



RÉPUBLIQUE
FRANÇAISE

*Liberté
Égalité
Fraternité*

IRSN

INSTITUT DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

CONSTAT RADIOLOGIQUE MÉDITERRANÉE

RAPPORT DE MISSION 2020



MEMBRE DE

ETSON

L'EXPERT PUBLIC DES RISQUES NUCLÉAIRES ET RADIOLOGIQUES

Expertiser, rechercher, protéger, anticiper, partager; telles sont les missions de l'IRSN au service des pouvoirs publics et de la population.

La singularité de l'Institut réside dans sa capacité à associer chercheurs et experts pour anticiper les questions à venir sur l'évolution et la maîtrise des risques nucléaires et radiologiques.

Les femmes et les hommes de l'IRSN ont à cœur de faire connaître leurs travaux et de partager leurs savoirs avec la société. Ils contribuent ainsi à améliorer l'accès à l'information et le dialogue avec les parties prenantes.

L'Institut concourt aux politiques publiques de sûreté et sécurité nucléaires, de santé, d'environnement et de gestion de crise.

Établissement Public à caractère Industriel et Commercial (EPIC), sous la tutelle conjointe du ministre chargé de l'Environnement, du ministre de la Défense, et des ministres chargés de l'Énergie, de la Recherche et de la Santé, l'IRSN inscrit pleinement son action dans les politiques de modernisation de l'État avec sa démarche de management des risques et la mise en œuvre d'une politique globale en matière de responsabilité sociétale.

Dans le cadre de ses missions, l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN) contribue notamment à la veille permanente en radioprotection sur le territoire national. À cet égard, la surveillance radiologique de l'environnement, réalisée par l'IRSN, participe:

- à la vérification du fonctionnement des installations qui rejettent de la radioactivité dans l'environnement;
- à l'analyse de l'évolution des niveaux de radioactivité – dans le temps et l'espace – et à la détection d'élévations inhabituelles de ces niveaux;
- à l'évaluation de l'exposition des populations et des écosystèmes aux rayonnements ionisants;
- à la mise en place de moyens susceptibles d'être mobilisés en situation d'urgence radiologique ou en situation post-accidentelle;
- à la qualification des modèles de dispersion de la radioactivité dans l'environnement et d'évaluation de ses impacts.

Elle est assortie d'une obligation de transparence qui conduit l'Institut à publier régulièrement ses résultats de mesure et des synthèses sur l'état radiologique des territoires.

L'INSTITUT
COMPTE
ENVIRON
1 770
COLLABORATEURS

parmi lesquels
de nombreux
ingénieurs,
médecins,
agronomes,
vétérinaires,
techniciens,
experts
et chercheurs.

Pour mener à bien
ses missions,
l'IRSN dispose

**D'UN BUDGET
D'ENVIRON**

275 M€

DES RÉSEAUX DE PRÉLÈVEMENT ET DE MESURE CONÇUS POUR UNE SURVEILLANCE RÉGULIÈRE

La surveillance radiologique régulière de l'environnement faite par l'IRSN repose sur des réseaux de balises de télédétection et de stations de prélèvement des milieux, installés de manière permanente en des points particuliers du territoire, au plus proche des installations nucléaires ou en dehors de l'influence de celles-ci.

Deux réseaux pour surveiller l'air

- **Le réseau Téléray**, constitué de sondes qui mesurent en continu le débit de dose ambiant dans l'air. Elles transmettent en temps réel leurs données à la salle de télésurveillance de l'IRSN, et sont mises à disposition du public en quasi temps réel via un site web (www.teleray.irsn.fr). Dès qu'une augmentation anormale de radioactivité est détectée, une alarme est envoyée à l'IRSN et une investigation est menée.
- **Le réseau OPERA-Air**, qui est constitué de préleveurs d'aérosols fonctionnant en continu. Ils permettent d'obtenir une mesure précise, grâce à une analyse en laboratoire, des radionucléides fixés sur les aérosols présents dans l'air.

Deux réseaux pour surveiller l'eau

- **Le réseau Hydrotéléray** mesure en continu la radioactivité des principaux fleuves français recevant les effluents des centrales nucléaires.
- **Le réseau des hydrocollecteurs** prélève en continu les eaux et les matières en suspension dans les cours d'eau situés généralement en aval des installations nucléaires.

Un réseau pour surveiller les aliments

Avec l'aide des réseaux de préleveurs et des laboratoires de la direction générale de l'alimentation (DGAL) et de la direction générale de la concurrence, de la consommation et de la répression des fraudes (DGCCRF), l'IRSN organise la collecte périodique et la mesure de denrées alimentaires pour en évaluer la radioactivité.

Et les autres compartiments...

L'IRSN complète cette surveillance régulière par le prélèvement et l'analyse d'autres supports environnementaux de la radioactivité (sol, herbe, sédiment, mousse terrestre, mousse aquatique, algue...). Ils permettent l'établissement de chroniques précieuses dans l'optique d'une analyse temporelle des évolutions.

ET UNE APPROCHE TERRITORIALISÉE...

En complément de sa surveillance régulière, l'IRSN réalise des études ponctuelles – appelées « constats radiologiques » – dont l'objectif est de dresser la synthèse des connaissances sur les niveaux de radioactivité à l'échelle d'une région, d'un territoire, d'un bassin versant... et, le cas échéant, de réaliser de nouvelles campagnes de prélèvements pour améliorer le niveau des connaissances.

Ces campagnes permettent la mesure d'échantillons rarement analysés, de denrées présentant une valeur économique particulière pour le territoire ou de répondre à des attentes ou des questions particulières des parties prenantes (collectivités locales, associations de citoyens, commissions d'information...). Ces constats sont l'occasion pour le citoyen de mieux comprendre et de s'approprier une information par nature complexe et d'agir sur la nature même de la surveillance effectuée.

... POUR DES MESURES RENDUES PUBLIQUES

Que ce soit dans le cas de la surveillance régulière, avec les réseaux de surveillance des différents milieux, ou dans le cadre de l'approche territoriale, grâce aux « constats radiologiques », l'IRSN diffuse vers le public l'ensemble des résultats de ses mesures. Pour les mesures réalisées en temps réel par le réseau Téléray, la publication des résultats est quasi instantanée via un site web dédié (www.teleray.irsn.fr). Les mesures nécessitant un traitement préliminaire des échantillons et donc un temps d'acquisition plus long (cas des denrées par exemple) sont diffusées, quant à elles, dès que disponibles, sur le site public du RNM (www.mesure-radioactivite.fr).

RÉSUMÉ

Dans le cadre de sa mission de surveillance de la radioactivité dans l'environnement, l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN) effectue régulièrement des constats radiologiques régionaux. Ceux-ci ont pour objectif d'établir sur un territoire étendu un référentiel actualisé des niveaux de radioactivité dans certains compartiments de l'environnement caractéristiques du territoire concerné. Ce référentiel doit rendre compte, d'une part, du « bruit de fond » radiologique lié à la radioactivité naturelle et à la rémanence des retombées atmosphériques anciennes (essais aériens d'armes nucléaires et accident de Tchernobyl), d'autre part, de l'influence des rejets actuels ou passés des installations nucléaires éventuellement présentes sur ce territoire. En cas de rejet incidentel ou accidentel, ce référentiel servirait de base de comparaison et contribuerait à l'orientation du déploiement d'une surveillance renforcée.

Le constat « mer Méditerranée », objet de ce rapport, vise à rassembler, acquérir et synthétiser des mesures d'activités massiques et volumiques des principaux radionucléides présents dans les différentes composantes du milieu marin méditerranéen (eau, sédiment, denrées alimentaires marines et bio-indicateurs de la qualité environnementale). Les données exploitées sont issues de la surveillance régulière, ainsi que de campagnes d'études particulières.

Concernant les radionucléides naturels, ce rapport se focalise sur les isotopes de l'uranium et sur le polonium-210.

Le polonium-210 a la particularité de se concentrer dans certaines denrées marines, notamment dans les coquillages, contribuant ainsi de façon très majoritaire à l'exposition radiologique des personnes qui en consomment très régulièrement. Les activités massiques de polonium-210 dans les moules présentées dans ce rapport sont du même niveau que celles reportées dans la bibliographie internationale. Dépendantes de la nature géologique des côtes, elles sont plus élevées le long de la côte rocheuse cristalline (Provence-Alpes-Côte d'Azur et Corse), et moindres le long de la côte sableuse et calcaire du littoral occidental.

Les activités des isotopes de l'uranium mesurées dans les moules de Méditerranée sont caractéristiques de l'uranium naturel. Par ailleurs, les teneurs en uranium de l'échantillon de moule prélevé dans l'étang de Bages, potentiellement influencé via les eaux du Tauran par les rejets de l'usine de Malvési située près de Narbonne, sont similaires à celles observées ailleurs.

Les activités de carbone-14 présentées dans ce rapport sont cohérentes avec celles mesurées dans l'air et en milieu terrestre hors de l'influence d'une installation nucléaire; elles montrent l'origine principalement naturelle aujourd'hui de ce radionucléide en Méditerranée.

Concernant les radionucléides artificiels, une influence des rejets des installations nucléaires rhodaniennes est décelée en mer à l'embouchure du fleuve pour le tritium (dans l'eau principalement), le cobalt-60 (dans les sédiments) et pour les isotopes du plutonium (dans les sédiments). Dans le cas du tritium, cette influence est perceptible sur tout le littoral situé à l'ouest de l'embouchure, bien qu'elle diminue avec la distance. Les activités de tritium dans l'eau de mer mesurée à l'embouchure sont jusqu'à 20 fois supérieures à l'embouchure par rapport à celles observées hors influence; celles mesurées à Banyuls sont seulement deux fois supérieures. Cette influence diminue aussi très rapidement dès lors que l'on s'éloigne de quelques kilomètres au large de l'embouchure. Dans les sédiments marins situés à proximité de l'embouchure, le plutonium provenant des rejets de l'usine de Marcoule ne se distingue de celui provenant des retombées des essais nucléaires que par les rapports d'activités isotopiques. De même, depuis la baisse des rejets des installations nucléaires au cours des années 1990-2000, le césium-137 apporté par le Rhône en Méditerranée, visible surtout à proximité ouest de l'embouchure du fleuve, provient principalement du drainage des sols contaminés par les retombées de l'accident de Tchernobyl et des essais aériens d'armes nucléaires. Hors influence du Rhône, les activités de césium-137 les plus élevées mesurées dans des sédiments concernent la partie sud orientale de la Corse où les retombées de l'accident de Tchernobyl ont été parmi les plus importantes du territoire français.

La rade de Toulon présente de nombreuses spécificités. Dans ce milieu presque clos, les courants qui, ailleurs, dispersent les apports littoraux d'eau et de particules, notamment les plus fines, sont faibles, de même que les échanges avec la mer libre. Les sédiments y sont très fins, ce qui favorise la fixation des radionucléides, notamment ceux issus du drainage des sols comme le césium-137 provenant principalement des retombées de l'accident de Tchernobyl et les isotopes du plutonium provenant des retombées des essais nucléaires. Mais la principale particularité de la rade de Toulon concerne le tritium. Les activités de ce radionucléide dans les sédiments peuvent y être jusqu'à 100 fois plus élevées que ce qui est observé ailleurs. Le fait que des sédiments anciens, datant de l'époque où les niveaux de ce radionucléide étaient beaucoup plus élevés qu'aujourd'hui (du fait des retombées des essais aériens d'armes nucléaires) aient pu rester dans ce milieu presque fermé, ne suffit pas à expliquer les activités mesurées aujourd'hui. L'origine de cette contamination n'est pas clairement établie, mais la profondeur des sédiments les plus marqués suggère qu'elle est ancienne. Cette contamination des sédiments est probablement en partie à l'origine des activités massives de tritium, plus élevées qu'ailleurs, mesurées dans les moules et les poissons issus de la rade. Elle ne permet cependant pas à elle seule d'expliquer les activités de tritium également élevées mesurées sporadiquement dans l'eau de la rade. Néanmoins, les conséquences de ces niveaux d'activité en tritium dans l'eau de mer sont négligeables pour les populations et l'environnement.

SOMMAIRE

1	INTRODUCTION	6
2	CADRAGE DE L'ÉTUDE	8
2.1	ZONE D'ÉTUDE	8
2.2	ZONES POTENTIELLEMENT INFLUENCÉES	8
3	ORIGINE DES DONNÉES	10
3.1	COMPARTIMENTS ÉCHANTILLONNÉS	10
	Faune et flore	10
	Eau de mer	12
	Sédiments	13
3.2	MESURES RÉALISÉES	13
	Radionucléides mesurés	13
	Expression des résultats	14
4	RÉSULTATS DES MESURES EN CÉSIIUM-137	16
4.1	INTRODUCTION	16
4.2	¹³⁷ Cs MESURÉ DANS LES MOULES	16
	Les moules de la surveillance régulière	16
	Les campagnes RINBIO de 2009 et 2012	17
4.3	¹³⁷ Cs MESURÉ DANS LES POISSONS	19
	Les rougets de la surveillance régulière	19
	Les poissons et crustacés prélevés en complément de la surveillance régulière	20
4.4	¹³⁷ Cs MESURÉ DANS L'EAU DE MER	23
4.5	¹³⁷ Cs MESURÉ DANS LES SÉDIMENTS	23
	Zone non influencée	23
	Influence des apports en ¹³⁷ Cs du Rhône	24
	Rade de Toulon	24
5	RÉSULTATS DE MESURE EN COBALT-60	26
5.1	INTRODUCTION	26
5.2	⁶⁰ Co MESURÉ DANS LES MOULES	26
5.3	⁶⁰ Co MESURÉ DANS LES POISSONS	27
5.4	⁶⁰ Co MESURÉ DANS LES SÉDIMENTS	27

6	RÉSULTATS DE MESURE DES ISOTOPES DU PLUTONIUM	28
6.1	INTRODUCTION	28
6.2	Pu MESURÉ DANS LES MOULES	28
6.3	Pu MESURÉ DANS LES SÉDIMENTS	30
7	RÉSULTATS DE MESURE DES ISOTOPES DE L'URANIUM ET DE SES DESCENDANTS	32
7.1	INTRODUCTION	32
7.2	URANIUM MESURÉ DANS LES MOULES	32
7.3	RADIONUCLÉIDES NATURELS MESURÉS DANS LES SÉDIMENTS	34
7.4	²¹⁰ Po MESURÉ DANS LES MOULES ET DANS LES POISSONS	34
8	RÉSULTATS DE MESURE DE STRONTIUM-90	36
8.1	INTRODUCTION	36
8.2	⁹⁰ Sr MESURÉ DANS LES SQUELETTES DE POISSONS	36
9	RÉSULTATS DE MESURE EN CARBONE-14	38
9.1	INTRODUCTION	38
9.2	¹⁴ C MESURÉ DANS LES MOULES ET POISSONS	38
10	RÉSULTATS DE MESURE EN TRITIUM	40
10.1	INTRODUCTION	40
10.2	LE TRITIUM LIBRE MESURÉ DANS L'EAU DE MER	40
10.3	LE TRITIUM LIÉ À LA MATIÈRE ORGANIQUE MESURÉ DANS LES SÉDIMENTS MARINS	43
10.4	LE TRITIUM LIÉ À LA MATIÈRE ORGANIQUE MESURÉ DANS LES MOULES	45
10.5	LE TRITIUM LIÉ À LA MATIÈRE ORGANIQUE MESURÉ DANS LES POISSONS	48
11	CONCLUSION	50
12	RÉFÉRENCES	52

1 INTRODUCTION

Dans le cadre de sa mission de surveillance de la radioactivité dans l'environnement, l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) réalise des constats radiologiques régionaux. Il s'agit d'établir des référentiels actualisés des niveaux de radioactivité dans l'environnement français à l'échelle de grands ensembles géographiques. En cas de rejet incidentel ou accidentel, ce référentiel servirait de base de comparaison et contribuerait à l'orientation du déploiement d'une surveillance renforcée.

Le constat « mer Méditerranée », objet de ce rapport, vise à rassembler, acquérir et synthétiser des mesures d'activités massiques et volumiques des principaux radionucléides potentiellement présents dans les différentes composantes du milieu marin méditerranéen (eau, sédiment, produits de la mer et bio-indicateurs de la qualité environnementale). Il est cofinancé par l'agence de l'eau Rhône-Méditerranée et Corse.

Le constat « mer Méditerranée » réunit un ensemble de données potentiellement utiles dans le cadre de l'application de la convention de Barcelone pour la protection de l'environnement marin et des régions côtières de Méditerranée où les parties contractantes s'efforcent de réduire les apports et les niveaux de polluants afin de protéger le milieu marin et ses usagers (ONU Environnement/PAM Athènes, 2017), dans le cadre de la directive « Stratégie pour le Milieu Marin » (J. O. de l'Union européenne, 2008) et de sa transposition en droit français via l'élaboration du Plan d'Action pour le Milieu Marin (PAMM, 2012; J. O., 2012a, b, c). Le PAMM comprend une évaluation de l'« État Initial » de l'environnement qui prend en compte de nombreux paramètres descripteurs du milieu marin dont la contamination de l'écosystème et des produits de la mer.



Étang de Bages.

2 CADRAGE DE L'ÉTUDE

2 1 ZONE D'ÉTUDE

La zone d'étude est la sous-région marine d'application de la Directive-Cadre Stratégie pour le Milieu Marin de Méditerranée occidentale. La majorité des données présentées dans ce rapport concerne la zone côtière de la Méditerranée française, depuis la bordure des communes littorales jusqu'à la limite des eaux territoriales, soit 12 milles marins. De plus, quelques données concernent la zone économique exclusive (ZEE; J. O., 2012d) et la zone de protection écologique (ZPE; J. O., 2004). Ces eaux marines métropolitaines sont plus au large que les eaux territoriales (Figure 1).

2 2 ZONES POTENTIELLEMENT INFLUENCÉES

La méthodologie mise en place dans le cadre des constats régionaux distingue :

- les zones potentiellement influencées par les rejets actuels ou passés d'installations nucléaires ;
- les zones situées hors de l'influence de rejets d'installations nucléaires, où les radionucléides artificiels ne proviennent *a priori* que des retombées atmosphériques globales (essais d'armes nucléaires et accident de Tchernobyl principalement).

Dans le cas spécifique de la mer Méditerranée, la délimitation de ces zones doit prendre en compte les apports fluviaux et les courants marins.

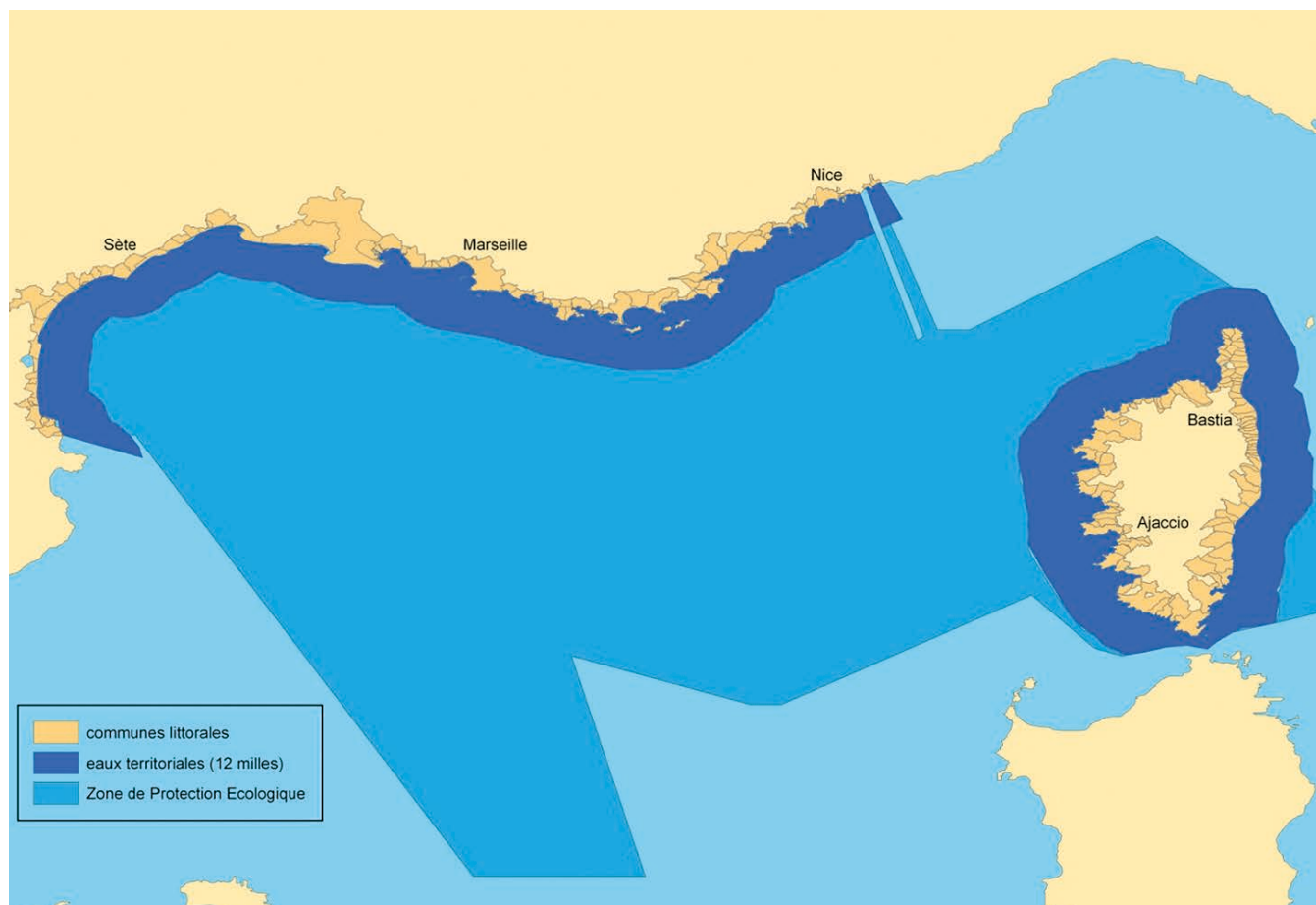


Figure 1. Zone d'étude du constat radiologique Méditerranée.

On retiendra dans la suite du document trois zones potentiellement influencées.

La zone sous influence des apports du Rhône. La zone la plus directement sous l'influence du Rhône est à son embouchure. Néanmoins la circulation marine générale montre que la zone potentiellement influencée par les apports du Rhône pourrait être beaucoup plus vaste, soit toute la partie ouest de la zone d'étude, de la bande côtière de la rade de Marseille à la frontière espagnole en incluant le plateau continental du golfe du Lion (Dufois *et al.*, 2008; Millot, 1990). Les apports du Rhône en Méditerranée sont d'une part les rejets d'effluents liquides des installations nucléaires implantées dans ce bassin versant le plus nucléarisé d'Europe (centrales de production d'électricité en fonctionnement et en démantèlement, plusieurs installations du cycle du combustible, centres de recherche etc.), comme détaillé dans le constat radiologique de la vallée du Rhône (Roussel-Debet & Antonelli, 2010; Saey & Roussel-Debet, 2013), et d'autre part les apports dus au lessivage des retombées atmosphériques globales (essais aériens d'armes nucléaires, accident de Tchernobyl) déposées sur le bassin versant. Ainsi, les apports de radionucléides artificiels par le Rhône sont importants à prendre en compte, même si les niveaux des rejets ont fortement diminué au cours de ces deux dernières décennies, comme détaillé dans le volet aquatique du constat radiologique de la vallée du Rhône (Saey & Roussel-Debet, 2013).

La rade de Toulon, bassin enclavé, séparé en deux baies (petite et grande rade) par une digue longue de 1,4 km. La petite rade est une zone d'environ 9 km² protégée de la houle du large, les échanges hydrodynamiques se faisant essentiellement par un chenal de 1 km de large et profond de 30 m, situé au sud de la digue. C'est donc une zone semi-fermée. La base navale nucléaire de Toulon (Var) est située dans la petite rade et accueille des sous-marins et des bâtiments à propulsion nucléaire. Les rejets atmosphériques de la base sont susceptibles d'influencer la rade, qui a aussi pu être potentiellement marquée par des rejets liquides anciens. De plus, des petits fleuves côtiers, le Las et l'Eygoutier, débouchent dans la rade et apportent, comme tous les fleuves, les radionucléides issus du lessivage des retombées atmosphériques globales (essais d'armes nucléaires, accident de Tchernobyl) déposées sur les bassins versants.

La zone potentiellement influencée par le site ORANO de malvés (Narbonne). Les rejets liquides de ce site dans le canal de Tauran sont susceptibles d'influencer la zone lagunaire de l'étang de Bages, située à l'aval hydraulique de ce site.

