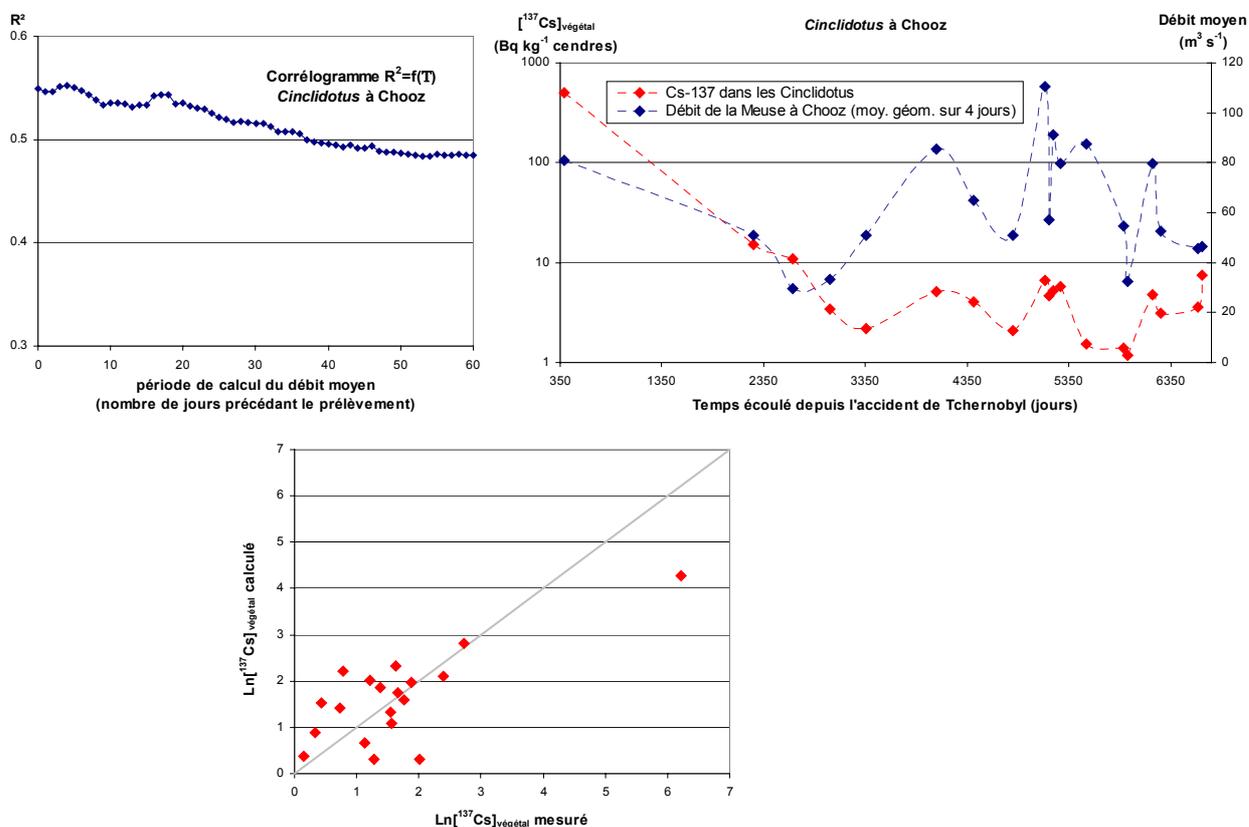


Figure 10 - Ajustement du modèle de drainage du bassin versant de la Meuse à Chooz à l'aide de données relatives aux mousses aquatiques.

Afin de voir si les résultats obtenus sur le haut Rhône sont généralisables, l'étude conduite à Creys-Malville a été reproduite sur un autre site, la Meuse en amont de Chooz. Les résultats de ce travail restent à confirmer en raison d'un nombre encore restreint d'observations sur un site où la variabilité apparaît plus forte que sur le Rhône (13 observations sur les myriophylles et 19 sur les mousses aquatiques). En ce qui concerne les myriophylles (Figure 9), le temps de réponse n'apparaît pas aussi clairement qu'à Creys-Malville : la corrélation optimale est observée avec le débit au jour du prélèvement. Néanmoins, un second « pic » de corrélation apparaît pour le débit moyenné sur les 11 jours précédents le prélèvement, qui pourrait être rapproché de ce qui a été observé à Creys. Cette corrélation ($R^2 = 0,51$) permet d'obtenir une période de disparition du ^{137}Cs par migration horizontale relativement cohérente, de 8,1 ans (contre 4,8 ans avec les sédiments sur ce même site), et montre que les augmentations du débit du cours d'eau sont concomitantes avec des élévations de la radioactivité des phanérogames et donc de la fraction dissoute ($\alpha_2-1 = 0,58$). Ce type de résultat est confirmé pour les mousses aquatiques (avec le débit moyenné sur 4 jours) avec une corrélation également assez faible ($R^2 = 0,55$, Figure 10). Le traitement de cette série de données conduit aux valeurs de paramètres suivantes : $T = 3,1$ ans et $\alpha_2-1 = 0,94$.

