

01AIX30001

THESE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE AIX-MARSEILLE III

Discipline : Géosciences de l'Environnement

présentée et soutenue publiquement

par

Céline DUFFA

REPARTITION DU PLUTONIUM ET DE L'AMERICIUM DANS L'ENVIRONNEMENT TERRESTRE DE LA BASSE VALLEE DU RHONE

Directrice de thèse : Annie MICHARD

JURY

Annie MICHARD
François GAUTHIER-LAFAYE
Bruno HAMELIN
Peter MITCHELL
Christophe MURITH
Philippe RENAUD

Directrice de thèse
Rapporteur
Examineur
Examineur
Rapporteur
Responsable IPSN

Résumé Ce travail fait le bilan des stocks et des flux d'actinides dans l'écosystème terrestre de la basse vallée du Rhône.

Les radionucléides ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am sont omniprésents dans l'environnement du fait des retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires pratiqués entre 1945 et 1980 et de la désintégration du générateur d'un satellite américain dans la haute atmosphère en 1964. Les activités d'actinides liées à cette source globale sont estimées à 770 GBq sur une zone de 11000 km² dans la partie terminale de bassin rhodanien. Ces dépôts, caractérisés par un faible rapport d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ se sont répartis de façon relativement homogène.

Dans la basse vallée du Rhône, certaines zones de l'environnement terrestre se distinguent par des activités surfaciques et des rapports d'activités plus élevés attribuables aux rejets du centre nucléaire de Marcoule.

Sur une surface d'environ 30 km² autour de cette installation, les activités d'actinides ajoutées sont estimées à près de 2,8 GBq. Les mesures et la modélisation s'accordent pour attribuer ces activités aux rejets atmosphériques anciens du site.

Le Rhône, dans lequel les effluents liquides du centre de Marcoule ont été dispersés, constitue un terme source d'apports chroniques vers les milieux terrestres par l'irrigation. C'est notamment le cas des exploitations desservies par le Canal BRL, où environ 0,6 GBq ont été apportés depuis 1960, et des rizières de Camargue, sur lesquelles près de 3,5 GBq se sont déposés en 40 ans.

Les inondations de la Camargue en 1993/1994 ont également constitué une voie de transfert indirecte d'une part des rejets liquides de l'installation vers les sols. Le rapport d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, qui joue alors le rôle de traceur de l'origine des apports, permet de constater l'hétérogénéité des dépôts sur la zone inondée.

Les activités de Pu et Am transférées aux végétaux représentent moins de 0,1% des stocks piégés dans les sols. Ainsi, bien que la basse vallée du Rhône soit une région où l'agriculture occupe une place importante, les exportations annuelles de ces radionucléides dues aux récoltes concernent actuellement moins de 10⁻³ GBq.

Mots clés : Environnement / plutonium / américium / activité / rapport d'activité / Rhône / centre de Marcoule.

Discipline : Géosciences de l'Environnement

PLUTONIUM AND AMERICIUM DISTRIBUTION WITHIN THE TERRESTRIAL ENVIRONMENT OF THE LOWER RHONE VALLEY

Abstract This work presents a balance of stocks and fluxes within the lower Rhone valley terrestrial ecosystem.

The radionuclides ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am are omnipresent in the surface environment due to the fallout from atmospheric nuclear tests (1945-1980) and the disintegration of a US nuclear reactor satellite in 1964. Actinide activities resulting from this global fallout are estimated to be 770 GBq over an 11000 km² area in the lower Rhone valley. Deposits, which are characterized by a low $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ activity ratio, are homogeneously distributed.

Some particular areas of the lower Rhone valley show higher surface activities and activity ratio, related to Marcoule nuclear plant releases.

Additional actinide activities are estimated to be 2.8 GBq within a 30 km² area around Marcoule facility. It has been shown that they are mainly due to old atmospheric releases.

The Rhone River, which is used to dilute liquid releases, is a water supply for many cultivated areas. Some 0.6 GBq were transferred to soils since 1960 via the BRL ditch, and a total amount of 3.5 GBq were deposited onto rice fields in the Camargue for 40 years.

The 1993/1994 Camargue floods also represented a way for Marcoule liquid releases to be deposited onto soils. The $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ activity ratio is used as a tool to trace the Rhone River inputs. Measurement results suggest a very heterogeneous deposit.

Activities transferred to vegetation represent less than 0.1% of the soil total stock. Even though this region is an agricultural one, annual crops lead to very low activity exports.

Key words : Environment / plutonium / americium / activity / activity ratio / Rhone River / Marcoule facility.

SOMMAIRE

INTRODUCTION	1
CHAPITRE I : ETAT DES CONNAISSANCES	7
1. Généralités	9
1.1. Le plutonium et l'américium	9
1.1.1. Présentation	9
1.1.2. Propriétés nucléaires et physico-chimiques	10
1.2. Connaissances générales sur les sources de Pu et Am	13
1.2.1. Les retombées atmosphériques globales	14
1.2.2. Les émissions accidentelles locales de Pu et Am	17
1.2.3. L'industrie nucléaire française	17
1.3. Comportement dans l'environnement	18
1.3.1. Le plutonium et l'américium dans les sols	18
1.3.2. Le plutonium et l'américium dans l'air	20
1.3.3. Le plutonium et l'américium dans les plantes	20
2. La basse vallée du Rhône	23
2.1. Présentation de la zone d'étude	23
2.1.1. Situation géographique	23
2.1.2. Caractéristiques environnementales	24
2.2. Le centre de Marcoule	31
2.2.1. Présentation	31
2.2.2. Rejets dans l'environnement	32
2.3. Connaissances radioécologiques sur la basse vallée du Rhône	34
2.3.1. Les études IPSN	34
2.3.2. Autres études	36
3. Synthèse du Chapitre I	38
3.1. Connaissances générales	38
3.2. Contexte local	38
CHAPITRE II : METHODES ET OUTILS	41
1. Mesure des activités de Pu et Am dans l'environnement	43
1.1. Stratégie d'échantillonnage	43
1.2. Prélèvements et préparation des échantillons	44
1.2.1. Les sols	44

1.2.2.	Les végétaux	46
1.3.	Mesurage alpha	46
1.3.1.	Traitement radiochimique	46
1.3.2.	Comptage alpha	48
1.3.3.	Expression des résultats	50
1.4.	Mesures physico-chimiques sur les sols	51
1.4.1.	Mesures du pH	51
1.4.2.	Mesures granulométriques	51
1.4.3.	Mesures des teneurs en matière organique	52
1.4.4.	Mesures des capacités d'échanges cationiques	52
2.	Outils mathématiques, informatiques et de modélisation	52
2.1.	Utilisation des rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	52
2.1.1.	Formulation mathématique	52
2.1.2.	Application	53
2.2.	Représentation des données et géotraitement	54
2.3.	Principes de la dispersion atmosphérique et modèle utilisé	55
2.4.	Modélisation compartimentale	56
2.4.1.	Principe	56
2.4.2.	Application aux sols	57
CHAPITRE III :	ETUDE DE LA REPARTITION SPATIALE DU PU ET DE L'AM	59
1.	Présentation	61
2.	Exploitation des données disponibles	62
3.	Activité rémanente des retombées globale	67
3.1.	Evaluation des activités surfaciques moyennes des sols cultivés	67
3.2.	Représentativité et variabilité des résultats de mesures	68
3.2.1.	Activités massiques mesurées	68
3.2.2.	Rapports d'activités	68
3.3.	Evaluation des stocks de Pu et Am dans les sols	69
4.	Les environs du centre de Marcoule	71
4.1.	Données existantes	71
4.2.	Données acquises entre 1998 et 2000	72
4.2.1.	Stratégies d'échantillonnages	72
4.2.2.	Résultats et interprétations des mesures	76
4.3.	Inventaire de l'activité stockée dans les sols	87
4.4.	Modélisation des apports atmosphériques d'actinides	89
4.4.1.	Données d'entrée pour les rejets d'actinides	89
4.4.2.	Résultats du modèle	89
4.4.3.	Conclusion	92

5.	Les sols irrigués par le Rhône	93
5.1.	Flux entrant	93
5.1.1.	Apports du bassin versant	93
5.1.2.	Rejets des installations de Marcoule	100
5.1.3.	Bilan des flux entrant	103
5.2.	Transit par le Rhône	104
5.3.	Flux sortant	106
5.3.1.	Le canal B.R.L.	106
5.3.2.	La riziculture camarguaise	109
5.4.	Conclusion sur les zones irriguées	112
6.	Les zones inondées de Camargue	113
6.1.	Estimation des apports totaux	113
6.1.1.	Activités massiques des apports sédimentaires	114
6.1.2.	Flux total d'activité apporté	115
6.1.3.	Répartition des radionucléides déposés	115
6.2.	Etude particulière des apports par la brèche de Lauricet	116
6.2.1.	Plan d'échantillonnage	116
6.2.2.	Résultats de mesures	116
6.2.3.	Evaluation des épaisseurs de sédiments déposés	118
6.3.	Conclusions sur les zones inondées	121
7.	Synthèse du chapitre III	122

CHAPITRE IV : DISTRIBUTION DU PU ET DE L'AM AU SEIN DES DIFFERENTS MILIEUX 125

1.	Les milieux cultivés	127
1.1.	Activités des principales plantes cultivées	127
1.1.1.	Plantes non influencées par les rejets de Marcoule	127
1.1.2.	Plantes potentiellement influencées par les rejets de Marcoule	131
1.2.	Exportations par les récoltes	138
1.2.1.	Les fruits	138
1.2.2.	Les légumes	139
1.2.3.	Le vin	139
1.2.4.	Les céréales	140
1.2.5.	Les fourrages	140
1.2.6.	Bilan des flux exportés par les récoltes	141
2.	Les milieux naturels	142
2.1.	Données acquises	142
2.1.1.	Stratégie d'échantillonnage	142
2.1.2.	Résultats de mesures	144
2.2.	Distribution des activités dans le sol	145

2.2.1.	Profil vertical de la contamination	145
2.2.2.	Modélisation de la migration verticale des radionucléides dans le sol	147
2.3.	Distribution des activités dans les principales formations végétales	150
2.3.1.	Niveaux d'activités	150
2.3.2.	Evaluation des stocks de Pu et Am dans les compartiments végétaux	151
3.	Synthèse du chapitre IV	152
3.1.	Milieus cultivés	152
3.2.	Milieus boisés	153
CHAPITRE V :	BILAN DES STOCKS ET DES FLUX D'ACTINIDES	155
1.	Etat de la répartition spatiale des actinides	157
2.	Etat de la distribution compartimentale	159
3.	Les flux d'actinides	160
4.	Les stocks résultants	162
4.1.	Milieu terrestre	162
4.2.	Milieu aquatique	162
5.	Cohérence des résultats	163
5.1.	Niveaux d'activités dus aux retombées globales	163
5.2.	Distribution des stocks entre compartiments végétaux et minéraux	163
5.3.	Distribution verticale des activités dans les sols	164
CONCLUSION		165
BIBLIOGRAPHIE		171
ANNEXES		-I-

LISTE DES TABLEAUX

CHAPITRE I

Tableau I-1: Propriétés nucléaires des isotopes Pu 238-240 _____	10
Tableau I-2 : Coefficients moyens de distribution Kd du Pu et de l'Am en conditions oxydantes dans les milieux aquatiques - Valeurs proposées par l'Agence Internationale de l'Energie Atomique (IAEA, 1994) _____	12
Tableau I-3 : Propriétés nucléaires de l'isotope ²⁴¹ Am _____	12
Tableau I-4 : Production totale de Pu par les essais atmosphériques (UNSCEAR, 1982) _____	15
Tableau I-5 : Cumul des activités moyennes déposées en France suite aux retombées globales (valeurs théoriques calculées) _____	16
Tableau I-6 : Exemples de facteurs de transfert sol-plante recommandés (IAEA, 1994) _____	21
Tableau I-7 : Activités rejetées dans le Rhône entre 1961 et 1998 (données COGEMA) _____	33
Tableau I-8 : Résultats des mesures réalisées en 1997 au Mas d'Asport _____	36

CHAPITRE III

Tableau III-1 : Résultats de mesures en ²⁴¹ Am, ²³⁸ Pu, ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu sur 34 sols cultivés prélevés entre 1991 et 1997 (mBq.kg ⁻¹ sec) et rapports d'activités ²³⁸ Pu/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu correspondants _____	63
Tableau III-2 : Activités massiques moyennes des sols cultivés du Bas-Rhône témoins des retombées atmosphériques globales et valeurs statistiques associées. _____	65
Tableau III-3 : Activités surfaciques calculées pour les sols cultivés témoins des retombées atmosphériques globales (Bq.m ⁻²) _____	67
Tableau III-4 : Activités surfaciques des sols de la basse vallée du Rhône (Bq.m ⁻²) _____	70
Tableau III-5 : Stocks de ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu, ²³⁸ Pu et ²⁴¹ Am dans les sols de la basse vallée du Rhône _____	70
Tableau III-6 : Activités massiques mesurées dans des sols cultivés de Codolet (Bq.kg ⁻¹) _____	71
Tableau III-7 : Résultats des mesures alpha sur les échantillons de mousses prélevées en 1999 et 2000 en Bq/kg sec _____	76
Tableau III-8 : Part de Pu issu des rejets de Marcoule et activités volumiques ajoutées dans l'air _____	78
Tableau III-9 : Résultats de mesures des échantillons de sols prélevés entre 1993 et 2000 (Bq.m ⁻²) _____	81
Tableau III-10 : Résultats de mesures des échantillons de sols prélevés en 1999. Résultats par horizon. _____	83
Tableau III-11 : Activités volumiques moyennes dans l'air autour de Marcoule sur la période 1961-1998 (nBq .m ⁻³), pour un rejet de 10 MBq/an _____	90
Tableau III-12 : Dépôts surfaciques alpha cumulés autour de Marcoule sur la période 1961-1998 (Bq .m ⁻²), pour un rejet de 10 MBq/an _____	91
Tableau III-13 : Dépôts annuels de ²³⁸ Pu, ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu et ²⁴¹ Am sur le bassin versant du Rhône (Bq.m ⁻²) _____	97
Tableau III-14 : Flux atmosphériques annuels de ²³⁸ Pu, ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu et ²⁴¹ Pu au bassin versant rhodanien (GBq.an ⁻¹) _____	98

Tableau III-15 : Flux de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am entrant dans la partie terminale du Rhône (GBq)	103
Tableau III-16 : Flux d'activités transitant par le Bas-Rhône de 1961 à 1998 selon leur support physique dans le fleuve	106
Tableau III-17 : Flux totaux d'activités et activités volumiques moyennes de l'eau en sortie du canal d'amenée BRL (1961 à 1998)	107
Tableau III-18 : Bilan des activités surfaciques des sols irrigués depuis 30 ans au Mas d'Asport (Bq.m^{-2}). P : Pluviométrie moyenne	108
Tableau III-19 : Activités surfaciques mesurées dans les échantillons de sols irrigués du Mas d'Asport (Bq.m^{-2})	109
Tableau III-20 : Bilan des activités surfaciques d'un sol de rizière irrigué annuellement de 1989 à 1998 (Bq.m^{-2}). P : Pluviométrie moyenne	111
Tableau III-21 : Activités surfaciques mesurées dans les échantillons de sols de rizières prélevés à Fourques et Fumemorte (Bq.m^{-2})	111
Tableau III-22 : Bilan des flux d'activités entrant et sortant du Bas-Rhône	112
Tableau III-23 : Activités de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am (mBq.kg^{-1}) et rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les sédiments déposés par les inondations en Camargue	115
Tableau III-24 : Flux total de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am apporté par les inondations ($.10^6 \text{ Bq}$)	115
Tableau III-25 : Activités en ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am ($\text{mBq.kg}^{-1} \text{ sec}$) et rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ mesurés sur les échantillons de sols cultivés prélevés face à la brèche de Lauricet	117
Tableau III-26 : Epaisseur du dépôt sédimentaire estimée pour les échantillons n°1, 3, 4, 5 et 7 prélevés face à la brèche de Lauricet.	119

CHAPITRE IV

Tableau IV-1 : Activités massiques moyennes des produits agricoles mesurés entre 1993 et 1997 dans la basse vallée du Rhône ($\text{mBq.kg}^{-1} \text{ sec}$)	128
Tableau IV-2 : Activités massiques mesurées dans différents produits agricoles en 1998 dans la basse vallée du Rhône ($\text{mBq.kg}^{-1} \text{ sec}$)	129
Tableau IV-3 : Activités massiques moyennes des principaux produits agricoles de la basse vallée du Rhône.	129
Tableau IV-4 : Activités massiques de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am mesurées dans les échantillons de riz, pailles de riz, racines et sols associés ($\text{mBq.kg}^{-1} \text{ sec}$)	132
Tableau IV-5 : Transferts sol-plante déduits des mesures réalisées sur des échantillons de riz ($\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec} / \text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$)	134
Tableau IV-6 : Activités massiques moyennes mesurées dans le riz et calculées pour les autres céréales ($\text{mBq.kg}^{-1} \text{ sec}$) et incertitudes sur la moyenne	134
Tableau IV-7 : Activités massiques calculées dues au dépôt direct par irrigation ($\text{mBq.kg}^{-1} \text{ sec}$)	136
Tableau IV-8 : Résultats des mesures réalisées en 1993, 1994 et 1998 sur des échantillons de raisins de Codolet ($\text{mBq.kg}^{-1} \text{ sec}$)	137
Tableau IV-9 : Activités exportées annuellement par les récoltes ($.10^3 \text{ Bq}$)	141

Tableau IV-10 : Résultats des mesures alpha réalisées sur la litière et les horizons de sol de forêt (mBq.kg ⁻¹ sec) _____	144
Tableau IV-11 : Caractéristiques physico-chimiques des horizons de sol prélevés _____	144
Tableau IV-12 : Résultats des mesures réalisées sur les échantillons végétaux naturels prélevés en 2000 (mBq.kg ⁻¹ sec) _____	145
Tableau IV-13 : Activités surfaciques dans les différents horizons (Bq.m ⁻²) _____	146
Tableau IV-14 : Coefficients de relaxation et périodes de rétention des transuraniens dans les différents compartiment de sol _____	149
Tableau IV-15 : Activités massiques des échantillons végétaux naturels (mBq.kg ⁻¹ frais) _____	150
Tableau IV-16: Activités de Pu et Am stockées dans les compartiments végétaux naturels (.10 ⁶ Bq) _____	151

CHAPITRE V

Tableau V-1 : Activités surfaciques moyennes mesurées en Europe occidentale (Bq.m ⁻²) _____	163
Tableau V-2: Distribution du stock de plutonium présent dans 3 environnements différents _____	164

LISTE DES FIGURES

CHAPITRE I

Figure I-1: Réactions de formations des actinides _____	9
Figure I-2: Diagramme Eh-pH du plutonium à 25°C (le parallélogramme représente le domaine des eaux naturelles) _____	11
Figure I-3: Diagramme E-pH de l'américium à 25°C (le parallélogramme représente le domaine des eaux naturelles) _____	13
Figure I-4: Comparaison des quantités de Pu et Am produites annuellement et du stock naturel mondial (Beauvy, 1996) _____	14
Figure I-5: Activités de ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu mesurées dans l'air dans l'état de Washington, Etats-Unis (Harley, 1980) _____	15
Figure I-6 : Schématisation des différentes étapes du retraitement du combustible irradié _____	18
Figure I-7 : Délimitation géographique de la zone de l'étude (fond de carte IGN-1/1000000 [®]) _____	23
Figure I-8 : Carte du relief de la zone étudiée _____	24
Figure I-9 : Rose des vents moyenne 1982-1995 – site de Marcoule _____	25
Figure I-10 : Occupation de sols sur la zone d'étude _____	25
Figure I-11 : Répartitions des essences par biomasses _____	26
Figure I-12 : Superficies (ha) et productions (t) des différentes cultures sur la zone d'étude _____	26
Figure I-13 : Débits mensuels moyens du Rhône au niveau du PK213 pour la période 1993 – 1998 (données de la Compagnie Générale du Rhône) _____	27
Figure I-14 : Les affluents du Rhône en aval de Marcoule _____	28
Figure I-15 : Schéma d'irrigation du secteur collectif de la Camargue (Nassiet, 1984) _____	29
Figure I-16 : Le centre de Marcoule, vue NO – SE _____	31
Figure I-17 : Composition moyenne en émetteurs α des effluents de Marcoule entre 1984 et 1993 (Lambrechts et al., 1994) _____	32
Figure I-18 : Valeurs des rejets atmosphériques d'activité alpha déclarés _____	33