3 ORIGINE DES DONNÉES

De manière générale, les données décrites dans ce constat ont été acquises par l'IRSN, entre le début des années 1990 et 2015, dans différents contextes :

- la surveillance régulière, c'est-à-dire la surveillance radiologique effectuée régulièrement par l'IRSN en Méditerranée;
- l'acquisition de données spécifiques pour ce constat, dont les principes suivent la méthodologie des constats radiologiques régionaux de l'IRSN;
- la participation de l'IRSN au Réseau INTégrateurs BIOlogiques (RINBIO; [https://wwwz.ifremer.fr/webtv/Campagnes-a-la-mer/Rinbio^{\(1\)}](https://wwwz.ifremer.fr/webtv/Campagnes-a-la-mer/Rinbio⁽¹⁾)), en partenariat avec l'agence de l'eau Rhône-Méditerranée-Corse et l'Ifremer.

Enfin, le rapport s'appuie également sur des données acquises dans d'autres programmes de surveillance et de recherche dont l'IRSN était coordinateur ou partenaire, ou par d'autres acteurs que l'IRSN et mises à disposition sur le site internet du Réseau National de Mesures de la radioactivité de l'environnement (RNM, <https://www.mesure-radioactivite.fr/>).

3 1 COMPARTIMENTS ÉCHANTILLONNÉS

- Faune et flore -

Objectifs de la surveillance de la faune marine

L'objectif de la surveillance d'organismes marins (moules ou poissons par exemple) est double : d'une part, ils peuvent être consommés et, en tant que denrées alimentaires, contribuer à l'exposition humaine par ingestion, d'autre part, ils peuvent constituer des bio-indicateurs de l'état radiologique de l'environnement. Ainsi les niveaux de contamination des coquillages filtreurs sont représentatifs de ce qui a transité dans la masse d'eau pendant plusieurs semaines, ce qui permet de rendre compte de l'activité moyenne dans l'eau sur cette période. Ils sont en ce sens davantage pertinents que les prélèvements d'eau ponctuels, peu représentatifs spatialement mais surtout temporellement. Dans la plupart des cas, la mesure est effectuée sur la partie consommable de l'organisme : contenu inter-valvaire des moules (chair+liquide), ou poissons étêtés et éviscérés. Dans le cas spécifique du strontium-90, la mesure a été faite sur le squelette (tête,

arrêtes...), eu égard à son comportement analogue à celui du calcium.

En revanche, il n'a pas été effectué de prélèvements de végétaux aquatiques sur le littoral méditerranéen. En effet, la flore naturelle est essentiellement constituée d'espèces protégées, dont l'herbier de Posidonie qui, par ailleurs, n'est pas un bio-indicateur pertinent de la qualité radiologique de l'eau (le transfert racinaire de cette plante à fleurs est susceptible de brouiller la représentativité de la plante vis-à-vis de l'eau).

Échantillons de moules et de poissons prélevés dans le cadre de la surveillance régulière

Le jeu de données le plus significatif est représenté par les mesures réalisées dans le cadre de la surveillance radiologique régulière de la façade méditerranéenne assurée par l'IRSN (Charmasson *et al.*, 1999; Thébault, 2003).

Ces mesures concernent, sur la période de l'étude, des prélèvements bimestriels pour 8 stations de prélèvements de moules et 6 stations de pêche de poissons, réparties le long de la côte française de Méditerranée, Corse comprise (Figure 2). La stratégie d'échantillonnage est restée globalement la même depuis les années 1990, à quelques fluctuations près (par exemple ajout progressif de stations pour les poissons à partir de 1996).

Les stations en zone non influencée (cf. 2.2) sont celles de Bonifacio (Santa Manza) et de Nice (Cros de Cagne). Parmi les stations en zones potentiellement influencées (cf. 2.2), celles de Toulon (baie du Lazaret et port de Brégaillon, La Seyne-sur-Mer), de Port-Saint-Louis (Roustan pour les poissons et Carteau pour les moules), de Faraman (Grau de la dent) et des Saintes-Maries-de-la-Mer (Port Gardian) sont sous influence directe des apports du Rhône. Celles de Sète (Grau d'Agde) et de Banyuls (réserve marine de Banyuls-sur-Mer) sont sous influence potentielle mais plus lointaine des apports du Rhône. Dans les années 1990, il y avait également, à l'est de Port-Saint-Louis, deux stations additionnelles pour les moules : l'une à Ponteau, sur la commune de Martigues et l'autre au port de Fos-sur-mer.

(1) RINBIO (Réseau Intégrateurs BIOlogiques) : campagnes de mesures triennales organisées par l'IFREMER (Andral *et al.*, 2004), à l'aide de moules transplantées le long des côtes françaises de Méditerranée. Pour plus de détail, cf. Échantillons de moules issus du programme RINBIO, p. 11.

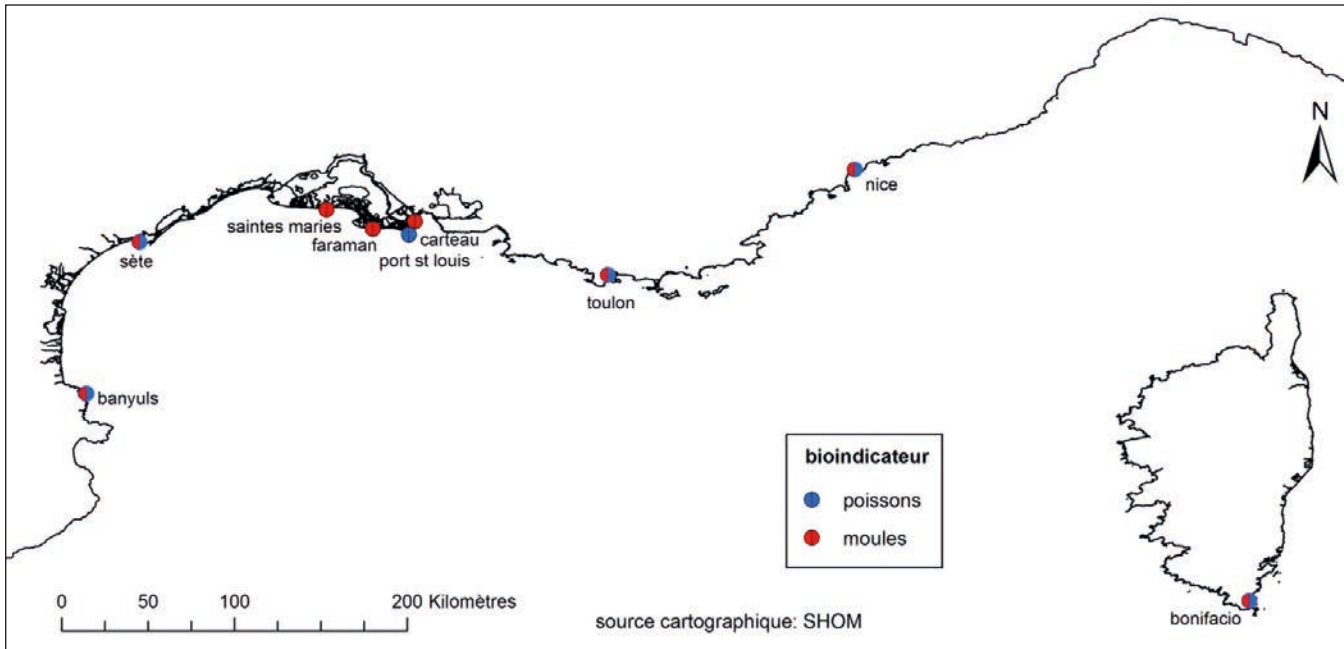


Figure 2. Stations de prélèvements de la surveillance régulière en Méditerranée française assurée par l'IRSN.

Le choix des moules comme bio-indicateur est principalement déterminé par l'ubiquité de l'espèce dans la zone côtière, l'accès relativement facile à la ressource, sa capacité de bioaccumulation et par l'existence d'un référentiel mondial établi au moyen d'autres réseaux de surveillance⁽²⁾. De plus, cette espèce est très consommée en Méditerranée.

Les types de poissons pêchés étaient initialement divers (rouget, rascasse, plie, sole...) mais l'échantillonnage a été progressivement ciblé sur le rouget, plus précisément deux espèces (*Mullus surmuletus* et *Mullus barbatus*), très proches par leurs habitats et leur mode de vie. Le choix du rouget est déterminé par: (i) son niveau élevé dans la chaîne trophique, permettant de mettre en évidence d'éventuels phénomènes de bioamplification; (ii) son caractère sédentaire permettant de disposer de résultats de mesures représentatifs d'un territoire relativement restreint; (iii) son adoption comme bio-indicateur dans la plupart des pays méditerranéens. Par ailleurs, ces deux espèces sont également largement consommées.

Échantillons de moules issus du programme RINBIO

Les données de la surveillance régulière ont été complétées par des campagnes de mesures dans le cadre du programme RINBIO (Réseau Intégrateurs BIOlogiques) à l'aide de moules transplantées le long des côtes françaises de Méditerranée (Andral *et al.*, 2004). Cette transplantation, réalisée à partir d'un lot unique bien calibré, immergé au même moment à l'aide de petits mouillages de sub-surface et récupéré au bout de 3 mois, permet des comparaisons spatiales plus fiables. Elle complète donc la surveillance régulière qui est orientée vers l'étude d'évolutions temporelles pour une station donnée.

Deux campagnes pilotes, réalisées en 1996 et en 1998, ont permis d'optimiser les techniques de mouillage et de récupération. Les résultats des campagnes 2003 et 2006 sont présentés dans un rapport antérieur (Thébault, 2007). Les résultats présentés dans ce constat sont issus des campagnes 2009 (29 stations) et 2012 (31 stations). La distribution des stations tient compte d'une couverture homogène de la zone côtière de Méditerranée française (Figure 3 pour l'année 2012).

(2) Exemple du programme international Mussel Watch (Goldberg *et al.*, 1978).

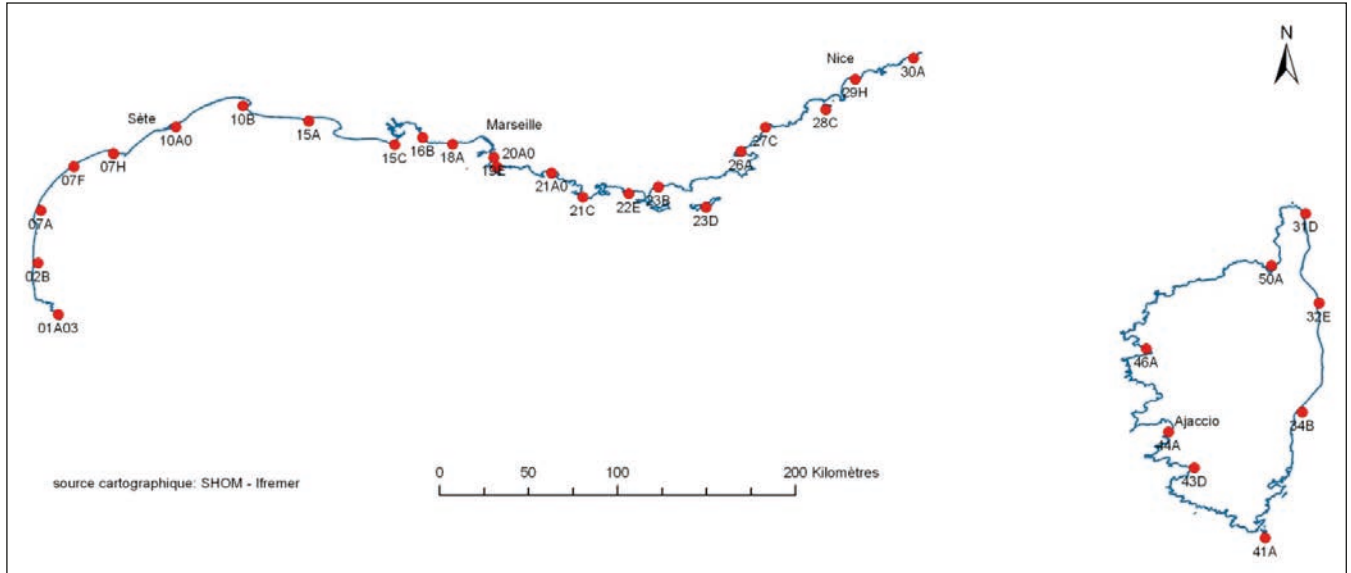


Figure 3. Campagne RINBIO 2012 : carte des stations sélectionnées pour la mesure des radionucléides.

Autres campagnes de prélèvements de poissons et d'autres produits de la pêche

La sélection des espèces à prélever pour compléter les séries de données de la surveillance régulière s'est appuyée sur une étude préalable des données statistiques de la pêche chalutière (FranceAgriMer, 2011) et des enquêtes réalisées auprès des professionnels de la pêche artisanale (PAMM, 2012).

Les échantillonnages ont été réalisés :

- par pêche au chalut, lors des campagnes d'évaluations des stocks menées par l'Ifremer dans le cadre du programme MEDITS⁽³⁾ dans le golfe du Lion et la côte orientale de la Corse, pour les poissons démersaux, c'est-à-dire vivant près du fond (dorade, merlu...), pour les poissons benthiques, c'est-à-dire vivant sur le fond (raie, baudroie...), et pour les crustacés (langoustines);
- par pêche au chalut, lors des campagnes du programme PELMED⁽⁴⁾ dans le golfe de Lion pour les poissons pélagiques c'est-à-dire vivant dans les eaux proches de la surface ou entre la surface et le fond (anchois, sardine, maquereau, chinchard, sprat...);

- et par pêche côtière au filet, par les pêcheurs partenaires du réseau de surveillance régulière sur les sites de Banyuls, Sète, Toulon, Nice et Bonifacio (merlu, mullet, dorade, sar, saupe, bogue, pageot...).

Enfin, la pêche des grands pélagiques (thon, espadon, requin) provenant de l'activité des senneurs et ligneurs n'est pas débarquée en criée et les quantités produites ne sont pas connues. Cette pêche ne concerne pas la zone côtière mais peut être pratiquée dans la ZPE. L'accès à ce type d'échantillons n'a pas été possible dans le cadre de cette étude.

- Eau de mer _

La surveillance radiologique régulière par l'IRSN en Méditerranée inclut peu de prélèvements d'eau de mer (deux stations dans la rade de Toulon). Cela s'explique en raison notamment des niveaux d'activité très faibles des radionucléides artificiels, souvent indétectables directement dans de faibles volumes d'eau (hormis pour le tritium), et de la faible représentativité spatio-temporelle de quelques mesures ponctuelles dans la colonne d'eau.

(3) MEDITS: MEDiterranean Trawl Survey. Programme européen d'évaluation des stocks des espèces démersales. Campagnes halieutiques menées conjointement depuis 1994 par des partenaires espagnols, italiens et français.

(4) PELMED: PELagiques de MEDiterranée: campagnes annuelles de chalutage, débutées en 1993, avec pour objectif d'évaluer les ressources de petits poissons pélagiques du golfe du Lion, essentiellement la sardine et l'anchois.

Pour actualiser les connaissances sur le césium-137 dans les eaux côtières, un prélèvement d'environ 500 L d'eau a été réalisé dans la rade de Toulon dans le cadre de ce constat. Le traitement a été effectué par pré-concentration (IRSN, 2009).

Pour la mesure du tritium libre dans l'eau de mer (noté HTO dans la suite du rapport), des prélèvements d'un litre ont été réalisés au cours des campagnes en mer de 2012 à 2014, en zone côtière et au large, en surface et en profondeur.

- Sédiments _

Les données concernant les sédiments proviennent pour l'essentiel des programmes de recherche coordonnés par l'IRSN sur le devenir des apports du Rhône. Les prélèvements ont été réalisés par carottages sur l'ensemble du golfe du Lion (environ 100 prélèvements depuis 2001), de la côte jusqu'au bord du plateau continental (Arnaud *et al.*, 2009; Marion, 2010). Ces données ont été complétées par une trentaine de prélèvements de sédiments de surface répartis le long des côtes de la région Provence-Alpes-Côte d'Azur et de la Corse en 2009, dans le cadre du programme RINBIO.

Par ailleurs, des données ont été collectées lors d'études spécifiques menées par l'IRSN, sur des zones plus restreintes comme les plages de Camargue et l'embouchure du Rhône (Miralles *et al.*, 2006).

Enfin, des échantillons de sédiments de la rade de Toulon sont issus du programme CARTOCHIM mené en 2009 en collaboration avec le LASEM (Laboratoire environnement de la Marine nationale) de Toulon et l'Université de Toulon (NeoSud, 2015).

3 2 MESURES RÉALISÉES

- Radionucléides mesurés _

La mesure par spectrométrie gamma bas niveau, pratiquée sur la quasi-totalité des échantillons de ce constat (surveillance régulière et autres acquisitions de données), permet la détection de deux radionucléides artificiels :

- le césium-137 (^{137}Cs), de façon quasi systématique (hormis dans les échantillons d'eau de mer de faible volume), dont les résultats sont présentés dans le chapitre 4 et;
- le cobalt-60 (^{60}Co), plus rarement, dont les résultats sont présentés dans le chapitre 5.

Cette méthode de mesure permet également de quantifier des radionucléides naturels tels que le potassium-40 (^{40}K), le béryllium-7 (^7Be), le plomb-210 (^{210}Pb), l'actinium-228 (^{228}Ac) et le thorium-234 (^{234}Th), dont les résultats ne sont pas spécifiquement détaillés dans ce constat (voir chapitre 7).

Les radionucléides non mesurables par spectrométrie gamma avaient été très peu quantifiés par l'IRSN en Méditerranée jusqu'à la fin des années 2000 dans le cadre de la surveillance régulière. Les chapitres 6 à 10 de ce constat présentent les résultats de mesures spécifiquement réalisées pour élargir le spectre de radionucléides quantifiés. Ceux-ci concernent :

- les isotopes du plutonium (résultats au chapitre 6), du polonium et de l'uranium (résultats au chapitre 7), ont été mesurés par spectrométrie alpha (et ICP-MS) après séparation chimique;
- le strontium-90 (résultats au chapitre 8) a été mesuré par comptage beta de son descendant l'yttrium-90, en scintillation liquide ou sur compteur proportionnel;
- le carbone-14 (résultats au chapitre 9) a été quantifié par la technique de synthèse du benzène ou par spectrométrie de masse par accélérateur (AMS);
- le tritium libre (HTO) dans l'eau (résultats au chapitre 10.2) a été mesuré par scintillation liquide si les niveaux attendus étaient compatibles avec la limite de mesure par cette technique, sinon par comptage proportionnel du gaz après enrichissement électrolytique (Östlund *et al.*, 1974);
- le tritium lié à la matière organique (TOL) dans les sédiments et les moules (résultats aux chapitres 10.3 et 10.4), a été mesuré par spectrométrie de masse après décroissance radioactive du tritium en hélium-3 dans des pots scellés sous vide pendant plusieurs mois (Jean-Baptiste *et al.*, 2010).

Expression des résultats _

En ce qui concerne la faune marine (moules, poissons et crustacés), les mesures portent sur la partie pouvant être consommée (plus précisément : contenu inter-valvaire des moules, soit chair et liquide, et poissons étêtés et éviscérés), sauf dans le cas spécifique de la mesure du strontium-90 (mesuré dans les squelettes de poissons, cf. Objectifs de la surveillance de la faune marine, p. 10). Les activités massiques des radionucléides dans ces échantillons sont exprimées en becquerels par kilogramme de matière fraîche (Bq/kg frais). L'utilisation de cette unité permet de mieux appréhender, le cas échéant, la dose ingérée par les consommateurs de produits de la mer.

L'activité massique dans les sédiments est exprimée en becquerels par kilogramme de matière sèche (Bq/kg sec) et l'activité volumique dans l'eau est exprimée en becquerels par litre (Bq/L).

L'expression des activités en carbone-14 et en tritium est spécifiquement détaillée dans les chapitres 9 et 10 dédiés à ces radionucléides.

Dans les tableaux, les résultats sont accompagnés de l'incertitude statistique de mesure, calculée pour un intervalle de confiance de 95 % et sont présentés par : « valeur \pm incertitude » ($\pm 2 \sigma$). Lorsque l'activité d'un radionucléide n'est pas détectable par la méthode de mesure, le seuil de décision (SD) est présenté dans les tableaux par « < SD ».

Dans les figures, pour des raisons de lisibilité les incertitudes ne sont pas reportées et seules les valeurs significatives sont graphiquement représentées, en excluant les « < SD ».

Dans le texte, la valeur centrale d'un ensemble de données est exprimée sous la forme d'une médiane (ou 50^e percentile), soit la valeur au-dessous de laquelle se situent 50 % des données.



Campagne de pêche dans le golfe du Lion

RÉSULTATS DES MESURES EN CÉSIIUM-137

4 1

INTRODUCTION

Le césium-137 est un produit de fission dont la période (ou demi-vie physique) est de 30,2 ans. Les apports de ce radionucléide en Méditerranée proviennent principalement, d'une part du drainage des sols du bassin versant rhodanien marqué par les retombées des essais aériens d'armes nucléaires et par les retombées de l'accident de Tchernobyl, d'autre part par les rejets des installations nucléaires rhodaniennes. Même s'ils diminuent au fil du temps, les niveaux d'activité de ce radionucléide artificiel dans l'environnement français, et notamment dans le Rhône, restent mesurables (IRSN, 2018). Les flux exportés par le Rhône en Méditerranée sont évalués par l'IRSN grâce à la station SORA (Station Observatoire du Rhône à Arles) qui permet de prélever l'eau du Rhône à haute fréquence afin de déterminer les concentrations en matières en suspension et en radionucléides. Entre 2005 et 2016, les flux annuels ont été estimés entre 8 et 46 GBq/an de ^{137}Cs sous forme dissoute et entre 23 et 90 GBq/an de ^{137}Cs sous forme particulaire. La forte variabilité est essentiellement liée à la variabilité d'une année à l'autre des événements hydrologiques (crues).

Le césium est présent dans l'eau de mer essentiellement sous forme dissoute. La fraction du césium associée aux particules en mer est minoritaire (moins de 10 % en zone côtière). Elle est encore plus réduite pour les sables et sédiments grossiers, ne présentant qu'une surface spécifique restreinte pour l'adsorption. La distribution du césium entre les phases liquide et solide, est principalement liée à la proportion de sédiments argileux (fins), le césium se fixant surtout sur la fraction fine du sédiment, en particulier au débouché des fleuves côtiers. La sédimentation des particules fait qu'une partie du césium présent dans la colonne d'eau se retrouve, à terme, dans les sédiments de fond.

4 2

^{137}Cs MESURÉ DANS LES MOULES

- Les moules de la surveillance régulière _

La Figure 4 présente l'évolution temporelle des activités massiques de ^{137}Cs (Bq/kg frais) mesurées dans les moules prélevées de 1992 à 2016 pour l'ensemble des stations de Méditerranée dans le cadre de la surveillance régulière (cf. Échantillons de moules et de poissons prélevés dans le cadre de la surveillance régulière, p. 10 et Figure 2). Cette chronique comporte plus de 1 300 résultats de mesure dont plus de la moitié sont supérieurs aux seuils de décision, permettant d'analyser les évolutions temporelles et d'évaluer la variabilité géographique.

La Figure 4 montre que les activités de ^{137}Cs ont fortement diminué sur les 25 années étudiées avec une période de décroissance (ou demi-vie) apparente de 6,5 ans sur l'ensemble de la période 1992-2015, beaucoup plus courte que la période de décroissance radioactive (30 ans). La diminution des activités massiques est particulièrement rapide sur la 1^{re} décennie (Thébault, 2003), avec une période apparente d'environ 4 ans.

Cette diminution des niveaux de ^{137}Cs est attribuable à la réduction des apports: la diminution des apports du bassin versant, notamment du césium déposé en 1986 à la suite de l'accident de Tchernobyl qui, au fil des années, est de moins en moins drainé depuis les sols, ainsi que la diminution des rejets des installations nucléaires rhodaniennes (Saey & Roussel-Debet, 2013). Au cours des 12 années suivantes (2003-2015), les activités massiques diminuent plus lentement, avec une période apparente de 19 ans. Le graphe et les régressions exponentielles ne portent que sur les activités massiques quantifiées (excluant ainsi les activités inférieures aux seuils de décision).