En terme de flux dissous, la différence observée entre Creys-Malville et Chooz se traduit de la manière suivante : le flux de radionucléide dissous sera presque indépendant du débit sur le haut Rhône (quasiment identique en étiage et en crue) alors qu'à Chooz, les crues provoquent une forte élévation du flux de radionucléide dissous. Cette différence est sans doute à rattacher aux caractéristiques des bassins versants et notamment à la nature des sols drainés.

Ce type de résultat peut être confirmé par une étude sur la radioactivité présente en phase dissoute conduite sur un cycle hydrologique (afin de pouvoir négliger la décroissance d'activité sur le long terme) en effectuant des mesures pour différentes gammes de débits. C'est ce qui fera l'objet du chapitre suivant.

4.2. Étude du compartiment « eau » en amont de Creys-Malville.

4.2.1. Objectifs et méthode.

L'objectif de ce travail est donc de confirmer les résultats obtenus avec les indicateurs biologiques, mais également de fournir une valeur attendue pour la radioactivité dissoute, qui permet de quantifier les paramètres K_D et FC. Ces valeurs sont indispensables pour expliciter complètement les paramètres du modèle de drainage ajusté sur les sédiments et les végétaux.

La difficulté réside dans le niveau de radioactivité du ^{137}Cs dissous en amont de toute installation nucléaire, inférieur aux limites usuelles de détection, lesquelles sont voisines de 0,5 à 1 mBq l^{-1} (pour les chroniques OPERA). Cette difficulté a été contournée grâce à une mise au point méthodologique (Debayle, 2002) s'appuyant sur les travaux de Roos *et al.* (1994) et d'Eyrolle & Masson (2001). Le protocole retenu consiste à prélever par pompage un volume d'eau de 800 à 1000 litres. L'échantillon prélevé passe immédiatement sur un filtre (Millipore) de porosité nominale de 0,50 μm puis sur deux cartouches en coton tressé imprégnées de $\text{Cu}_2[\text{Fe}(\text{CN})_6]$ de porosité initiale égale à 1 μm . Le recours à deux cartouches imprégnées montées en série a pour but de permettre le calcul d'un rendement de fixation du césium.

De fait, dans la gamme d'activité rencontrée en amont de Creys-Malville (0,03 à 0,16 mBq l^{-1}), la seconde cartouche n'a jamais permis de mesurer la présence significative de ^{137}Cs . Il en a été déduit que le rendement de fixation pouvait être considéré égal à 100%. Des résultats obtenus plus récemment à Arles avec le même

protocole (Eyrolle, communication personnelle) tendent à indiquer que cette hypothèse est approximativement valide (rendements effectifs supérieurs à 90%).

4.2.2. Résultats : relation entre les activités dissoute et particulaire dans l'eau et le débit.

Les résultats obtenus se présentent sous la forme de couples de valeurs relatives à l'activité présente dans la phase particulaire, $[^{137}\text{Cs}]_{\text{MES}}$, et à celle présente dans la phase dissoute, $[^{137}\text{Cs}]_{\text{eau}}$, auxquels est associée une valeur de débit du Rhône (moyenne des débits horaires durant les 4 à 6 heures de prélèvement).