CHAPITRE II

Figure II-1 : Exemple de prélèvement d'un échantillon de sol cultivé avec une tarière à piston. _____	44
Figure II-2: Exemple de prélèvement d'un échantillon de sol de forêt par horizon de 5 cm. _____	44
Figure II-3 : Méthode de fractionnement et d'homogénéisation d'un échantillon _____	45
Figure II-4 : Cycle de montée en température lors de la calcination des échantillons _____	45
Figure II-5 : Etapes de la radiochimie de Pu et Am _____	47
Figure II-6 : Disque d'électrodépôt et chambre de comptage alpha pilotée par ordinateur _____	49
Figure II-7 : Exemples de spectres de Pu et Am obtenus après 7 jours de comptage sur des sources électrodéposées après traitement d'échantillons de sols _____	49

Figure II-8 : Part des rejets de Marcoule dans les activités de ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ mesurées en fonction de l'évolution du rapport $^{238}\text{Pu} / ^{239+240}\text{Pu}$.	53
Figure II-9 : Schéma d'un modèle compartimental	56
Figure II-10 : Schéma d'un modèle de migration dans les sols à trois compartiments	57

CHAPITRE III

Figure III-1 : Communes où ont été effectués les prélèvements entre 1991 et 1997	62
Figure III-2 : Activités massiques de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am mesurées dans les sols du Bas-Rhône de 1991 à 1997 (mBq.kg^{-1}) représentées avec leurs incertitudes de mesure	64
Figure III-3 : Distributions des activités massiques (mBq.kg^{-1})	65
Figure III-4 : Rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ mesurés sur les échantillons CAR01 à CAR07	69
Figure III-5 : Rapports $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ mesurés sur des échantillons de mousse entre 1993 et 1995 aux environs de Marcoule	72
Figure III-6 : Sites de prélèvements des mousses terrestres en 1999 et 2000.	74
Figure III-7 : Exemple du site de prélèvement de mousses terrestres M20 : mur du cimetière de St Etienne de Sorts	74
Figure III-8 : Sites de prélèvements des sols en 1999 et 2000	75
Figure III-9 : Exemple de prélèvement du sol de vigne S09	75
Figure III-10 : Rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ mesurés dans les échantillons de mousses et distribution de fréquences associée	77
Figure III-11 : Carte des iso-rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ mesurés dans les échantillons de mousses	80
Figure III-12 : Rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ mesurés dans les échantillons de sols et distribution de fréquences associée	82
Figure III-13 : Activités surfaciques en actinides des sols prélevés autour de Marcoule (Bq.m^{-2})	84
Figure III-14 : surfaces iso-valeurs issues des mesures de ^{238}Pu	85
Figure III-15 : surfaces iso-valeurs issues des mesures de $^{239+240}\text{Pu}$	86
Figure III-16 : surfaces iso-valeurs issues des mesures de ^{241}Am	87
Figure III-17 : Appauvrissement d'un nuage d'actinides dû au dépôt sec pour des conditions de diffusion neutres (vent moyen de 5 m.s^{-1})	88
Figure III-18 : Lignes d'iso dépôts tracées à partir des résultats de la modélisation	91
Figure III-19 : Schéma analytique des flux de Pu et Am dans le Bas-Rhône	93
Figure III-20 : Modèle compartimental du Pu dans le bassin versant du Rhône	94
Figure III-21 : Evolution des débits liquides et solides à Arles	96
Figure III-22 : Flux de $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{238}Pu du bassin versant au Rhône (GBq)	99
Figure III-23 : Modèle de flux de ^{241}Am dans le bassin versant du Rhône	100
Figure III-24 : Flux de ^{241}Am et ^{241}Pu du bassin versant au Rhône (GBq)	100
Figure III-25 : Rejets liquides de transuraniens effectués par le centre de Marcoule entre 1961 et 1998 (GBq)	101

Figure III-26 : Evolution supposée du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les rejets effectués par Marcoule	102
Figure III-27 : Flux de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am issus des installations de Marcoule (GBq) (Valeurs données en Annexe 13)	103
Figure III-28 : Evolution des activités volumiques moyennes annuelles de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$), et du rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dans le Rhône en entrée du Bas-Rhône (Annexe 14)	104
Figure III-29 : Relation linéaire entre les activités de $^{239+240}\text{Pu}$ mesurées dans les MES à Arles ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) et les activités volumiques rejetées ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$)	105
Figure III-30 : Evolution des surfaces rizicoles en Grande Camargue depuis 1960 (ha)	109
Figure III-31 : Etendue globale des inondations de 1993-1994 et vues des deux brèches majeures après leur comblement	113
Figure III-32 : Evolution des débits liquides ($\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$) mesurés à Caderousse par la CNR	114
Figure III-33 : Points de prélèvements de sols cultivés face à la brèche de Lauricet	116
Figure III-34 : Rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les échantillons prélevés face à la brèche de Lauricet ; comparaison avec le rapport caractéristique des retombées globales	117
Figure III-35 : Activités massiques ($\text{mBq}\cdot\text{kg}^{-1}\text{ sec}$) des échantillons prélevés face à la brèche de Lauricet ; comparaison avec les intervalles de confiance à 95% des sols cultivés non influencés.	118
Figure III-36 : Epaisseur du dépôt sédimentaire au droit de la brèche de Lauricet	120
Figure III-37 : Modélisation des épaisseurs de dépôts sédimentaires face à la brèche de Lauricet	120

CHAPITRE IV

Figure IV-1 : Activités massiques et rapport d'activité $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ moyens dans les différentes parties de la plante de riz	132
Figure IV-2 : Origines étudiées des transferts des radionucléides du milieu extérieur vers le riz	133
Figure IV-3 : Productions en milliers de tonnes des principales cultures dans la basse vallée du Rhône	138
Figure IV-4 : Granulométrie comparée des différents horizons de sol prélevés	145
Figure IV-5 : Activités massiques de $^{239+240}\text{Pu}$ comparées des différents horizons de sol et de la litière ($\text{mBq}\cdot\text{kg}^{-1}\text{ sec}$)	146
Figure IV-6 : Matrice de corrélations entre les activités massiques des différents isotopes dans la litière et les horizons de sol de forêt	146
Figure IV-7 : Modèle compartimental proposé de migration du plutonium et de l'américium dans les sols de forêts	148

LISTE DES ANNEXES

- ANNEXE 1 : Points de radiotoxicologie et de radioprotection _____ -II-
- ANNEXE 2 : Calcul des activités surfaciques de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am dues aux retombées globales
en France _____ -III-
- ANNEXE 3 : Données biogéographiques sur la basse vallée du Rhône _____ -VI-
- ANNEXE 4 : Données agricoles sur la basse vallée du Rhône _____ -VIII-
- ANNEXE 5 : Plan des équipements BRL _____ -X-
- ANNEXE 6 : Cartes des inondations de Camargue en 1993 et 1994 _____ -XI-
- ANNEXE 7 : Résultats des mesures réalisées de 1993 à 1995 lors des études d'impact
radioécologiques du site de Marcoule _____ -XIII-
- ANNEXE 8 : Prélèvements IPSN réalisés en 1994 et 1996 en Camargue _____ -XV-
- ANNEXE 9 : Protocole radiochimique pour le mesurage alpha des éléments ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am
_____ -XVI-
- ANNEXE 10 : Résultats des mesures effectuées sur les sols de Rognes _____ -XXIV-
- ANNEXE 11 : Données météorologiques du site de Marcoule pour la modélisation de la dispersion des
rejets atmosphériques _____ -XXV-
- ANNEXE 12 : Flux de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am issus du bassin versant du Rhône _____ -XXVI-
- ANNEXE 13 : Rejets liquides du Marcoule estimés selon deux hypothèses _____ -XXVII-
- ANNEXE 14 : Concentrations moyennes de $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am et ^{238}Pu dans les eaux du bas-Rhône
(Bq.m⁻³) et rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ _____ -XXVIII-
- ANNEXE 15 : Espèces constituant l'échantillons de végétation de sous-bois _____ -XXIX-

Introduction

La présence d'isotopes de plutonium et d'américium dans l'environnement résulte principalement des retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires effectués depuis 1945 et jusqu'à 1980, ainsi que de l'accident d'un satellite en 1964. Ces retombées, depuis la haute atmosphère, ont été distribuées de manière assez homogène à l'échelle du continent européen et donc du territoire français. Pour quatre de ces isotopes, ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu et ^{241}Am , cette présence en quantités mesurables dans l'environnement sera durable en raison de leur longue période radioactive.

Ces radionucléides de forte radiotoxicité pour l'homme en raison notamment de l'émission de particules alpha, figurent également dans les rejets autorisés de certaines installations nucléaires, susceptibles de constituer localement une source supplémentaire d'actinides.

Difficiles à mesurer à l'état de traces dans l'environnement ou à manipuler en plus grande quantité en laboratoire, ces éléments ont fait l'objet d'un nombre restreint d'études destinées tout d'abord à utiliser leurs caractéristiques à des fins militaires et industrielles, puis plus récemment à comprendre leur comportement dans l'environnement. Ainsi, des études sur le plutonium ont été menées aux Etats-Unis dans les années 1970 autour des sites militaires (Watters *et al.*, 1980). Des expérimentations en laboratoire ont également été conduites pour étudier les transferts du plutonium ou de l'américium vers les végétaux destinés à la consommation. Plus récemment, leur comportement *in situ* dans les sols a été étudié (Bunzl *et al.*, 1987, 1988, 1994, 1995, 1998 ; Mitchell *et al.*, 1990 ; Hölgge *et al.*, 1995, 1996, 2000). En France, quelques mesures d'actinides dans des échantillons de l'environnement terrestre ont été effectuées autour des sites nucléaires (IPSN, 1993, 1995, 1996 ; Lumia *et al.*, 1995 ; Descamps *et al.*, 1996, 1997). Si le flux de plutonium dans le fleuve Rhône a été estimé dans le cadre d'un travail doctoral (Noël, 1996), aucune étude n'a encore été menée en France sur la répartition de la contamination en plutonium et américium dans l'environnement terrestre.

L'objectif de cette thèse est de décrire la répartition actuelle de ces radionucléides au sein d'un grand ensemble géographique : la basse vallée du Rhône en aval du centre nucléaire de Marcoule, et de comprendre les processus qui ont déterminé cette répartition. Dans cette zone d'étude, qui a été exposée aux retombées globales anciennes et aux rejets des installations de ce centre, il s'agit de rechercher l'origine des activités de plutonium et d'américium mesurées dans l'environnement, de révéler les disparités susceptibles de résulter d'apports ou de flux spécifiques, et d'inventorier les stocks correspondants.

La méthode adoptée part de l'observation de l'état radioécologique de l'environnement basée sur une analyse des mesures disponibles et de la collation de données bibliographiques : données générales sur les radionucléides considérés et leur comportement radioécologique, données contextuelles sur la zone d'étude, et données relatives aux deux sources de plutonium et d'américium (retombées anciennes et rejets industriels de Marcoule). A partir de ces informations, des plans d'échantillonnages sont établis. Ils doivent permettre, avec un nombre limité de mesures, d'obtenir une image synthétique de la répartition spatiale et compartimentale de ces actinides sur la zone d'étude. En effet, compte tenu des faibles niveaux d'activités des matrices de l'environnement, le mesurage par spectrométrie alpha s'appuie sur une radiochimie longue et délicate, qui entraîne une forte contrainte sur le nombre de mesures réalisables.

Les résultats de mesures sont interprétés en terme d'activités massiques (Bq.kg^{-1}) ou surfaciques (Bq.m^{-2}) pour connaître les teneurs en Pu et Am dans les différentes matrices et les comparer. Les rapports d'activités isotopiques $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ et dans certains cas $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ sont utilisés comme traceurs de l'origine de la contamination. En effet, la composition isotopique du plutonium dépend des conditions dans lesquelles il a été créé et la part des apports issus de chaque source peut ainsi être évaluée.

L'évaluation de certains stocks est alors obtenue par la prise en compte des surfaces ou des masses des composantes de l'environnement ainsi différenciées.

L'analyse du système permet d'expliquer ce constat. Elle conduit à la quantification des flux d'actinides qui repose sur la modélisation des transferts de radionucléides et des flux de matières : érosion des sols, flux d'eau et de matières en suspension véhiculées par le Rhône et ses canaux, transferts et exportation par les récoltes...

Ainsi, l'ensemble des données bibliographiques, des résultats de mesures et de calculs sont associés afin de déterminer les stocks et les flux d'actinides responsables de l'état actuel de leur répartition dans l'écosystème terrestre.

La première partie de ce mémoire présente des connaissances générales, nucléaires et chimiques sur le plutonium et l'américium, leur origine et leur comportement dans l'environnement. Les données contextuelles, géographiques et historiques sur la basse vallée du Rhône sont également fournies, ainsi qu'une synthèse des connaissances radioécologiques de cet environnement.

Les méthodes et outils de prélèvements, de mesures et de modélisations utilisées sont présentés dans le Chapitre II.

L'étude statistique des résultats de mesures d'activité des sols disponibles et la prise en compte des données contextuelles, conduit aux premières hypothèses quant à la répartition spatiale du Pu et de l'Am dans la basse vallée du Rhône. Le niveau d'activité lié aux retombées globales étant déterminé, les stratégies de prélèvements ou de calculs sont définies pour chacune des zones témoignant d'une hétérogénéité des dépôts. Les résultats de ces opérations conduisent à la connaissance de la répartition spatiale de la contamination (Chapitre III).

Après avoir établi la répartition spatiale du plutonium et de l'américium dans la basse vallée du Rhône, le chapitre IV est consacré à l'étude de la distribution de la radioactivité entre les compartiments majeurs de l'écosystème terrestre. Deux grands thèmes sont abordés : la répartition verticale des éléments dans les sols naturels d'une part, et les activités contenues dans les végétaux d'autre part.

Le bilan des stocks d'actinides dans les principales composantes de l'environnement et les évaluations des flux font l'objet du chapitre V. Les résultats obtenus dans cette thèse y sont discutés, soulignant notamment leur cohérence par rapport aux études antérieures.

En conclusion, après un rappel des principaux résultats obtenus, un certain nombre de points qui pourraient donner lieu à des recherches ultérieures sont proposés.

Chapitre I : Etat des connaissances

1. Généralités

1.1. Le plutonium et l'américium

1.1.1. Présentation

Le plutonium et l'américium sont des radioéléments transuraniens appartenant à la famille des actinides. Les isotopes ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu et ^{241}Am sur lesquels portent cette étude sont des émetteurs alpha à vie longue créés par fission nucléaire (Figure I-1).

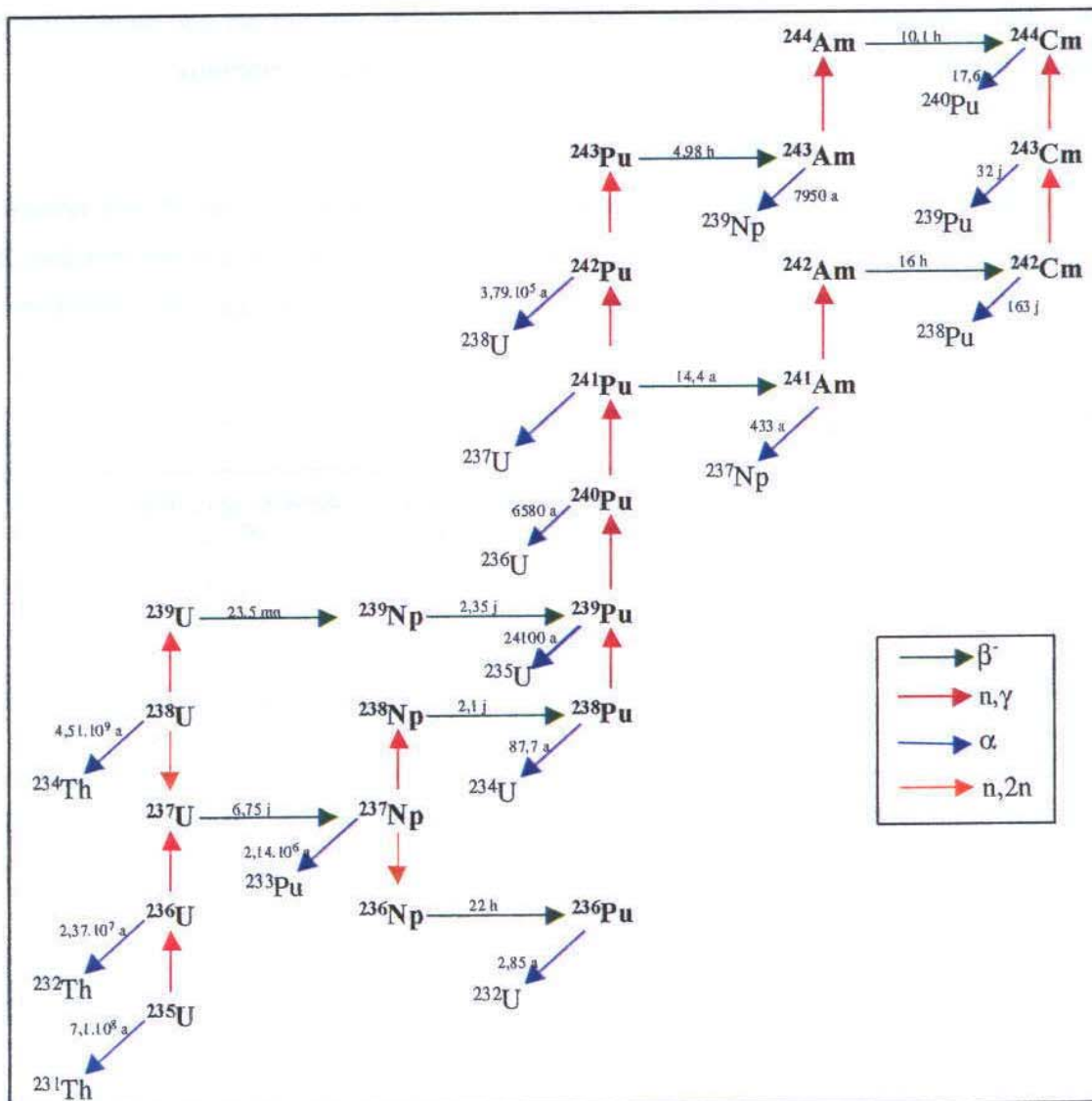
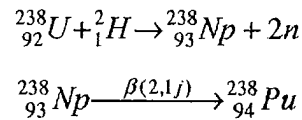


Figure I-1: Réactions de formations des actinides

1.1.2. Propriétés nucléaires et physico-chimiques

1.1.2.1. Le plutonium (Z=94)

Les premiers atomes de plutonium ont été générés artificiellement en 1940 par Seaborg par désintégration de neptunium en bombardant des atomes d'uranium (Weigel et al., 1986) :



Le ${}^{239}\text{Pu}$, fut découvert en 1941 (Madic, 1995). Dès lors, les recherches dans les domaines de la physique et de la chimie du plutonium ont été intenses afin de pouvoir contrôler au mieux ses potentialités pour l'énergie nucléaire. Les travaux concernant son devenir une fois libéré dans l'environnement sont beaucoup plus récents et moins nombreux.

➤ Caractéristiques nucléaires

15 isotopes du Pu ont été synthétisés. Tous sont radioactifs. Les émetteurs alpha à vie longue qui ont été le plus largement répandus dans l'environnement sont les isotopes 238, 239 et 240 (Tableau I-1). Ils figurent parmi les radionucléides les plus radiotoxiques (cf. Annexe 1).

Tableau I-1: Propriétés nucléaires des isotopes Pu 238-240

Isotopes	Période (ans)	Energie d'émission principale (MeV)	Activité spécifiques (Bq.g ⁻¹)
${}^{238}\text{Pu}$	87,7	5,499 (70,9%)	$6,43.10^{11}$
${}^{239}\text{Pu}$	24 100	5,155 (73,3%)	$2,30.10^9$
${}^{240}\text{Pu}$	6 563	5,168 (72,8%)	$8,35.10^9$

L'isotope 239 est le plus abondant. Dans ce travail, il est systématiquement associé au ${}^{240}\text{Pu}$, car leur mesure par spectrométrie alpha ne permet pas de différencier leur spectre d'émission. Néanmoins, leurs activités spécifiques étant très proches, cette association est admise, notamment au niveau sanitaire (Métivier, 1984).

Un milligramme de ${}^{239}\text{Pu}$ émet plus de deux millions de particules α par seconde. Le ${}^{238}\text{Pu}$ en produit 280 fois plus.

➤ Caractéristiques physico-chimiques et spéciation dans l'environnement

Le plutonium est un métal qui s'oxyde au contact de l'air. Dans les conditions naturelles, il existe surtout sous forme de dioxyde PuO_2 et très souvent sous forme complexée (Robouch, 1987).