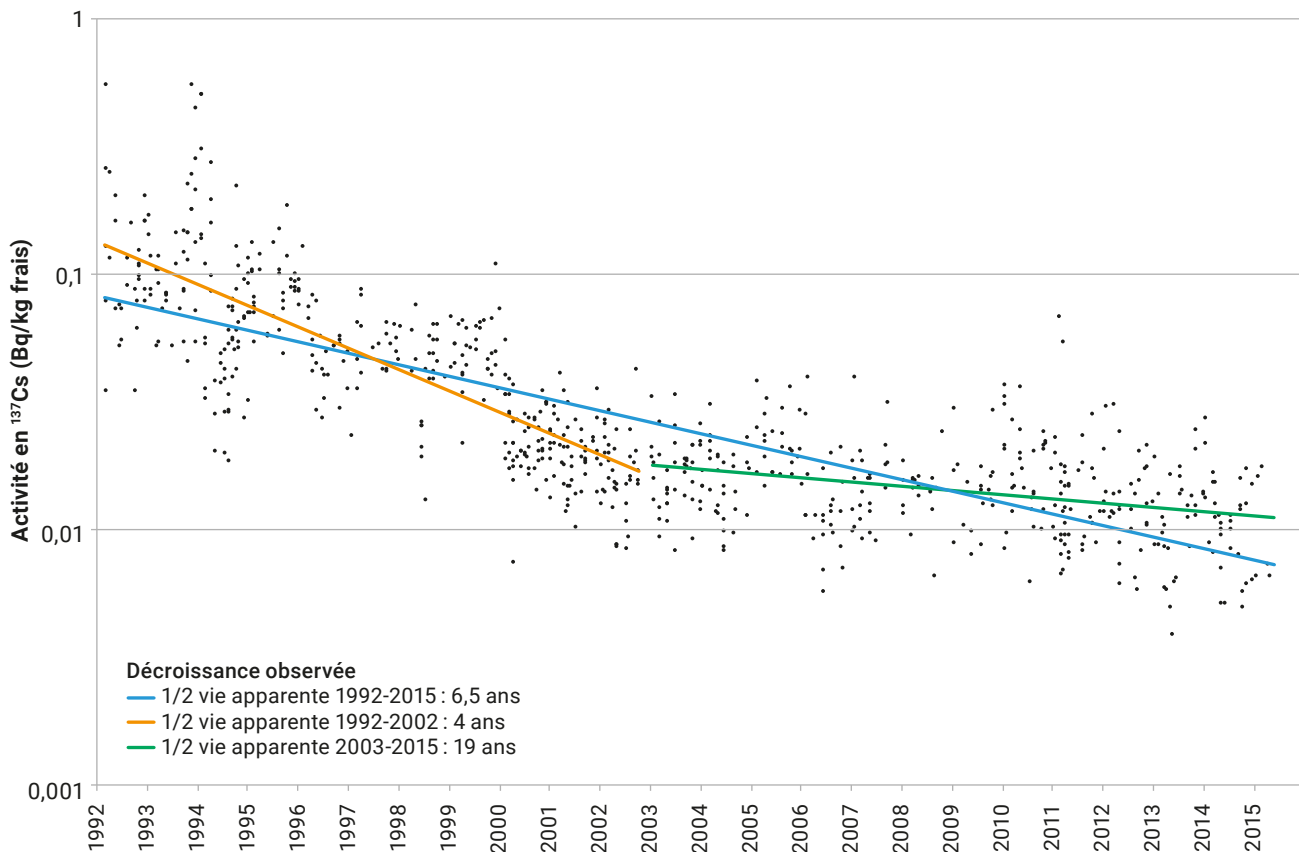


Figure 4. Évolution du ^{137}Cs dans les moules de Méditerranée de 1992 à 2015 (toutes stations confondues). Pour des raisons de lisibilité, ne sont pas figurées les incertitudes de mesure (de l'ordre de grandeur de $\pm 30\%$) ni les valeurs non significatives (environ 40 % des données).

Sur la période la plus récente (2012-2015), les seuils de décision atteints par les meilleures techniques disponibles sont de 0,005 Bq/kg frais, et sont donc proches des valeurs observées. Toutes stations confondues, sur cette même période, la médiane est de 0,012 Bq/kg frais. Les différences d'une station à l'autre sont très faibles. Néanmoins, les stations de Faraman, des Saintes-Maries-de-la-Mer et de Sète, les plus proches de l'embouchure du Rhône dans le sens de la circulation générale des masses d'eaux (Figure 2), présentent des valeurs très légèrement plus élevées, une médiane de 0,015 Bq/kg frais et une valeur de 0,018 Bq/kg frais pour la seule station de Faraman. L'influence du Rhône n'est en revanche pas décelable à la station de Banyuls, la plus éloignée de l'embouchure, avec des valeurs similaires à celles observées à Nice, Bonifacio, et Toulon (médianes 2012-2015 proches de 0,010 Bq/kg frais).

Les campagnes RINBIO de 2009 et 2012

Cette très légère variabilité spatiale des niveaux de ^{137}Cs à l'échelle de la façade méditerranéenne est également observée dans les résultats des campagnes RINBIO, obtenus selon le protocole spécifique décrit au paragraphe Échantillons de moules issus du programme RINBIO, p. 11. Les différences entre les niveaux d'activités sont très faibles et souvent non significatives lorsqu'on tient compte des incertitudes de mesure. Toutefois, on peut noter que parmi les 8 résultats d'analyse supérieurs au seuil de décision (sur 29 analyses) issus de la campagne RINBIO de 2009, les trois activités massiques les plus élevées se situent toutes à l'ouest du débouché du Rhône, avec un maximum au Grau du Roi ($0,016 \pm 0,009$ Bq/kg frais). En 2012, le ^{137}Cs a été

quantifié dans les 31 échantillons analysés grâce à des seuils de décision abaissés. Les deux valeurs les plus élevées, représentées en rouge sur la Figure 5, sont observées au débouché du Rhône et à l'ouest au Grau du Roi. Par ailleurs, lors de cette campagne 2012, des stations ont été déployées près des embouchures de certains petits fleuves côtiers en

région Provence-Alpes-Côte d'Azur et en Corse. Les activités en ^{137}Cs plus élevées dans les moules issues de ces stations indiquent que les apports par lessivage des retombées globales sur les bassins versants persistent mais que leur impact sur la zone côtière est très localisé (Figure 5).

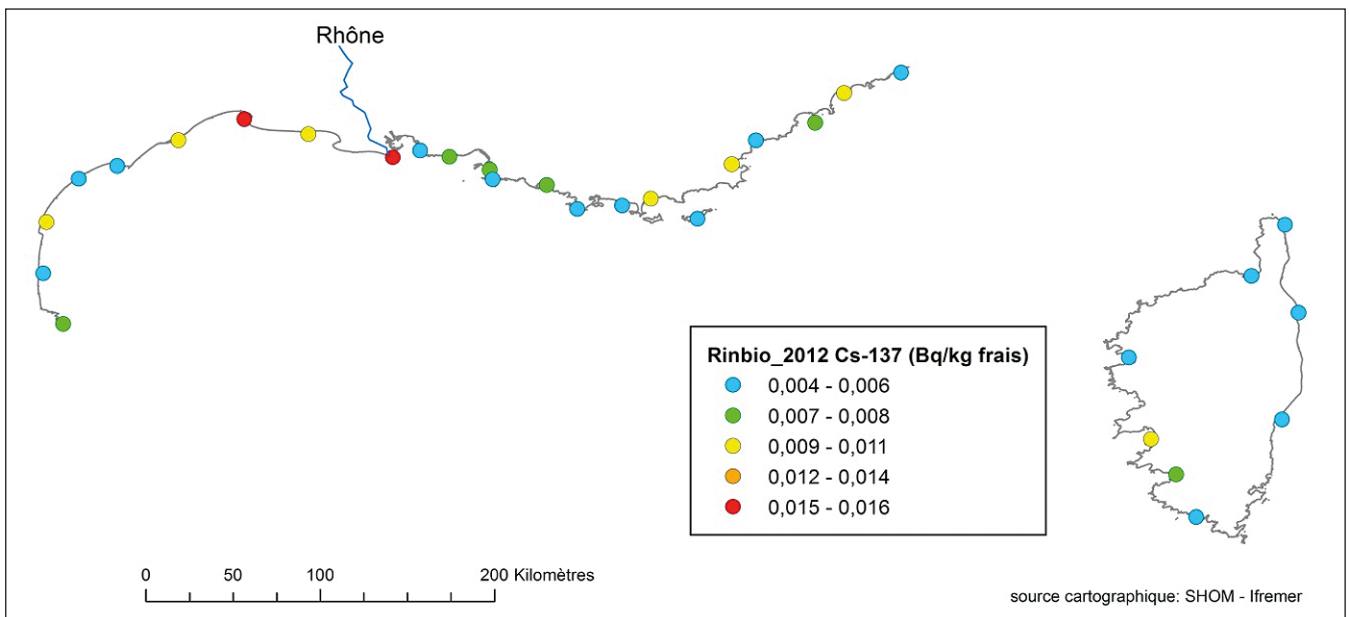


Figure 5. Distribution des activités en ^{137}Cs dans les moules (contenu inter-valvaire) transplantées selon le protocole RINBIO en Méditerranée en 2012.

En zone non influencée par les apports fluviaux, les activités en césium-137 dans la partie consommable des moules sont de l'ordre de 0,01 Bq/kg frais. L'impact des apports fluviaux de ce radionucléide en Méditerranée est aujourd'hui localisé et relativement difficile à mettre en évidence compte tenu de la faiblesse des niveaux mesurés, les activités massiques ne dépassant pas 0,02 Bq/kg frais.

4 3 ¹³⁷Cs MESURÉ DANS LES POISSONS

Les rougets de la surveillance régulière

Les résultats des mesures de ¹³⁷Cs dans les rougets (*Mullus surmuletus* et *Mullus barbatus*) de la surveillance régulière sont présentés sur la Figure 6 pour la période 1996-2015.

Les résultats de plus de 400 échantillons mesurés montrent que les activités de ¹³⁷Cs, seul radionucléide détecté par spectrométrie gamma dans les rougets (avec une fréquence de quantification de 92 %), ont diminué durant les vingt années d'observation. Cette diminution régulière est cependant moins marquée que pour les moules, avec une demi-vie apparente de 26 ans à peine inférieure à la période radioactive du césium-137 (Figure 6). Le niveau médian des activités mesurées en 2012-2013 s'établit à 0,06 Bq/kg frais, supérieur à celui observé dans les moules. Cette différence est due en partie à la bioamplification, c'est-à-dire l'augmentation des concentrations de césium dans les organismes marins lorsque l'on monte dans la chaîne trophique (Harmelin-Vivien *et al.*, 2012), le rouget se situant à un niveau trophique plus élevé que la moule.

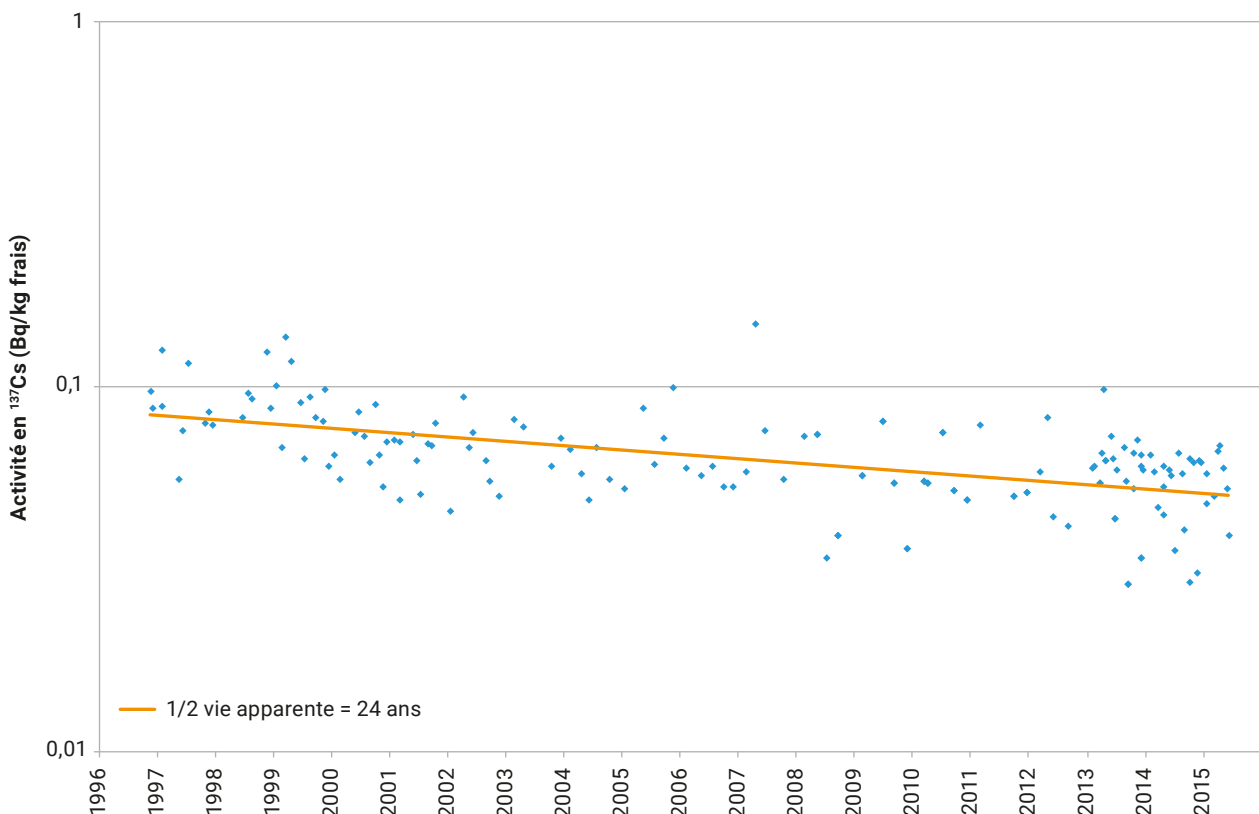


Figure 6. Évolution de l'activité en ¹³⁷Cs dans les rougets (poissons étêtés et éviscérés) de 1996 à 2015, toutes stations confondues. Pour des raisons de lisibilité, ne sont pas figurées les incertitudes de mesure (de l'ordre de grandeur de $\pm 20\%$) ni les valeurs non significatives (environ 8 % des données).

Les poissons et crustacés prélevés en complément de la surveillance régulière

Les prélèvements réalisés spécifiquement pour ce constat, par la pêche côtière au filet et lors des campagnes de pêche au chalut, ont permis de recueillir plus de 60 échantillons appartenant à plus de 20 espèces différentes de poissons et une espèce de crustacés, représentant les espèces les plus couramment pêchées en Méditerranée, et les plus consommées. Les localisations des prélèvements réalisés en 2012 et 2013 sont reportées dans la Figure 7.

Les résultats sont présentés dans le Tableau 1, pour la pêche côtière, et dans le Tableau 2 pour la pêche au chalut. Les deux activités massives les plus élevées sont mesurées en pêche côtière dans la zone proche de l'embouchure du Rhône (Grau du Roi et Port-Saint-Louis). Hormis ces deux valeurs,

la gamme de variation (0,02 à 0,15 Bq/kg frais) est à peine plus large que la gamme de variation des mesures 2012-2013 de ^{137}Cs dans les rougets de la surveillance régulière (Figure 6, cf. Les rougets de la surveillance régulière, p. 19). De même, la médiane de l'ensemble des valeurs des Tableau 1 et Tableau 2 est de 0,08 Bq/kg frais, à peine plus élevée que la médiane de ces mesures 2012-2013 des rougets de la surveillance régulière (0,06 Bq/kg frais).

Au-delà de la zone proche de l'embouchure du Rhône, la répartition des activités est assez similaire entre les échantillons prélevés dans la zone d'influence du Rhône et en dehors. Aucune différence notable n'apparaît entre les espèces de poissons, notamment entre habitats pélagiques (maquereau, sardine, chinchard, sprat), necto-benthiques (merlu, poutassou, dorade, sar, oblade) et benthiques (rascasse, raie, baudroie, saupe). Les valeurs mesurées dans les crustacés (langoustines) sont parmi les plus faibles (Tableau 2).

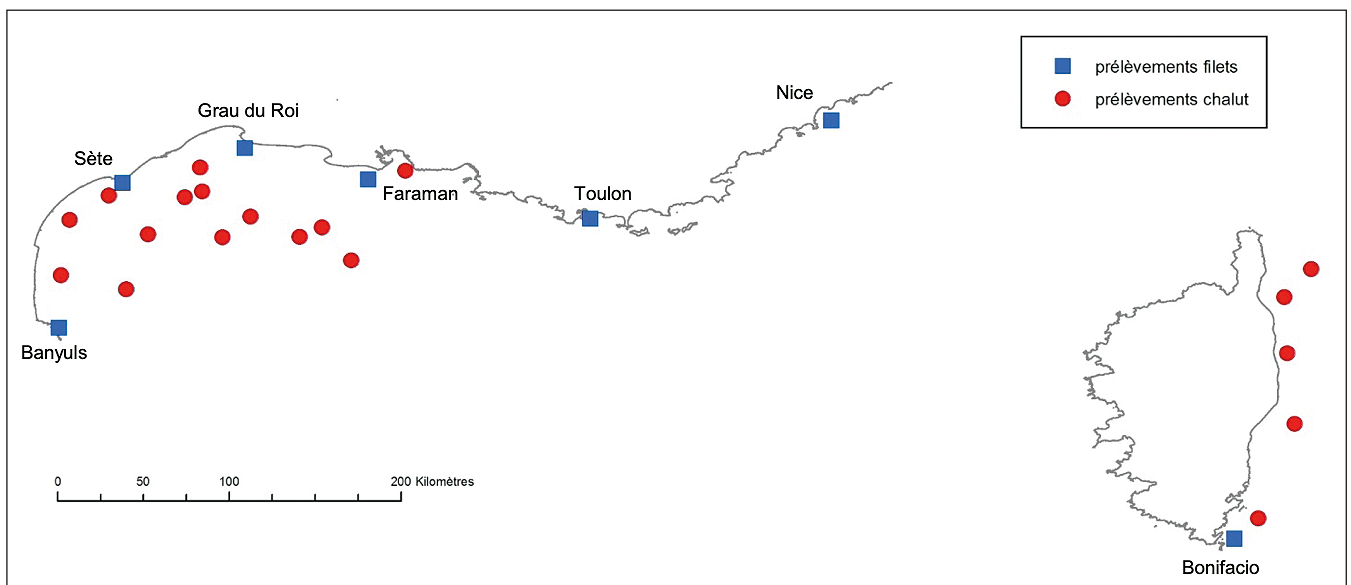


Figure 7. Localisation des prélèvements de poissons réalisés en 2012 et 2013.

Tableau 1. Activités en ^{137}Cs mesurées dans les poissons (étêtés et éviscérés) pêchés au filet sur les côtes de la Méditerranée (en Bq/kg frais). Les valeurs sont triées par ordre décroissant.

Lieu	Date	Poisson	Activité en Bq/kg frais
GRAU DU ROI	04/10/2013	Merlu	0,34 ± 0,03
PORT-SAINT-LOUIS	22/04/2013	Loup	0,18 ± 0,02
SÈTE	16/10/2013	Alose	0,14 ± 0,02
BANYULS	14/05/2013	Merlu	0,12 ± 0,02
SÈTE	09/12/2013	Raie	0,12 ± 0,01
LA SEYNE-SUR-MER	07/05/2013	Mulet	0,11 ± 0,02
SÈTE	01/08/2013	Chinchard	0,10 ± 0,01
BONIFACIO	05/06/2013	Sar	0,09 ± 0,02
NICE	26/06/2013	Maquereau	0,09 ± 0,01
BONIFACIO	11/12/2013	Rascasse	0,08 ± 0,02
GRAU DU ROI	04/10/2013	Merlu	0,08 ± 0,01
LA SEYNE-SUR-MER	06/12/2013	Sardine	0,08 ± 0,01
NICE	19/03/2013	Dorade	0,08 ± 0,02
BONIFACIO	13/11/2013	Bogue	0,07 ± 0,01
	16/04/2013	Sar	0,07 ± 0,01
	03/09/2013	Saupe	0,07 ± 0,01
NICE	24/04/2013	Saupe	0,07 ± 0,02
BANYULS	02/07/2013	Pageot	0,06 ± 0,01
	03/09/2013	Saupe	0,06 ± 0,01
SÈTE	08/04/2013	Mulet	0,06 ± 0,02
BANYULS	27/10/2013	Dorade	0,05 ± 0,01
	17/12/2013	Mulet	0,05 ± 0,01
	18/02/2013	Mulet	0,05 ± 0,01
LA SEYNE-SUR-MER	14/09/2013	Bogue	0,05 ± 0,01
	21/06/2013	Sar	0,05 ± 0,01
NICE	11/09/2013	Sar	0,05 ± 0,01
SÈTE	10/06/2013	Pageot	0,05 ± 0,01
LA SEYNE-SUR-MER	06/12/2013	Bogue	0,04 ± 0,01
NICE	12/12/2013	Dorade	0,03 ± 0,01

Tableau 2. Activités en ^{137}Cs mesurées dans les crustacés et poissons (étêtés et éviscérés) pêchés au chalut (en Bq/kg frais). Les valeurs sont triées par ordre décroissant.

Zone de pêche	Date	Poisson ou crustacé	Activité en Bq/kg frais
CORSE	30/05/2013	Poutassou	0,15 ± 0,02
GOLFE DU LION	06/07/2012	Chinchard	0,13 ± 0,02
	19/06/2013		0,12 ± 0,01
CORSE	25/05/2013	Grondin	0,11 ± 0,02
	31/05/2013	Roussette	0,11 ± 0,01
	31/05/2013	Merlu	0,11 ± 0,01
GOLFE DU LION	19/06/2013	Poutassou	0,11 ± 0,01
	06/06/2013	Roussette	0,10 ± 0,02
CORSE	31/05/2013	Baudroie	0,10 ± 0,02
GOLFE DU LION	06/06/2013	Merlu	0,10 ± 0,01
	19/06/2013	Poutassou	0,10 ± 0,01
	09/06/2013	Roussette	0,10 ± 0,01
	08/07/2012	Maquereau	0,09 ± 0,01
CORSE	30/05/2013	Roussette	0,09 ± 0,01
GOLFE DU LION	18/07/2012	Sardine	0,09 ± 0,01
CORSE	31/05/2013	Pageot	0,09 ± 0,01
	31/05/2013	Raie	0,09 ± 0,01
GOLFE DU LION	06/06/2013	Merlu	0,09 ± 0,01
CORSE	31/05/2013	Grondin	0,08 ± 0,02
GOLFE DU LION	10/06/2013	Grondin	0,08 ± 0,01
	10/07/2012	Sprat	0,08 ± 0,01
	10/07/2012	Maquereau	0,07 ± 0,02
CORSE	03/09/2013	Oblade	0,07 ± 0,01
GOLFE DU LION	06/06/2013	Baudroie	0,07 ± 0,02
	17/07/2013	Maquereau	0,06 ± 0,01
	19/06/2013	Grondin	0,06 ± 0,01
CORSE	01/06/2013	Langoustine	0,05 ± 0,01
GOLFE DU LION	17/07/2013	Maquereau	0,05 ± 0,01
	06/06/2013	Baudroie	0,05 ± 0,01
	10/07/2012	Anchois	0,03 ± 0,01
CORSE	01/06/2013	Langoustine	0,02 ± 0,01

En zone non influencée, les activités en césium-137 dans la partie consommable des poissons et crustacés sont de l'ordre de 0,1 Bq/kg frais. Un impact des apports du Rhône est parfois décelable, mais il est très faible.

4 4

 ^{137}Cs MESURÉ DANS L'EAU DE MER

La surveillance régulière inclut des prélèvements d'eau dans la rade de Toulon. Tous les résultats d'analyse obtenus sont inférieurs au seuil de décision qui est de l'ordre de 0,1 Bq/L, soit 100 Bq/m³.

Un prélèvement d'un grand volume d'eau de mer (500 L) a été réalisé dans la rade de Toulon dans le cadre de ce constat et le ^{137}Cs a été analysé par spectrométrie gamma. La concentration du ^{137}Cs mesurée dans la phase dissoute de l'eau de mer (eau filtrée < 0,45 µm) est de $1,5 \pm 0,15$ Bq/m³ (soit 0,0015 Bq/L). Cette valeur est proche de celle obtenue lors de précédentes études (Charmasson *et al.*, 2014).