Comme en témoignent les indicateurs végétaux, l'activité volumique du ^{137}Cs dissous en amont de Creys-Malville diminue lorsque le débit augmente (Figure 11). Il en est de même pour l'activité massique de la fraction particulaire. L'ajustement d'une fonction puissance à ces données est possible ($R^2 = 0,60$ et $0,55$ pour 12 et 13 observations respectivement pour les fractions dissoute et particulaire). Cet ajustement correspond à une simplification de l'équation -E 2- qui devient :

$$C_w(t) = \varepsilon \cdot D \cdot \beta_i \cdot Q(t)^{\alpha_2 - 1} \cdot A_2 \cdot L_2 \quad \text{-E 10-}$$

la décroissance de l'activité dans l'eau par migration horizontale étant considérée comme négligeable à l'échelle de temps considérée : 21 mois séparent le premier prélèvement du dernier. Le terme L_2 est donc une constante dont la valeur est voisine de $\exp[-(\lambda_2 + \lambda_r)T]$ où T est le temps moyen écoulé depuis l'accident de Tchernobyl (moyenne sur la période d'étude).

Une valeur de $-0,79 \pm 0,46$ est obtenue pour le terme $\alpha_2 - 1$ pour la fraction dissoute. Elle est comparable à celles observées avec les myriophylles et les mousses aquatiques ($-0,56$ et $-0,30$ respectivement) et constitue donc bien la confirmation attendue : le débit est un facteur de dilution global de la radioactivité du ^{137}Cs dans le Rhône, qu'il soit dissous ou particulaire.

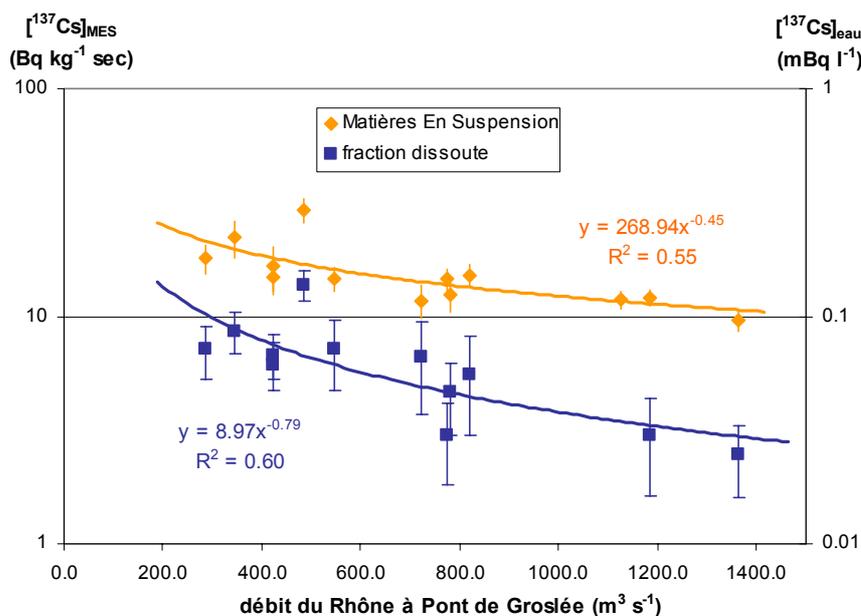


Figure 11 - Évolution de l'activité du ^{137}Cs dans l'eau du Rhône à Pont de Groslée en fonction du débit entre le 07/02/2001 et le 25/11/2002.

La détermination de la valeur du paramètre K_D peut se faire en calculant la moyenne du rapport $[^{137}\text{Cs}]_{\text{MES}}/[^{137}\text{Cs}]_{\text{eau}}$. Celle-ci s'élève à $284 \pm 52 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1} \text{ sec}$. Néanmoins, il convient également de s'assurer que le calcul de cette moyenne a effectivement un sens, à savoir que l'activité dans la fraction particulaire est bien proportionnelle à celle de la fraction dissoute. Cette proportionnalité est vérifiée en effectuant une régression linéaire dont la linéarité apparaît satisfaisante ($R^2 = 0,82$, Figure 12). La pente de la droite de régression est de $159 \pm 53 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1} \text{ sec}$ et l'ordonnée à l'origine, significativement supérieure à zéro, est de $6 \pm 4 \text{ Bq kg}^{-1} \text{ sec}$. L'obtention de cette relation est cohérente : dans le cas du ^{137}Cs provenant d'un dépôt sur le sol, il s'établit, depuis le compartiment sol, un régime stationnaire d'alimentation du cours d'eau en ^{137}Cs . Seuls des apports exogènes de ^{137}Cs ou de tout autre élément chimique influent sont susceptibles de modifier l'équilibre observé. L'obtention d'une valeur non nulle à l'origine, pour $[^{137}\text{Cs}]_{\text{eau}} = 0$, peut être expliquée par l'existence d'une fraction de ^{137}Cs irréversiblement fixée dans les particules de sol.