Alors que les spéciations de l'U et du Th dans l'environnement sont relativement bien connues, celles des éléments artificiels, dont le Pu et l'Am, ne sont étudiées que depuis peu de temps. La multitude des états d'oxydation connus (III à VII, voir figure I-2) confère au plutonium une chimie en solution particulièrement difficile à caractériser.

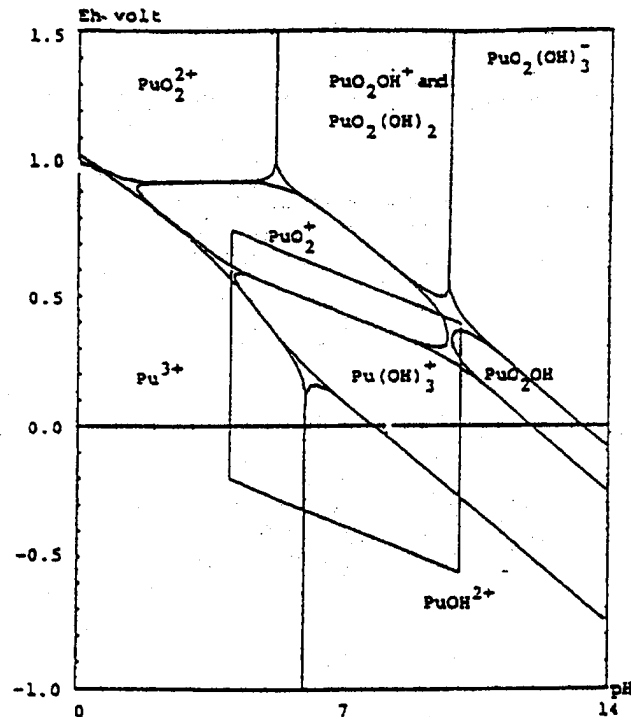


Figure I-2: Diagramme Eh-pH du plutonium à 25°C (le parallélogramme représente le domaine des eaux naturelles)

Le parallélogramme représenté sur la figure I-2 délimite les conditions de pH et d'oxydo-réduction que l'on peut rencontrer dans les milieux naturels. Il apparaît que dans ces milieux, l'état d'oxydation Pu (IV) est prédominant, même si les états Pu (III), Pu(V) et Pu(VI) existent (Guillaumont *et al.*, 1992). L'ion Pu^{4+} se trouve être le plus apte à ce complexer avec différents ligands. Ces phénomènes s'avèrent particulièrement importants lors de la présence d'acides organiques : acides humiques, fulviques ou polygalacturoniques (racines). D'autre part, Pu (IV) est connu pour sa capacité à être adsorbé à la surface des particules minérales solides sous sa forme cationique (Bondietti). Le plutonium dissout se trouve être principalement sous la forme minoritaire Pu (V) (Skipperud *et al.*, 2000). La capacité de migration du plutonium dans les sols est donc très réduite (Watters *et al.*, 1980). Dans les eaux naturelles, le plutonium est majoritairement associé à la phase solide, comme en témoignent les valeurs moyennes des coefficients de distribution K_d entre phase liquide et phase solide (Tableau I-2).

$$Kd = \frac{A_s (Bq.kg^{-1})}{A_l (Bq.l^{-1})}$$

où A_l est l'activité contenue dans la phase liquide et A_s l'activité de la phase solide.

Par contre, la forme chimique initiale du Pu apporté dans le milieu naturel ne semble pas avoir d'influence sur son comportement à moyen ou à long terme (Skipperud *et al.*, 2000).

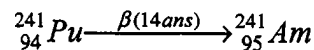
Le point de fusion du plutonium est relativement bas (640°C) (Cotton, 1991).

Tableau I-2 : Coefficients moyens de distribution Kd du Pu et de l'Am en conditions oxydantes dans les milieux aquatiques - Valeurs proposées par l'Agence Internationale de l'Energie Atomique (IAEA, 1994)

	Eaux douces
Pu	10^5
Am	5.10^3

1.1.2.2. L'américium (Z=95)

L'américium fut découvert en 1944 par Seaborg par désintégration d'atomes de ^{241}Pu (Schulz *et al.*, 1986) :



➤ *Caractéristiques nucléaires*

Bien qu'il existe des isotopes de nombre de masse allant de 234 à 247, seul le ^{241}Am , émetteur alpha, existe en quantité suffisante dans l'environnement pour être étudié ici.

Tableau I-3 : Propriétés nucléaires de l'isotope ^{241}Am

Isotopes	Période (ans)	Energie d'émission principale (MeV)	Activité spécifiques (Bq.g⁻¹)
^{241}Am	432,7	5,486(84%)	$1,19.10^{11}$

Par le jeu des décroissances radioactives, les industries nucléaires civile et militaire fabriquent du ^{241}Am . Tout comme les trois isotopes du plutonium étudiés, il fait partie des éléments de forte radiotoxicité (Annexe 1).

➤ *Caractéristiques physico-chimiques et spéciation dans l'environnement*

L'américium 241 est un actinide dont le comportement chimique est proche des lanthanides (Cotton, 1991). Les états de valence II à VI existent mais la chimie de l'américium en milieu naturel est plus simple que celle du plutonium, puisqu'il n'y est présent que sous une seule forme Am(III) comme le montre la figure I-3.

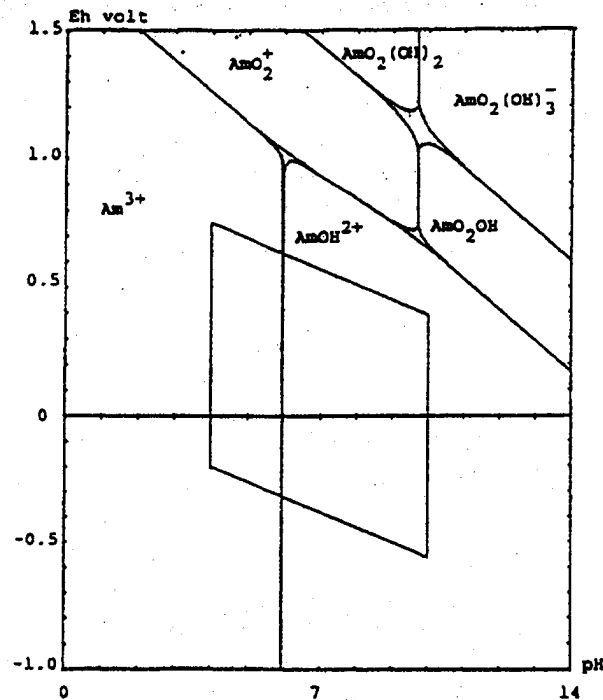


Figure I-3: Diagramme E-pH de l'américium à 25°C (le parallélogramme représente le domaine des eaux naturelles)

Sa capacité de sorption sur les phases solides est forte mais reste inférieure à celle du plutonium (Watters *et al.*, 1980). Bien qu'il forme des complexes organiques et inorganiques en plus grande proportion que le plutonium (Grauby *et al.*, 1986), son K_d moyen dans les sols et les sédiments est légèrement inférieur à celui du plutonium (Tableau I-2).

La fusion du ^{241}Am se fait à 995°C (Cotton, 1991).

1.2. Connaissances générales sur les sources de Pu et Am

Contrairement à l'uranium, les isotopes du Pu et de l'Am étudiés ont des périodes radioactives trop courtes pour avoir perduré naturellement en abondance. Néanmoins, des traces de ^{239}Pu ont été trouvées dans des minerais riches en uranium (minerais de pechblende notamment) (Seaborg, 1948). Les quantités de ^{239}Pu d'origine naturelle présentes dans l'écorce terrestre sont extrêmement faibles par rapport aux quantités produites artificiellement (Figure I-4).

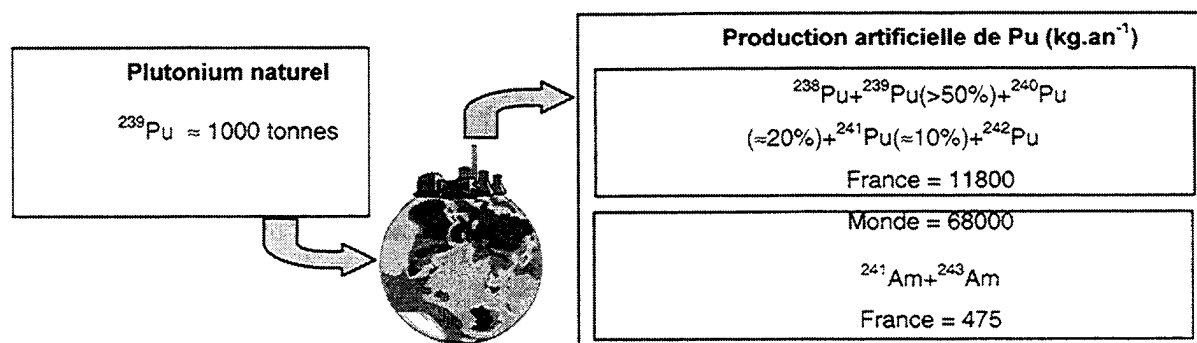


Figure I-4: Comparaison des quantités de Pu et Am produites annuellement et du stock naturel mondial (Beauvy, 1996)

1.2.1. Les retombées atmosphériques globales

1.2.1.1. Les essais d'armes nucléaires

Entre 1945 et 1980, 423 essais d'armes nucléaires ont été réalisés dans l'atmosphère par différents pays, les Etats Unis et l'URSS essentiellement. Les productions maximales se situent dans les années 1961-62 lorsque les Etats Unis et l'URSS ont procédé aux plus forts essais. En 1963, un accord est signé entre américains, soviétiques et britanniques qui stoppent leurs expériences atmosphériques. Les chinois effectuent leur premier essai en 1964, la France en 1966 (Perkins *et al.*, 1980).

Lors des explosions nucléaires, la formation de ^{239}Pu par captures neutroniques successives est plus efficace car plus rapide que celle de ^{238}Pu d'où une activité de ^{239}Pu quarante fois supérieure à celle de ^{238}Pu dans les retombées de ces tirs (rapport d'activités isotopiques $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ égal à 0,025). Le tableau I-4 indique les activités totales de Pu libérées dans l'atmosphère durant toute cette période. L'américium n'a pas été produit directement lors des explosions nucléaires, mais résulte de la désintégration de ^{241}Pu , isotope du Pu produit le plus abondamment pendant ces explosions.

Initialement sous forme gazeuse, les produits de fission et les débris de l'engin générés lors de l'explosion nucléaire se refroidissent au cours de leur ascension dans l'atmosphère. Des particules se forment alors par condensation et coagulation. Ces très fines particules s'associent aux aérosols atmosphériques naturels et suivent le même comportement (Harley, 1980). C'est pourquoi les radionucléides, pris dans les échanges atmosphériques et stratosphériques globaux, se sont répartis de manière assez homogène à l'échelle planétaire (UNSCEAR, 1974). Le temps de résidence de ces éléments dans l'atmosphère a été estimé à environ 10 à 11 mois (Perkins *et al.*, 1980).

Tableau I-4 : Production totale de Pu par les essais atmosphériques (UNSCEAR, 1982)

Isotope	Production ($\cdot 10^{15}$ Bq)
^{238}Pu	0,33
^{239}Pu	7,8
^{240}Pu	5,2
^{241}Pu	170

1.2.1.2. L'explosion du satellite SNAP

Le ^{238}Pu est utilisé comme source d'énergie dans les satellites. Les Etats Unis ont utilisé cette technologie pour 19 engins (Deprés, 1995).

Le 21 avril 1964, un satellite de navigation américain équipé d'un générateur auxiliaire SNAP-9A (System for Nuclear Auxiliary Power Generator) s'enflamme lors de sa rentrée dans l'atmosphère à 46 km au-dessus de l'océan indien, libérant ainsi 560 TBq de ^{238}Pu sous forme de particules submicrométriques d'oxyde, soit une activité en ^{238}Pu presque double à celle due à l'ensemble des essais militaires (DeBertoli *et al.*, 1969).

1.2.1.3. Caractéristique des retombées globales

Les retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires qui ont concerné principalement l'hémisphère nord se sont faites suivant des cycles saisonniers. Les maxima s'opéraient à la fin du printemps et les minima en hiver, comme l'illustre l'exemple présenté sur la figure I-7. Ce phénomène est bien corrélé avec les mouvements périodiques des masses d'air (Harley, 1980 ; Martin *et al.*, 1988).

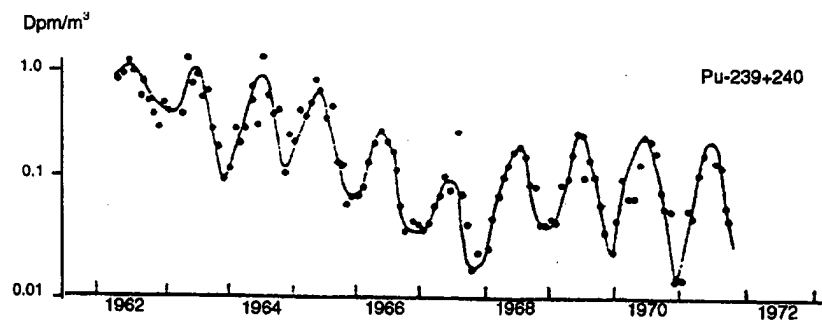


Figure I-5: Activités de $^{239+240}\text{Pu}$ mesurées dans l'air dans l'état de Washington, Etats-Unis (Harley, 1980)

De plus, ces dépôts sont dépendants de la latitude du site considéré. Ils ont été les plus forts aux latitudes moyennes, à cause des hautes vitesses de transfert de la stratosphère vers la troposphère. Les retombées ont cessé au début des années 1980, plusieurs mois après le dernier tir chinois. Leur cumul a été estimé par l'UNSCEAR (1982). Au niveau de la France (entre 40 et 50° de latitude Nord), celui-ci serait de : 1,5 Bq.m⁻² de ²³⁸Pu, 58 Bq.m⁻² de ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, 758 Bq.m⁻² de ²⁴¹Pu.

80% des retombées de ²³⁸Pu issu de l'explosion du satellite SNAP-9A se sont faites dans l'hémisphère Sud entre 1965 et 1973. Ce long temps de résidence dans l'atmosphère est lié à l'altitude élevée de l'explosion. Les retombées de ²³⁸Pu en France ne sont cependant pas négligeables par rapport aux apports liés aux essais thermonucléaires précédemment décrits. Celles-ci sont estimées à 0,96 Bq.m⁻² (Hardy *et al.*, 1973 ; Perkins *et al.*, 1980).

Les activités globales déposées théoriquement en France sont résumées dans le tableau I-5.

Tableau I-5 : Cumul des activités moyennes déposées en France suite aux retombées globales (valeurs théoriques calculées)

	²³⁸ Pu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Pu
Dépôts cumulés en Bq.m ⁻²	2,4	58	758

Actuellement, l'activité totale de ²³⁸Pu déposée à nos latitudes a légèrement décliné, alors que, à cause de sa période radioactive plus longue, l'activité de ²³⁹⁺²⁴⁰Pu déposée est inchangée. Cependant, l'origine globale des retombées dues aux tirs et à l'accident du SNAP est caractérisée par un rapport d'activité ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu actuel de 0,03.

Les valeurs d'activités surfaciques liées à l'ensemble des dépôts atmosphériques globaux que l'on peut calculer (Annexe 2) sont des valeurs théoriques moyennes. Les activités réellement déposées en un point donné dépendent des caractéristiques climatiques et d'occupation du sol du site étudié :

- Plusieurs auteurs ont déjà montré des corrélations fortes entre les activités surfaciques mesurées sur des échantillons de sol et les hauteurs de pluie moyennes au point d'échantillonnage (Cigna *et al.*, 1987 ; Bunzl *et al.* 1988 ; Mitchell *et al.*, 1990 ; Hölgge *et al.*, 1995). Les activités surfaciques mesurées dans les sols à nos latitudes sont donc sujettes à ce facteur de variabilité naturelle.
- Les dépôts atmosphériques cumulés sont supérieurs de 30% pour des sols sous couvert forestier par rapport à des sols de prairie (Bunzl *et al.* 1988 ; Hölgge *et al.*, 1995). Ceci est causé par l'interception des aérosols atmosphériques par la canopée.

1.2.2. Les émissions accidentelles locales de Pu et Am

Plusieurs accidents sont à l'origine de la libération d'actinides artificiels dans l'environnement. Harley (1980) rappelle les accidents majeurs mettant en jeu du plutonium avant 1980 :

- l'accident d'un avion bombardier américain transportant des charges nucléaires à Palomares en Espagne en 1966, contaminant 226 ha (Garcia-Olivares *et al.*, 1997) ;
- l'accident de Thule en 1968, où un autre avion américain s'est écrasé au Groenland ;
- l'incendie ayant eu lieu sur l'usine de Rocky Flats en 1969 ; l'accident de Mound Laboratory, usine de production de ^{238}Pu à usage technologique (satellites, pacemaker, etc.).

Mais, parmi ces sources potentielles de contaminations, aucune n'a pu avoir de répercussions sur l'environnement français.

Plus récemment, l'accident du réacteur RBMK de Tchernobyl survenu le 26 avril 1986 a induit la libération de nombreux produits radioactifs en grande quantité, dont Pu et Am. Les rejets de $^{239+240}\text{Pu}$ sont estimés à $8,7 \cdot 10^{13}$ Bq (Muramatsu *et al.*, 2000). Pour l'essentiel, ces éléments se sont déposés à proximité du réacteur. Des mesures effectuées à Monaco (Holm *et al.*, 1988) et par la suite en Allemagne (Bunzl *et al.*, 1994), ont montré que l'on peut considérer les retombées de Pu et Am en France comme négligeables par rapport à celles des tirs.

1.2.3. L'industrie nucléaire française

En France, les centres de production d'électricité d'EDF n'ont pas d'autorisation de rejet d'éléments émetteurs de rayonnement alpha dans l'environnement. Par contre, certaines installations sont autorisées à effectuer de tels rejets dans des conditions et des limites réglementées. Ces rejets sont notamment issus de la chaîne de retraitement du combustible (Figure I-6), qui est destinée à séparer l'uranium et le plutonium recyclables des produits de fission et autres déchets. Les effluents gazeux et liquides générés sont traités et une faible partie est rejetée dans l'environnement.

Les installations UP1 de Marcoule et UP2 - UP3 de La Hague disposent de ces autorisations et effectuent des rejets d'actinides dans des proportions qui dépendent de la nature et du taux de combustion en réacteur du combustible traité (Bruneau, 1999).

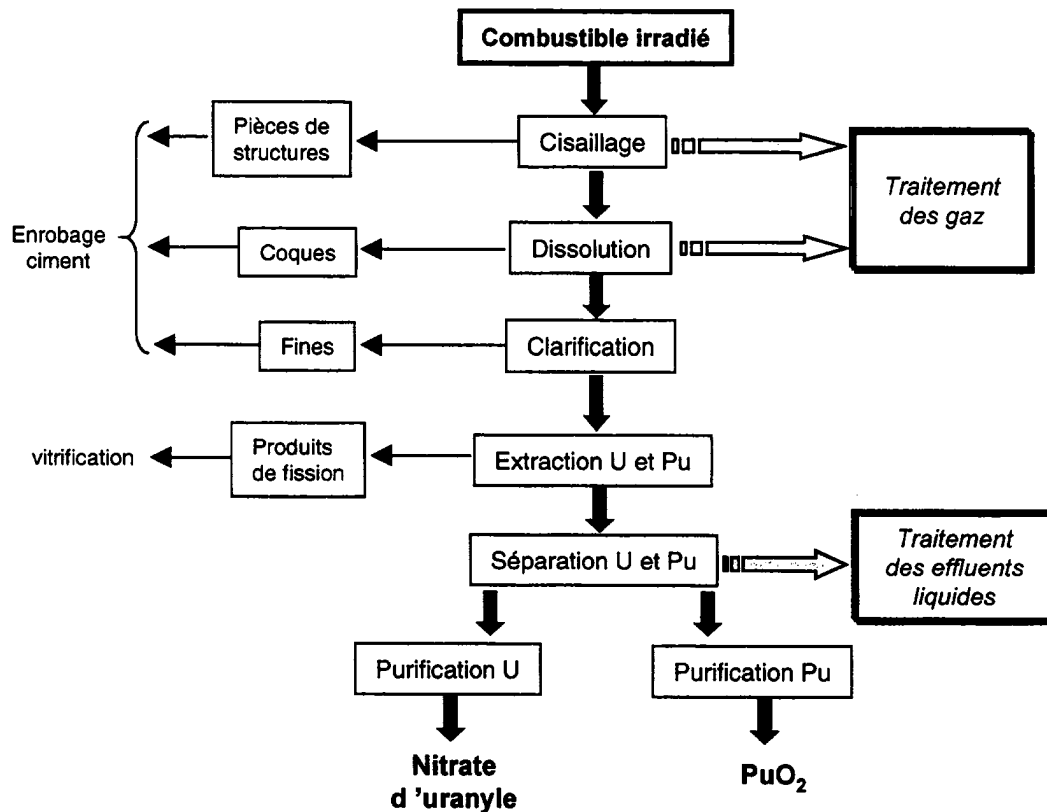


Figure I-6 : Schématisation des différentes étapes du retraitement du combustible irradié

1.3. Comportement dans l'environnement

Cette partie permet de présenter, de manière non exhaustive, des éléments de connaissance sur le comportement du plutonium et de l'américium dans l'environnement terrestre. Ces informations sont issues d'études *in situ* ou en laboratoire, réalisées pour l'essentiel dans des pays étrangers.