4 5

 ^{137}Cs MESURÉ DANS LES SÉDIMENTS**Zone non influencée**

En zone non influencée (région Provence-Alpes-Côte d'Azur hors influence des apports du Rhône et Corse), les activités en ^{137}Cs dans les sédiments côtiers ont été quantifiées lors de la campagne RINBIO 2009, et sont présentées dans la Figure 8. Ces prélèvements ont été réalisés à l'aide d'un carottier et représentent le sédiment de surface (0-5 cm). Les niveaux mesurés sont faibles et, pour la plupart, inférieurs à 6 Bq/kg sec. Le niveau d'activité le plus élevé, sur la côte sud orientale de Corse, montre un marquage attribué aux retombées de l'accident de Tchernobyl qui ont été dans cette région parmi les plus importantes de France.

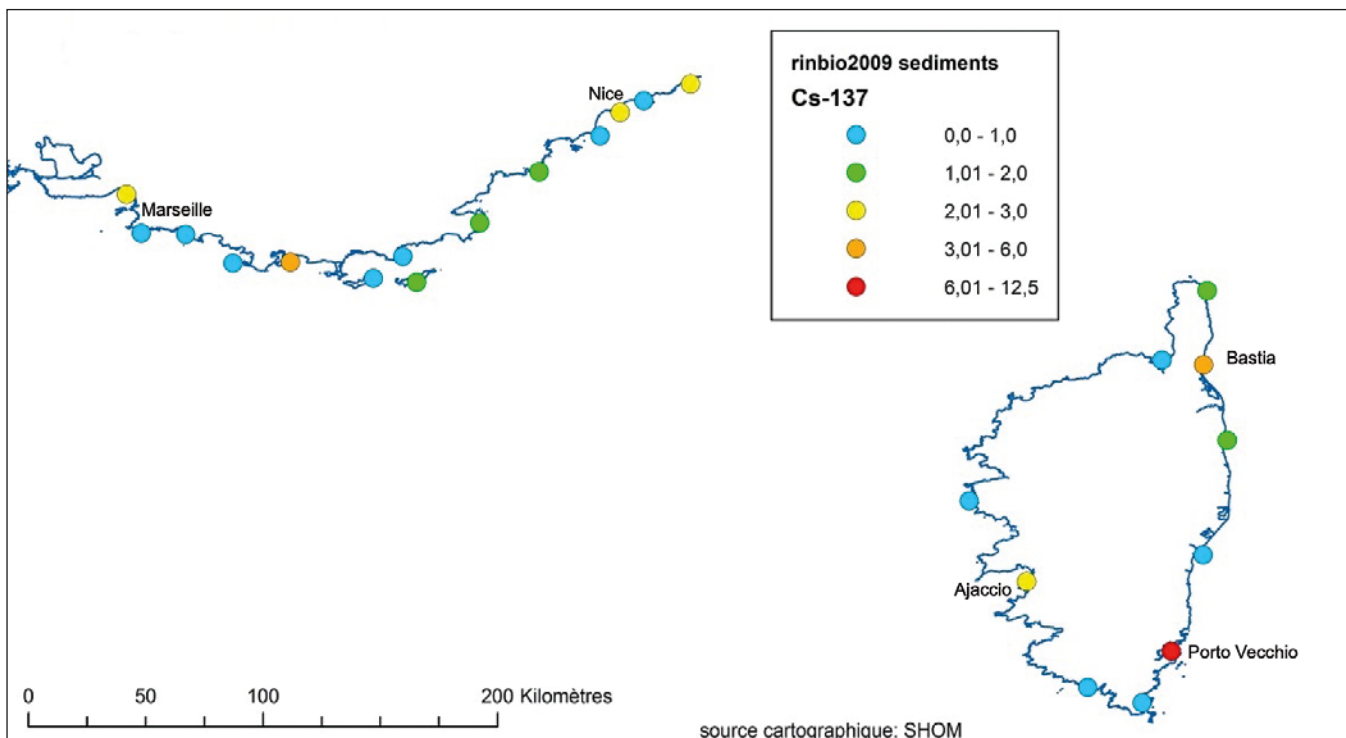


Figure 8. Activités en ^{137}Cs (en Bq/kg sec) dans les sédiments côtiers (0-5 cm) mesurées dans les échantillons de la campagne RINBIO 2009.

- Influence des apports en ^{137}Cs du Rhône _

L'influence des apports rhodaniens en ^{137}Cs sur les sédiments marins a été étudiée lors de plusieurs campagnes menées par l'IRSN notamment dans les années 2000 dans le cadre des programmes de recherche tels que REMORA et EXTREMA. Ces campagnes ont permis des prélèvements de sédiments marins par carottages à proximité de l'embouchure du Rhône (prodelta du Rhône) et dans l'ensemble du golfe du Lion. Les protocoles et résultats sont détaillés par ailleurs (Miralles *et al.*, 2006; Dufois *et al.*, 2008; Marion, 2010).

Le ^{137}Cs présente une concentration superficielle minimale de 2 Bq/kg sec en domaine profond ou sur le plateau continental du golfe du Lion et maximale de 22 Bq/kg sec sur le prodelta (delta immergé du Rhône), zone de stockage temporaire des sédiments issus du Rhône vers le golfe du Lion. La distance à la source rhodanienne régit principalement la variabilité spatiale (Marion, 2010).

Enfin, pour l'ensemble du golfe du Lion, soit 15 000 km² environ, Marion (2010) a estimé le stock total en ^{137}Cs à 27 TBq en 2001, dont près de la moitié (13 TBq) dans la seule zone du prodelta (500 km²) proche de l'embouchure.

La diminution des rejets dans les années 1990 est observée dans les profils sédimentaires de ^{137}Cs : les sédiments les plus superficiels donc les plus récents sont les moins marqués. Certaines stations témoignent d'une époque pendant laquelle les concentrations en ^{137}Cs étaient supérieures à 100 Bq/kg sec (Marion, 2010).

- Rade de Toulon _

Après une première cartographie de leur contamination en ^{137}Cs (Arnaud *et al.*, 2000), les sédiments de la rade (petite et grande rade) ont fait l'objet d'une étude complète à l'aide de prélèvements par carottages, associant l'IRSN, la Marine Nationale, le SHOM⁽⁵⁾, l'Université de Toulon et l'IFREMER, et soutenue par le Contrat de Baie de la rade de Toulon (Tessier *et al.*, 2010). Les résultats des profils verticaux de ^{137}Cs et de ^{210}Pb ont permis de déterminer un taux de sédimentation moyen apparent se situant autour de $0,21 \pm 0,05$ cm/an (Tessier *et al.*, 2011). Les apports principaux de sédiments fins proviennent de petits fleuves côtiers qui débouchent dans la rade: le Las et l'Eygoutier. Le couplage de ces mesures avec une modélisation hydro-sédimentaire (Dufresne, 2014) montre un export des sédiments fins de la petite vers la grande rade au travers de la passe principale en contournant, par l'est puis le sud, la presqu'île de Saint-Mandrier.

La Figure 9 illustre la distribution de ^{137}Cs dans les sédiments de surface (les plus récents) de la rade de Toulon. Les niveaux les plus élevés (gamme de 3 à 6 Bq/kg sec) sont mesurés en fond de la petite rade, dans le chenal et sur le pourtour de la presqu'île de Saint-Mandrier où se situent les dépôts sédimentaires les plus fins. Les niveaux de ^{137}Cs dans le nord de la grande rade et au sud de Saint-Mandrier, où les sédiments sont plus sableux, rejoignent ceux observés par ailleurs dans la région avec des valeurs faibles, inférieures à 2 Bq/kg sec.

(5) Le SHOM (Service hydrographique et océanographique de la marine), héritier du premier service hydrographique officiel au monde (1720), est un établissement public administratif (EPA) sous tutelle du ministère des Armées.

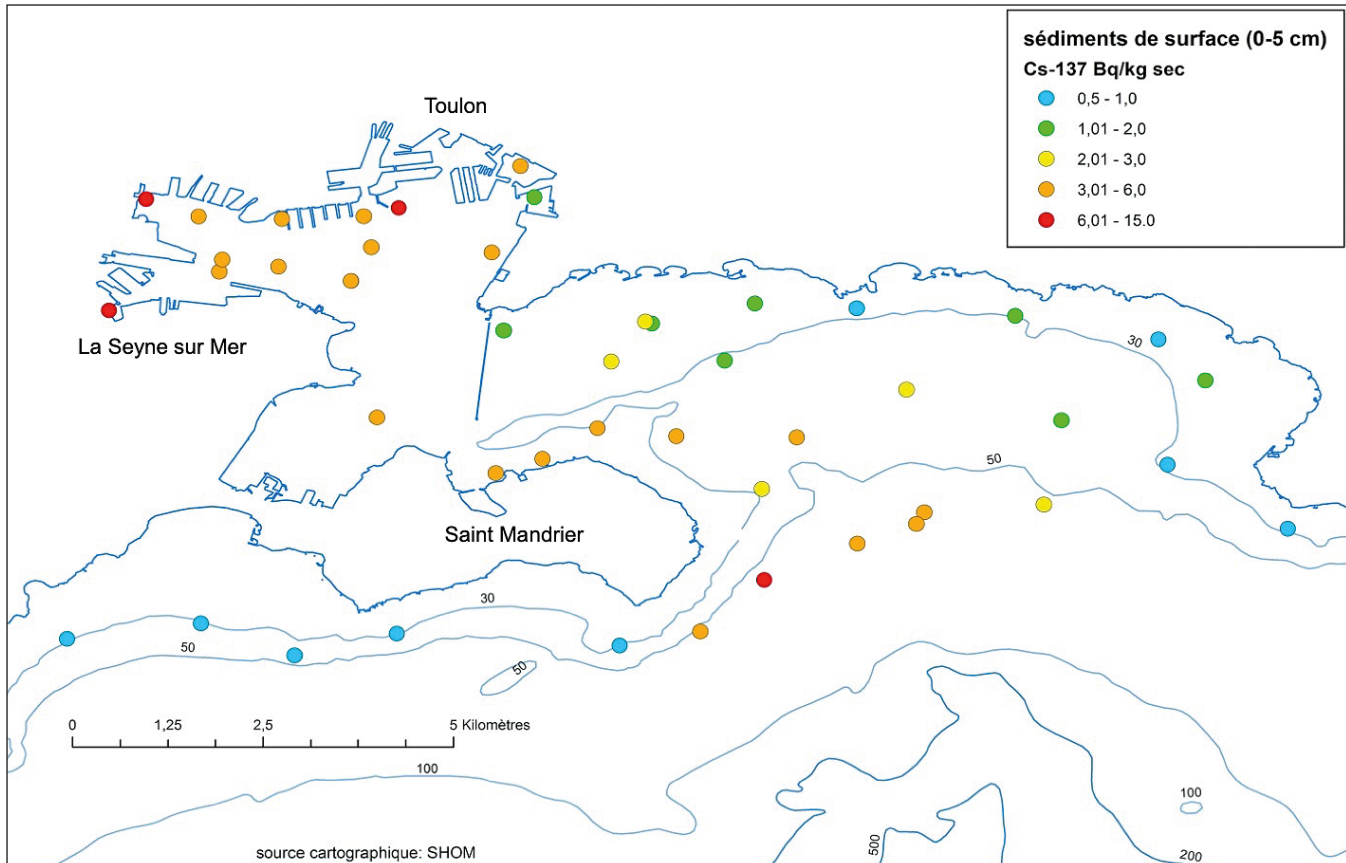


Figure 9. Niveaux de ^{137}Cs dans les sédiments de surface (0-5 cm) de la rade de Toulon (campagne CARTOCHIM 2008-2009).

Les activités en césium-137 dans l'eau de la Méditerranée sont indétectables avec les protocoles habituels. Un prélèvement de gros volume dans la rade de Toulon a permis de mesurer une activité volumique de $1,5 \text{ Bq/m}^3$ dans l'eau filtrée.

Les activités en césium-137 mesurées dans les sédiments marins superficiels vont de moins de 1 à quelques Bq/kg sec . Cette variabilité dépend, d'une part, des apports fluviaux du Rhône et des fleuves côtiers (suivant l'importance des retombées de l'accident de Tchernobyl sur les bassins versant qu'ils drainent) et, d'autre part, de la granulométrie des sédiments (les sédiments les plus fins présentant les activités massiques les plus élevées, notamment dans la rade de Toulon).

5 RÉSULTATS DE MESURE EN COBALT-60

5 1 INTRODUCTION

Comme le ^{137}Cs , le cobalt-60 (^{60}Co) est un radionucléide d'origine artificielle dont la période radioactive est de 5,3 ans. Sa présence en Méditerranée est liée aux rejets des installations nucléaires rhodaniennes.

5 2 ^{60}Co MESURÉ DANS LES MOULES

Pour l'ensemble des moules de la surveillance régulière, sur toute la période étudiée (1992-2015), les activités de ^{60}Co n'ont pu être quantifiées que dans 19 % des échantillons, tous prélevés sur les stations situées à l'ouest du Rhône, principalement à Faraman et aux Saintes-Maries-de-la-Mer, avec pour ces deux stations, les plus proches de l'embouchure, des activités mesurées ces dernières années comprises entre 0,01 et 0,03 Bq/kg frais. Plus à l'ouest, le ^{60}Co est également détecté sporadiquement dans les échantillons de Sète et Banyuls avec des activités de l'ordre de 0,01 Bq/kg frais.

Cette influence lointaine des apports du Rhône est liée à des situations océanographiques particulières qui entraînent un transport direct du panache du fleuve vers le sud-ouest, en bordure du plateau continental du golfe du Lion, limitant les phénomènes de dispersion et de dilution.

L'évolution temporelle des activités de ^{60}Co mesurées pour toutes les stations concernées (les valeurs inférieures aux seuils de décision ne sont pas représentées) est visible dans la Figure 10. On observe une nette diminution sur la période 1992-2015, en relation avec la réduction des rejets des installations nucléaires rhodaniennes, soit environ une diminution d'un facteur 10 dans les moules sur les 20 dernières années. Par ailleurs, le cobalt est présent en mer sous forme dissoute et possède un rôle biologique comme oligoélément dans les moules. Il est donc en partie régulé par les tissus, ce qui explique sa présence dans ces organismes, alors qu'il n'est pas mesurable dans l'eau de mer.

Les données des campagnes RINBIO 2009 et 2012 confirment cette variabilité spatiale. Dans la campagne 2009, le cobalt-60 n'a été quantifié que dans un seul échantillon, celui implanté à l'embouchure du Rhône, avec une activité massique de $0,015 \pm 0,007$ Bq/kg frais. Dans la campagne 2012, le cobalt a été quantifié sur 4 stations, toutes proches de l'embouchure ou à l'ouest, avec une valeur maximale à l'embouchure du Rhône à $0,009 \pm 0,004$ Bq/kg frais.

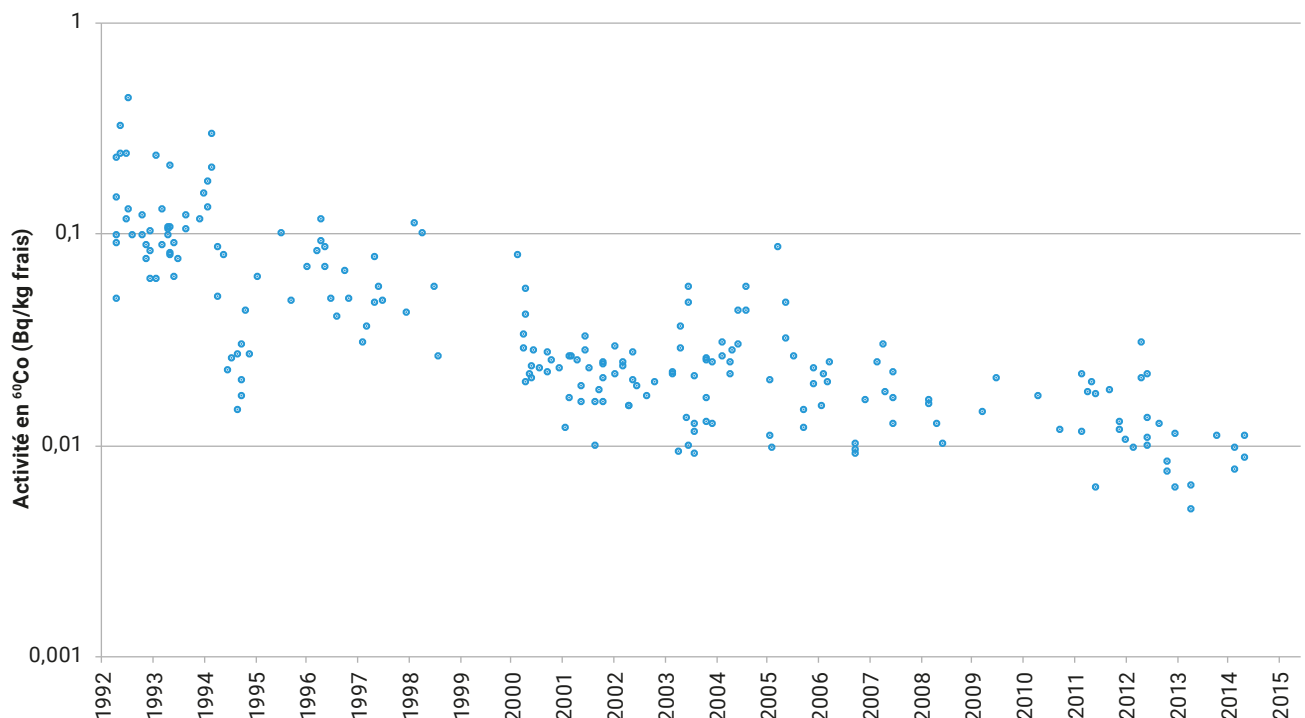


Figure 10. Évolution de l'activité en ^{60}Co dans les moules de Méditerranée de 1992 à 2015 (toutes stations confondues). Pour des raisons de lisibilité, ne sont pas figurées les incertitudes de mesure (de l'ordre de grandeur de $\pm 40\%$) ni les valeurs non significatives (81 % des données).

5 3**⁶⁰Co MESURÉ
DANS LES POISSONS**

Pour l'ensemble des rougets de la surveillance régulière, sur toute la période étudiée (1992-2015), le ⁶⁰Co n'a été quantifié que lors de 2 prélèvements en 2005 et 2006 ($0,016 \pm 0,006$ Bq/kg frais et $0,027 \pm 0,014$ Bq/kg frais). Il n'a pas non plus été quantifié sur les 60 échantillons de poissons et de crustacés prélevés en complément de la surveillance régulière.

5 4**⁶⁰Co MESURÉ
DANS LES SÉDIMENTS**

Les activités de ⁶⁰Co dans les échantillons de sédiments côtiers prélevés lors de la campagne RINBIO 2009 n'ont pas pu être mesurées car inférieures aux seuils de décision d'environ 0,2 Bq/kg sec.

À distance de l'embouchure du Rhône, les activités en cobalt-60 sont le plus souvent trop faibles pour être quantifiées par les mesures de spectrométrie gamma bas niveau mises en œuvre, quelle que soit la matrice prélevée. À proximité de son embouchure, les activités en cobalt-60 dans les moules et les poissons peuvent atteindre, localement et sporadiquement, des valeurs allant de moins de 0,01 Bq/kg frais à 0,03 Bq/kg frais.

RÉSULTATS DE MESURE DES ISOTOPES DU PLUTONIUM

6 1 INTRODUCTION

La présence de plutonium dans l'environnement marin méditerranéen est liée d'une part au lessivage des bassins versants marqués par les retombées atmosphériques globales (essais d'armes nucléaires réalisés dans les années 1945 à 1980 et chute du satellite SNAP en 1964) et d'autre part aux rejets d'effluents liquides du centre de retraitement du combustible irradié de Marcoule.

Les isotopes ^{238}Pu , ^{239}Pu et ^{240}Pu sont des émetteurs de rayonnement alpha, dont les périodes radioactives sont respectivement 88 ans, 24 110 ans et 6 570 ans. Le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ permet de discriminer le plutonium issu des retombées atmosphériques anciennes, pour lequel ce rapport d'activités isotopiques est proche de 0,03, de celui issu des rejets d'effluents liquides de Marcoule dont le rapport d'activités isotopiques est de l'ordre de 0,3.

6 2 Pu MESURÉ DANS LES MOULES

Les rapports d'activités isotopiques $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ ont été étudiés pour deux stations : Faraman, proche de l'embouchure du Rhône, et Nice (Figure 11). Pour les moules prélevées à la station de Nice, ces rapports sont compris entre 0,03 et 0,05 ;

ils sont proches de celui des retombées globales calculé à partir des données publiées par l'UNSCEAR (1982) et Perkins & Thomas (1980), dont l'estimation est aujourd'hui de l'ordre de 0,03. À la station de Faraman, les rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ varient entre la valeur caractéristique des retombées atmosphériques globales (0,03) et la valeur caractéristique des rejets liquides du centre de retraitement du combustible irradié de Marcoule (de l'ordre de 0,3; Duffa, 2001), témoignant ainsi d'un marquage par les retombées atmosphériques globales mais également par les rejets de l'industrie nucléaire via les apports du Rhône.

Les médianes des activités massiques des isotopes du plutonium mesurées dans les échantillons de moules prélevés durant les années 2000 sont de 0,9 mBq/kg frais pour le $^{239+240}\text{Pu}$ et 0,06 mBq/kg frais pour le ^{238}Pu (Tableau 3). En termes d'activités massiques, l'influence des apports du Rhône est surtout visible pour le plutonium-238, en cohérence avec l'augmentation des rapports d'activités isotopiques ; les activités massiques de ce radionucléide sont plus élevées à Faraman avec une médiane de 0,08 mBq/kg frais, qu'à Toulon ou Nice (médiane de 0,05 mBq/kg frais et 0,02 mBq/kg frais respectivement).

Malgré un nombre limité de mesures, cette série chronologique rend compte de rapports d'activités des isotopes du plutonium différents en milieu marin côtier de Méditerranée, selon que l'on se trouve sous l'influence directe des apports rhodaniens ou en dehors de ceux-ci. On peut noter que le plutonium mesuré dans l'échantillon prélevé en 2000 vient quasiment exclusivement des rejets de Marcoule avec un rapport d'activités isotopiques égal à celui caractérisant les rejets de ce site.

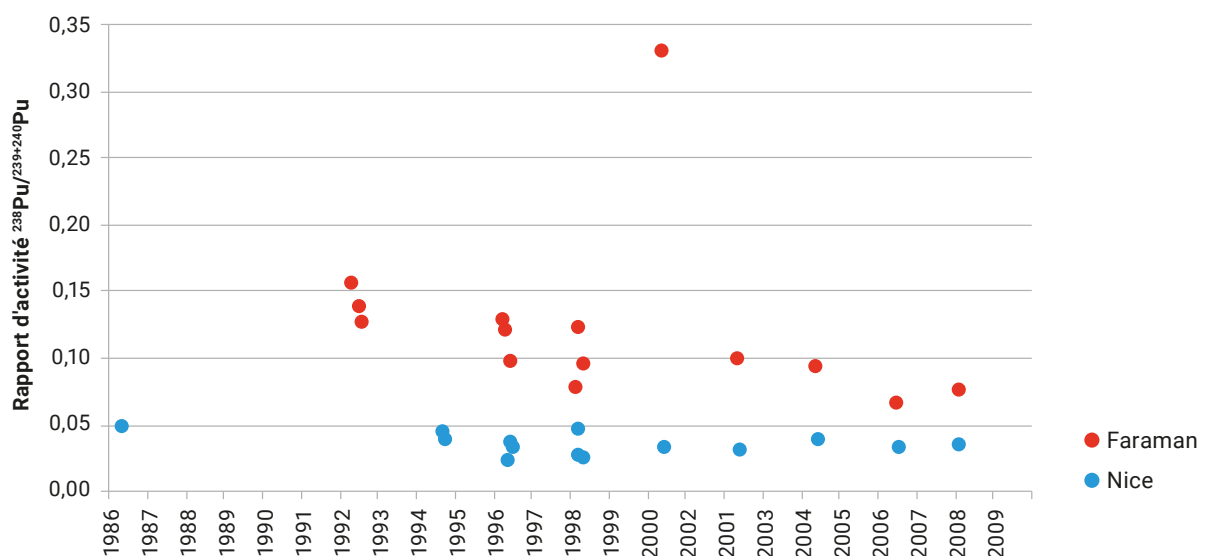


Figure 11. Évolution du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les moules des stations de Faraman (influence du Rhône) et de Nice.

Tableau 3. Activités en $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{238}Pu (en mBq/kg frais) mesurées dans les moules de Méditerranée.