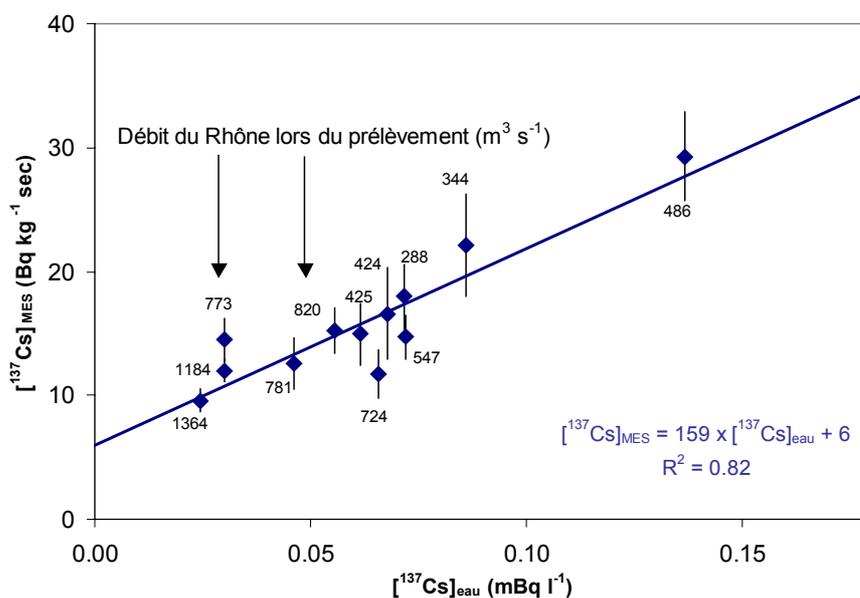


Figure 12 - Évolution de l'activité du ^{137}Cs particulaire en fonction de l'activité du ^{137}Cs dissous dans le Rhône à Pont de Groslée.

Afin de savoir si ces valeurs sont généralisables, il est nécessaire d'étendre l'étude sur l'eau à un autre site. Ce travail est actuellement tenté sur la Meuse à Chooz, mais deux années consécutives de basses eaux chroniques jointes à la difficulté de réagir rapidement en raison d'un délai de route de 10 heures (Cadarache-Chooz) n'ont pas permis de travailler sur la gamme complète de débit allant de la crue à l'étiage.

4.2.3. Essai d'utilisation des résultats pour expliciter les paramètres du modèle de drainage.

L'ajustement du modèle de drainage aux données sur les sédiments et les végétaux a permis de quantifier certains des paramètres de ce modèle : la cinétique d'élimination du césium par migration horizontale et le poids du débit dans le drainage (dilution en cas de valeur négative ou au contraire lessivage des sols en cas de valeur positive). Néanmoins, à ce stade, le niveau global de contamination de l'eau du cours d'eau (ordonnée à l'origine du modèle, $A_2 \varepsilon$) reste connu seulement à une constante près (K_D ou FC).

Afin d'expliciter ce paramètre pour l'étude concernant les sédiments, il n'est pas possible d'utiliser directement la valeur du K_D mise en évidence dans le paragraphe précédent (§ 4.2.2), car celle-ci se rapporte à une fraction effectivement en suspension, laquelle est vraisemblablement plus fine et argileuse que le sédiment standard composé de 12% d'argiles et de 20% de limons fins.

En revanche, il est possible de calculer la valeur moyenne de l'activité de l'eau (fraction dissoute) en ^{137}Cs en 2001-2002 pour le débit modal du Rhône à Pont de Groslée ($329 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$) à l'aide de l'équation -E 10- et des paramètres ajustés pour les données sur l'eau (Figure 11) :

$$C_w(t) = 8,97 \cdot \bar{Q}^{-0,79} = 8,97 \cdot 329^{-0,79} \quad \text{-E 11-}$$

La valeur obtenue par cette méthode, qui peut être assimilée à l'activité moyenne de l'eau du Rhône en 2001-2002, est de $0,09 \text{ mBq l}^{-1}$. En utilisant l'équation -E 6- (modèle de drainage adapté aux sédiments) paramétrée pour le site de Creys-Malville (Tableau 1), on peut calculer l'activité théorique du sédiment standard au 01/01/2002, soit $t=5720$:

$$C_{\text{sed.std}}(t) = K_D \cdot \varepsilon \cdot D \cdot A_2 \cdot e^{-(\lambda_2 + \lambda_r) \cdot t} = 54 \cdot e^{-\left(\frac{\ln(2)}{5,7} + \frac{\ln(2)}{30,2}\right) \cdot 5720} \quad \text{-E 12-}$$