Initialement produit à des fins militaires, le plutonium est certainement, parmi les actinides artificiels, celui qui a été le plus étudié. Depuis le début des années 1960, de nombreuses études ont été menées sur le comportement du Pu autour des zones d'essais militaires américaines (Watters *et al.*, 1980). Les données sur l'américium sont beaucoup plus fragmentaires, car c'est un élément qui, dans le cycle du combustible, fait partie des actinides mineurs, moins largement étudiés que le plutonium.

1.3.1. Le plutonium et l'américium dans les sols

L'inventaire des actinides actuellement présents dans l'environnement terrestre passe tout d'abord par la quantification et la qualification du stock présent dans les sols. En effet, à cause de leurs très faibles capacités à être transférés vers le biotope, le plutonium et l'américium ayant été déposés en surface sont essentiellement accumulés dans les sols.

C'est par exemple le cas sur le site d'expérimentation de Rocky Flats (Etats Unis) où plus de 99% du plutonium libéré dans l'environnement est piégé dans les sols de surface (Little *et al.*, 1980).

Tous les auteurs reportant des mesures réalisées sur des sols, que ce soit autour de sites contaminés par des sources locales ou dans des lieux soumis aux seules retombées atmosphériques globales, mettent en évidence une faible vitesse de migration de ces éléments par rapport à d'autres radionucléides (Hanson, 1975 ; Hakonson *et al.*, 1981 ; Bunzl *et al.*, 1994). Cette migration est d'ailleurs essentiellement due aux effets biologiques et physico-chimiques qui priment sur l'entraînement par l'eau (éluviation). Les profils verticaux de sols non remaniés montrent une diminution exponentielle des concentrations de plutonium avec la profondeur et la quasi-absence de cet élément en-deçà de 30 cm (Mitchell *et al.*, 1990 ; Ibrahim *et al.*, 1996). Ces travaux fourniront des éléments de comparaison aux évaluations de flux dans les sols effectuées dans le cadre de cette thèse. Des travaux récents (Ibrahim *et al.*, 2000) ne montrent pas de différence significative entre les profils verticaux du plutonium et de l'américium. Les vitesses de migration lentes de ces éléments dans les sols augmentent avec la profondeur, de 0,4 cm.an⁻¹ dans les deux premiers centimètres à 1 cm.an⁻¹ entre 20 et 30 cm (Bunzl *et al.*, 1994). Ces vitesses de migration dépendent des propriétés physico-chimiques et granulométriques du sol considéré. Ainsi, la capacité de migration est meilleure dans un sol sableux que dans un sol argileux (Hanson, 1975). De là, la répartition verticale des actinides dans les sols peut varier d'un site à l'autre.

D'autre part, il est admis que, pour les éléments à l'état de traces dans les sols, les concentrations maximales sont associées aux fractions granulométriques les plus fines (Bourrelier *et al.*, 1998 ; Roussel-Debet, 1999). Cigna (1987) et Mitchell (1990) montrent également une forte corrélation entre la concentration en matière organique d'un sol et sa teneur en plutonium.

L'ensemble de ces données sur la migration des actinides intéresse les sols non perturbés. Dans le cas des sols cultivés, le labour conduit à une homogénéisation des activités massiques sur une épaisseur faiblement variable selon les pratiques agricoles, qui n'excède le plus souvent pas 30 cm.

Une part d'actinides, contenue dans la couche superficielle centimétrique de sol, est entraînable naturellement par érosion. Ce flux est dépendant des caractéristiques du site étudié et notamment de sa pente. Dans le cas de sols de plaines pour lesquels les pentes sont quasi-nulles, les transferts de matière par érosion sont négligeables. A l'échelle de tout un bassin versant, ce phénomène conduit à un apport continu vers les fleuves. Les taux de Pu entraînés annuellement s'avèrent faibles pour les bassins versants qui ont été étudiés (de 0,005% à 0,6% par an selon Bonnett, 1990). Néanmoins, ce flux correspond souvent à la

voie de reconcentration naturelle la plus importante à l'échelle globale. Les mécanismes mis en jeu sont complexes de par la multiplicité des paramètres auxquels ils font appel. Afin d'obtenir une estimation des flux, la simplification du système est alors nécessaire. Dans les études de transfert de radionucléides, cette simplification se fait généralement par l'élaboration d'un modèle permettant, que ce soit par une approche analytique ou systémique, de calculer un flux en sortie du bassin de drainage (Smith *et al.*, 1982 ; Foster *et al.*, 1984 ; Dominik *et al.*, 1987 ; Monte, 1995).

1.3.2. Le plutonium et l'américium dans l'air

Depuis l'arrêt des essais atmosphériques d'armes en 1980, peu de mesures d'activités de Pu ou Am dans l'air à nos latitudes ont été publiées. Cependant, on peut parler d'un état d'équilibre post-retombées (Pan *et al.*, 1996). Suite aux mesures réalisées entre 1990 et 1997 en Allemagne, des valeurs moyennes d'activités volumiques de $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{238}Pu respectivement égales à 1,9 et 0,25 nBq.m⁻³ ont été mesurées (Arnold *et al.*, 1999). D'autres auteurs fournissent des valeurs comparables : teneurs en $^{239+240}\text{Pu}$ comprises entre 0,5 et 5,5 nBq.m⁻³ à Prague (Hölgge *et al.*, 1996), de 1 à 2 nBq.m⁻³ à Fribourg (Geering *et al.*, 1999). Ces très faibles activités présentes actuellement dans l'air sont liées à la remise en suspension de particules de sol de la couche de surface.

1.3.3. Le plutonium et l'américium dans les plantes

Les végétaux terrestres contiennent de faibles activités d'actinides. Ces teneurs, lorsqu'elles sont mesurables, sont généralement comprises entre 10⁻⁵ et 1 Bq.kg⁻¹ sec (Grauby *et al.*, 1986 ; Bunzl *et al.*, 1987 ; Cawse *et al.*, 1988). Les activités massiques les plus fortes sont mesurées dans les mousses utilisées à ce titre comme bio-indicateurs des contaminations.

La distribution de la radioactivité dans la plante se fait dans l'ordre racines > tiges > grains ou fruits. Les fruits et les grains contiennent des activités massiques en actinides 10 à 1000 fois plus faibles que les parties végétales (Hakonson *et al.*, 1981 ; Wildung *et al.*, 1974).

Les activités de Pu et d'Am mesurées dans les plantes peuvent résulter d'un transfert racinaire ou d'un dépôt sur la surface foliaire. Ce dépôt est dû à la présence de ces éléments dans l'air ou dans l'eau d'irrigation.

En termes de stocks et de flux, les végétaux terrestres constituent un compartiment de stockage temporaire des activités. C'est le cycle bio-géochimique des plantes qui détermine la fréquence et la vitesse des échanges globaux entre les plantes et le sol (Baize, 1999). Celui-ci a rarement été étudié en radioécologie car il constitue un mode de transfert mineur vers les sols. Il inclut les retours d'éléments, soit directement dans le sol (décomposition des racines), soit à sa surface (décomposition des parties aériennes, litières forestières). Ce flux

peut être considéré comme négligeable dans le cas des actinides étudiés, sauf en cas de contamination de la végétation par voie aérienne directe.

L'exportation par les récoltes rompt ce cycle car elle entraîne le départ des activités contenues dans les fruits, légumes, céréales ou fourrages vers la chaîne alimentaire des hommes et des animaux. Afin de quantifier ces exportations, l'évaluation des productions agricoles annuelles doit être effectuée préalablement.

1.3.3.1. Transfert racinaire

Bien que très faible, le transfert racinaire du Pu et de l'Am existe (Brown, 1979 ; Romney *et al.*, 1981). Sa quantification se fait par l'utilisation de facteurs de transferts racinaires, appelés abusivement transferts sol-plante bien qu'ils ne prennent généralement pas en compte les phénomènes de transferts par remise en suspension. Ces facteurs de transferts (Ft) évoqués dans la littérature ont été, en effet, évalués lors d'expérimentations de laboratoire. Leurs valeurs varient selon le type et la partie des plantes considérés.

$$Ft = \frac{A_{\text{plante}}}{A_{\text{sol}}}$$

Avec A_{plante} : Activité massique de la plante ou la partie de la plante considérée (Bq.kg^{-1} sec),

A_{sol} : Activité massique du sol (Bq.kg^{-1} sec).

Tableau I-6 : Exemples de facteurs de transfert sol-plante recommandés (IAEA, 1994)

Plantes	Matrice	Pu	Am	Cs
Céréales	Grains	$8,6 \cdot 10^{-6}$	$2,2 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-2}$
Herbe	Parties aériennes	$3,4 \cdot 10^{-4}$	$1,2 \cdot 10^{-3}$	$1,1 \cdot 10^{-1}$
Pommes de terre	Tubercules	$1,5 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-4}$	$7 \cdot 10^{-2}$
Choux	Parties aériennes	$4,1 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-4}$	-

Les éléments transuraniens sont les radionucléides pour lesquels ces transferts sont les plus faibles. Le tableau I-6 présente des valeurs de facteurs de transfert moyens données par l'IAEA. A titre de comparaison, les facteurs de transferts préconisés pour le césium sont indiqués. Les valeurs sont généralement comprises entre 10^{-5} et 10^{-3} pour le Pu et l'Am, très inférieures à celles du Cs. Les transferts les plus forts sont ceux à l'herbe et aux légumes racines. Les transferts racinaires de l'américium sont faiblement supérieurs à ceux du plutonium. Cela est à relier à une meilleure bio-disponibilité de l'américium pour la plante due à une meilleure solubilité. Suite à différentes mesures, certains auteurs ont suggéré une meilleure absorption du ^{238}Pu par rapport au $^{239+240}\text{Pu}$ qui serait due principalement à une différence de taille de particules (Brown, 1979). Cependant, d'autres études contredisent cette proposition (Schulz *et al.*, 1981).

1.3.3.2. Remise en suspension

Les transferts d'activité du sol vers les parties aériennes de la plante par remise en suspension n'ont pu être appréhendés en laboratoire. Ils résultent de l'action du vent ou de l'éclaboussure par les gouttes d'eau de pluie ou d'irrigation (rainsplash).

La remise en suspension par temps sec est caractérisée par un facteur de remise en suspension K (m^{-1}) :

$$K = \frac{A_{air}}{A_{sol}}$$

où A_{air} : Activité volumique de l'air ($Bq.m^{-3}$),

A_{sol} : Activité surfacique du sol ($Bq.m^{-2}$).

Ce facteur K a été évalué à $1,20 \pm 0,05.10^{-9} m^{-1}$ à 1 mètre de hauteur par Rosner (1997) en Allemagne. Il serait inférieur à 10^{-10} selon Anspaugh (1975).

Les projections de particules de sol lors des pluies (processus de « splash ») ne s'opèrent pas au delà de 40 cm (Dreicer *et al.*, 1984).

L'activité transférée à la plante dépend de la masse de sol adhérente, qui sera elle-même dépendante de la hauteur et du développement du feuillage, ainsi que des conditions climatiques locales et du type de sol. La masse de sol adhérente à différentes plantes cultivées a été étudiée par Pinder (1989) qui l'évalue comprise entre 1 et 250 mg par gramme du végétal, ce qui en fait une voie de transfert majeure. Ces phénomènes de transfert sol-plante par remise en suspension revêtent une importance toute particulière dans le cas des éléments transuraniens puisque leur transfert racinaire est extrêmement faible. L'adhésion d'un gramme de sol par kilogramme sec de matrice végétale entraîne un transfert sol-plante par cette voie de 10^{-3} . De là, les valeurs des transferts globaux déduits des mesures de terrain sont supérieures aux facteurs de transferts établis en laboratoire. Ces transferts effectifs sont en moyenne 10 à 100 fois supérieurs aux valeurs expérimentales (Harley, 1980 ; Hakonson *et al.*, 1981 ; Bunzl *et al.*, 1987 ; Okajima *et al.*, 1990).

La translocation désigne le transfert des radionucléides depuis les tiges et feuilles vers les autres organes et dépend des formes chimiques des radionucléides. Cette absorption foliaire, qui est empêchée par le cuticule qui protège la surface des feuilles, est très faible et correspond à 10^{-6} à 10^{-4} fois ce qui est déposé sur les feuilles (Watters *et al.*, 1980).

Les légumes feuilles (végétaux dont on consomme tout ou partie de la masse foliaire), notamment les salades, sont particulièrement sensibles aux contaminations aériennes (dépôts directs ou remise en suspension). Cependant, une partie de l'activité foliaire reste labile. McLeod (1984) montre qu'un lavage des salades permet de diminuer leur teneur en plutonium d'un facteur 3.

2. La basse vallée du Rhône

2.1. Présentation de la zone d'étude

2.1.1. Situation géographique

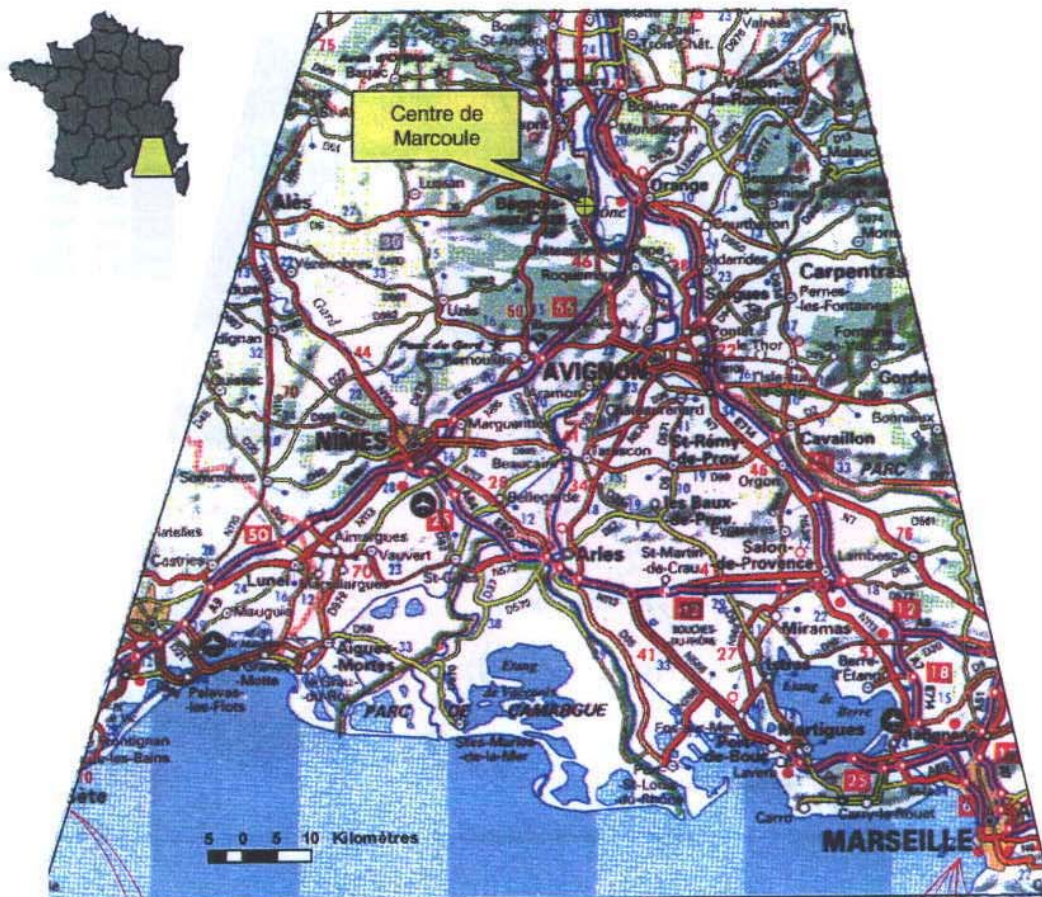


Figure I-7 : Délimitation géographique de la zone de l'étude (fond de carte IGN-1/1000000[®])

La zone choisie pour ce travail de recherche des stocks et des flux de plutonium et d'américium dans l'environnement terrestre se situe dans la partie terminale du bassin rhodanien, en aval du centre nucléaire de Marcoule jusqu'à la mer Méditerranée (Figure I-7). Cette zone est incluse principalement dans les départements des Bouches-du-Rhône, du Vaucluse et du Gard.

2.1.2. Caractéristiques environnementales

2.1.2.1. Données géographiques et agronomiques

➤ Géographie physique

L'étude porte sur une zone de plaine. Même si localement, des reliefs relativement importants existent (en particulier à l'Est de la zone), la plus grande partie de l'aire d'étude est comprise entre 0 et 200 m d'altitude (Figure I-8).

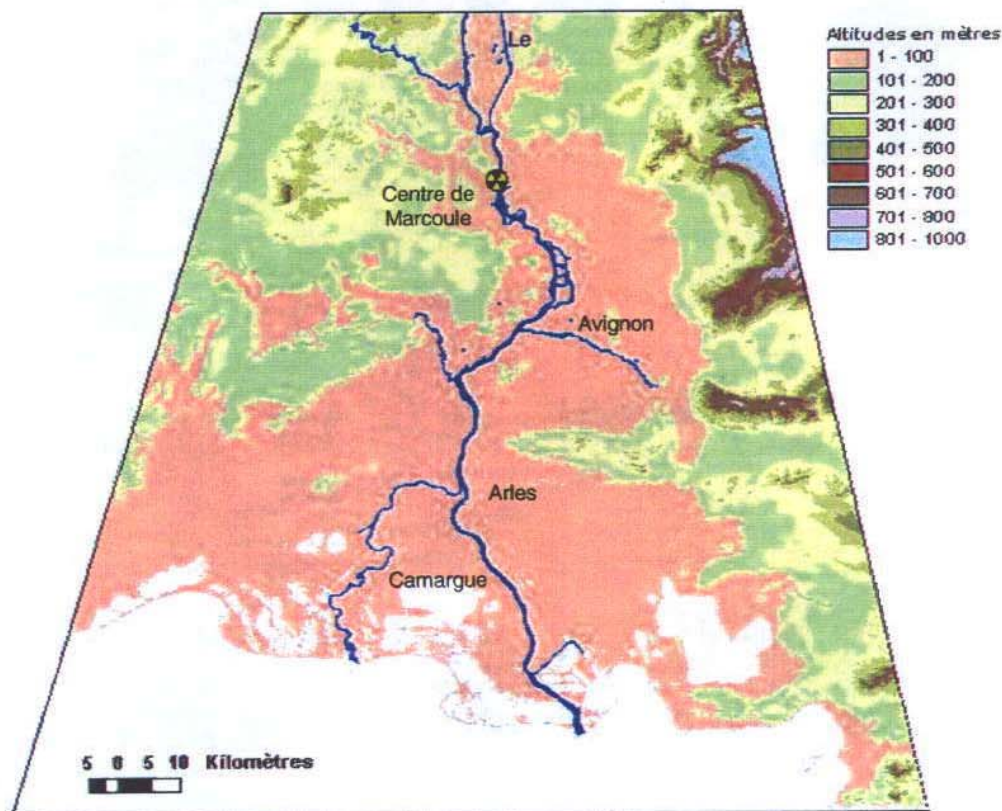


Figure I-8 : Carte du relief de la zone étudiée

La pluviosité moyenne calculée sur la période 1979-1998 est de 680 mm.an^{-1} (données Météo-France). La Camargue est la région où les hauteurs annuelles de pluie sont les plus faibles (500 mm à Arles), alors que les maxima proches de 900 mm se trouvent au Nord de la zone. Il pleut en moyenne 760 mm.an^{-1} sur le centre de Marcoule.