Lieu	Année	$^{239+240}\text{Pu}$ (mBq/kg frais)	^{238}Pu (mBq/kg frais)
FARAMAN	1992	10,10 ± 0,77	1,57 ± 0,30
		5,07 ± 0,43	0,70 ± 0,17
		3,47 ± 0,33	0,43 ± 0,13
	1996	2,25 ± 0,18	0,29 ± 0,06
		2,69 ± 0,29	0,32 ± 0,10
		1,56 ± 0,23	0,15 ± 0,07
	1998	1,58 ± 0,15	0,12 ± 0,04
		1,91 ± 0,19	0,23 ± 0,05
		1,36 ± 0,21	0,13 ± 0,08
	2000	3,95 ± 0,27	1,30 ± 0,15
2002	0,89 ± 0,07	0,09 ± 0,02	
2004	0,85 ± 0,08	0,08 ± 0,02	
2006	0,66 ± 0,07	0,04 ± 0,02	
2008	1,27 ± 0,14	0,09 ± 0,04	
NICE	1986	16,80 ± 0,77	0,80 ± 0,13
	1994	1,10 ± 0,09	0,05 ± 0,02
		1,73 ± 0,19	0,07 ± 0,03
	1996	1,67 ± 0,26	0,04 ± 0,01
		2,03 ± 0,26	0,07 ± 0,05
	1998	1,36 ± 0,16	0,04 ± 0,03
		1,75 ± 0,17	0,05 ± 0,02
		2,38 ± 0,21	0,11 ± 0,04
	2000	3,14 ± 0,30	0,08 ± 0,06
	2002	0,89 ± 0,07	0,03 ± 0,01
2004	0,62 ± 0,06	0,02 ± 0,01	
2006	0,53 ± 0,06	0,02 ± 0,01	
2008	0,89 ± 0,09	0,03 ± 0,02	
2008	1,51 ± 0,14	0,05 ± 0,02	
PORT-SAINT-LOUIS	2005	1,29 ± 0,14	0,08 ± 0,03
SAINTES-MARIES	2005	1,16 ± 0,14	0,09 ± 0,04
		0,95 ± 0,14	0,06 ± 0,03
		1,24 ± 0,12	0,12 ± 0,04
	2006	1,35 ± 0,16	0,04 ± 0,03
		0,84 ± 0,12	0,07 ± 0,03
TOULON	2005	0,76 ± 0,10	0,05 ± 0,02
		4,41 ± 0,33	0,22 ± 0,06
	2006	1,23 ± 0,15	0,05 ± 0,02
		0,89 ± 0,11	0,07 ± 0,03
		1,12 ± 0,16	0,002 ± 0,02
		0,82 ± 0,10	0,02 ± 0,02

Les activités des isotopes du plutonium dans les moules prélevées en zone non influencée par les apports du Rhône sont de l'ordre de 0,6 mBq/kg frais en $^{239+240}\text{Pu}$ et 0,02 mBq/kg frais en ^{238}Pu , selon un rapport isotopique cohérent avec celui des retombées globales (proche de 0,03). L'influence des rejets du site de Marcoule dans le Rhône est décelable à l'embouchure par des rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ compris entre 0,03 et 0,3.

6 3 Pu MESURÉ DANS LES SÉDIMENTS

Les activités du $^{239+240}\text{Pu}$ mesurées dans les sédiments en zone côtière (embouchure du Rhône, rade de Toulon) sont comprises entre 0,3 et 6 Bq/kg sec. Au débouché du Rhône, les rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ témoignent des apports, par le fleuve, de plutonium provenant des rejets du centre de retraitement du combustible irradié de Marcoule (Tableau 4).

Ailleurs et notamment dans la rade de Toulon, ce rapport correspond à celui des retombées globales anciennes. Dans les sédiments de surface prélevés près de Toulon, les activités massiques de $^{239+240}\text{Pu}$ les plus élevées sont mesurées dans les sédiments les plus fins de la petite rade (Figure 12).

Tableau 4. Profils verticaux des isotopes du plutonium dans les sédiments en zone côtière.

Lieu	Station	Date prélèvement	Niveau dans le sédiment (cm)*	Activité $^{239+240}\text{Pu}$ (Bq/kg sec)	Rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
Embouchure Rhône (2 km)	Extrema-MTRous	2008	5 - 15	$0,33 \pm 0,01$	0,18
Embouchure Rhône (5 km)	Rhosos-KS25	2008	50 - 80	$1,87 \pm 0,03$	0,17
			100-115	$2,93 \pm 0,04$	0,01
Rade de Toulon (petite rade)	Cartochim-12	2009	2 - 4	$2,07 \pm 0,08$	0,028
			8 - 10	$5,73 \pm 0,19$	0,024
			12 - 14	$0,79 \pm 0,03$	0,022
	Siat-9	2001	0 - 5	$2,93 \pm 0,05$	0,025
			5 - 10	$3,30 \pm 0,06$	0,025
			10 - 15	$1,22 \pm 0,02$	0,025

* Les résultats présentés sont moyennés sur les résultats correspondant à des épaisseurs comprises entre la profondeur minimale et la profondeur maximale.

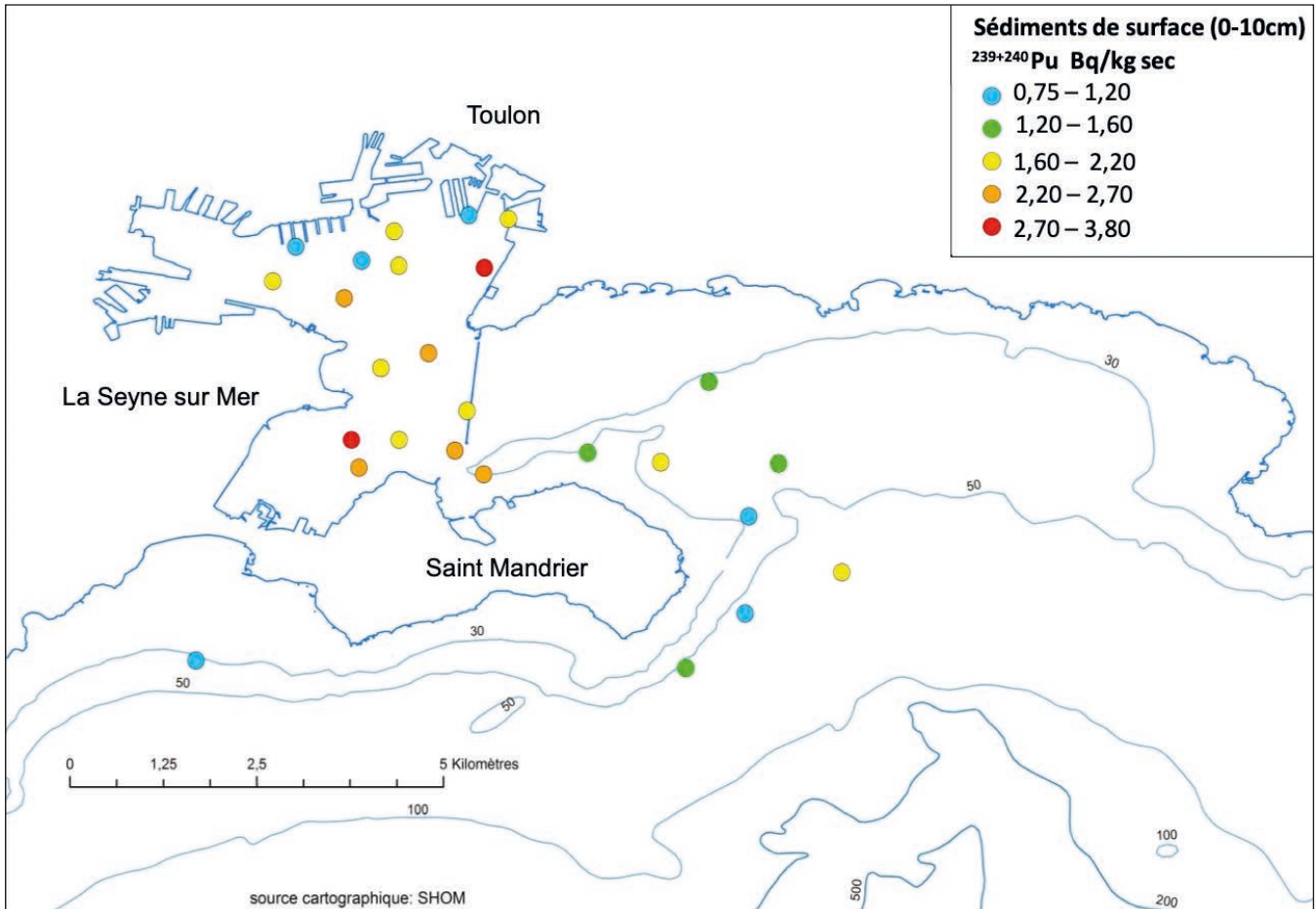


Figure 12. Distribution de l'activité en $^{239+240}\text{Pu}$ dans les sédiments de surface (0-10 cm) de la rade de Toulon (campagne SIAT2000).

7 RÉSULTATS DE MESURE DES ISOTOPES DE L'URANIUM ET DE SES DESCENDANTS

7 1 INTRODUCTION

L'uranium naturel est composé de trois principaux isotopes (^{234}U , ^{235}U et ^{238}U), tous radioactifs. Ils sont présents dans l'écorce terrestre depuis l'origine de la planète.

La présence de l'uranium dans le milieu marin méditerranéen est liée à la géologie des côtes (notamment la présence de roches assez riches en uranium comme le granite dans l'est de la Provence et en Corse), et aussi aux apports issus des massifs granitiques du bassin versant du Rhône (Alpes, Massif central). Certaines zones pourraient être influencées par les rejets d'uranium des usines ORANO de la Vallée du Rhône (Tricastin et Romans-sur-Isère) et de Malvési (près de Narbonne) ou encore par des industries susceptibles de renforcer les teneurs en uranium dans l'environnement (le traitement des minerais de phosphates notamment) qui sont rares dans la vallée du Rhône.

Certains radionucléides naturels, dont des descendants (par chaînes de filiation radioactive) de ^{235}U et de ^{238}U , sont mesurables par spectrométrie gamma et donc régulièrement quantifiés par la surveillance régulière. Les résultats ne sont pas détaillés ici, à l'exception d'un rappel sur les sables noirs de Camargue étudiés dans le cadre du Constat radiologique effectué par l'IRSN sur la vallée du Rhône (Roussel-Debet, 2012).

En revanche, la spectrométrie gamma ne permet pas de quantifier le polonium-210 (^{210}Po), un émetteur alpha descendant de ^{238}U dont la période radioactive est de 138,5 jours. Dans le milieu marin, le polonium s'accumule dans les organismes comme les mollusques et les crustacés et peut donc contribuer de manière non négligeable à la dose annuelle ingérée par un consommateur régulier de produits de la mer (Renaud *et al.*, 2015b). C'est pour cette raison que des mesures complémentaires de ce radionucléide ont été effectuées pour ce constat.

7 2 URANIUM MESURÉ DANS LES MOULES

Des mesures ponctuelles des isotopes de l'uranium ont été réalisées par spectrométrie alpha sur les échantillons de moules de la surveillance régulière en Méditerranée. Les résultats, présentés dans le Tableau 5 montrent des valeurs homogènes qui correspondent au « bruit de fond » lié à la géologie de la région. On note que les activités de ^{238}U et de ^{234}U (descendant de ^{238}U), sont du même ordre de grandeur dans les moules. On remarque également que la valeur mesurée dans l'étang de Bages, près de Narbonne, est similaire à celles mesurées ailleurs en Méditerranée. Par ailleurs le rapport de masses $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ pour tous ces résultats est similaire à celui caractérisant l'uranium naturel, soit 0,72 %. Ces données indiquent que l'influence des rejets du site ORANO de Malvési⁽⁶⁾, effectués dans le canal du Tauran en amont hydraulique de l'étang de Bages, n'est pas discernable par ce bio-indicateur. Par ailleurs, les mesures d'uranium pondéral (U total exprimé en $\mu\text{g}/\text{kg}$ de matière fraîche) réalisées par ORANO dans les espèces aquatiques prélevées à Port-La-Nouvelle et transmises au RNM⁽⁷⁾, sont inférieures au seuil de décision.

(6) Purification des concentrés d'uranium et conversion en UF₄.

(7) Réseau National de Mesures de la radioactivité de l'environnement (<https://www.mesure-radioactivite.fr/>).

Tableau 5. Activités des isotopes de l'uranium mesurées dans les moules (contenu inter-valvaire) en Méditerranée (en Bq/kg frais) et rapports massiques $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ (exprimés en % soit g/100 g). Les moules de Toulon, des Saintes-Maries-de-la-Mer et de Bonifacio sont collectées dans le cadre de la surveillance régulière; les moules de Narbonne ont été implantées dans l'étang de Bages selon le protocole RINBIO (cf. Échantillons de moules issus du programme RINBIO, p. 11).

Lieu de prélèvement	Date de prélèvement	^{234}U	^{235}U	^{238}U	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$
BONIFACIO	11/01/2006	0,23 ± 0,04	0,009 ± 0,001	0,19 ± 0,02	0,74 % ± 0,03 %
	14/03/2006	0,10 ± 0,04	0,004 ± 0,001	0,08 ± 0,01	0,75 % ± 0,02 %
	16/05/2006	0,19 ± 0,04	0,008 ± 0,001	0,16 ± 0,02	0,74 % ± 0,02 %
	19/07/2006	0,22 ± 0,05	0,008 ± 0,001	0,18 ± 0,02	0,74 % ± 0,03 %
	12/09/2006	0,21 ± 0,04	0,008 ± 0,001	0,18 ± 0,02	0,72 % ± 0,03 %
	13/11/2006	0,21 ± 0,05	0,008 ± 0,001	0,17 ± 0,02	0,73 % ± 0,02 %
SAINTES-MARIES	07/02/2006	0,10 ± 0,04	0,004 ± 0,001	0,08 ± 0,01	0,73% ± 0,03%
	17/07/2006	0,23 ± 0,04	0,009 ± 0,001	0,20 ± 0,02	0,74% ± 0,03%
	28/11/2006	0,21 ± 0,05	0,008 ± 0,001	0,17 ± 0,02	0,74% ± 0,02%
TOULON	08/02/2006	0,15 ± 0,04	0,006 ± 0,001	0,12 ± 0,01	0,76 % ± 0,03 %
	20/07/2006	0,25 ± 0,05	0,012 ± 0,001	0,25 ± 0,03	0,74 % ± 0,02 %
	01/12/2006	0,15 ± 0,04	0,006 ± 0,001	0,12 ± 0,01	0,73 % ± 0,03 %
NARBONNE	09/06/2009	0,17 ± 0,03	0,007 ± 0,001	0,14 ± 0,01	0,72 % ± 0,03 %

Les activités en isotopes de l'uranium dans la partie consommable des moules de Méditerranée sont de l'ordre de 0,1 à 0,3 Bq/kg frais pour ^{238}U et pour ^{234}U , et de 0,01 Bq/kg frais pour ^{235}U . Aucun impact des installations du Rhône et de l'usine de Malvési n'est décelable au travers des analyses faites sur ce bio-indicateur.

7 3 RADIONUCLÉIDES NATURELS MESURÉS DANS LES SÉDIMENTS

Des descendants des isotopes de l'uranium, plomb-210 (^{210}Pb), actinium-228 (^{228}Ac) et thorium-234 (^{234}Th), et d'autres radionucléides naturels, potassium-40 (^{40}K), béryllium-7 (^7Be), sont régulièrement quantifiés par spectrométrie gamma dans les échantillons du milieu marin et transmises au RNM, sans que les résultats soient spécifiquement détaillés dans ce constat.

Les activités en uranium et thorium sont particulièrement élevées dans les sables noirs provenant des plages de Camargue (Beauduc, Saintes-Maries-de-la-Mer). Ces plages présentent des zones de sables plus sombres, appelées « placers », qui résultent d'une accumulation naturelle de minéraux lourds (apatite et zircon). Suite à des investigations sur des résultats de prélèvements en 2003 (Pourcelot & Vassas, 2005; Vassas *et al.*, 2006; Pourcelot & Renaud, 2006), le volet terrestre du constat Rhône (Roussel-Debet, 2012) présentait un état radiologique de référence réactualisé par des prélèvements en 2009. Ces études ont montré que tous les isotopes des chaînes de l'uranium-238 et du thorium-232 sont à l'équilibre radioactif dans ces minéraux qui proviennent de l'érosion des roches granitiques et volcaniques du bassin versant du Rhône. Sur les deux campagnes (2003 et 2009), les activités en ^{228}Ac , ^{234}Th , et ^{210}Pb dépassent 1 000 Bq/kg sec dans les sables noirs. En comparaison, les activités en ^{228}Ac , ^{234}Th , et ^{210}Pb mesurées dans les sédiments superficiels marins méditerranéens (diamètre inférieur à 2 mm) sont de quelques dizaines de Bq/kg sec.

7 3 ^{210}Po MESURÉ DANS LES MOULES ET DANS LES POISSONS

Les activités de polonium-210 mesurées dans des échantillons de moules et de poissons prélevés sur différentes stations méditerranéennes sont présentées dans le Tableau 6. Les activités mesurées dans les moules sont plus élevées que celles mesurées dans les poissons. Le polonium-210 se concentre dans le plancton marin pour des raisons qui ne sont pas encore clairement établies scientifiquement. Le fait qu'il en résulte des activités massiques plus élevées dans les coquillages et dans une moindre mesure les petits poissons, est en revanche une connaissance bien établie par de nombreuses études internationales (Carvalho, 2011; IAEA, 2004; Renaud *et al.*, 2015a).

Des mesures systématiques ont ensuite été réalisées sur les échantillons de moules transplantées lors de la campagne RINBIO 2009. Les résultats apparaissent dans la Figure 18 et confirment la distribution du ^{210}Po en fonction de la géologie des formations littorales. Les niveaux sont plus élevés le long de la côte rocheuse cristalline (volcanique et métamorphique), en Corse et Provence-Alpes-Côte d'Azur, et plus faibles le long de la côte sableuse et calcaire du littoral méditerranéen occidental français. Cette distribution spatiale des valeurs est conforme à celles observées pour le ^{210}Pb et le ^{234}Th (autres descendants de l' ^{238}U , mesurables en spectrométrie gamma) dans la surveillance régulière ou lors de précédentes campagnes de transplantation de moules (Thébault, 2007).

Tableau 6. Activités en ^{210}Po mesurées dans les moules (contenu inter-valvaire) et les poissons (étêtés et éviscérés) en Méditerranée (Bq/kg frais).

Lieu	Date	Moule ou poisson	Activités (Bq/kg frais)
SAINTES-MARIES	26/11/2008	Moule	20,7 ± 2,5
TOULON	14/11/2008	Moule	32,6 ± 3,6
NICE	27/11/2008	Moule	34,3 ± 3,8
BANYULS	18/11/2008	Moule	41,5 ± 4,3
BONIFACIO	18/11/2008 </td <td>Moule</td> <td>58,0 ± 5,8</td>	Moule	58,0 ± 5,8
NICE	27/11/2008	Poisson (rouget)	30,7 ± 4,6
BANYULS	10/11/2008	Poisson (rouget)	12,6 ± 2,6
PORT-SAINT-LOUIS	26/11/2008	Poisson (turbot)	8,4 ± 2,2
TOULON	15/01/2009	Poisson (rouget)	4,6 ± 1,1

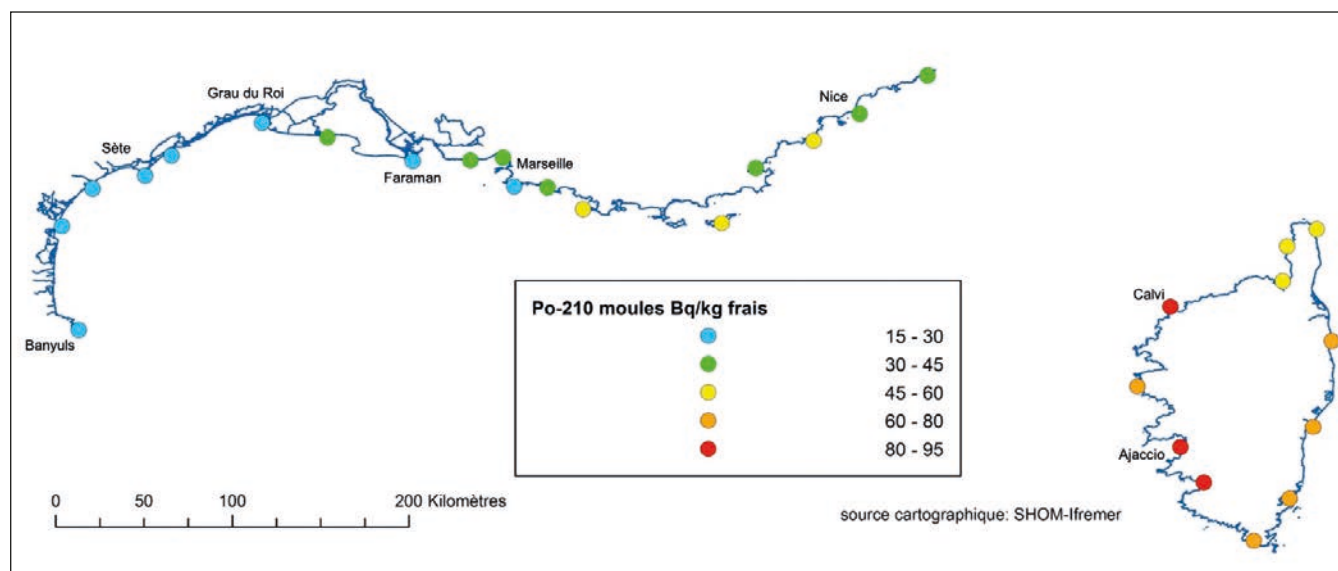


Figure 13. Mesures de ^{210}Po dans les moules récoltées à l'issue de la campagne RINBIO 2009.

Les activités en ^{210}Po dans la partie consommable des moules sont de l'ordre de quelques dizaines de Bq/kg frais avec une variabilité spatiale influencée par la géologie des formations littorales.

8

RÉSULTATS DE MESURE DE STRONTIUM-90

8 1

INTRODUCTION

Le strontium-90 est un radionucléide d'origine artificielle dont la présence dans l'environnement marin provient principalement des retombées des essais aériens d'armes nucléaires et, pour une faible part, des rejets en fonctionnement normal de certaines installations nucléaires (installations de Marcoule notamment). Le comportement du strontium-90 dans l'environnement est étroitement lié à celui de son analogue et compétiteur biochimique, le calcium. Le ^{90}Sr , dont la mesure dans les échantillons de l'environnement nécessite une séparation radiochimique préalable, est peu fréquemment mesuré en milieu marin.

8 2

^{90}Sr MESURÉ DANS LES SQUELETTES DE POISSONS

Le strontium est très soluble dans l'eau de mer. Analogue chimique du calcium, il s'accumule préférentiellement dans le squelette et les coquilles des animaux marins et n'est pas mesurable dans la chair. Seules les activités massiques de sept des trente échantillons de squelettes de poissons pêchés au filet et au chalut en 2012-2013 (cf. Autres campagnes de prélèvements de poissons et d'autres produits de la pêche, p. 12) ont pu être quantifiées; très faibles, elles sont assorties d'une forte incertitude de mesure (Tableau 7).



Salle de comptage beta (mesure de l'yttrium-90, descendant du strontium-90).

Tableau 7. Niveaux de ^{90}Sr dans le squelette des poissons de Méditerranée. Les valeurs significatives sont ordonnées par ordre décroissant.

Lieu	Date	Espèce	Activités (Bq/kg frais)
TOULON	07/05/2013	Muge	0,22 ± 0,09
PORT-SAINT-LOUIS	22/04/2013	Bar	0,15 ± 0,06
BANYULS	17/12/2013	Muge	0,12 ± 0,11
BONIFACIO	05/06/2013	Sparaillon commun	0,03 ± 0,03
SÈTE	10/06/2013	Pageot acarne	0,04 ± 0,03
TOULON	14/09/2013	Bogue	0,04 ± 0,04
SÈTE	08/04/2013	Muge	< 0,19
BONIFACIO	16/04/2013	Sparaillon commun	< 0,18
NICE	11/09/2013	Sparaillon commun	< 0,14
	24/04/2013	Saupe	< 0,13
BONIFACIO	03/09/2013	Oblade	< 0,11
BANYULS	03/09/2013	Saupe	< 0,11
TOULON	21/06/2013	Sar commun	< 0,08
NICE	19/03/2013	Dorade royale	< 0,05
BANYULS	14/05/2013	Merlu commun	< 0,02
NICE	26/06/2013	Maquereau commun	< 0,02
BANYULS	02/07/2013	Pageot acarne	< 0,06
BONIFACIO	03/09/2013	Saupe	< 0,08
SÈTE	16/10/2013	Grande alose	< 0,03
BANYULS	27/10/2013	Dorade royale	< 0,06
BONIFACIO	13/11/2013	Bogue	< 0,03
TOULON	06/12/2013	Bogue	< 0,04
	06/12/2013	Sardine	< 0,06
BONIFACIO	11/12/2013	Rascasse	< 0,04
NICE	12/12/2013	Dorade rose	< 0,06
GOLFE DU LION	06/07/2012	Chinchard	< 0,06
	08/07/2012	Maquereau commun	< 0,04
	10/07/2012	Anchois	< 0,03
	10/07/2012	Maquereau commun	< 0,03
	10/07/2012	Sprat	< 0,02
	18/07/2012	Sardine	< 0,03

Les activités en ^{90}Sr sont inférieures à 0,3 Bq/kg frais dans les squelettes de poisson.