Elle est de $5,5 \text{ Bq kg}^{-1} \text{ sec}$. Le rapport entre ces deux valeurs conduit à un K_D de $19 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1} \text{ sec}$, près de 100 fois inférieur à celui estimé pour les MES. Cet écart est cependant à relativiser fortement : la valeur de l'activité en ^{137}Cs du sédiment, attendue pour $0,09 \text{ mBq l}^{-1}$ avec un K_D de 159 est $14,2 \text{ Bq kg}^{-1} \text{ sec}$. Or, d'après l'équation -E 9-, le passage de $5,5$ à $14,2 \text{ Bq kg}^{-1} \text{ sec}$ correspond seulement à un enrichissement du sédiment en particules fines l'amenant par exemple à 50% d'argiles et 50% de limons fins (contre respectivement 12% et 20% pour le sédiment standard). Ce calcul explique au moins partiellement la gamme de variation des valeurs de K_D pour le césium, laquelle s'étend de 2 à $20\,000 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1} \text{ sec}$ (Fournier-Bidoz & Garnier-Laplace, 1994).

On retiendra donc la valeur de $19 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1} \text{ sec}$ comme valeur de K_D pour le sédiment standard étudié à Creys-Malville. Cette valeur permet notamment d'expliciter en partie le paramètre agrégé $A_2 \varepsilon$ dont les valeurs ont été discutées au § 3.3 : $A_2 \varepsilon$ est compris entre $4 \cdot 10^{-4}$ et $7 \cdot 10^{-4} \text{ m}^{-1}$ (fourchette établie en ne considérant que l'incertitude sur la valeur de $[K_D D A_2 \varepsilon]$ ajustée par régression linéaire, donc en négligeant celles sur les estimations de K_D et D). On notera que les valeurs proposées par Smith *et al.* (2002) pour ce même paramètre sont comprises entre $3 \cdot 10^{-3}$ et $5 \cdot 10^{-2} \text{ m}^{-1}$ mais que ces auteurs suggèrent des valeurs de $2 \cdot 10^{-4}$ à $2 \cdot 10^{-3}$ pour la composante « très long terme » du flux (cf. § 2.2, p.7). Il apparaît donc correct que les données présentées, qui sont relatives au moyen à long terme conduisent à une valeur intermédiaire entre celles données par Smith *et al.* (2002).

Ce type de calcul, tout à fait théorique et exploratoire a été conduit ici pour montrer qu'il était possible de décomposer les valeurs obtenues pour les paramètres agrégés du modèle. Ceci permet *in fine* d'obtenir des valeurs de K_D et de $A_2 \varepsilon$ comparables aux données fournies dans la bibliographie. De même, un tel calcul pourrait être effectué - mais avec une précision nettement moindre encore - en utilisant les données relatives aux végétaux aquatiques. Cependant, compte tenu du nombre d'approximations faites et des incertitudes sur chaque donnée élémentaire, il apparaît nécessaire de renouveler l'expérience conduite sur l'eau du Rhône à Creys-Malville pour vérifier notamment la validité du concept du K_D pour les sédiments de fond, avant de commenter plus largement les résultats obtenus.

5. SYNTHÈSE ET PERSPECTIVES.

Le travail présenté dans ce document a pour fil conducteur un modèle opérationnel décrivant le drainage des radionucléides, lequel a été sélectionné à partir d'une synthèse bibliographique. Ce modèle fournit une expression du flux de radionucléide dissous dans un cours d'eau en fonction du débit de la rivière et de l'activité déposée sur le bassin versant lors d'un apport pouvant être considéré comme instantané.