Le vent dominant est issu du couloir rhodanien suivant une direction nord-sud ; c'est le Mistral, qui peut atteindre 200 km.h^{-1} . La figure I-9 représente la rose des vents moyenne sur le site de Marcoule pour la période 1982-1995.

Direction	Fréquence %	Vitesse moyenne (m.s ⁻¹)
360	19.4	7.9
340	13.7	6.2
320	8	3.7
300	6.9	2.7
280	3.1	2.4
260	1.6	2.3
240	1.7	2.7
220	2.1	2.9
200	2.6	3.3
180	3.5	3.6
160	4.2	3.7
140	2.5	3.5
120	2.1	2.6
100	1.1	1.5
80	1.4	1.5
60	1.7	1.7
40	2.8	3.6
20	9.4	6.9
calme	12.4	<0.5



Figure I-9 : Rose des vents moyenne 1982-1995 – site de Marcoule

➤ Biogéographie

L'ensemble des données biogéographiques concernant les Bouches du Rhône, le Gard et le Vaucluse est présenté en annexe 3. L'occupation de sol sur la zone d'étude est supposée être la même que l'occupation moyenne sur les 3 départements concernés (Figure I-10).

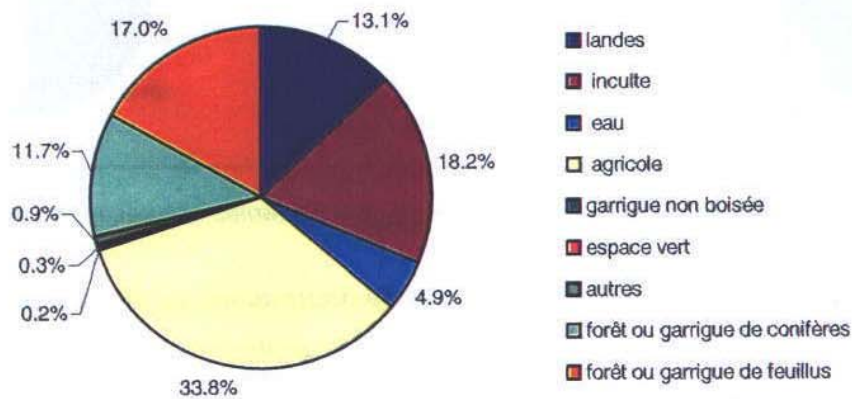


Figure I-10 : Occupation de sols sur la zone d'étude

Près de 34% de la surface étudiée est utilisée à des fins agricoles, et environ 29% est recouverte de forêts ou de garrigues, dont la biomasse est constituée principalement par des pins et des chênes (Figure I-11).

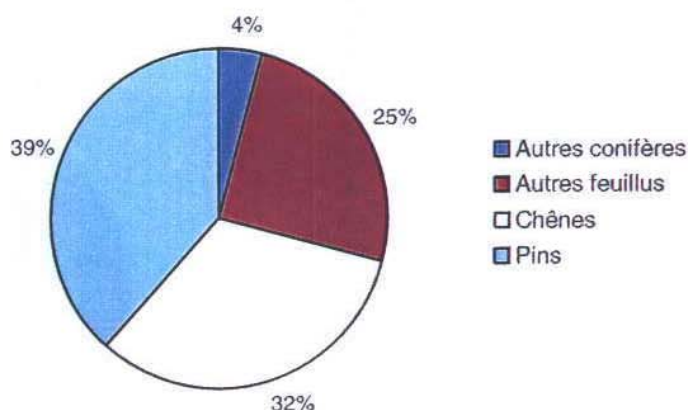


Figure I-11 : Répartitions des essences par biomasses

➤ Données agricoles

L'ensemble des données agricoles est présenté en annexe 4 et synthétisé sur la figure I-12.

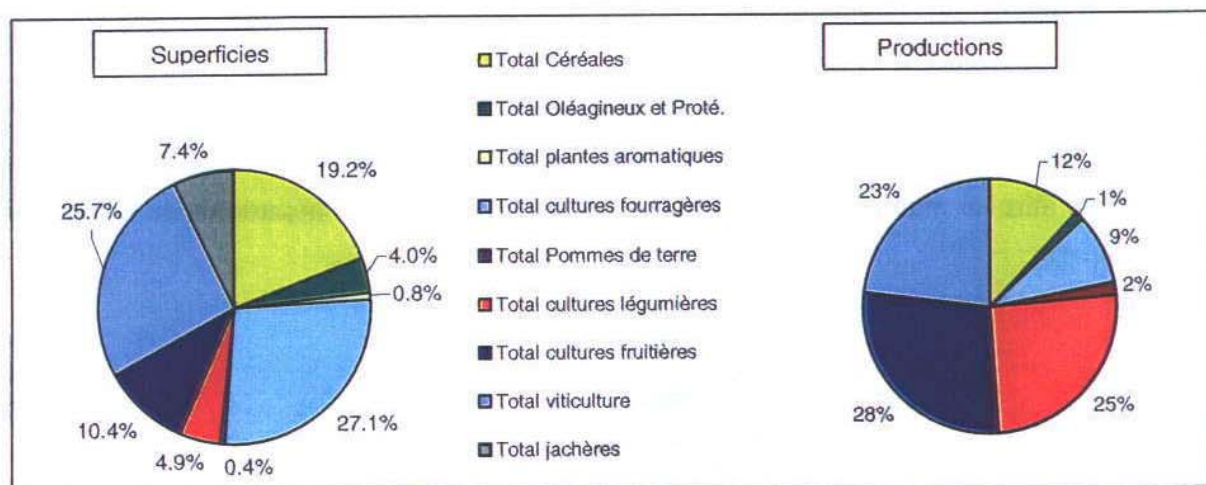


Figure I-12 : Superficies (ha) et productions (t) des différentes cultures sur la zone d'étude

En terme de surface exploitée, les cultures fourragères et viticoles occupent chacune plus du quart des superficies totales agricoles. Par contre, en terme de masses produites, les productions fruitières, légumières et viticoles représentent des parts comparables dans l'ensemble des productions agricoles de la zone étudiée (Figure I-12). Les productions de pommes de terre et d'oléagineux ne représentent chacune que 1 à 2% des masses produites.

A noter, le cas particulier de la Camargue, située au sud de la zone d'étude, qui est le lieu de production quasi-exclusif de riz en France. Actuellement, environ 100 000 t de riz sont produites annuellement. Cette culture est relativement ancienne en Camargue où on la

pratiquait en vue du dessalement des terres. Mais les superficies ont varié de façon importante durant les cinquante dernières années. En plein essor de 1945 à 1963, les surfaces de rizières ont ensuite diminué progressivement pour presque disparaître dans les années 1980, puis ont été relancées pour rétablir l'équilibre écologique de la Camargue. La riziculture est pratiquée sous forme de campagnes annuelles, d'avril à octobre de chaque année. C'est une culture irriguée par drainage, où la submersion des plantes est maintenue jusqu'à 3 semaines avant la récolte.

2.1.2.2. Le Bas-Rhône

➤ Hydrologie

La partie terminale du Rhône est au centre de la zone étudiée. Il faut noter que le fleuve, long de 812 km, draine un bassin versant d'une superficie totale de 98 845 km² (Noël, 1996). Son débit moyen est de 1700 m³.s⁻¹ à Arles, mais les variations mensuelles sont nettes, avec une période d'étiage durant l'été, et une période pendant laquelle de fortes crues peuvent avoir lieu en hiver (Figure I-13).

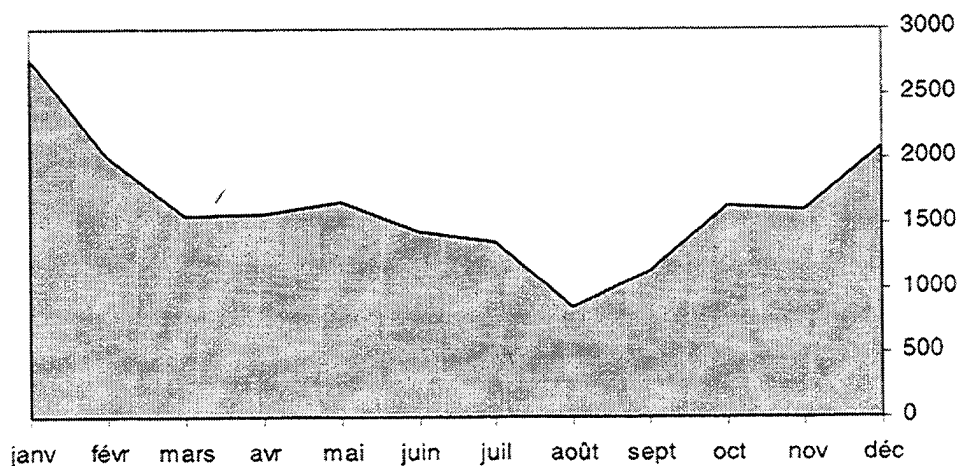


Figure I-13 : Débits mensuels moyens du Rhône au niveau du PK213 pour la période 1993 – 1998 (données de la Compagnie Générale du Rhône)

Quatre affluents principaux se situent en aval du centre de Marcoule : l'Aygues, l'Ouvèze, la Durance et le Gard (Figure I-14). Au niveau du PK 279,5¹, le Rhône se divise en deux bras (Petit Rhône à l'Ouest, et Grand Rhône à l'Est), délimitant ainsi le delta de Camargue. 86% du débit transite par le Grand Rhône sur 51 km jusqu'à la Méditerranée.

¹ PK : Point Kilométrique sur le Rhône correspondant à la distance (km) par rapport à la confluence avec la Saône

Les apports solides du Rhône à la Méditerranée, évalués par différents auteurs, seraient en moyenne de $3,6 \text{ Mt.an}^{-1}$ (Noël, 1996 ; Pont, 1997b), mais cet apport est d'autant plus difficile à estimer qu'il est perturbé par la présence de grands aménagements hydroélectriques sur le Rhône dont trois en aval du centre de Marcoule :

- l'aménagement hydroélectrique de Caderousse, mis en service en 1975. Le barrage se trouve au PK 213.
- l'aménagement d'Avignon au PK 232 se distingue par le fait que le Rhône se divise en deux bras. Un barrage a donc été construit sur chacun des deux bras.
- l'aménagement de Vallabrègues. Son barrage est au niveau du PK 262.

L'impact de ces aménagements sur les transports solides est net (Roditis, 1993).

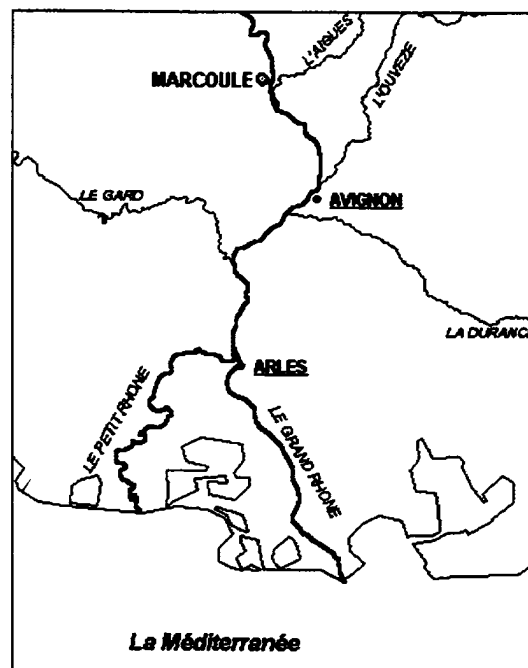


Figure I-14 : Les affluents du Rhône en aval de Marcoule

➤ Le canal BRL

Afin de fournir de nombreuses exploitations agricoles en eau d'irrigation et quelques communes en eau potable notamment dans les départements du Gard et de l'Hérault, la société B.R.L. (Bas Rhône Languedoc) effectue un prélèvement global en rive droite du Rhône à 2 km en amont de la diffuence entre Grand et Petit Rhône, soit 67 km en aval du complexe de Marcoule.

Un canal d'amenée, long de 13 km, alimente le canal des Costières et le canal principal qui va jusqu'aux portes de la ville de Montpellier (Annexe 5). Ainsi, une partie de la plaine de la Petite Camargue et du Languedoc est irriguée par l'eau du Rhône.

➤ Irrigation rizicole

Un grand nombre de pompages est effectué dans le Rhône afin d'irriguer les rizicultures en Camargue. Grâce à un réseau d'irrigation très divisé et à l'absence de relief dans cette région, l'eau peut être acheminée pratiquement partout à un prix relativement modéré. En outre, la nécessité de dessaler certains sols pousse les riziculteurs camarguais à utiliser un volume d'eau nettement supérieur aux seuls besoins physiologiques du riz et aux inévitables pertes vers l'atmosphère par évaporation et vers l'aquifère par infiltration. De là, les quantités d'eau pompées au Rhône pour l'entretien des cultures sont trois fois supérieures aux besoins réels de la plante (Nassiet, 1984). Pendant les 150 jours que dure une campagne rizicole en Camargue, le volume d'eau fourni est d'environ 28 000 m³.ha⁻¹ (Chauvelon, 1996). Les surfaces rizicoles actuelles occupent quelques 15 000 ha.

Les pompages au Rhône sont à part égale collectifs et individuels. L'irrigation se fait par l'intermédiaire de canaux qui permettent de distribuer l'eau vers l'ensemble des bassins de la Camargue (Figure I-15).

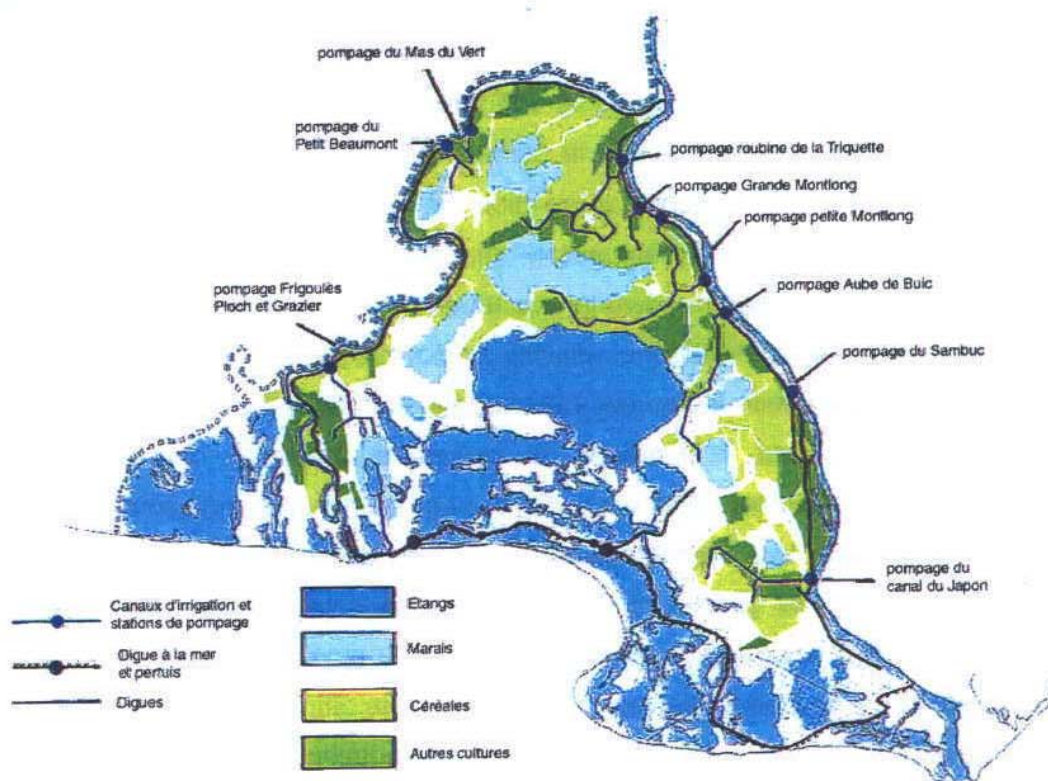


Figure I-15 : Schéma d'irrigation du secteur collectif de la Camargue (Nassiet, 1984)

➤ *Les inondations de la Camargue en 1993 et 1994*

L'ensemble de la Camargue est protégé des crues du Rhône par un endiguement quasi-continu. D'Arles à la mer, elle est protégée du Petit Rhône par une digue sur la rive gauche de 44 km de longueur, du Grand Rhône par une digue en rive droite de 58 km de longueur. Le fleuve est également endigué sur ses autres rives, délimitant ainsi le lit majeur de façon à assurer une protection contre les crues. Réalisées au milieu du XIX^{ème} siècle, ces digues sont des remblais en terre d'une hauteur moyenne de 5 m. Elles n'ont nulle part été submergées lors des crues récentes, mais des brèches se sont formées à plusieurs niveaux, dues en particulier au manque d'entretien de ces ouvrages (Bonnefoy *et al.*, 1994).

Les brèches qui ont donné lieu aux inondations du nord-ouest de la Camargue en octobre 1993 et janvier 1994 sont localisées en rive gauche du Petit Rhône. Il n'y a pas eu de brèches au niveau du Grand Rhône grâce à un meilleur écoulement et aux ségonnaux² plus larges que sur le Petit Rhône.

Au mois d'octobre 1993, survient une crue cinquantennale, avec un débit qui atteint $9\,800\text{ m}^3\cdot\text{s}^{-1}$ au niveau de Beaucaire le dimanche 10 octobre. Les débits solides ont également augmenté, atteignant plus de 3 g/l. La charge solide cumulée transportée en suspension lors de cette crue est estimée à 12,6 millions de tonnes entre le 24 septembre et le 25 octobre, soit une moyenne de 42 000 tonnes par jour pendant un mois. L'annexe 6a présente l'étendue géographique et le déroulement chronologique des événements. Du 9 octobre au matin au 16 octobre après-midi, un volume total d'eau de $131\cdot 10^6\text{ m}^3$ a été introduit en Camargue par les brèches (Pont, 1997a). La surface de terres immergées fut d'environ 13 000 ha, ce qui représente une hauteur d'eau moyenne de 1 m.

Au mois de janvier 1994, une nouvelle crue provoque une montée du débit liquide avec un maximum à Beaucaire le samedi 8 janvier avec un débit de $11\,000\text{ m}^3\cdot\text{s}^{-1}$. Lors de cette crue d'ordre centennal, 6,1 millions de tonnes de particules ont été transportées en suspension en seulement cinq jours, ce qui représente une moyenne de 1,2 millions de tonnes chaque jour. Les brèches provoquées de la même manière qu'en octobre 1993 ont été localisées en rive gauche du Petit Rhône. Les deux brèches principales ont permis l'introduction d'un volume d'eau de $55\cdot 10^6\text{ m}^3$ du 8 janvier au matin au 12 janvier à midi (Pont, 1997a). A nouveau, des volumes de sédiments ont ainsi été apportés sur les sols de Camargue. L'annexe 6b présente l'étendue de l'inondation et les phases successives de sa progression.

² Ségonnal : bande de terre entre la berge du lit mineur et le pied de la digue

2.2. Le centre de Marcoule

2.2.1. Présentation

Situé à l'amont de l'aire d'étude, dans le département du Gard, le centre COGEMA-Marcoule (Figure I-16), et en particulier l'installation UP1 de retraitement des combustibles usés, génère depuis 1958 (Rodier *et al.*, 1966) des effluents liquides dans le Rhône et, dans une moindre mesure, des rejets atmosphériques contenant également des radioéléments émetteurs alpha, dont font partie les isotopes du Pu et de l'Am.