RÉSULTATS DE MESURE EN CARBONE-14

9 1

INTRODUCTION

Le carbone-14 (^{14}C) est un isotope radioactif du carbone (période radioactive de 5 730 ans), qui a la particularité d'être produit naturellement et artificiellement. La production d'origine naturelle a lieu lors de l'absorption de neutrons par les atomes d'azote de la stratosphère et des couches hautes de la troposphère. Les neutrons proviennent de la collision des rayons cosmiques avec les atomes de l'atmosphère, notamment l'oxygène. La production d'origine humaine provient du fonctionnement normal des réacteurs nucléaires, des opérations de retraitement du combustible irradié, des essais atmosphériques d'armes nucléaires ou encore de l'utilisation du ^{14}C comme traceur biologique et chimique pour la recherche et les applications médicales.

Le ^{14}C présent dans l'atmosphère ou les rejets liquides est incorporé dans l'eau de mer dans le carbone minéral, en particulier dans le système des carbonates ($\text{CO}_2/\text{HCO}_3^-/\text{CO}_3^{2-}$). L'incorporation du ^{14}C dans l'écosystème marin se produit au début de la chaîne trophique par la photosynthèse du phytoplancton. La précipitation du carbone sous forme de carbonate de calcium constitue également le squelette calcaire du phytoplancton, des coraux et la coquille de nombreux mollusques.

Hors influence d'une installation nucléaire, les activités de ^{14}C par unité de masse de carbone total (Bq/kg de C) dans les organismes marins, sont généralement proches de celles mesurées dans l'atmosphère à la même période. Pour la fin des années 2000, période d'acquisition des données présentées ci-après, cela correspond à des valeurs d'environ 230-240 Bq/kg de C (Fiévet *et al.*, 2006).

9 2

^{14}C MESURÉ DANS LES MOULES ET POISSONS

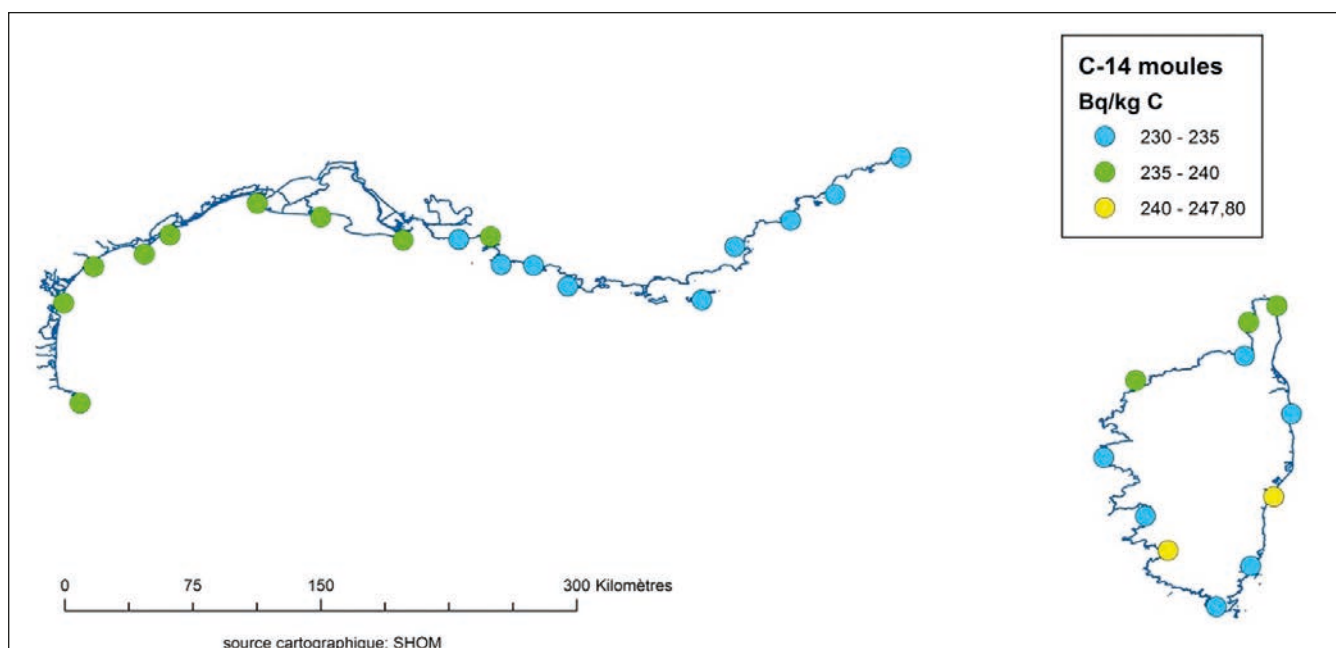
Les mesures réalisées dans les échantillons de la surveillance régulière (moules et poissons) donnent des résultats d'activités compris entre 230 et 243 Bq/kg C (Tableau 8). Comme décrit ci-avant, ces activités spécifiques sont conformes à celles attendues à la fin des années 2000 dans l'environnement marin hors influence.

Des mesures systématiques ont été réalisées sur les échantillons de moules transplantées lors de la campagne RINBIO 2009. Les résultats, exprimés en activités de carbone-14 par unité de masse de carbone total, sont présentés dans la Figure 14.

Les activités de carbone-14 par unité de masse de carbone total montrent une grande stabilité le long de la côte de Méditerranée. Les niveaux très légèrement plus élevés à l'ouest de l'embouchure du Rhône résultent possiblement des rejets des installations nucléaires le long du fleuve. Exprimées dans l'unité usuelle pour les denrées alimentaires, en becquerels par kilogramme de matière, ces mesures RINBIO 2009 sont comprises entre 4,0 Bq/kg frais à 15,6 Bq/kg frais, avec une médiane de 6,9 Bq/kg frais.

Tableau 8. Activités spécifiques en ^{14}C dans les moules et les poissons de Méditerranée (en Bq par kilogramme de carbone).

Lieu	Date	Espèce	^{14}C en Bq/kg C
SAINTES-MARIES	26/11/2008	Moules	$239,5 \pm 1,7$
TOULON	24/11/2008	Moules	$236,0 \pm 2,0$
NICE	27/11/2008	Moules	$229,8 \pm 1,3$
BANYULS	18/11/2008	Moules	$236,5 \pm 1,7$
BONIFACIO	18/11/2008	Moules	$237,5 \pm 1,7$
NICE	27/11/2008	Rouget	$228,3 \pm 1,3$
BANYULS	10/11/2008	Rouget	$236,2 \pm 2,0$
PORT-SAINT-LOUIS	26/11/2008	Turbot	$243,5 \pm 1,7$
TOULON	15/01/2009	Rouget	$234,2 \pm 1,7$

**Figure 14.** Mesures de ^{14}C dans les moules récoltées à l'issue de la campagne RINBIO 2009.

L'activité de carbone-14 par unité de masse de carbone total dans les échantillons de moules de Méditerranée est très proche de la valeur observée dans l'air sur la même période, confirmant l'origine principalement naturelle aujourd'hui de ce radionucléide en milieu marin. Une très légère influence des apports fluviaux est cependant décelable.

10 RÉSULTATS DE MESURE EN TRITIUM

10 1 INTRODUCTION

Le tritium (^3H) est l'isotope radioactif de l'hydrogène. C'est un émetteur beta pur de faible énergie dont la période radioactive est de 12,32 ans. Le tritium possède les mêmes propriétés physico-chimiques que l'hydrogène et son comportement dans l'environnement est donc intimement lié au cycle de cet élément. Dans le milieu marin, le tritium est présent sous forme d'eau tritiée (HTO) qui suit le cycle de l'eau. Les résultats des mesures de tritium sous forme d'eau tritiée sont exprimés en Bq/L. Le tritium est également présent sous forme liée à la matière organique (TOL : tritium organiquement lié) en raison de son incorporation à la matière vivante lors de la biosynthèse (ex. photosynthèse). Comme la combustion complète de la matière organique donne de l'eau (H_2O) et du CO_2 , la valeur de TOL est aussi exprimée en Bq/L d'eau de combustion afin de pouvoir comparer cette valeur à celle du tritium libre, HTO. Les résultats des mesures de TOL peuvent aussi être rapportés à la matière sèche (Bq/kg sec), supposée représentative de la matière organique pour les bio-indicateurs, ou exprimés dans l'unité usuelle pour les denrées alimentaires, en becquerels par kilogramme de matière (Bq/kg frais).

Comme le ^{14}C , le tritium possède une double origine, naturelle et anthropique. La production naturelle du ^3H est issue des réactions entre les atomes d'azote et les rayons cosmiques dans la haute atmosphère. La concentration naturelle en ^3H est très faible en comparaison de l'hydrogène stable. Le tritium rejeté dans l'environnement du fait d'activités humaines provient notamment (i) des essais aériens atmosphériques d'armes nucléaires, (ii) des réacteurs nucléaires, (iii) des opérations de retraitement du combustible irradié, (iv) d'activités militaires, (v) d'activités industrielles telles que la fabrication d'objets luminescents ou la production de molécules marquées (ASN, 2010; IRSN, 2012). En ce qui concerne spécifiquement le Rhône, les flux annuels en tritium libre (HTO) estimés à la Station Observatoire du Rhône en Arles (SORA) ont varié entre 2007 et 2016 de 203 à 322 TBq/an.

10 2 LE TRITIUM LIBRE MESURÉ DANS L'EAU DE MER

- Zone non influencée _

Les prélèvements d'eau de mer en Méditerranée fournissent des mesures de concentration en tritium libre très constantes dès que l'on s'éloigne de la zone côtière. Ainsi lors de la campagne DEWEX-1 en Méditerranée nord-occidentale en 2013, les valeurs mesurées en surface varient entre 0,04 et 0,095 Bq/L, ce qui correspond aux niveaux rencontrés dans toutes les composantes de l'environnement (atmosphériques, terrestres, aquatique continentales et marines) avant les essais atmosphériques d'armes nucléaires (Rooth & Östlund, 1972; Roether & Lupton, 2011). Des niveaux similaires ont été également mesurés ailleurs en Méditerranée par d'autres équipes (Roether & Lupton, 2011) ainsi que par l'IRSN lors de la campagne PERSMED en 2014 (mers Adriatique, Ionienne et Tyrrhénienne) avec des valeurs des eaux de surface comprises entre 0,08 et 0,1 Bq/L. Les niveaux de tritium mesurés dans les eaux profondes (> 2000 m) de Méditerranée lors de cette campagne sont très stables et varient entre 0,04 et 0,05 Bq/L.

En zone côtière, les niveaux dans l'eau de surface sont similaires, sauf dans la zone d'influence des apports des fleuves côtiers drainant les bassins versants marqués par les retombées atmosphériques anciennes. Ainsi, les résultats de la campagne RADLIT2 en mai 2014 (Figure 15) montrent des concentrations en HTO multipliées par 3 à 4 (0,17 à 0,4 Bq/L) au débouché des fleuves côtiers comme l'Argens et le Var dans lesquels les niveaux atteignent 1 à 2 Bq/L (Eyrolle-Boyer *et al.*, 2015).

- Influence des apports du Rhône _

Dans la zone d'influence des apports du Rhône à la mer, les niveaux de tritium dans les eaux côtières sont 2 à 20 fois supérieurs à ceux mesurés ailleurs en Méditerranée (Figure 16). En effet, dans les eaux du Rhône à Arles, les niveaux observés sont en moyenne de l'ordre de 10 Bq/L (Antonelli & Eyrolle, 2010). Le gradient décroissant vers l'ouest des niveaux mesurés le long de la côte correspond à la dispersion du panache du Rhône sous l'effet de la circulation générale, déjà mentionnée (cf. ^{60}Co mesuré dans les moules, p. 26). Une distribution équivalente a été également observée lors de campagnes de mesure en 2010 et 2011 sur la même zone (Jean-Baptiste, 2014; Jean-Baptiste *et al.*, 2018).

La Figure 17 montre que les concentrations de tritium libre dans l'eau de mer n'ont pas dépassé 0,25 Bq/L lors d'une campagne de prélèvements réalisée en octobre 2008 sur une zone située à une distance de l'ordre de 2 à 5 km de l'embouchure du Rhône. Ces résultats mettent en exergue une diminution très rapide de l'activité volumique de HTO dans l'eau de mer dès que l'on s'éloigne de la côte en raison de la dilution des eaux du fleuve dans les eaux marines.

Rade de Toulon

Dans le cadre de son programme de surveillance, l'IRSN réalise des mesures de tritium total dans l'eau de mer prélevée dans la petite rade de Toulon (trimestriellement jusqu'à fin 2012, mensuellement depuis 2013). Les résultats d'analyses sont dans leur grande majorité inférieurs aux seuils de décision (il faut noter que ces seuils de décisions étaient jusqu'en 2016 autour de 2,5 Bq/L, soit 10 fois au-dessus des niveaux attendus dans l'eau de mer). Toutefois, des activités plus

élevées (jusqu'à 11 Bq/L) ont ponctuellement été mesurées par l'IRSN dans la rade sans que leur origine n'ait pu être déterminée malgré les investigations menées.

En zone non influencée, les activités en tritium libre dans l'eau de mer sont inférieures à 0,1 Bq/L. Dans la zone d'influence des apports du Rhône à la mer, les niveaux de tritium dans les eaux côtières peuvent être 2 à 20 fois supérieurs. Des activités de tritium supérieures aux valeurs attendues (jusqu'à 11 Bq/L) ont été ponctuellement mesurées par l'IRSN dans des eaux prélevées dans la rade de Toulon. Néanmoins, les conséquences de ces niveaux d'activité en tritium dans l'eau de mer sont négligeables pour les populations et l'environnement.

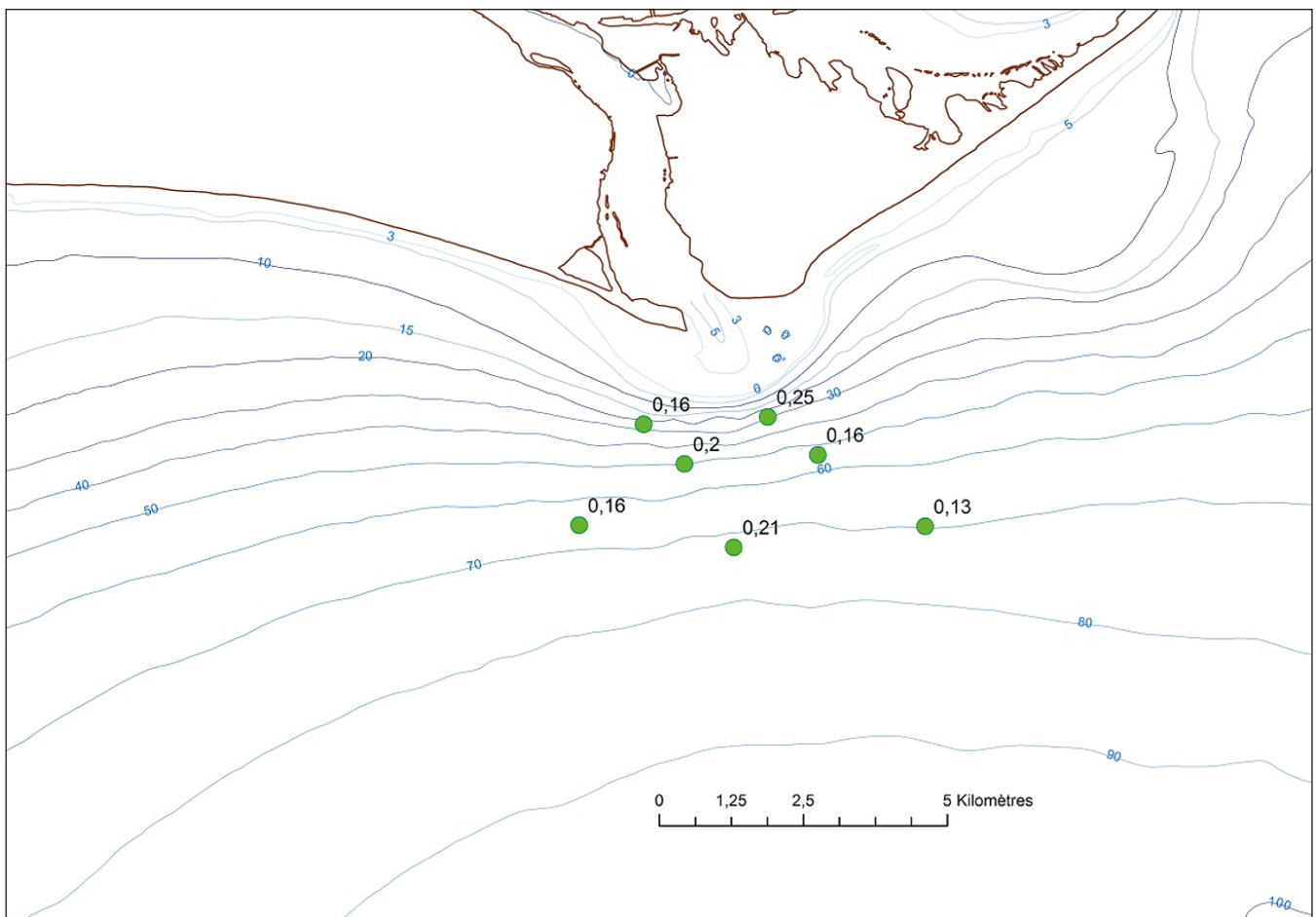


Figure 17. Mesures de tritium HTO dans l'eau de mer de surface à l'embouchure du Rhône (Bq/L). Campagne CARMEX, octobre 2008.

10 3 LE TRITIUM LIÉ À LA MATIÈRE ORGANIQUE MESURÉ DANS LES SÉDIMENTS MARINS

Le tritium lié à la matière organique des sédiments de surface a été mesuré dans des échantillons de la campagne RINBIO 2009 sur les 10 premiers centimètres, le long du littoral des régions Provence-Alpes-Côte d'Azur et Corse. Les activités en TOL sont exprimées en Bq/kg sec dans le Tableau 9.

Dans la rade de Toulon, des activités de tritium dans les sédiments, supérieures à celles attendues, sont mises en évidence. Ceci est visible sur les données RINBIO acquises pour la grande rade (Tableau 9) et surtout pour la petite rade, avec les profils des carottes prélevées en 2009 lors de la campagne CARTOCHIM, qui montrent un marquage net en TOL avec un maximum vers 6-8 cm de profondeur (Figure 18). La datation de ces carottes à l'aide des mesures de ^{137}Cs et de ^{210}Pb (Tessier *et al.*, 2011) permet de constater que le début de ce marquage est ancien (45-50 ans) et qu'il persiste actuellement dans une moindre mesure, en particulier dans la petite rade. La partie profonde de ces carottes donne les valeurs de référence de l'ère pré-nucléaire, soit moins de 1 Bq/kg sec de TOL (Figure 18). Les niveaux dans les sédiments de surface prélevés dans la petite rade lors de cette campagne montrent un marquage significatif en TOL, atteignant dans le port militaire 100 fois les niveaux de bruit de fond en zone côtière. En effet les valeurs maximales sont de 132 ± 7 Bq/kg sec (ou 2180 ± 110 Bq/L eau de combustion) pour la profondeur 0-5 cm et $145,7 \pm 7$ Bq/kg sec (ou 2900 ± 145 Bq/L d'eau de combustion) pour la profondeur 5-10 cm (Figure 19).

L'origine de cette contamination n'est pas clairement établie, mais la profondeur des sédiments les plus marqués suggère qu'elle est ancienne. Les seules retombées des essais aériens d'armes nucléaires ne suffisent pas à expliquer les activités mesurées aujourd'hui, même en tenant compte du fait que des sédiments anciens, datant de l'époque où les niveaux de tritium étaient beaucoup plus élevés qu'aujourd'hui, aient pu s'accumuler dans ce milieu presque fermé.

À l'embouchure du Rhône (Roustan, Port-Saint-Louis-du-Rhône, Faraman), les sédiments de surface sont marqués par les apports du fleuve avec des activités en TOL dépassant 100 Bq/L d'eau de combustion (Jean-Baptiste, 2014; Jean-Baptiste *et al.*, 2018), en nette diminution cependant par rapport à la fin des années 1980 où les activités aux mêmes stations dépassaient 3000 Bq/L d'eau de combustion (Gontier *et al.*, 1992).

En zone non influencée, les activités en tritium lié à la matière organique dans les sédiments marins superficiels sont dans une gamme comprise entre 0,5 et 1,5 Bq/kg sec. Les niveaux sont un peu supérieurs sous influence des apports du Rhône, et très supérieurs dans la rade de Toulon dont le marquage a vraisemblablement une origine ancienne.

Tableau 9. Activités en TOL dans les sédiments (0-10 cm) en zone côtière (RINBIO 2009) en Bq/kg sec.

À titre indicatif, ces valeurs mesurées directement en Bq/kg sec correspondent à des valeurs d'une à quelques dizaine(s) de Bq/L eau de combustion.

Lieu	Date	Matrice	TOL (Bq/kg sec)
PORTO VECCHIO	11/03/2009	Sédiment	$0,7 \pm 0,5$
BASTIA	07/03/2009	Sédiment	$0,6 \pm 0,3$
AJACCIO	12/03/2009	Sédiment	$1,3 \pm 0,5$
CAP CANAILLE	02/04/2009	Sédiment	$1,6 \pm 0,5$
LES EMBIEZ	02/04/2009	Sédiment	$0,5 \pm 0,3$
TOULON (GRANDE RADE)	02/04/2009	Sédiment	$3,5 \pm 0,5$
ÎLE DU LEVANT	05/04/2009	Sédiment	$1,4 \pm 0,6$
ANTIBES	04/04/2009	Sédiment	$1,5 \pm 0,5$

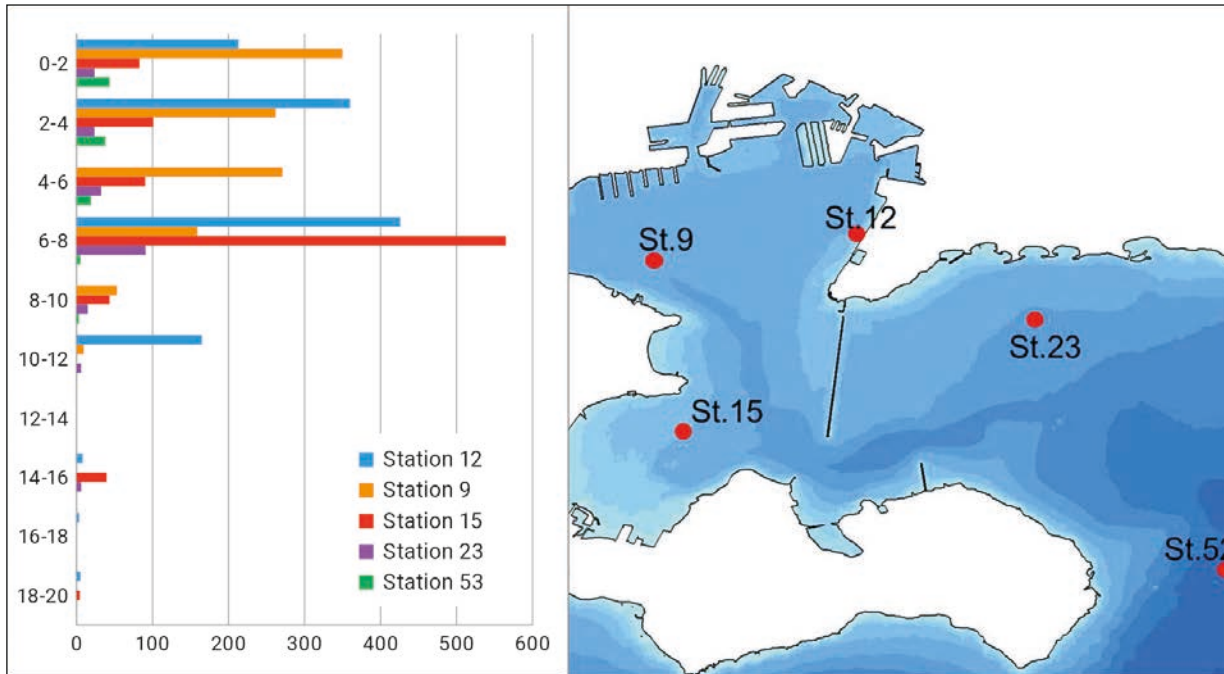


Figure 18. Profil de TOL des sédiments (0-20 cm) de la rade de Toulon, campagne CARTOCHIM 2009 (Bq/kg sec).