Afin de caler ce modèle pour le ^{137}Cs issu de l'accident de Tchernobyl et les principaux cours d'eau français, des séries de données rendant compte de l'évolution temporelle de l'activité du ^{137}Cs dans l'eau sont nécessaires. La difficulté inhérente à la mesure de ce radionucléide dans l'eau a conduit à appréhender son activité au travers de celle, plus aisément mesurable, des sédiments et des plantes aquatiques. Des mesures sur ces indicateurs, en amont de tout rejet d'effluents industriels, sont en effet disponibles dans la base de données SYLVESTRE. Une bonne partie d'entre elles ont été réalisées depuis 1991 dans le cadre du suivi annuel des centrales électronucléaires françaises. Le modèle de drainage est donc calé essentiellement sur ces données à un facteur multiplicatif près (ce facteur étant un K_D ou un FC). Ceci nécessite cependant quelques adaptations préalables : le K_D étant dépendant des caractéristiques granulométriques des échantillons de sédiments, une standardisation de leur activité sur des critères granulométriques doit être effectuée. Pour les végétaux aquatiques, il est nécessaire de rechercher leur temps de réponse avant de pouvoir caler le modèle.

Les résultats obtenus, sur les plantes comme sur les sédiments, indiquent que pour les grands cours d'eau français, l'activité du ^{137}Cs en milieu aquatique diminue depuis 1987 avec une période effective de 4 à 7 ans. Ces valeurs ne peuvent être comparées aux données relatives à d'autres cours d'eau uniquement si la période d'étude est approximativement identique. En effet, le modèle retenu exprime le flux de radionucléide transitant dans la rivière comme une somme de fonctions de transfert dont chaque terme correspond à un phénomène différent, il n'est possible d'effectuer des comparaisons que terme à terme d'un cours d'eau à un autre.

Si le niveau de contamination de chaque cours d'eau dépend de la contamination moyenne du bassin versant (dépôt moyen en Bq m^{-2}), il semble que ce niveau soit également influencé par d'autres paramètres comme la taille du bassin versant, voire certaines caractéristiques des sols drainés. Cette partie de l'étude reste à approfondir, ce qui est encore possible en élargissant le nombre de sites d'étude. Ceci peut se faire en s'intéressant à des sites qui ont fait l'objet d'études dans les années 88-90 comme le Rhône à Thonon, la Besbre ou différents cours d'eau et lacs de Corse. Afin de confirmer ou pas le rôle de la taille du bassin versant, il est également envisagé de s'intéresser à différents lacs du Mercantour (même altitude mais surfaces drainées de taille différentes) ainsi qu'aux autres sites du Rhône faisant l'objet d'un suivi annuel depuis 1991 : les environs des cinq CNPE du Rhône. Ce travail nécessitera cependant de dégager convenablement le poids des rejets d'effluents de ces installations.

Cette partie de l'étude rejoint enfin les travaux menés au LERCM sur la migration des radionucléides dans les sols : un travail au niveau de zones ateliers de faible dimension devrait permettre d'identifier des mécanismes influant sur la mobilité des radionucléides dans les sols, dont le poids peut ensuite être modulé à l'échelle du bassin versant.

En ce qui concerne les autres paramètres du modèle de drainage, on notera que sur la partie amont du Rhône, les végétaux aquatiques indiquent que le débit joue un rôle de dilution de la radioactivité dissoute, induisant une variabilité autour de la tendance générale à la décroissance évoquée précédemment. Ce résultat ne semble pas généralisable à l'ensemble des sites puisque les données relatives à la Meuse en amont de Chooz témoignent d'une tendance inverse (augmentation de la radioactivité dissoute lorsque le débit augmente).

Une expérience complémentaire effectuée sur l'eau (fraction dissoute et particulaire) durant un cycle hydrologique complet en amont de Creys-Malville a confirmé les résultats précédents relatifs aux modalités d'influence du débit sur l'activité en ^{137}Cs dissoute dans le Rhône. Ce type d'expérience a également permis de montrer l'existence d'un équilibre entre activité dissoute et particulaire, c'est-à-dire de montrer la validité du concept du K_D dans ce cas d'étude (les apports de ^{137}Cs dissous et particulaire depuis le sol se faisant en régime stationnaire) et d'estimer la valeur de ce K_D pour les matières en suspension. Celle-ci est de $159 \pm 53 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1} \text{ sec}$. Enfin, par recoupement avec les données sur l'évolution de l'activité des sédiments, une valeur du K_D pour un sédiment standard contenant 12% d'argiles et 20% de limons est également proposée ($19 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1} \text{ sec}$). De la même façon, des valeurs de facteurs de concentration sont estimées pour les végétaux aquatiques. Toutes ces valeurs permettent *in fine* d'explicitier le paramètre du modèle de drainage décrivant le niveau de contamination du Rhône par les retombées de l'accident de Tchernobyl. La valeur obtenue apparaît cohérente avec les données issues de la littérature.