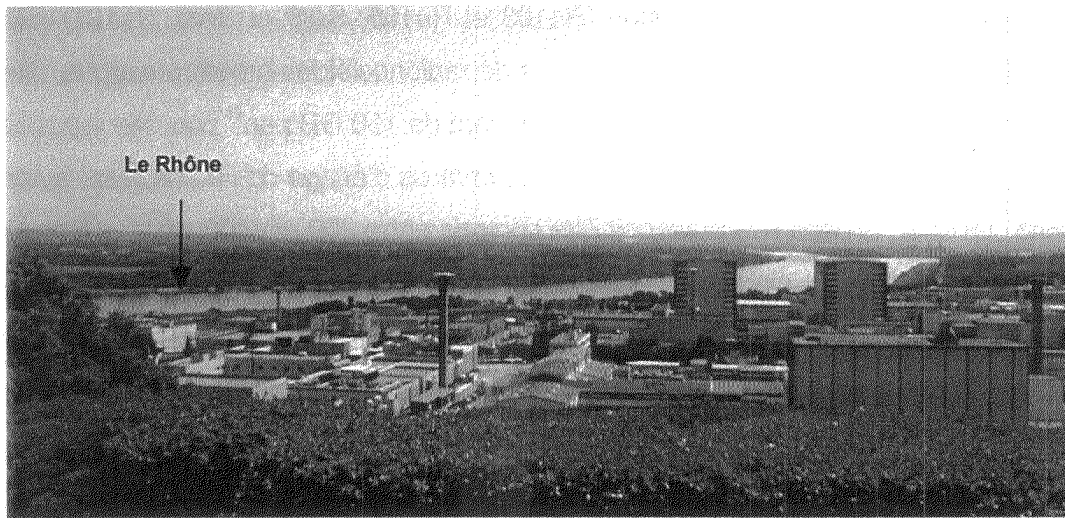


Figure I-16 : Le centre de Marcoule, vue NO – SE

En 1952, le gouvernement français décide de faire du centre de Marcoule une installation de production de plutonium (COGEMA, 1997). Dès lors, trois réacteurs (G1, G2, G3) vont diverger entre 1956 et 1959, et l'usine de retraitement du combustible UP1 sera mise en service en 1958. Le premier lingot de plutonium est produit par UP1 en 1959. Jusqu'en 1965, le retraitement réalisé dans cette installation ne se fait qu'à des fins militaires. 1965 marque l'année du commencement du retraitement de combustible usé en provenance des centrales électronucléaires. En 1976, lorsque ce centre devient un établissement COGEMA (Compagnie Générales des Matières Nucléaires), ses missions sont alors définies comme étant à la fois militaires (production de Pu) et civiles (retraitement du combustible de la filière UNGG³). Jusqu'en 1993, qui voit l'arrêt de production de plutonium militaire à Marcoule, le retraitement est principalement réalisé pour la filière électronucléaire. En 1997, l'usine UP1 effectue sa dernière dissolution de combustible. L'installation de retraitement est actuellement en phase de mise à l'arrêt définitif.

³ Uranium Naturel Graphite Gaz

2.2.2. Rejets dans l'environnement

2.2.2.1. Rejets liquides

Les effluents rejetés sont majoritairement issus de l'usine de retraitement. Ce rejet s'effectue, après passage dans une station de traitement, au niveau du PK 210,5 dans le Rhône par l'intermédiaire d'un dispositif immergé, appelé « clarinette », qui est en fait une canalisation percée de 12 trous munis de cônes de diffusion. Ce dispositif a été étudié afin de permettre la dilution maximale des produits rejetés initialement sous forme de nitrates.

Les effluents radioactifs rejetés par l'installation de Marcoule contiennent essentiellement des produits de fission ($Ru103$ et $Ru106$, $Sr89$ et $Sr90$, $Cs137$) (Rodier *et al.*, 1966). Les autorisations actuelles de rejets de radionucléides émetteurs alpha, fixées par les autorités sanitaires (arrêté du 21 mai 1981), sont de 150 GBq.an^{-1} pour les rejets liquides. Un rejet ne peut être réalisé en période de forte crue ou d'étiage du Rhône, sauf autorisation spéciale. En effet, le débit du fleuve doit être compris entre 400 et $4000 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$. Dans les faits, les isotopes émetteurs alpha ne représentent que $0,1\%$ des rejets totaux. Parmi ces éléments, on trouve de l'uranium naturel, les isotopes 238 , 239 et 240 du plutonium, de l'Am- 241 et les deux isotopes du curium (^{242}Cm et ^{244}Cm) comme l'illustre la figure I-17.

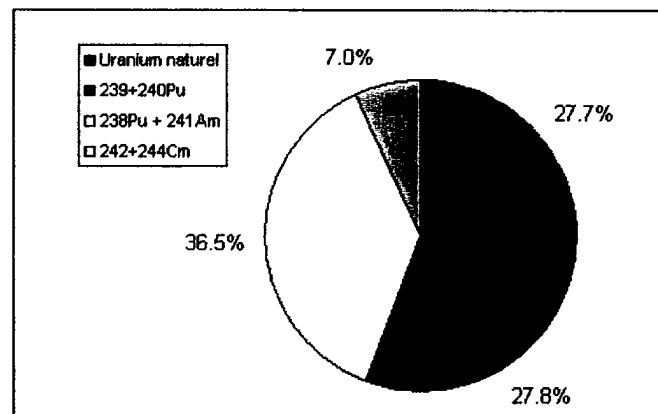


Figure I-17 : Composition moyenne en émetteurs α des effluents de Marcoule entre 1984 et 1993 (Lambrechts *et al.*, 1994)

Les informations concernant les activités totales rejetées dans le Rhône depuis 1961 sont données dans le tableau I-7. Les données fournies par COGEMA concernent les cumuls annuels des activités des éléments transuraniens rejetés entre 1961 et 1998. Avant 1979, une seule valeur annuelle est fournie, incluant les isotopes $^{239}+^{240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Am et $^{242}+^{244}\text{Cm}$. A partir de 1979, on distingue les isotopes hormis ^{238}Pu et ^{241}Am .

Tableau I-7 : Activités rejetées dans le Rhône entre 1961 et 1998 (données COGEMA)

*avant 1979 les valeurs de $^{239+240}\text{Pu}$ incluent ^{238}Pu , ^{241}Am et $^{242+244}\text{Cm}$

GBq/an	1961	1962	1963	1964	1965	1966	1967	1968	1969	1970	1971	1972	1973	1974	1975	1976	1977	1978
$^{239+240}\text{Pu}^*$	20	30	20	30	100	30	3	3	20	3	3	-	-	3	10	3	3	3
$^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am}$																		

1979	1980	1981	1982	1983	1984	1985	1986	1987	1988	1989	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998
4.6	23.4	18.7	13.7	12.0	25.7	26.6	24.8	24.1	28.8	17.4	21.1	12.6	3.3	1.0	1.3	0.5	0.8	1.4	0.5
8.5	40.8	16.8	35.2	21.7	40.1	21.7	34.7	57.4	40.0	20.2	20.7	13.6	4.5	2.2	2.7	1.0	1.5	2.5	1.4

La composition exacte des rejets avant 1979 n'a jamais été publiée. Cela s'explique sans doute par le fait que ces rejets étaient essentiellement issus du retraitement du plutonium militaire.

En 1990, une nouvelle station de traitements des effluents liquides (STEL) a été mise en service. Les nouveaux procédés utilisés (évaporation, coprécipitation) permettent une décontamination d'un facteur 1000 sur les effluents alpha avant leur rejet vers le milieu naturel (Levy *et al.*, 1992).

2.2.2.2. Rejets atmosphériques

Les rejets en actinides se font sous forme d'aérosols et principalement par 3 cheminées (Renaud *et al.*, 2000).

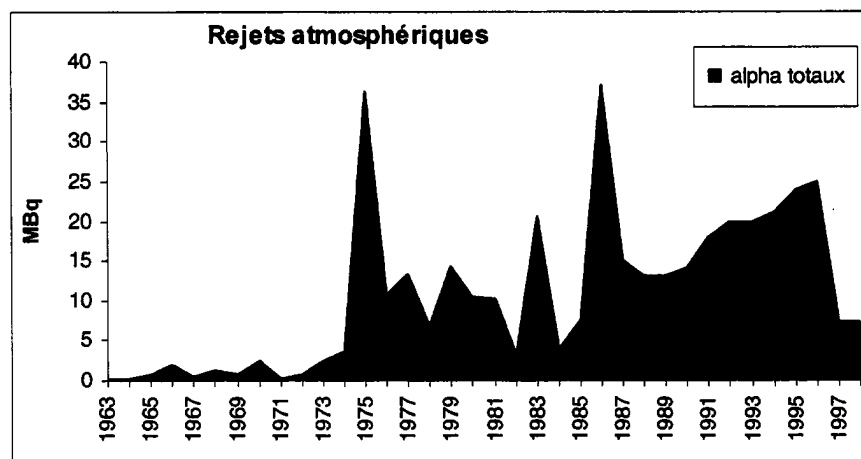


Figure I-18 : Valeurs des rejets atmosphériques d'activité alpha déclarés

Le bilan des rejets d'alpha totaux déclarés correspond de 1963 à 1986 aux valeurs significatives mesurées, et à partir de 1987 à la somme des valeurs seuils et des valeurs significatives suite à la demande de l'OPRI (Office de Protection contre les Rayonnements Ionisants). Jusqu'en 1986 les rejets déclarés étaient donc sous-estimés alors qu'après 1987 le cumul avec les valeurs seuil a conduit à les surestimer (Figure I-18). La part exacte de chacun des éléments émetteurs alpha rejetés n'est pas connue.

2.2.2.3. Caractéristiques isotopiques des rejets de Pu et Am

La composition isotopique des effluents du centre de retraitement Marcoule est l'image du combustible traité. Or, comme décrit précédemment, les activités de retraitement ont évoluées depuis leur mise en fonctionnement en 1958. Elles sont passées de la filière plutonigène des années 1960 à la filière électrogène UNGG. Or, les réacteurs nucléaires destinés à fabriquer du plutonium militaire dans les années 1960 ont produit des actinides dans des proportions différentes des réacteurs civils.

Dans le secteur militaire, on cherchait alors à produire du ^{239}Pu dans la plus forte proportion possible (Naudet, 1995). Le taux d'irradiation est beaucoup plus faible lorsque l'on fabrique du plutonium militaire : 1000 MWJ/t au lieu de 6500 dans un réacteur UNGG (Henry, 1986). De là, les autres isotopes du plutonium sont générés en plus faible quantité. Dans les réacteurs civils, l'isotope 238 est produit en plus grande proportion.

Dans le cas de Marcoule, on considère que les rejets récents sont entièrement issus de combustibles civils, caractérisés par un rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ de 0,3 (Descamps *et al.*, 1996 ; Noël, 1996 ; Charmasson, 1999). Le combustible militaire retraité dans les années 1960 était caractérisé par un rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ de 0,05 (Renaud *et al.*, 2000).

Les rejets liquides et atmosphériques d'actinides étant tous les deux issus principalement des activités de retraitement, on considère que leur composition isotopique est identique.

2.3. **Connaissances radioécologiques sur la basse vallée du Rhône**

Un inventaire des données utilisables dans le cadre de cette étude est présenté ici.

2.3.1. **Les études IPSN**

- Plusieurs études de l'impact radioécologique du site de Marcoule sur le milieu terrestre ont été réalisées par l'IPSN entre 1991 et 1995. Seules les campagnes de 1993, 1994 et 1995 (Lumia *et al.*, 1995 ; Descamps *et al.*, 1996, 1997) comportent des mesures de transuraniens sur des échantillons de l'environnement. 92 échantillons de différentes matrices minérales, végétales et animales ont été prélevés dans la basse vallée du Rhône de 1993 à 1995. L'ensemble de ces résultats de mesures est reporté dans l'annexe 7. Les sites de prélèvement ont été choisis afin de permettre des comparaisons entre des zones plus ou moins soumises aux rejets atmosphériques de l'installation de Marcoule, compte tenu de la rose des vents régionale. Ainsi, les communes de Barjac, Pont-St-Esprit et St-Paulet-de-Caisson (cf. Annexe 7) sont considérées comme témoins de zones non influencées. La plupart des prélèvements ont cependant été réalisés au sud de Marcoule et

notamment sur la commune de Codolet située à proximité immédiate des installations industrielles. Trois types de matrices ont été prélevés : des sols qui rendent compte de l'effet résultant sur le long terme des retombées cumulées des rejets, des produits agricoles et d'élevage, et enfin des végétaux naturels (mousses et thym) indicateurs de la contamination atmosphérique.

Parmi les 46 échantillons agricoles et malgré des limites de détection très basses (de l'ordre de 1 mBq.l⁻¹ ou mBq.kg⁻¹ de matière sèche), le ²³⁸Pu n'a pu être mesuré que dans 3 échantillons : 2 de raisins et 1 d'herbe, les ²³⁹⁺²⁴⁰Pu dans 11 échantillons et ²⁴¹Am dans 25 échantillons. En revanche, les trois radionucléides ont été très régulièrement mesurés dans les mousses, le thym et les sols.

Dans les trois études concernées, ces résultats ont été essentiellement interprétés en terme de rapports d'activités : ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu et ²³⁹⁺²⁴⁰Pu/²⁴¹Am. Les auteurs utilisent les propriétés de traceur des isotopes du Pu afin de suivre l'influence des rejets du centre de Marcoule. Les conclusions principales mettent en avant un marquage des bioindicateurs atmosphériques (mousses et thym), ainsi que des boues d'épuration et des échantillons de raisins sur la commune de Codolet. Ces résultats sont attribués aux rejets atmosphériques de l'installation. Par contre, à la vue de ces mêmes rapports d'activités, l'ensemble de échantillons de sols sont considérés comme « non marqués ».

- Plusieurs résultats de mesures des radionucléides étudiés effectués dans l'environnement terrestre en 1994 et 1996, en particulier en Camargue, qui n'ont pas fait l'objet de publications, sont disponibles dans la base de données de l'IPSN. Ces résultats ont servi en particulier à répondre aux préoccupations du public concernant une éventuelle contamination de la filière rizicole camarguaise suite aux inondations de l'hiver 1993/1994 par les eaux du Rhône. Il s'agit de mesures réalisées sur 5 échantillons de sols et un de riz (Résultats présentés en Annexe 8).

- Une étude portant sur les canaux BRL et les apports de radionucléides aux cultures par irrigation a été menée en 1997-1998 (IPSN, 1999). 3 échantillons de sols, 2 échantillons d'eau d'irrigation et un échantillon de salade prélevé au Mas d'Asport, parcelle expérimentale irriguée par l'eau du canal BRL, ont été analysés. Les résultats sont présentés dans le tableau I-8. Les auteurs mettent en évidence des rapports d'activité ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu de 0,04 dans les sols, qui sont attribués aux retombées globales. Par contre, le marquage de l'eau d'irrigation par les rejets du centre de Marcoule est montré par l'obtention d'un rapport d'activité ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu proche de 0,3. Le transfert des transuraniens par l'eau d'irrigation pourrait être responsable de 25% de la contamination des salades en 1997.

Tableau I-8 : Résultats des mesures réalisées en 1997 au Mas d'Asport

Date de prélèvement	Matrice	Activité massique (mBq.kg ⁻¹ sec ou μBq.l ⁻¹)		
		²³⁸ Pu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am
11/08/97	Sol de salade	4.2 ± 1	105 ± 6	39 ± 3
20/08/97	Sol de verger	6.2 ± 1.3	151 ± 9	63 ± 5
19/09/97	Sol de céréales	5.1 ± 1	128 ± 6	48 ± 4
07/97	Eau d'irrigation	10 ± 1	35 ± 2	46 ± 3
08/97	Eau d'irrigation	4.4 ± 0.3	16.2 ± 0.9	18 ± 1
11/08/97	Salades	0.9 ± 0.2	6.9 ± 0.6	5.8 ± 0.6

- Des études portant sur le milieu aquatique ont été réalisées entre 1989 et 1997 (Lambrechts et al., 1994, 1998 ; Foulquier *et al.*, 1996). Là, des mesures de ²³⁸Pu, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et ²⁴¹Am, notamment sur des échantillons de sédiments, sont reportées. Ils indiquent les sédiments stockés dans le lit du fleuve en aval des rejets du centre de Marcoule constituent un milieu d'accumulation transitoire des radionucléides transuraniens.

2.3.2. Autres études

Les études portant sur la radioécologie terrestre dans cette région sont rares, et les données concernant les éléments transuraniens le sont encore plus.

- La COGEMA et l'OPRI effectuent des mesures mensuelles à des fins de surveillance de l'impact du site de Marcoule sur l'environnement (COGEMA, mensuels ; OPRI, mensuels). Les résultats portant sur le milieu terrestre s'avèrent peu exploitables dans le cadre de cette étude car ils sont généralement exprimés en termes d'alpha totaux ou, lorsque les isotopes sont différenciés, sont inférieurs au seuil de détection ou bien présentent des incertitudes de mesures supérieures à 50% de la valeur annoncée.

- La CRII-RAD (Commission de Recherche et d'Information Indépendante sur la Radioactivité) a réalisé en 1994, à la demande de la municipalité d'Avignon, un rapport synthétisant les études d'impacts des rejets des sites de Marcoule et de Cadarache (CRII-RAD, 1994). Les mesures alpha de transuraniens réalisées portent sur le milieu aquatique, essentiellement sur des échantillons de sédiments du bas-Rhône. Leur marquage par les rejets du centre de Marcoule est montré, et ce rapport met en avant des activités massiques en plutonium jusqu'à 100 fois supérieures à l'aval de l'installation par rapport à l'amont. La contamination du milieu terrestre suite aux inondations de la Camargue est alors envisagée, mais aucun résultat n'en atteste.

- L'étude réalisée par M.H. Noël (1996) porte sur les apports solides du Rhône à la Méditerranée, où le plutonium est utilisé comme traceur du transport sédimentaire. Aucune mesure n'est reportée concernant le milieu terrestre, mais plusieurs résultats de mesures réalisées sur des échantillons d'eau (matières en suspension et fraction dissoute) du Rhône entre 1984 et 1995 au niveau d'Arles sont donnés. Pour l'ensemble de ces échantillons, les rapports d'activités mesurés témoignent d'une part importante des rejets du centre de Marcoule dans les activités totales de plutonium transitant par le fleuve. Ces résultats sont intéressants pour l'étude des flux vers les zones irriguées par l'eau du Rhône.

3. Synthèse du Chapitre I

3.1. Connaissances générales

Les isotopes 238 , 239 , 240 du plutonium et 241 de l'américium sont des radionucléides émetteurs alpha à vie longue, parmi les plus radiotoxiques. Leur présence à des niveaux mesurables dans l'environnement est due à leur production artificielle. En France, les retombées des éléments radioactifs produits lors des essais atmosphériques d'armes nucléaires, et disséminés suite à l'explosion d'un satellite équipé d'un générateur SNAP au ^{238}Pu , constituent une source globale de contamination de l'environnement. Les activités de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am résultant de leur dépôt en France sont estimés respectivement à $1,9 \text{ Bq.m}^{-2}$, 58 Bq.m^{-2} et 21 Bq.m^{-2} en 1998. Les émissions issues des centres de retraitement de combustibles nucléaires peuvent constituer des sources locales de contamination.

Bien que l'américium soit légèrement plus soluble que le plutonium, on retiendra qu'en milieu naturel, ces radionucléides sont principalement associés aux particules solides (phénomènes d'adsorption ou de complexation). Le sol constitue alors un milieu accumulateur pour ces éléments transuraniens. Leur migration verticale est faible. Ils restent encore aujourd'hui piégés dans les trente premiers centimètres de sol. Il en est de même pour leur transfert au biotope. Très peu biodisponibles pour les racines (leur facteur de transfert est de 10^{-5} à 10^{-4} en moyenne), leur transfert aux plantes se fait essentiellement par des phénomènes de remise en suspension de particules de sol (les facteurs de transfert sont alors augmentés d'un facteur 10 à 100).

3.2. Contexte local

L'étude entreprise ici porte sur la basse vallée du Rhône, en aval de l'installation de Marcoule. Cette zone de plaine est une région méditerranéenne agricole (34% de la surface). Les forêts et étendues de garrigues boisées qui représentent la seconde entité en matière d'occupation des sols (30%), sont majoritairement peuplées de pins et de chênes.

L'eau du Rhône est utilisée afin d'irriguer certains sols cultivés en Camargue pour la riziculture. Un prélèvement est également effectué par le canal BRL qui distribue l'eau aux exploitants agricoles jusqu'au Languedoc. Le Rhône, qui transporte 3,6 Mt de particules en suspension chaque année vers la Méditerranée, peut parfois être soumis à un régime de crues très violentes. C'est ce qui s'est passé durant l'hiver 1993/1994 où deux crues exceptionnelles sont responsables de l'inondation d'une grande partie de la Camargue.

Le centre de Marcoule effectue des rejets de radionucléides émetteurs alpha dans le Rhône et dans une moindre mesure dans l'atmosphère. Ces rejets, principalement issus de l'usine de retraitement des combustibles, sont une source locale de contamination de l'environnement déjà soumis aux retombées globales.

Le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ est un outil de traçage des origines des apports possibles de Pu et Am sur la région étudiée (Tableau I-9).

Tableau I-9 : Rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ caractéristiques de chaque source

<i>Retombées globales</i>	<i>Rejets de Marcoule Filière électrogène</i>	<i>Rejets de Marcoule Filière plutonigène</i>
<i>0,03</i>	<i>0,3</i>	<i>0,05</i>

Des études visant à évaluer l'impact radioécologique des rejets du centre de Marcoule ont déjà été menées dans la basse vallée du Rhône. Ces études permettent de fournir un certain nombre des résultats de mesures de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am qui pourront servir de base à l'évaluation des stocks et des flux d'actinides, objet de ce travail.