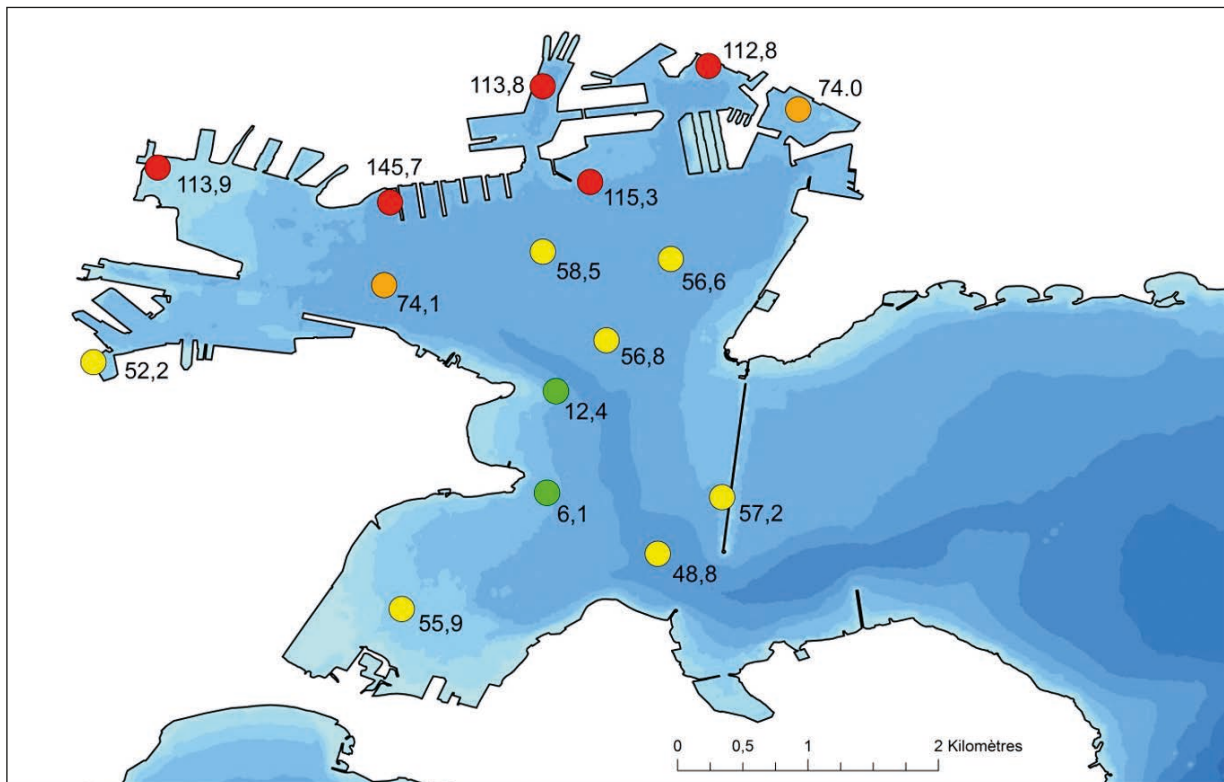


Figure 19. Mesures de TOL dans les sédiments (5-10 cm) dans la petite rade de Toulon (Bq/kg sec), campagne CARTOCHIM 2009. À titre de comparaison, la gamme de variation pour la profondeur 5-10 cm s'étend de 87 ± 5 Bq/L d'eau de combustion ($6,1 \pm 0,3$ Bq/kg sec) à 2900 ± 145 Bq/L d'eau de combustion ($145,7 \pm 8,0$ Bq/kg sec).

10 4

LE TRITIUM LIÉ À LA MATIÈRE ORGANIQUE MESURÉ
DANS LES MOULES

Zone non influencée

Les mesures ponctuelles de tritium lié à la matière organique (TOL) dans les échantillons de la surveillance régulière n'ont été mises en place qu'à partir de 2007, dès que les méthodes d'analyses ont démontré leur performance pour la mesure de cette forme du tritium en milieu marin (Tableau 10). Pour la zone non influencée (Nice, Bonifacio), les activités sont assez homogènes, autour de 1 Bq/L d'eau de combustion, soit environ 0,5 Bq/kg sec. Converties en Bq/kg frais, ces valeurs ne dépassent pas 0,1 Bq/kg frais.

Pour les autres stations, les niveaux sont variables spatialement et dans le temps avec des valeurs parfois 10 à 100 fois supérieures aux niveaux observés en zone non influencée. La valeur maximale, observée en octobre 2007 à la station de Toulon, est de $133,7 \pm 3,7$ Bq/L d'eau de combustion soit $51,9 \pm 1,5$ Bq/kg sec ou $4,61 \pm 0,13$ Bq/kg frais. Plus de résultats sur la rade de Toulon sont présentés au paragraphe Rade de Toulon, p. 47. La 2^e valeur la plus élevée, observée aux Saintes-Maries-de-la-Mer, sous influence du Rhône, est de $6,04 \pm 0,3$ Bq/L d'eau de combustion soit $2,79 \pm 0,14$ Bq/kg sec, ou $0,32 \pm 0,02$ Bq/kg frais. Plus de résultats sur la variabilité spatiale, et notamment l'influence des apports du Rhône, sont présentés ci-après, au paragraphe Influence des apports du Rhône, p. 46.

Tableau 10. Activités en tritium lié à la matière organique (TOL) dans les moules en Bq/L d'eau de combustion et en Bq/kg sec (voir texte pour conversion en Bq/kg frais).

Lieu	Date	Activité (Bq/L d'eau de combustion)	Activité (Bq/kg sec)
TOULON	22/10/2007	$133,7 \pm 3,7$	$51,9 \pm 1,5$
	24/11/2008	$9,82 \pm 0,49$	$4,75 \pm 0,24$
	17/06/2010	$4,41 \pm 0,07$	$2,07 \pm 0,03$
	02/08/2010	$4,72 \pm 0,24$	$2,54 \pm 0,13$
SAINTES-MARIES	23/10/2007	$1,4 \pm 0,7$	$0,7 \pm 0,4$
	26/11/2008	$6,04 \pm 0,3$	$2,79 \pm 0,14$
	21/06/2010	$1,64 \pm 0,04$	$0,77 \pm 0,02$
PORT-SAINT-LOUIS	21/06/2010	$1,79 \pm 0,04$	$0,84 \pm 0,02$
NICE	27/11/2008	$1,36 \pm 0,07$	$0,6 \pm 0,03$
	08/07/2010	$0,55 \pm 0,02$	$0,84 \pm 0,04$
FARAMAN	21/06/2010	$3,03 \pm 0,05$	$1,42 \pm 0,02$
	05/08/2010	$2,94 \pm 0,15$	$1,52 \pm 0,08$
BONIFACIO	18/11/2008	$1,26 \pm 0,06$	$0,56 \pm 0,03$
	23/06/2010	$0,50 \pm 0,02$	$0,24 \pm 0,01$
BANYULS	18/11/2008	$1,99 \pm 0,10$	$0,90 \pm 0,05$
	29/06/2010	$0,70 \pm 0,02$	$0,33 \pm 0,01$

Influence des apports du Rhône

Les campagnes RINBIO 2009 et 2012 ont permis de mieux caractériser la variabilité spatiale des niveaux de TOL dans les moules transplantées le long des côtes françaises de Méditerranée. À partir d'un lot unique, ces moules immergées de mars à juin dans la frange littorale recevant les apports des fleuves côtiers intègrent sur plusieurs mois les variations des niveaux de tritium dans les eaux côtières. Pour la campagne de 2009, les activités mesurées sont stables, variant entre 0,6 et 1,37 Bq/L d'eau de combustion (médiane: 0,8), soit entre 0,3 et 0,6 Bq/kg sec (médiane: 0,4), ou entre 0,02 et 0,08 Bq/kg frais (médiane: 0,04). Même si l'activité la plus élevée a été mesurée à l'embouchure du Rhône (1,37 Bq/L en 2012), l'influence du fleuve sur les activités en tritium des moules de Méditerranée est peu visible au travers des résultats acquis.

Par ailleurs, pour une partie des stations, des échantillons d'eau de mer ont été prélevés au moment de la récupération des moules aux mêmes stations et mesurés en HTO (résultats

présentés plus haut, au paragraphe Influence des apports du Rhône, p. 40, Figure 16). Le Tableau 11 permet de comparer les résultats de TOL dans les moules et de HTO dans l'eau de mer. Les activités en TOL dans les moules sont supérieures aux activités en HTO des eaux de surface de Méditerranée, alors qu'on suppose généralement – toutes choses égales par ailleurs – un équilibre entre activités en HTO dans le milieu et en TOL dans les organismes vivants (IRSN, 2017). En revanche, les activités en TOL dans les moules sont du même ordre de grandeur que les activités enregistrées dans l'eau et les sédiments ou les matières en suspension aux débouchés des fleuves côtiers (0,08±0,01 à 0,50±0,01 Bq/L pour l'HTO et 1±1 à 29±17 Bq/L pour le TOL dans les sédiments). Le lien entre les teneurs en TOL de ces organismes et les apports continentaux de TOL délivrés par les multiples fleuves côtiers du pourtour méditerranéen, sources d'éléments nutritifs, est une piste d'explication proposée pour ce déséquilibre apparent, mais reste à consolider (IRSN, 2017). Des études sont actuellement en cours pour mesurer le TOL dans les premiers échelons trophiques (phyto et zooplancton) pour mieux comprendre ces résultats⁽⁸⁾.

Tableau 11. Activités en TOL dans les moules transplantées et en HTO dans l'eau de mer prélevée aux mêmes stations; les stations sont localisées sur la carte de la Figure 16.

Station	Date	Espèce	TOL (Bq/L)	Matrice	HTO (Bq/L)	TOL/HTO
BANYULS	26/06/2012	Moule	0,86 ± 0,02	Eau de mer	0,17 ± 0,01	5,01
CANNET PLAGE	25/06/2012	Moule	0,76 ± 0,03	Eau de mer	0,19 ± 0,01	3,99
PORT-LA-NOUVELLE	26/06/2012	Moule	0,71 ± 0,14	Eau de mer	0,14 ± 0,01	5,1,6
AUDE	26/06/2012	Moule	0,80 ± 0,04	Eau de mer	0,16 ± 0,01	4,97
HÉRAULT	27/06/2012	Moule	0,89 ± 0,03	Eau de mer	0,13 ± 0,01	6,65
FRONTIGNAN	27/06/2012	Moule	0,79 ± 0,02	Eau de mer	0,15 ± 0,01	5,13
GRAU DU ROI	27/06/2012	Moule	0,93 ± 0,03	Eau de mer	0,16 ± 0,01	5,83
SAINTES-MARIES	28/06/2012	Moule	0,89 ± 0,03	Eau de mer	0,42 ± 0,01	2,11
EMBOUCHURE DU RHÔNE	28/06/2012	Moule	1,37 ± 0,04	Eau de mer	2,02 ± 0,07	0,68
PONTEAU	28/06/2012	Moule	0,89 ± 0,02	Eau de mer	0,12 ± 0,01	7,36
CARRY	03/07/2012	Moule	0,80 ± 0,03			
HUVEAUNE	28/06/2012	Moule	0,83 ± 0,03	Eau de mer	0,10 ± 0,01	8,53
CORTIOU	03/07/2012	Moule	0,80 ± 0,05			
LA CIOTAT	04/07/2012	Moule	0,80 ± 0,03			
GAPEAU	22/06/2012	Moule	1,03 ± 0,05			
ARGENS	19/06/2012	Moule	0,85 ± 0,07			
VAR	18/06/2012	Moule	0,79 ± 0,06			
ROGLIANO	10/07/2012	Moule	0,93 ± 0,11			
FIGARI-BRUZZI	12/07/2012	Moule	0,78 ± 0,04			

(8) L'IRSN est impliqué dans le projet DROPLETT, qui bénéficie du soutien financier du programme NEEDS2 et de la Politique de site IFREMER, et qui vise à évaluer les transferts de radionucléides artificiels dans les premiers maillons d'une chaîne trophique marine par une approche intégrée « chimie, biologie et écologie ».

Rade de Toulon

Une étude spécifique dans la rade de Toulon a été réalisée fin 2012 par prélèvements de moules naturelles sur une dizaine de stations afin de caractériser la distribution des activités en TOL dans cette espèce bio-indicatrice. Les résultats sont présentés dans la Figure 20. Dans l'ensemble de la rade, et en particulier dans le nord de la petite rade, les activités en TOL

sont significativement supérieures à celles habituellement mesurées en zone côtière non influencée, sans toutefois atteindre la valeur mesurée en 2007 (Tableau 10). La valeur maximale ($10,9 \pm 1,0$ Bq/L d'eau de combustion, soit $5,5 \pm 0,6$ Bq/kg sec) est celle du Port de Brégaillon (quai IFREMER), au même point de prélèvement que les moules de la station Toulon du Tableau 10.

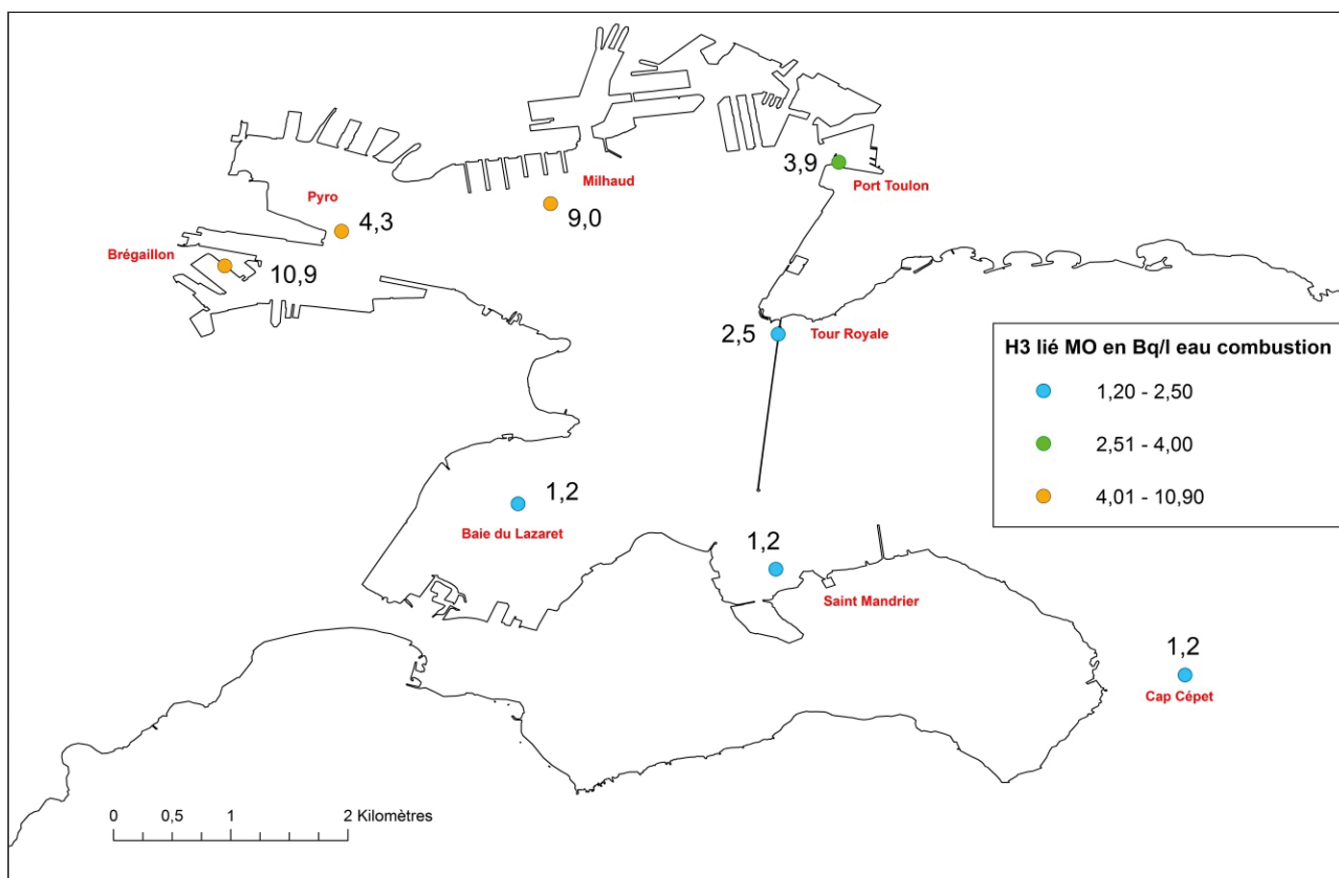


Figure 20. Activités en TOL dans les moules prélevées à différentes stations dans la rade de Toulon en 2012.

En zone non influencée, les activités en tritium lié à la matière organique dans les moules sont assez stables, autour de 1 Bq/L d'eau de combustion, soit environ 0,5 Bq/kg sec ou 0,1 Bq/kg frais. L'influence du Rhône sur les activités en tritium des moules est peu visible, excepté à l'embouchure même du fleuve. En revanche, les activités de tritium mesurées dans les échantillons de moules prélevées dans la rade de Toulon sont très supérieures à celles observées en zone non influencée, avec une forte variabilité spatiale et temporelle.

10 5 LE TRITIUM LIÉ À LA MATIÈRE ORGANIQUE MESURÉ DANS LES POISSONS

Comme pour les moules, le TOL a également été mesuré dans les poissons de la surveillance régulière (Tableau 12). Les activités mesurées à Nice ou Banyuls sont d'environ 1 Bq/L d'eau de combustion, soit environ 0,3 Bq/kg frais. Les niveaux à Toulon sont variables mais souvent supérieurs, sans atteindre pour autant les niveaux observés dans les moules.

Le TOL a aussi été mesuré dans les poissons prélevés lors de la campagne 2012-2013. Les résultats classés par ordre décroissant d'activité sont présentés Figure 21. Les niveaux sont exprimés en Bq/L d'eau de combustion afin de permettre une meilleure comparaison entre les espèces. Les activités les plus élevées correspondent à des échantillons prélevés dans la rade de Toulon et à l'embouchure du Rhône.

En zone non influencée, en Corse orientale par exemple, les niveaux les plus élevés sont retrouvés chez des espèces de poissons benthiques (vivant sur le fond), tels que raie, roussette, grondin. Pour les autres espèces, les niveaux sont inférieurs à 1,5 Bq/L d'eau de combustion ce qui correspond à des activités comprises entre 0,06 et 0,26 Bq/kg frais de chair de poisson. Cette remarque suggère, pour ces espèces, une influence par des apports de tritium du milieu continental dont les activités sont plus élevées que celles observées en milieu marin. Cette influence est probablement à l'origine du déséquilibre, encore plus marqué que pour les moules (cf. Influence des apports du Rhône, p. 46), entre les activités en TOL dans les poissons pêchés en 2013 dans le golfe du Lion (qui varient entre 0,7 et 3,5 Bq/L; Figure 21) et les activités en HTO dans l'eau de mer prélevée dans la même zone à la même période (variant de 0,04 à 0,095 Bq/L, cf. Influence des apports du Rhône, p. 40).

Tableau 12. Activités en tritium lié à la matière organique (TOL) mesurées dans les poissons prélevés dans le cadre de la surveillance régulière (en Bq/L d'eau de combustion et en Bq/kg sec).

Lieu	Date	Espèce	Activité (Bq/L d'eau de combustion)	Activité (Bq/kg sec)
TOULON	15/01/2009	Rouget	2,33 ± 0,12	1,72 ± 0,09
	17/06/2010	Rouget	1,37 ± 0,02	0,89 ± 0,02
	07/05/2013	Mulet	4,35 ± 0,23	2,66 ± 0,14
	14/09/2013	Bogue	3,29 ± 0,17	2,37 ± 0,12
	21/06/2013	Sar	1,00 ± 0,08	0,63 ± 0,05
PORT-SAINT-LOUIS	26/11/2008	Rascasse	2,47 ± 0,12	1,53 ± 0,08
NICE	27/11/2008	Rouget	1,34 ± 0,07	0,84 ± 0,04
	07/07/2010	Rouget	0,64 ± 0,02	0,42 ± 0,02
BANYULS	10/11/2008	Rouget	1,36 ± 0,07	0,85 ± 0,04
	29/06/2010	Rouget	0,80 ± 0,02	0,52 ± 0,02

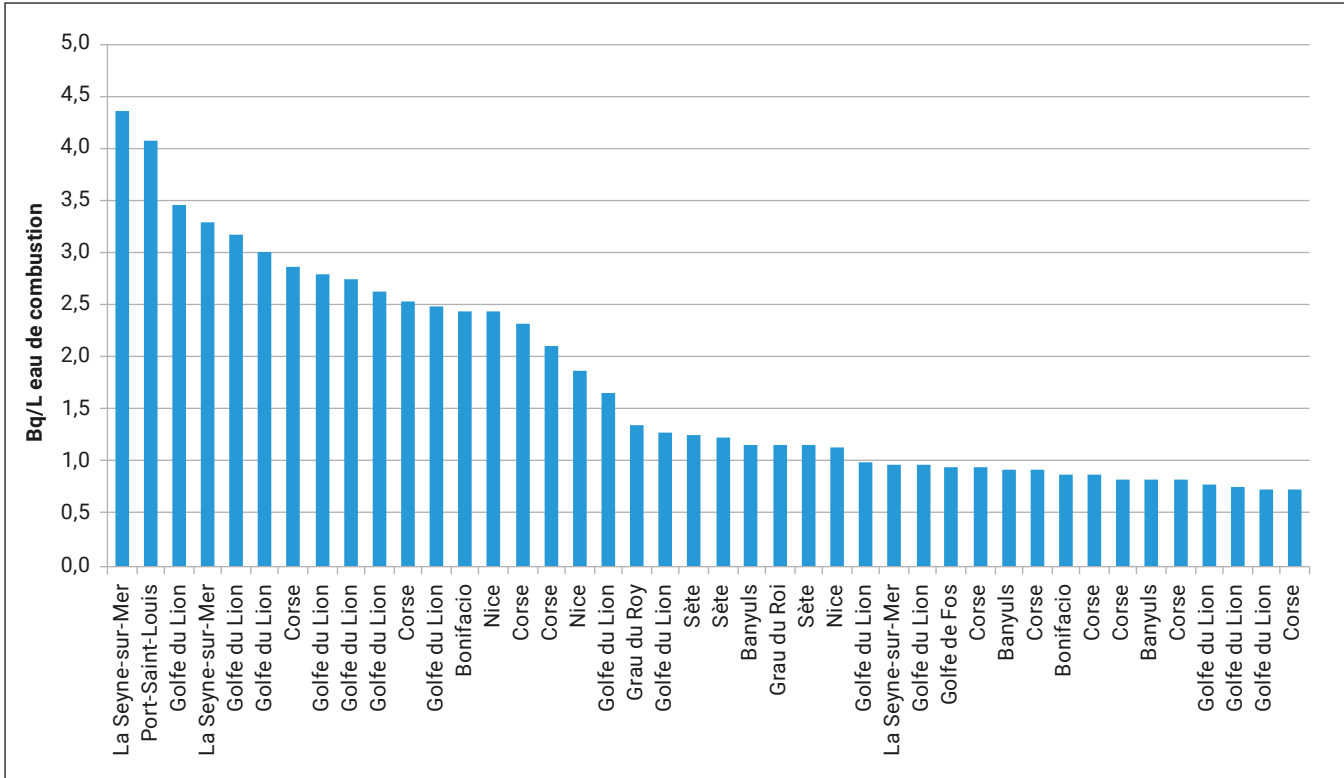


Figure 21. Tritium lié à la matière organique (TOL) dans les poissons selon le site de pêche, en Bq/L d'eau de combustion.