Ce type d'expérience serait à renouveler sur le même site et à réaliser sur d'autres sites, notamment à Chooz pour confirmer les résultats obtenus sur les plantes aquatiques, mais également pour s'assurer de la validité du concept du K_D comme cela a été fait à Creys-Malville. Ce type d'étude pourrait également fournir des informations intéressantes sur la variabilité de ce paramètre dans le cas d'apports provenant du sol.

6. LISTE DES TABLEAUX

TABLEAU 1 - RESULTATS DE L'AJUSTEMENT DU MODELE DE TRANSFERT DU SOL VERS LES COURS D'EAU A L'AIDE DE DONNEES SUR DES SEDIMENTS « STANDARDS »	11
TABLEAU 2 - CARACTERISTIQUES DES BASSINS VERSANTS ETUDIES : SURFACE ET DEPOT DE ¹³⁷ CS EN MAI 1986.....	16

7. LISTE DES FIGURES

FIGURE 1 - AJUSTEMENT D'UNE FONCTION DE TRANSFERT DU SOL VERS LES COURS D'EAU EN AMONT DE SITES NUCLEAIRES. DONNEES RELATIVES A DES SEDIMENTS « STANDARD » DU POINT DE VUE GRANULOMETRIQUE.....	12
FIGURE 2 - AJUSTEMENT D'UNE FONCTION DE TRANSFERT DU SOL VERS LES COURS D'EAU. CAS DU BASSIN DU VAR ET DE LA VIENNE. DONNEES RELATIVES A DES SEDIMENTS « STANDARD » DU POINT DE VUE GRANULOMETRIQUE.....	13
FIGURE 3 - DEPOTS DE ^{137}Cs SUR LES BASSINS VERSANTS ETUDIES.	15
FIGURE 4 - RELATION ENTRE LE DEPOT SURFACIQUE MOYEN DE ^{137}Cs (D) ET LES VALEURS OBTENUES SUR CHAQUE SITE POUR LE PARAMETRE $K_D \cdot \rho_s \cdot D \cdot A_2^{(1)}$	16
FIGURE 5 - RAPPORT ENTRE L'ACTIVITE DANS LES SEDIMENTS A L'EXUTOIRE EN 1986 ($\text{BQ KG}^{-1} \text{ SEC}$) ET L'ACTIVITE SURFACIQUE DEPOSEE EN 1986 (BQ M^{-2}) EN FONCTION DE LA TAILLE DU BASSIN VERSANT.	17
FIGURE 6 - CARTES DE LA DISTRIBUTION DE QUELQUES CARACTERISTIQUES DU SOL TIREES DE LA SYNTHESE NATIONALE DES ANALYSES DE TERRES (WALTER ET AL. 1995 ; 1997).	18
FIGURE 7 - AJUSTEMENT DU MODELE DE DRAINAGE DU BASSIN VERSANT DU RHONE A CREYS-MALVILLE A L'AIDE DE DONNEES RELATIVES AUX MYRIOPHYLLES.	20
FIGURE 8 - AJUSTEMENT DU MODELE DE DRAINAGE DU BASSIN VERSANT DU RHONE A CREYS-MALVILLE A L'AIDE DE DONNEES RELATIVES AUX MOUSSES AQUATIQUES.	20
FIGURE 9 - AJUSTEMENT DU MODELE DE DRAINAGE DU BASSIN VERSANT DE LA MEUSE A CHOOZ A L'AIDE DE DONNEES RELATIVES AUX MYRIOPHYLLES.	21
FIGURE 10 - AJUSTEMENT DU MODELE DE DRAINAGE DU BASSIN VERSANT DE LA MEUSE A CHOOZ A L'AIDE DE DONNEES RELATIVES AUX MOUSSES AQUATIQUES.....	21
FIGURE 11 - ÉVOLUTION DE L'ACTIVITE DU ^{137}Cs DANS L'EAU DU RHONE A PONT DE GROSLEE EN FONCTION DU DEBIT ENTRE LE 07/02/2001 ET LE 25/11/2002.	23
FIGURE 12 - ÉVOLUTION DE L'ACTIVITE DU ^{137}Cs PARTICULAIRE EN FONCTION DE L'ACTIVITE DU ^{137}Cs DISSOUS DANS LE RHONE A PONT DE GROSLEE.....	24