Chapitre II : Méthodes et outils

1. Mesure des activités de Pu et Am dans l'environnement

L'étude menée nécessite l'acquisition ou l'amélioration des connaissances sur les niveaux d'activités du plutonium et de l'américium dans les différents supports de l'écosystème terrestre de la basse vallée du Rhône. Etant donné le coût (en temps et en moyens nécessaires) de chacune des mesures d'activité en Pu et Am effectuées dans ces échantillons de l'environnement, une attention toute particulière doit être portée au choix des plans d'échantillonnage. La répétition d'une mesure est également peu envisageable pour les mêmes raisons, et le bon déroulement de chaque étape du protocole de traitement et de mesurage est déterminant.

1.1. Stratégie d'échantillonnage

L'échantillonnage se fait au sein d'une « population cible », comme le décrit Gilbert (Gilbert, 1987). L'ensemble des prélèvements réalisés ainsi constitue un échantillon de cette population. Etant données les contraintes déjà évoquées ci-dessus, l'échantillonnage ne peut pas se faire de manière aléatoire. Chaque lieu prélèvement est choisi de façon à ce qu'un nombre minimum de résultats permette de répondre au problème posé.

Le choix du plan d'échantillonnage est conditionné par l'objectif recherché, le niveau de variabilité de la population cible, le nombre de mesures réalisables et, bien sûr, par les contraintes liées au terrain. Les objectifs des échantillonnages réalisés sur le terrain pour cette étude peuvent être regroupés selon quatre catégories (Eberhard *et al.*, 1980) :

1. La description, c'est notamment le cas lorsque l'on cherche à faire un inventaire des niveaux d'activité par matrice.
2. La délimitation d'une zone statistiquement différente susceptible d'avoir été influencée par une source locale, et le tracé de contours d'iso-valeurs d'activités.
3. L'analyse statistique et la comparaison de valeurs entre différents groupes de données.
4. La modélisation, c'est par exemple le cas lorsque l'on réalise des profils de sols.

Lorsque l'objectif est clairement fixé, et que l'on sait ce que l'on doit prélever et pourquoi on le prélève, il est important de connaître le niveau de variabilité « naturelle » de ce que l'on cherche à quantifier. Cela permet à la fois d'aider au choix de l'emplacement exact de chaque prélèvement en sachant le niveau de représentativité de chacun d'entre eux et de s'affranchir des possibles erreurs d'interprétation lors des comparaisons de valeurs.

Les notions d'espace et de temps sont les composantes essentielles d'un plan d'échantillonnage. L'emplacement du prélèvement devient déterminant lorsqu'il s'agit par exemple de délimiter une zone d'accumulation. Bien que les éléments étudiés aient de très longues périodes radioactives, la notion de temps est essentielle afin de savoir de quelle période la mesure réalisée est représentative.

Dans ce travail, les plans d'échantillonnage correspondant aux mesures réalisées, établis selon un ensemble de critères qui leur sont propres, sont présentés et, quand cela s'avère nécessaire, justifiés.

1.2. Prélèvements et préparation des échantillons

1.2.1. Les sols

Pour les sols cultivés, 1 à 8 prélèvements sont effectués à l'aide d'un carottier à main, d'une tarière à piston ou d'une pelle sur une profondeur déterminée (Figure II-1).



Figure II-1 : Exemple de prélèvement d'un échantillon de sol cultivé avec une tarière à piston.



Figure II-2: Exemple de prélèvement d'un échantillon de sol de forêt par horizon de 5 cm.

Les sols de forêt, prélevés par horizons d'épaisseurs centimétriques préalablement déterminées, sont prélevés à l'aide d'un gabarit 30 × 30 cm fabriqué pour ce travail (Figure II-2).

On réalise ainsi un échantillon composite de la totalité ou de chaque horizon de sol, qui est mélangé pour homogénéisation. Une fraction d'environ 1 kg (lot n°1) est extraite par quartage (Figure II-3), émottée, puis séchée à 105°C et tamisée à 2 mm (normes françaises X31-100 et X31-101). Une autre fraction (lot n°2) est conservée pour d'éventuelles analyses granulométriques ou chimiques.

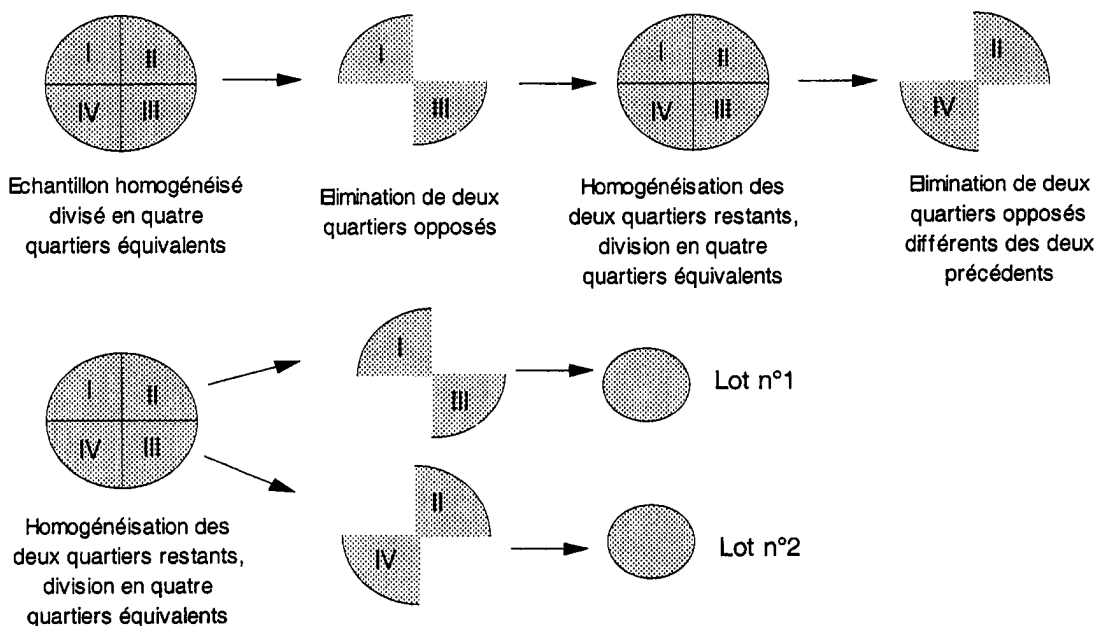


Figure II-3 : Méthode de fractionnement et d'homogénéisation d'un échantillon

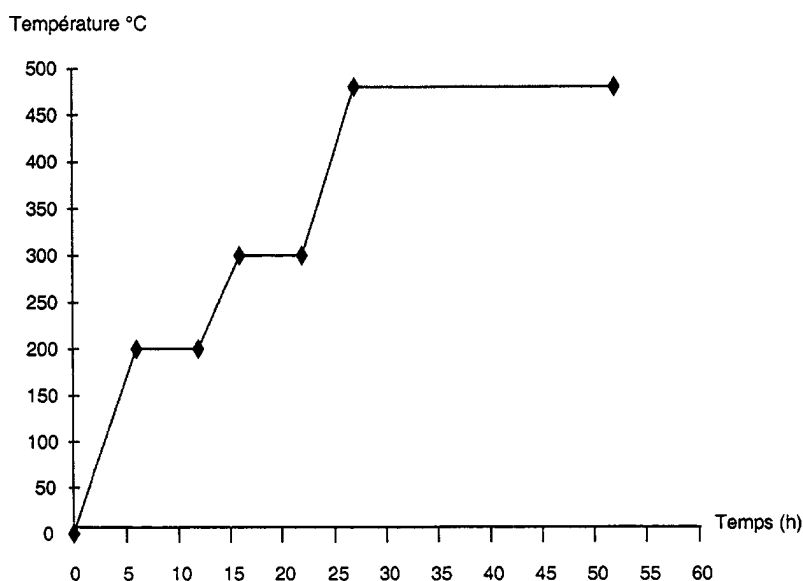


Figure II-4 : Cycle de montée en température lors de la calcination des échantillons

Les transuraniens étant des éléments stables à haute température, l'échantillon de sol (lot n°1) est tout d'abord calciné à 480°C selon un cycle de montée en température prédéfini de 52 h afin de réaliser une calcination complète (Figure II-4), et réduit sous forme de cendres pour éliminer la matière organique. 200 g de cendres sont alors récupérés en vue de la mesure par spectrométrie α .

1.2.2. Les végétaux

Les végétaux cultivés (légumes, fruits, céréales) sont récoltés directement chez un producteur. Il s'agit toujours de productions de plein air. Ceux-ci, tout comme les végétaux naturels et les mousses sont prélevés et conditionnés selon les procédures d'assurance qualité du Service d'Etudes et de Recherches sur les milieux NATurels (SERNAT) de l'IPSN. Les échantillons ou les éventuelles fractions définies par le plan d'échantillonnage sont séparées, lavées, puis séchées à 105°C jusqu'à l'obtention d'un poids constant. De là, les échantillons sont broyés afin de les homogénéiser. La quantité de matière sèche incinérée selon le même cycle que les sols doit être calculée en fonction du rapport de poids sec/cendres préalablement connu ou établi sur une aliquote, de façon à ce que, après la calcination, 50 g de cendres soient disponibles pour la radiochimie.

1.3. Mesurage alpha

1.3.1. Traitement radiochimique

Dans les échantillons prélevés dans l'environnement, les éléments Pu et Am sont à l'état de traces (quelques pg.g^{-1}). Très peu de rayonnements sont donc émis par ces transuraniens ($1\text{Bq de }^{239}\text{Pu} = 4,3.10^{-10}\text{ g}$; $1\text{Bq de }^{241}\text{Am} = 7,9.10^{-13}\text{ g}$). Il faut alors une masse suffisante d'échantillon pour obtenir un résultat significatif (supérieur aux limites de détection des techniques utilisées). C'est pourquoi une prise d'essai de 200 g de cendres est préconisée pour les échantillons de sols, riches en minéraux, et de 50 g pour les végétaux.

L'émission α subissant des phénomènes d'autoabsorption, il convient d'extraire et de concentrer les éléments Pu et Am à mesurer par des techniques de séparations chimiques (précipitations sélectives, chromatographie d'échange d'ion, chromatographie d'extraction), et d'électrodéposer le radionucléide sur un support de comptage sous forme d'une couche la plus fine possible. L'ensemble de ces étapes est synthétisé sur le schéma présenté en figure II-5. Le protocole radiochimique suivi, établi par le Laboratoire de Mesure de la Radioactivité de l'Environnement (LMRE) de l'IPSN est détaillé en Annexe 9.

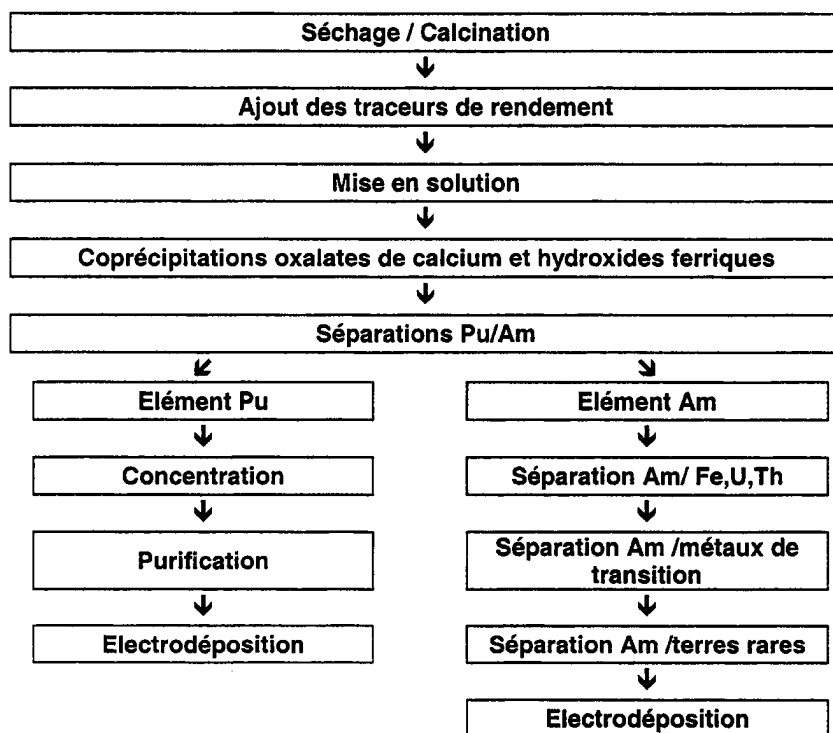


Figure II-5 : Etapes de la radiochimie de Pu et Am

1.3.1.1. Calcination et ajout des traceurs

On introduit des traceurs dans l'échantillon (solution nitrique), soit 15 mBq de ^{242}Pu et de ^{243}Am pour un échantillon de sol. Ces isotopes, absents de l'échantillon, permettront de déterminer le rendement global des différentes opérations de radiochimie.

Le but de ces différentes étapes radiochimiques est de séparer et purifier le Pu et l'Am en permettant l'élimination progressive de la totalité des éléments majeurs stables (alumine, silice, fer, phosphates, sodium, etc.) et de l'ensemble des radio-isotopes naturels émetteurs α . En effet, les émissions α des produits de filiation de l'uranium et du thorium présents naturellement dans l'environnement peuvent interférer avec celles des isotopes du Pu et de l'Am.

1.3.1.2. Mise en solution

La dissolution complète étant difficilement réalisable pour une telle prise d'essai, une série d'attaques acides oxydantes par HNO_3 permet d'obtenir la désorption de tous les éléments « non réfractaires » par lixiviation. On obtient ainsi deux phases : une phase insoluble comprenant Al_2O_3 et SiO_2 et une phase soluble contenant tous les autres éléments (Ca, Na, Sr, K) et les radionucléides à l'état de traces.

1.3.1.3. Concentration

Le plutonium et l'américium sont concentrés en éliminant l'ensemble des éléments majeurs par coprécipitation. Une première série de coprécipitations avec l'oxalate de calcium à pH=1,5 permet d'éliminer le fer qui, complexé, ne précipite pas. Le précipité d'oxalate de calcium contenant les transuraniens est calciné à 550°C, ce qui transforme les oxalates en carbonates. Le carbonate de calcium qui en ressort subit une précipitation de l'hydroxyde ferrique qui entraîne Pu et Am. Afin d'éliminer le fer résiduel des échantillons, une nouvelle précipitation des oxalates de calcium est réalisée. La solution résultant de la dissolution du précipité est très peu chargée et contient 99% des transuraniens.

1.3.1.4. Séparation et purification des transuraniens

Cette phase du traitement est destinée à séparer le Pu de l'Am et des autres transuraniens (Th, U, Cm). Dans un second temps, ils doivent être purifiés par l'élimination des terres rares et autres métaux non éliminés lors de la précipitation. Les méthodes utilisées sont les chromatographies d'échanges d'ions et d'extraction. Le passage sur colonnes de résines suivi d'élutions séquentielles permet de récupérer sélectivement les transuraniens.

Un premier passage sur résine AG1X8 permet de séparer Pu et Am. Le plutonium est fixé à la valence IV sur la résine. Le passage à la valence III par ajout de NH₄I permet ensuite d'éluer le Pu. Le plutonium est ensuite purifié par un second passage sur le même type de résine.

Les étapes de séparation de l'américium déjà décrites par F. Goutelard (Goutelard *et al.*, 1998) sont plus longues car cet élément a des caractéristiques proches de certains éléments naturels. L'Am est tout d'abord séparé du fer restant à l'état de traces, et des éléments uranium et thorium par passage sur une colonne double AG50W-X8 / AG1X8. La résine AG50W-X8 fixe U et Th, alors que la résine AG1X8 retient Fe en milieu HCl. Puis, un passage sur résine type TRU-spec^{®Eichrom} permet de séparer Am des métaux Cu et Ni. Enfin, une chromatographie d'échange d'ions sur résine AG1X4 conduisant à la rétention des terres rares par complexation, constitue la dernière étape de séparation de l'américium.

Pu et Am ainsi séparés sont électrodéposés sur un disque en acier inoxydable, préalablement électropoli.

1.3.2. **Comptage alpha**

Chacun des dépôts électrolytiques (Figure II-6) est placé dans une chambre de comptage équipée d'un détecteur PIPS (Passivated Implanted Planar Silicon) à très bas bruit de fond, maintenue sous vide.

La distance entre le détecteur et la source est réglable. Plus le détecteur est proche de la source, plus le rendement est fort (40% au maximum) mais le spectre obtenu est alors biaisé par l'élargissement des pics caractéristiques de chaque isotope. On choisit le rapport rendement/résolution le meilleur possible. Ici, cette distance est réglée à 1mm (efficacité 35%). La durée du comptage est de 7 à 14 jours selon le type d'échantillon. Les spectres obtenus (Figure II-7), sont ensuite gérés et traités à l'aide du logiciel Génie 2000[®] afin de quantifier les activités de Pu et Am présents initialement dans la source.

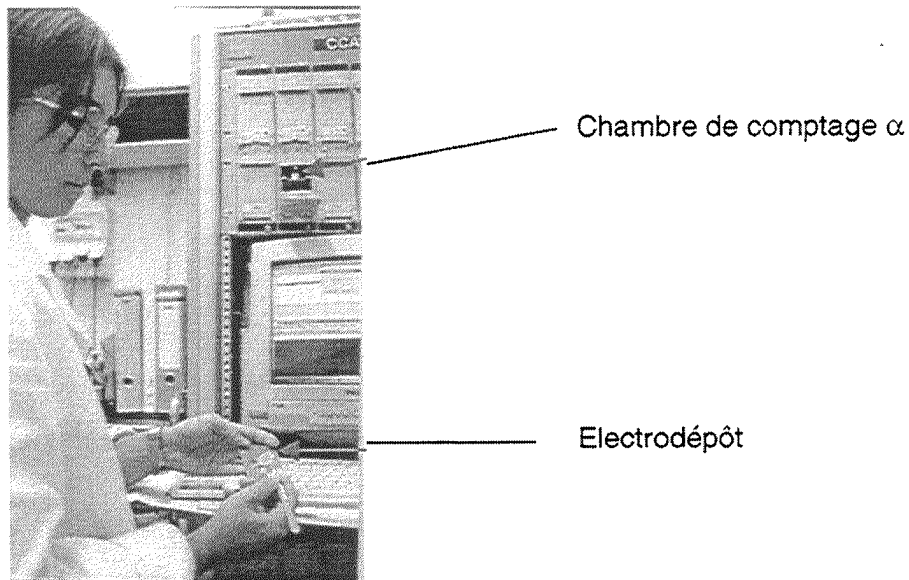


Figure II-6 : Disque d'électrodépôt et chambre de comptage alpha pilotée par ordinateur

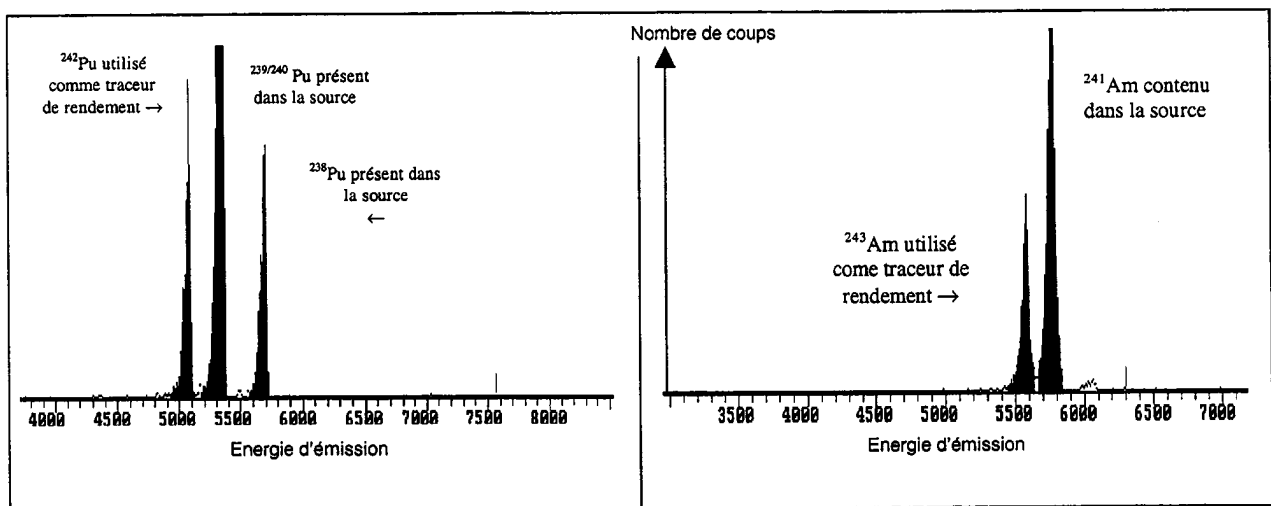


Figure II-7 : Exemples de spectres de Pu et Am obtenus après 7 jours de comptage sur des sources électrodéposées après traitement d'échantillons de sols

1.3.3. Expression des résultats

L'activité de chaque isotope de l'échantillon est directement proportionnelle à l'aire du pic correspondant sur le spectre. Celle-ci est calculée après soustraction du bruit de fond défini pour chaque détecteur et des éventuelles activités liées aux impuretés qui auraient pu être apportées avec le traceur.