L'ensemble des données issues de la surveillance, ainsi que celles des campagnes d'études particulières permettent de dresser un état radiologique actualisé de l'environnement marin sur la zone littorale française de Méditerranée.

Les activités massiques et volumiques des principaux radionucléides naturels et artificiels mesurés dans les différentes composantes du milieu marin que sont les eaux, les sédiments, les coquillages et les poissons sont présentées et commentées.

Concernant les radionucléides naturels, ce rapport se focalise sur les isotopes de l'uranium et sur le polonium-210.

Le polonium-210 a la particularité de se concentrer dans certaines denrées marines, notamment dans les coquillages, contribuant ainsi fortement à l'exposition radiologique des personnes qui en consomment très régulièrement. Les activités massiques de polonium-210 dans les moules présentées dans ce rapport sont du même niveau que celles reportées dans la bibliographie internationale. Dépendantes de la nature géologique des côtes, elles sont plus élevées le long de la côte rocheuse cristalline (Provence-Alpes-Côte d'Azur et Corse), et moindres le long de la côte sableuse et calcaire du littoral occidental.

Les activités des isotopes de l'uranium mesurées dans les moules de Méditerranée sont caractéristiques de l'uranium naturel. Par ailleurs, les teneurs en uranium de l'échantillon de moules prélevé dans l'étang de Bages, potentiellement influencé via les eaux du Tauran par les rejets de l'usine de Malvési située près de Narbonne, sont similaires à celles observées ailleurs.

Les activités de carbone-14 présentées dans ce rapport sont cohérentes avec celles mesurées dans l'air et en milieu terrestre hors de l'influence d'une installation nucléaire; elles montrent l'origine principalement naturelle aujourd'hui de ce radionucléide en Méditerranée.

Concernant les radionucléides artificiels, une influence des rejets des installations nucléaires rhodaniennes est décelée en mer à l'embouchure du fleuve pour le tritium (dans l'eau principalement), le cobalt-60 (dans les sédiments) et pour les isotopes du plutonium (dans les sédiments). Dans le cas du tritium, cette influence est perceptible sur tout le littoral situé à l'ouest de l'embouchure, bien qu'elle diminue avec la distance. Les activités de tritium dans l'eau de mer mesurée à l'embouchure sont jusqu'à 20 fois supérieures par rapport à celles observées hors influence; celles mesurées à Banyuls sont seulement deux fois supérieures. Cette influence diminue aussi très rapidement dès lors que l'on s'éloigne de quelques kilomètres au large de l'embouchure. Dans les sédiments marins situés à proximité de l'embouchure, le plutonium provenant des rejets de l'usine de Marcoule ne se distingue de celui provenant des retombées des essais nucléaires que par les rapports d'activités isotopiques. De même, depuis la baisse des rejets des installations nucléaires au cours des années 1990-2000, le césium-137 apporté par le Rhône en Méditerranée, visible surtout à proximité ouest de l'embouchure du fleuve, provient principalement du drainage des sols contaminés par les retombées de l'accident de Tchernobyl et des essais d'armes nucléaires. Hors influence du Rhône, les activités de césium-137 les plus élevées mesurées dans des sédiments concernent la partie sud orientale de la Corse où les retombées de l'accident de Tchernobyl ont été parmi les plus importantes du territoire français.

La rade de Toulon présente de nombreuses spécificités. Dans ce milieu presque clos, les courants qui, ailleurs, dispersent les apports littoraux d'eau et de particules, notamment les plus fines, sont faibles, de même que les échanges avec la mer libre. Les sédiments y sont très fins, ce qui favorise la fixation des radionucléides, notamment ceux issus du drainage des sols comme le césium-137 provenant principalement des retombées de l'accident de Tchernobyl et les isotopes du plutonium provenant des retombées des essais nucléaires. La principale particularité de la rade de Toulon concerne le tritium. Les activités de ce radionucléide dans les sédiments peuvent y être jusqu'à 100 fois plus élevées que ce qui est observé ailleurs. L'origine de cette contamination n'est pas clairement établie, mais la profondeur des sédiments les plus marqués suggère qu'elle est ancienne. Cette contamination des sédiments est probablement en partie à l'origine des activités massiques de tritium, plus élevées qu'ailleurs, mesurées dans les moules et les poissons issus de la rade. Elle ne permet cependant pas à elle seule d'expliquer les activités de tritium également élevées mesurées sporadiquement dans l'eau de la rade. Néanmoins, les conséquences de ces niveaux d'activité en tritium dans l'eau de mer sont négligeables pour les populations et l'environnement.



Prélèvement de moules à Faraman en Camargue.

Bibliographie

- **Andral B., Stanisière J.Y., Sauzade D., Damier E., Thébault H., Galgani F., Boissery P., 2004.** Monitoring chemical contamination levels in the Mediterranean based on the use of mussel caging. *Marine Pollution Bulletin*, 49: 704-712.
- **Antonelli C., Eyrolle F., 2010.** Flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée – Station Observatoire du Rhône en Arles (SORA). Rapport IRSN/DEI/SESURE N° 2010-04.
- **Arnaud M., Charmasson S., Eyrolle F., 2009.** Les radionucléides marqueurs des apports solides du Rhône à la mer Méditerranée: Sources, puits et devenir. In: *Le golfe du Lion, un observatoire de l'environnement en Méditerranée*. Ed. Quae. Versailles.
- **Arnaud M., Charmasson S., Thébault H., Barker E., 2000.** État radioécologique de l'environnement marin de l'aire toulonnaise. Etude du compartiment sédimentaire (Campagne SIAT – 2000). Rapport contractuel. Rapport DPRE/SERNAT/2000-27, 26p.
- **ASN, 2010.** Livre blanc du tritium. <https://www.asn.fr/sites/tritium/>
- **Boissery P., Thébault H., 2012.** PRESSIONS ET IMPACTS. MÉDITERRANÉE OCCIDENTALE. Introduction de radionucléides dans le milieu marin et impacts.
- **Carvalho F.P., 2011.** Polonium (^{210}Po) and lead (^{210}Pb) in marine organisms and their transfer in marine food chains. *Journal of Environmental Radioactivity*, 102, 462-472.
- **Charmasson S., Bailly du Bois P., Thébault H., Boust D., Fievet B., 2014.** Radioactivity of Anthropogenic Origin in the Marine Environment. *Seas and Oceans Set*, John Wiley and Sons, Land Sea Interactions eds Monaco A. Prouzet P., Chapter 5, 237-282.
- **Charmasson S., Barker E., Calmet D., Pruchon A.-S., Thébault H., 1999.** Long term variations of man-made radionuclide concentrations in a bio-indicator *Mytilus galloprovincialis* from the French mediterranean coast. *The Science of the Total Environment*, 237 -238: 93-103.
- **Duffa C., 2001.** Répartition du Plutonium et de l'Américium dans l'environnement terrestre de la basse vallée du Rhône. Thèse de doctorat, Université d'Aix-Marseille.
- **Duffa C., Arnaud M., Charmasson S., Thébault H., 2011.** Cesium and Plutonium isotopes as tracers of various events in sediment records in the Bay of Toulon (Northwestern Mediterranean Sea), *International Symposium on Isotopes in Hydrology. Marine Ecosystems and Climate Change Studies*, AIEA 27/03-01/04/2011, Monaco.
- **Duffa C. Pierrard O., Thébault H., Cunin P., 2016.** Tritium dans la rade de Toulon – Synthèse des données, Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2016-0015.
- **Dufois F., Garreau P., Le Hir P., Forget Ph., 2008.** Wave- and current-induced bottom shear stress distribution in the Gulf of Lions. *Continental Shelf Research* 28: 1920-1934.
- **Dufresne C., 2014.** Compréhension et analyse des processus hydro-sédimentaires de la Baie de Toulon. Apport à la modélisation de la dispersion des radionucléides. Thèse de doctorat, Université de Toulon.
- **Eyrolle-Boyer F., Claval D., Cossonnet C., Zebracki M., Gairoard S., Radakovitch O., Calmon P., Leclerc E., 2015.** Tritium and ^{14}C background levels in pristine aquatic systems and their potential sources of variability. *Journal of Environmental Radioactivity* 139: 24-32.
- **Fiévet B., Voiseux C., Rozet M., Masson M., Bailly du Bois P., 2006.** Transfer of radiocarbon liquid releases from the AREVA La Hague spent fuel reprocessing plant in the English Channel. *J Environ Radioactiv* 90: 173-196.
- **FranceAgriMer, 2011.** Données de ventes déclarées en halle à marée: données statistiques 2011.
- **Garnier-Laplace J., Roussel-Debet S., 2001.** Fiche radionucléide: Carbone-14 et environnement. IRSN, 18 p. 2001.
- **Goldberg E. D., et al., 1978.** The Mussel Watch. *Environmental Conservation* 5: 101-125.
- **Gontier G., Grenz C., Calmet D., Sacher M., 1992.** The contribution of *Mytilus* sp. in radionuclide transfer between water column and sediments in the estuarine and delta systems of the Rhône river. *Estuarine, Coastal and Shelf Science* 34: 593-601.
- **Harmelin-Vivien M., Bodiguel X., Charmasson S., Loizeau V., Mellon-Duval C., Tronczynski J., Cossa D., 2011.** Differential biomagnification of PCB, PBDE, Hg and Radiocesium in the food web of the European hake from the NW Mediterranean. *Mar. Poll. Bull.* 64: 974-983.
- **IAEA, 2004.** Sediments distribution coefficients and concentration factors for biota in the marine environment. Technical Report series n° 422.
- **IRSN, 2009.** Pré-concentration des césiums sous forme dissoute dans le milieu marin. Protocole DEI/SESURE juin 2009, 16 p.
- **IRSN, 2012.** Tritium et environnement. Fiche radionucléide environnement.
- **IRSN, 2017.** Actualisation des connaissances acquises sur le tritium dans l'environnement. Rapport IRSN/PRP-ENV/SERIS/2017-004.

- **IRSN, 2018.** Bilan de l'état radiologique de l'environnement français de 2015 à 2017.
- **Jean-Baptiste P., Fourré E., Dapoigny A., Baumier D., Baglan N., Alanic G., 2010.** ^3He mass spectrometry for very-low level of organic tritium in environmental samples. *Journal of Environmental Radioactivity* 101: 185-190.
- **Jean-Baptiste P., 2014.** Construction d'un référentiel historique et spatial des niveaux de tritium et de carbone-14 le long des côtes françaises de la Méditerranée. Rapport Convention LSCE/EDF/IRSN 64 p.
- **Jean-Baptiste P., Fontugne M., Fourré E., Marang L., Antonelli C., Charmasson S., Siclet F., 2018.** Tritium and radiocarbon levels in the Rhône river delta and along the French Mediterranean coastline. *Journal of Environmental Radioactivity*, 187: 53-64.
- **Journal Officiel de l'Union européenne, 2008.** DIRECTIVE 2008/56/CE DU PARLEMENT EUROPÉEN ET DU CONSEIL du 17 juin 2008 établissant un cadre d'action communautaire dans le domaine de la politique pour le milieu marin. *Journal Officiel* 25/06/2008, L164 19-4.
- **Journal Officiel, 2004.** Décret n°2004-33 du 8 janvier 2004 portant création d'une zone de protection écologique au large des côtes du territoire de la République en Méditerranée.
- **Journal Officiel, 2012a.** Arrêté du 17 décembre 2012 relatif aux critères et méthodes à mettre en œuvre pour l'élaboration de l'évaluation initiale du plan d'action pour le milieu marin
- **Journal Officiel, 2012b.** Arrêté du 17 décembre 2012 relatif à la définition du bon état écologique des eaux marines.
- **Journal Officiel, 2012c.** Arrêté du 18 décembre 2012 relatif aux critères et méthodes à mettre en œuvre pour l'élaboration des objectifs environnementaux et indicateurs associés du plan d'action pour le milieu marin.
- **Journal Officiel, 2012d.** Décret n° 2012-1148 du 12 octobre 2012 portant création d'une zone économique exclusive au large des côtes du territoire de la République en Méditerranée.
- **Marion C., 2010.** Dynamique et bilans des transferts particuliers de radioéléments d'origine anthropique et naturelle dans le golfe du Lion: cas particulier des apports rhodaniens. Thèse de doctorat, Université de Perpignan.
- **Millot C., 1990.** The Gulf of Lions' hydrodynamics. *Continental Shelf Research* 10 (9-11): 885-894.
- **Miralles J., Arnaud M., Radakovitch O., Marion C., Cagant X., 2006.** Radionuclide deposition in the Rhône River prodelta (NW Mediterranean sea) in response to December 2003 extreme flood. *Marine Geology*, 234: 179-189.
- **Neo-Sud, 2015.** Synthèse générale du projet scientifique et technique CARTOCHIM - « Cartographie de la contamination chimique des sédiments de la rade de Toulon ».
- **ONU Environnement/PAM Athènes, Grèce, 2017.** Programme de surveillance et d'évaluation intégrées de la mer et des côtes méditerranéennes et critères d'évaluation connexes. Secrétariat de la Convention de Barcelone. http://wedocs.unep.org/bitstream/handle/20.500.11822/17012/imap_2017_fre.pdf?sequence=2&isAllowed=y
- **Östlund H.G., Dorsey H.G., Rooth C.G., 1974.** GEOSECS North Atlantic radiocarbon and tritium results, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 23: 69-86.
- **PAMM, 2012.** Plan d'Action pour le Milieu Marin. Evaluation initiale des eaux marines. Sous-région marine Méditerranée occidentale. DIRM, 784 p.
- **Perkins R.W., Thomas C.W., 1980.** Worldwide fallout. In: *Transuranic elements in the environment*. Hanson, W.C. (ed.); p. 53-82; Technical Information Center, Oak Ridge.
- **Pourcelot L., Renaud P. (2006).** Activité des sédiments au large de la pointe de l'Espiguette. Rapport IRSN/DEI/SESURE-06-24.
- **Pourcelot L., Vassas C. (2005).** Mode de formation des placers radioactifs et origine des minéraux lourds du littoral de Camargue. Rapport IRSN/DEI/SESURE-05-09.
- **Renaud Ph., Roussel-Debet S., Pourcelot L., Thébault H., Loyer J., Gurriaran R., 2015a.** ^{210}Pb and ^{210}Po activities in French foodstuffs. *Radioprotection* 50(2): 123-128.
- **Renaud Ph., V. Parache V. and Roussel-Debet S. 2015b.** Internal doses of French adult population linked to the intake of radionuclides from the decay-chains of uranium and thorium by foodstuffs ingestion. *Radioprotection* 50(2): 118-122.
- **Roether W., Lupton J.E., 2011.** Tracers confirm downward mixing of Tyrrhenian Sea upper waters associated with the Eastern Mediterranean Transient. *Ocean Science* 7: 91-99.
- **Rooth C.G., Östlund H.G., 1972.** Penetration of tritium into the Atlantic thermocline. *Deep-Sea Research*, 1972, 19: 481-492.
- **Roussel-Debet S., Antonelli C., 2010.** Constat radiologique régional - Objectifs et Méthode - Application à la « Vallée du Rhône ». Rapport IRSN/DEI/SESURE 2010-01.
- **Roussel-Debet S., 2012.** Constat radiologique Vallée du Rhône. Rapport final relatif au milieu terrestre. PRP-ENV/SESURE/2012-06
- **Saey L., Roussel-Debet, S., 2013.** Constat radiologique vallée du Rhône. Rapport final relatif au milieu aquatique, Rapport IRSN/PRP-ENV/SESURE 2013-37.

- **Tessier E., Garnier C., Durrieu G., François D., Lenoble V., Legoff P.-A., Mullot J.-U., Cossa D., Thébaud H., Mounier S., 2010.** Distribution of sediment inorganic and organic contamination in the Toulon bay (France): surface cartography and high resolution depth profiles. 23^e Réunion des Sciences de la Terre, Bordeaux, 23-29 octobre.
- **Tessier E., Garnier C., Mullot J.-U., Lenoble V., Arnaud M., Raynaud M., Mounier S., 2011.** Study of the spatial and historical distribution of sediment inorganic contamination in the Toulon Bay (France). Marine Pollution Bulletin 62: 2075-2086.
- **Thébaud H., 2003.** Bilan des résultats du volet littoral méditerranéen de l'Observatoire PERmanent de la RADioactivité (Réseau OPERA) de 1992 à 2001. Rapport IRSN/DPRE/SERNAT 2003-09.
- **Thébaud H., 2007.** Biodisponibilité des radionucléides dans les moules le long de la côte française de Méditerranée: Campagnes RINBIO 2003 et RINBIO 2006. Rapport IRSN/DEI/SESURE 2007-56.
- **UNSCEAR, 1982.** Ionising radiation: sources and biological effects. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, United Nations, New York (1982).
- **Vassas C., Pourcelot L., Vella C., Carpéna J., Pupin J.P., Bouisset P., Guillot L. (2006).** Mechanisms of enrichment of natural radioactivity along the beaches of Camargue, France. Journal of Environmental Radioactivity, 91: 146-159.

Table des illustrations et des tableaux

■ Illustrations

- Figure 1.** Zone d'étude du constat radiologique Méditerranée..... 8
- Figure 2.** Stations de prélèvements de la surveillance régulière en Méditerranée française assurée par l'IRSN. 11
- Figure 3.** Campagne RINBIO 2012 : carte des stations sélectionnées pour la mesure des radionucléides..... 12
- Figure 4.** Évolution du ¹³⁷Cs dans les moules de Méditerranée de 1992 à 2015 (toutes stations confondues). Pour des raisons de lisibilité, ne sont pas figurées les incertitudes de mesure (de l'ordre de grandeur de $\pm 30\%$) ni les valeurs non significatives (environ 40 % des données)..... 17
- Figure 5.** Distribution des activités en ¹³⁷Cs dans les moules (contenu inter-valvaire) transplantées selon le protocole RINBIO en Méditerranée en 2012..... 18
- Figure 6.** Évolution de l'activité en ¹³⁷Cs dans les rougets (poissons étêtés et éviscérés) de 1996 à 2015, toutes stations confondues. Pour des raisons de lisibilité, ne sont pas figurées les incertitudes de mesure (de l'ordre de grandeur de $\pm 20\%$) ni les valeurs non significatives (environ 8 % des données)..... 19
- Figure 7.** Localisation des prélèvements de poissons réalisés en 2012 et 2013. 20
- Figure 8.** Activités en ¹³⁷Cs (en Bq/kg sec) dans les sédiments côtiers (0-5 cm) mesurées dans les échantillons de la campagne RINBIO 2009. 23
- Figure 9.** Niveaux de ¹³⁷Cs dans les sédiments de surface (0-5 cm) de la rade de Toulon (campagne CARTOCHIM 2008-2009)..... 25
- Figure 10.** Évolution de l'activité en ⁶⁰Co dans les moules de Méditerranée de 1992 à 2015 (toutes stations confondues). Pour des raisons de lisibilité, ne sont pas figurées les incertitudes de mesure (de l'ordre de grandeur de $\pm 40\%$) ni les valeurs non significatives (81 % des données)..... 26
- Figure 11.** Évolution du rapport d'activité ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu dans les moules des stations de Faraman (influence du Rhône) et de Nice. 28

Figure 12. Distribution de l'activité en ²³⁹⁺²⁴⁰Pu dans les sédiments de surface (0-10 cm) de la rade de Toulon (campagne SIAT2000). 31

Figure 13. Mesures de ²¹⁰Po dans les moules récoltées à l'issue de la campagne RINBIO 2009..... 35

Figure 14. Mesures de ¹⁴C dans les moules récoltées à l'issue de la campagne RINBIO 2009..... 39

Figure 15. Mesures de tritium HTO dans l'eau de mer en zone côtière hors influence des installations (campagne RADLIT2, mai 2014).41

Figure 16. Mesures de tritium HTO dans l'eau de mer de surface sous influence des apports du Rhône (campagne RINBIO 2012).41

Figure 17. Mesures de tritium HTO dans l'eau de mer de surface à l'embouchure du Rhône (Bq/L). Campagne CARMEX, octobre 2008..... 42

Figure 18. Profil de TOL des sédiments (0-20 cm) de la rade de Toulon, campagne CARTOCHIM 2009 (Bq/kg sec). 44

Figure 19. Mesures de TOL dans les sédiments (5-10 cm) dans la petite rade de Toulon (Bq/kg sec), campagne CARTOCHIM 2009. À titre de comparaison, la gamme de variation pour la profondeur 5-10 cm s'étend de 87 ± 5 Bq/L d'eau de combustion (6,1 ± 0,3 Bq/kg sec) à 2900 ± 145 Bq/L d'eau de combustion (145,7 ± 8,0 Bq/kg sec)..... 44

Figure 20. Activités en TOL dans les moules prélevées à différentes stations dans la rade de Toulon en 2012..... 47

Figure 21. Tritium lié à la matière organique (TOL) dans les poissons selon le site de pêche, en Bq/L d'eau de combustion. 49

■ Tableaux

Tableau 1. Activités en ¹³⁷Cs mesurées dans les poissons (étêtés et éviscérés) pêchés au filet sur les côtes de la Méditerranée (en Bq/kg frais). Les valeurs sont triées par ordre décroissant. 21

Tableau 2. Activités en ¹³⁷Cs mesurées dans les crustacés et poissons (étêtés et éviscérés) pêchés au chalut (en Bq/kg frais). Les valeurs sont triées par ordre décroissant. 22

Tableau 3. Activités en ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et ²³⁸Pu (en mBq/kg frais) mesurées dans les moules de Méditerranée..... 29

Tableau 4. Profils verticaux des isotopes du plutonium dans les sédiments en zone côtière. 30

Tableau 5. Activités des isotopes de l'uranium mesurées dans les moules (contenu inter-valvaire) en Méditerranée (en Bq/kg frais) et rapports massiques ²³⁵U/²³⁸U (exprimés en % soit g/100 g). Les moules de Toulon, des Saintes-Maries-de-la-Mer et de Bonifacio sont collectées dans le cadre de la surveillance régulière; les moules de Narbonne ont été implantées dans l'étang de Bages selon le protocole RINBIO. 33

Tableau 6. Activités en ²¹⁰Po mesurées dans les moules (contenu inter-valvaire) et les poissons (étêtés et éviscérés) en Méditerranée (Bq/kg frais). 35

Tableau 7. Niveaux de ⁹⁰Sr dans le squelette des poissons de Méditerranée. Les valeurs significatives sont ordonnées par ordre décroissant..... 37

Tableau 8. Activités spécifiques en ¹⁴C dans les moules et les poissons de Méditerranée (en Bq par kilogramme de carbone) 39

Tableau 9. Activités en TOL dans les sédiments (0-10 cm) en zone côtière (RINBIO 2009) en Bq/kg sec. À titre indicatif, ces valeurs mesurées directement en Bq/kg sec correspondent à des valeurs d'une à quelques dizaine(s) de Bq/L eau de combustion. 43

Tableau 10. Activités en tritium lié à la matière organique (TOL) dans les moules en Bq/L d'eau de combustion et en Bq/kg sec (voir texte pour conversion en Bq/kg frais). 45

Tableau 11. Activités en TOL dans les moules transplantées et en HTO dans l'eau de mer prélevée aux mêmes stations; les stations sont localisées sur la carte de la Figure 16. 46

Tableau 12. Activités en tritium lié à la matière organique (TOL) mesurées dans les poissons prélevés dans le cadre de la surveillance régulière (en Bq/L d'eau de combustion et en Bq/kg sec) 48

IRSN
Pôle Santé et Environnement
Direction de l'environnement

E-mail
contact@irsn.fr

N° du rapport
IRSN 2020-00895
Tous droits réservés IRSN
Décembre 2020

Photo de couverture :
Prélèvement d'une poche de moules en mer par un technicien de l'IRSN
Laurent Zylberman/Graphix-Images/Médiathèque IRSN

Autres photos :
p. 7 : Caroline Vignaud/Médiathèque IRSN • p. 15 : Mireille Arnaud/Médiathèque IRSN • p. 36 : Arnaud Bouissou/MEDDE/
Médiathèque IRSN • p. 51 : Gilles Salaün/Médiathèque IRSN

Conception graphique :
Agence Kazoar
www.kazoar.fr



31, avenue de la Division Leclerc
92260 Fontenay-aux-Roses
RCS Nanterre B 440 546 018

COURRIER

B.P. 17
92262 Fontenay-aux-Roses Cedex

TÉLÉPHONE


+33 (0)1 58 35 88 88

SITE INTERNET

www.irsn.fr

E-MAIL :

contact@irsn.fr

 [@IRSNFrance](https://twitter.com/IRSNFrance)