8. RÉFÉRENCES

1. CCE, 1998. Atlas of caesium deposition on Europe after the Chernobyl accident. EUR 16733, Office for publications of the European Communities, Luxembourg. European Commission 173 A3.
2. CLAEYS V., 1999. Approche du transport des dépôts terrestres de ^{137}Cs vers les bioindicateurs aquatiques sur le bassin versant rhodanien. Institut des Sciences de l'Ingénieur de Montpellier, Département Sciences et Technologies de l'Eau, Rapport de stage de 2^{ème} année, juin-septembre 1999.
3. DEBAYLE C., 2002. Estimation des flux de ^{137}Cs , résultant de l'accident de Tchernobyl, des sols vers les eaux de surface. Institut Universitaire Professionnalisé « Environnement, Géo-Ingénierie et Développement », Université de Bordeaux 3, Rapport de stage de Diplôme de Recherche Technologique, .mars 2000-août 2001.
4. EYROLLE F. & MASSON O., 2001. Validation de METHODEs de traitement des échantillons d'EAU douce et marine (Projet METHODEAU1). Etat d'avancement. Rapport DPRE / SERNAT / 2001-07.
5. FOURNIER-BIDOZ V. & GARNIER-LAPLACE J. (1994). Étude bibliographique sur les échanges entre l'eau, les matières en suspension et les sédiments des principaux radionucléides rejetés par les centrales nucléaires. Rapport IPSN/DPEI/SERE 94/073, 88 p..
6. MONTE L., 1993. A predictive model for the behavior of radionuclides in lake systems. *Health Physics*, **65** (3), 288-294.
7. MONTE L., 1995. Evaluation of radionuclide transfer functions from drainage basins of freshwater systems. *J. Environ. Radioactivity*, **26**, 71-82.
8. MONTE L., BRITAIN J.E., HAKANSON L., SMITH J.T., VAN DER PERK M., 2004. Review and assessment of models for predicting the migration of radionuclides from catchments. *J. Environ. Radioactivity*; **75**, 83-103.
9. RENAUD P., MÉTIVIER J.M., CASTELIER E., POURCELOT L. & LOUVAT D., 2004. Cartographie des dépôts de ^{137}Cs en mai 1986 sur l'ensemble du territoire français métropolitain. *Radioprotection*, **39** (1), 23-38.
10. ROOS P., HOLM 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 in Physics Research, A* **339**, 282-286.
11. SMITH J.T., LEONARD D.R.P., HILTON J., & APPLEBY P.G. (1997). Toward a generalized model for the primary and secondary contamination of lakes by Chernobyl-derived radiocaesium. *Health Physics*, **72** (6), 880-892.
12. SMITH J.T., HOWARD D.C., WRIGHT S.M., NAYLOR C., BROOKES A.M., HILTON J & HOWARD B.J., 1998. Use of a satellite-derived land cover map to estimate transport of radiocaesium to surface waters. *Sci. Total Environ.*, **209** (1), 1-15.
13. SMITH J.T., CLARKE R.T., & SAXÉN R. (2000). Time -dependant behaviour of radiocaesium : a new method to compare the mobility of weapons test and Chernobyl derived fallout. *J. Environ. Radioactivity*, **49**, 65-83.
14. VRAY F., 2001. « METIS » : Méthode d'Étude d'Impact des Sites nucléaires en fonctionnement normal. Rapport d'État d'avancement N°2. Rapport DPRE / SERNAT / 2001-10.

15. VRAY F., DEBAYLE C. & LOUVAT D., 2003. Long-term flux of Chernobyl-derived ¹³⁷Cs from soil to French Rivers : a study on sediment and biological indicators. *J. Environ. Radioactivity*, **68**, 93-114.
16. WALTER C., BOUEDO T. & AUROUSSEAU P., 1995 - Cartographie communale des teneurs en matière organique des sols bretons et analyse de leur évolution temporelle de 1980 à 1995. *Rapport final. Conseil Régional de Bretagne - Agence Loire-Bretagne*, 31 p.
17. WALTER C., SCHVARTZ C., CLAUDOT B., BOUEDO T. & AUROUSSEAU P., 1997 - Synthèse nationale des analyses de terre. II. descriptions statistique et cartographique de la variabilité des horizons de surface des sols cultivés. *Etude et Gestion des Sols*, **4** (3), 205-219.