Pour chaque isotope i , l'activité de l'électrodépôt s'écrit de manière générale :

$$A_i = \frac{S_i}{T \times \varepsilon_{\text{dét.}} \times R_{\text{chim}} \times m} \quad \text{Équation II-1}$$

Où A_i est l'activité de la source pour l'isotope i (Bq),

S_i est l'aire du pic de l'isotope i (nombre de coups),

T est le temps de comptage (s),

$\varepsilon_{\text{dét}}$ est le rendement de détection ou « efficacité »,

R_{chim} est le rendement radiochimique,

m est la masse de la prise d'essai (kg).

Le rendement radiochimique est déterminé d'après l'activité du traceur au comptage :

$$R_{\text{chim}} = \frac{A_{\text{traceur}}}{A_{\text{marquage}}} \quad \text{Équation II-2}$$

Où A_{traceur} est l'activité du traceur après radiochimie (Bq),

A_{marquage} est l'activité ajoutée lors du marquage (Bq).

D'après les équations II-1 et II-2, on aboutit à la relation :

$$A_i = \frac{S_i \times A_{\text{marquage}}}{A_{\text{traceur}} \times m}$$

Les résultats sont exprimés avec une valeur d'incertitude de mesure, correspondant à un intervalle de confiance à 95%, soit $2 \sigma^2(A_i)$ où $\sigma^2(A_i)$ est l'erreur associée à la valeur donnée de A_i , tenant compte de :

- l'incertitude sur la quantité de traceur introduite au marquage, σ_{traceur} ;
- l'incertitude sur l'étalonnage en efficacité $\sigma_{\text{eff.}}$;
- l'incertitude sur la statistique de comptage sur la pic de l'isotope i recherché et le pic du traceur : $\sigma(A_i)$ et $\sigma(A_{\text{traceur}})$.

L'incertitude combinée est alors :

$$\sigma(A_i) = \sqrt{\sigma_{\text{traceur}}^2 + \sigma_{\text{eff.}}^2 + \sigma^2(S_i) + \sigma^2(A_{\text{traceur}})}$$

En divisant par le rapport de poids sec/cendres, on obtient un résultat exprimé en Bq.kg^{-1} sec.

Dans le cas où les résultats sont exprimés par une limite de détection, celle-ci est définie selon le modèle statistique de Curie ; elle est équivalente à l'activité minimale détectable pour chaque spectre, elle même due aux impulsions interférentes (mouvement propre, impuretés du traceur) dans la zone d'intérêt du spectre. Elle est définie par l'équation :

$$LD = \frac{K^2 + 2\sqrt{s_B + s_1 + \sigma_B^2 + \sigma_1^2}}{T \times R \times m}$$

avec LD : limite de détection (Bq.kg^{-1}),

$K=1,96$: coefficient de la loi Normale pour à un intervalle de confiance de 95%,

s_B : aire du pic équivalent à l'isotope i sur le spectre de mouvement propre (coups),

s_1 : aire du pic équivalent à l'isotope i recherché sur le spectre du traceur (coups),

σ_B : variance observée sur la mesure du pic correspondant au mouvement propre,

σ_1 : variance observée sur la mesure du pic du traceur,

T : temps de comptage (s),

m : masse de la prise d'essai (kg),

R : rendement total de la mesure de l'isotope dans l'échantillon ($R = \epsilon_{\text{det}} \times R_{\text{chim}}$).

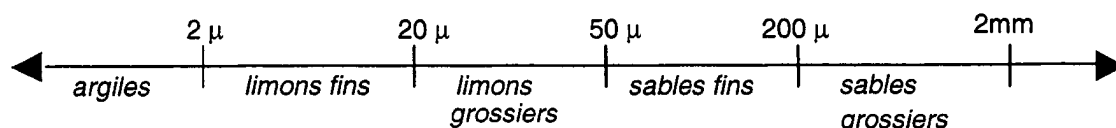
1.4. Mesures physico-chimiques sur les sols

1.4.1. Mesures du pH

Le pH de la solution du sol est mesuré directement au pH-mètre sur une aliquote de l'échantillon de sol diluée dans de l'eau distillée dans un rapport 1/10.

1.4.2. Mesures granulométriques

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



Cette analyse se fait selon la Norme expérimentale X 31-107. Le fractionnement des sables se fait par tamisage sous jet d'eau. Les particules inférieures à $50\mu\text{m}$ sont divisées en se basant sur la loi de Stokes qui régit la sédimentation des particules. Des abaques donnent la profondeur de sédimentation de chaque fraction en un temps donné.

1.4.3. Mesures des teneurs en matière organique

Le taux de matière organique est obtenu par la formule :

$$MO(\%) = C(\%) \times 1,724$$

C est le taux de carbone organique qui est dosé selon la méthode ANNE (norme AFNOR NFX 31-109).

1.4.4. Mesures des capacités d'échanges cationiques

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

2. Outils mathématiques, informatiques et de modélisation

2.1. Utilisation des rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$

Les rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ sont utilisés comme traceurs de l'origine de la contamination. On a vu dans le Chapitre I que les retombées anciennes sont caractérisées par un rapport d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ de 0,03. Le retraitement du combustible électronucléaire effectué depuis les années 1970 génère ces isotopes du Pu, avec un rapport d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ moyen de 0,3. Ces deux sources définissent les pôles d'un mélange où les deux origines peuvent contribuer à la présence de Pu dans l'environnement.

2.1.1. Formulation mathématique

Ce mélange s'effectue dans des proportions quantifiables, selon une « loi de mélange » établie à partir du développement mathématique du rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$.

$$\left[\frac{^{238}\text{Pu}}{^{239+240}\text{Pu}} \right]_{\text{mélange}} = \frac{(^{238}\text{Pu})_{\text{retrait.}} + (^{238}\text{Pu})_{\text{retombees}}}{(^{239+240}\text{Pu})_{\text{retrait.}} + (^{239+240}\text{Pu})_{\text{retombees}}}$$

$$\left[\frac{^{238}\text{Pu}}{^{239+240}\text{Pu}} \right]_{\text{mélange}} = \frac{\left(\left[\frac{^{238}\text{Pu}}{^{239+240}\text{Pu}} \right]_{\text{retrait.}} \cdot (^{239+240}\text{Pu})_{\text{retrait.}} \right) + \left(\left[\frac{^{238}\text{Pu}}{^{239+240}\text{Pu}} \right]_{\text{retombees}} \cdot (^{239+240}\text{Pu})_{\text{retombees}} \right)}{(^{239+240}\text{Pu})_{\text{retrait.}} + (^{239+240}\text{Pu})_{\text{retombees}}}$$

$$\left[\frac{^{238}\text{Pu}}{^{239+240}\text{Pu}} \right]_{\text{mélange}} = \left[\frac{^{238}\text{Pu}}{^{239+240}\text{Pu}} \right]_{\text{retrait.}} \cdot \left(\frac{(^{239+240}\text{Pu})_{\text{retrait.}}}{(^{239+240}\text{Pu})_{\text{retrait.}} + (^{239+240}\text{Pu})_{\text{retombees}}} \right) + \left[\frac{^{238}\text{Pu}}{^{239+240}\text{Pu}} \right]_{\text{retombees}} \cdot \left(\frac{(^{239+240}\text{Pu})_{\text{retombees}}}{(^{239+240}\text{Pu})_{\text{retrait.}} + (^{239+240}\text{Pu})_{\text{retombees}}} \right)$$

$$\left[\frac{^{238}\text{Pu}}{^{239+240}\text{Pu}} \right]_{\text{mélange}} = x \cdot \left[\frac{^{238}\text{Pu}}{^{239+240}\text{Pu}} \right]_{\text{retrait.}} + (1-x) \cdot \left[\frac{^{238}\text{Pu}}{^{239+240}\text{Pu}} \right]_{\text{retombees.}}$$

est la loi de mélange.

$$\text{avec } x = \frac{(^{239+240}\text{Pu})_{\text{retrait.}}}{\left[(^{239+240}\text{Pu})_{\text{retrait.}} + (^{239+240}\text{Pu})_{\text{retombees.}} \right]}$$

La contribution de chaque isotope issu de l'origine locale (retraitement) est calculée à partir de cette loi de mélange :

$$\%({}^{239+240}\text{Pu})_{\text{retrait.}} = x \times 100 = \frac{R_{\text{mélange}} - R_{\text{retombees}}}{R_{\text{retrait.}} - R_{\text{retombees}}} \times 100$$

$$\%({}^{238}\text{Pu})_{\text{retrait.}} = \%({}^{239+240}\text{Pu})_{\text{retrait.}} \times \frac{R_{\text{retrait.}}}{R_{\text{mélange}}}$$

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

2.1.2. Application

La figure II-8 présente l'évolution de la contribution des rejets de Marcoule au mélange en fonction de la valeur du rapport R (${}^{238}\text{Pu}/{}^{239+240}\text{Pu}$). Il apparaît qu'entre 0,03 et 0,15, une faible augmentation du rapport d'activité R correspond à une augmentation importante de la contribution des rejets de Marcoule aux activités de ${}^{238}\text{Pu}$ mesurées.

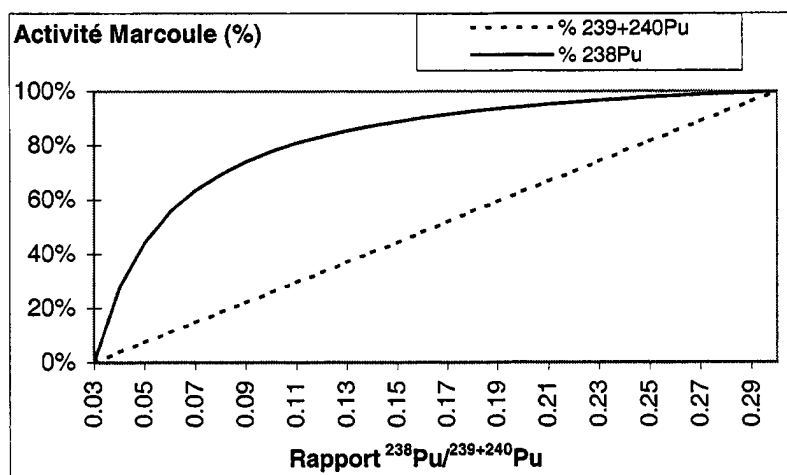


Figure II-8 : Part des rejets de Marcoule dans les activités de ${}^{238}\text{Pu}$ et ${}^{239+240}\text{Pu}$ mesurées en fonction de l'évolution du rapport ${}^{238}\text{Pu}/{}^{239+240}\text{Pu}$.

2.2. Représentation des données et géotraitement

Les points de prélèvements des échantillons sont géoréférencés à l'aide d'un Système d'Information Géographique (SIG). Le logiciel utilisé lors de ce travail est ArcView® version 3.1 développé par ESRI® (Environmental Systems Research Institute). L'étendue de la zone d'étude rend cet outil indispensable puisqu'il permet de composer et visualiser les plans d'échantillonnage, puis d'analyser les résultats de mesures sur un fond cartographique choisi tout en permettant de se placer à différentes échelles. De plus, les différentes fonctionnalités et extensions offertes permettent d'effectuer différentes opérations de traitement et de croisement des données. L'extension Spatial Analyst® permet de créer et d'analyser des données maillées (raster). Le découpage d'une zone géographique en un ensemble de mailles égales permet notamment des opérations mathématiques sur les données. Dans ce travail, c'est surtout un outil d'aide à l'interprétation des données, puisqu'il est utilisé afin de modéliser des surfaces d'iso-activités, et de calculer les stocks d'activités attribués à une zone définie dans l'espace.

Plusieurs méthodes permettant les calculs d'interpolation et le tracé des iso-valeurs d'activités à partir des résultats pour plusieurs points de mesure sont proposées. Les résultats d'interpolations présentés dans cette étude sont issus de calculs par la méthode de l'inverse du carré des distances (Burrough *et al.*, 1998). La méthode consiste alors à attribuer une valeur z à chaque point non informé de la grille cartographique. z est la moyenne des valeurs des points informés les plus proches pondérées par la distance qui les sépare du point non informé :

$$z(x_j) = \frac{\sum_{i=1}^n z(x_i) \cdot d_{ij}^{-2}}{\sum_{i=1}^n d_{ij}^{-2}}$$

où x_j est le point non informé pour lequel on recherche la valeur z ,

x_i sont les points informés,

d_{ij} est la distance entre les point x_i et x_j ,

n est le nombre de points voisins servant à l'interpolation.

Une valeur d'activité étant ainsi attribuée en chaque maille d'une grille régulière, le calcul des stocks d'activités découle de l'opération suivante :

$$A_{stockée} = \sum_{i=0}^m z_i \times s$$

où $A_{stockée}$ est l'activité totale stockée pour un radionucléide donné (Bq),

z_i est l'activité surfacique attribuée à chaque maille i ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2}$),

s est la surface de chaque maille élémentaire (m^2),

m est le nombre de maille de la grille créée.

2.3. Principes de la dispersion atmosphérique et modèle utilisé

La dispersion atmosphérique est un phénomène complexe qui met en jeu plusieurs mécanismes physiques agissant simultanément (Quinault *et al.*, 1989). De par leur propriétés physico-chimiques, les éléments transuraniens sont rejetés sous forme d'aérosols. Le mouvement du rejet atmosphérique se fait dans la direction du vent, les mouvements des masses d'air s'y ajoutant. Les processus impliqués sont alors principalement de nature physique (advection, diffusion). L'appauvrissement du panache se fait ensuite par des phénomènes de dépôts secs ou humides entraînant une partie de la contamination au niveau du sol.

Il existe des modèles qui permettent de simuler le devenir de rejets routiniers d'installations nucléaires. Les plus simples pour étudier la dispersion à courte distance autour du point de rejet sont les modèles gaussiens, valides sur terrains plats. Ceux-ci sont basés sur l'hypothèse que le profil de concentration dans le panache suit une distribution normale. La concentration en un point précis du panache est alors calculée selon la formule :

$$C(x, y, z) = \frac{Q}{2\pi\mu\sigma_y\sigma_z} \cdot \exp\left(-\frac{1}{2} \cdot \frac{y^2}{\sigma_y^2}\right) \cdot \left[\exp\left(-\frac{1}{2} \cdot \frac{(z-h)^2}{\sigma_z^2}\right) + \exp\left(-\frac{1}{2} \cdot \frac{(z+h)^2}{\sigma_z^2}\right) \right]$$

avec $C(x,y,z)$: activité volumique au point de coordonnées x,y,z (Bq.s.m⁻³),

Q : rejet (Bq),

μ : vitesse moyenne du vent à la hauteur du rejet (m.s⁻¹),

h : hauteur du rejet (m),

σ_y : paramètre de dispersion gaussien dans la direction horizontale à distance x du rejet,

σ_z : paramètre de dispersion gaussien dans la direction verticale à distance x du rejet.

Le dépôt au sol est égal au produit : $D(x,y)=V_d \times C(x,y)$

Où V_d est la vitesse de dépôt (m.s⁻¹) et $C(x,y)$ la concentration dans l'air (Bq.m⁻³).

Dans le cas qui nous intéresse, on utilise un code de dispersion atmosphérique développé à l'IPSN (Deville-Cavelin *et al.*, 1994). Ce code de calcul permet d'estimer les concentrations des radionucléides dans l'atmosphère autour du point de rejet, et dans le cas des aérosols, les dépôts surfaciques annuels moyens (Bq.m⁻².an⁻¹). Les paramètres d'entrée nécessaires au fonctionnement du modèle sont : les données météorologiques au niveau du site (fréquence des vents par classes de vitesse pour 18 secteurs directionnels, précipitations), le débit de rejet moyen des radionucléides, leur forme physico-chimique et la hauteur des points de rejets. La vitesse de dépôt des aérosols donnée par défaut est de 5 mm.s⁻¹. De là, le logiciel fournit les valeurs des concentrations dans l'air et des dépôts moyens dans toutes les directions aux distances choisies.

2.4. Modélisation compartimentale

2.4.1. Principe

Afin de modéliser simplement des phénomènes de transfert de la radioactivité entre différents compartiments de l'environnement, on fait appel dans cette étude à des modèles compartimentaux (Figure II-9).

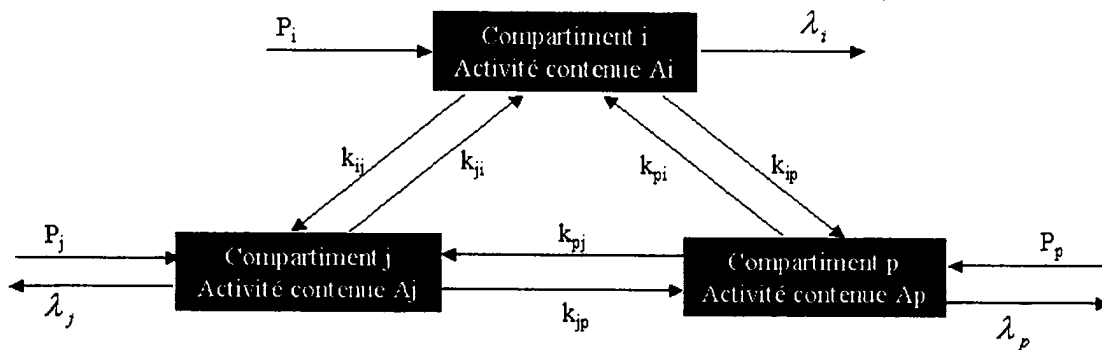


Figure II-9 : Schéma d'un modèle compartimental

Ce type de modélisation repose sur une formulation différentielle des transferts d'activité entre compartiments, décrivant les relations d'équilibre entre ces différentes entités. Pour chaque compartiment, la variation de son activité avec le temps sera définie comme suit :

$$\frac{dA_i}{dt} = \sum_x k_{xi} \cdot A_x - \sum_x k_{ix} \cdot A_i - \lambda_i \cdot A_i + P_i$$

A_i : Activité du compartiment i (Bq),

k_{ix} : Coefficient de relaxation du compartiment x vers i (an⁻¹),

λ_i : Coefficient de transfert effectif du compartiment i vers l'extérieur du système (par exemple décroissance radioactive) (an⁻¹),

P_i : Apport de l'extérieur du système (Bq.an⁻¹).

Le découpage de l'écosystème en compartiments n'est pas fait de manière aléatoire mais repose le plus souvent sur la connaissance du milieu et des caractéristiques de l'élément étudié.

Au cours de ce travail, plusieurs modèles compartimentaux simples, élaborés à l'aide du logiciel STELLA[®], sont proposés afin de simuler les transferts et la distribution des radionucléides. Ce logiciel, développé par HPS (High Performance System, Inc.) permet de modéliser des systèmes complexes et d'opérer des simulations.

2.4.2. Application aux sols

Ce type de modélisation est appliqué au cas des sols. Dans ce cas, à partir de mesures effectuées dans différents horizons du sol, les coefficients de relaxation entre compartiments peuvent être calculés.

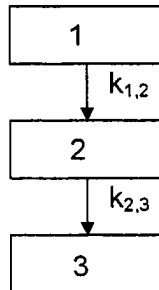


Figure II-10 : Schéma d'un modèle de migration dans les sols à trois compartiments

Dans ce cas, le modèle qui est construit est entièrement réalisé de manière empirique. Les coefficients k (Figure II-10) représentent à la fois les phénomènes de convection et la diffusion dans le sol. Le temps de résidence dans un compartiment i pour le radionucléide étudié est défini par sa période : $\tau_i = \ln \frac{2}{k_{i,i+1}}$. Outre ces temps de résidence, l'intérêt de ce type de modèle est de pouvoir évaluer des vitesses de migration V_i dans chacun des compartiments i : $V_i = \frac{\Delta x_i}{\tau_i}$, où Δx_i est l'épaisseur de la couche considérée.

Evidemment, ce type de modèle est une simplification extrême du système, et suppose un certain nombre d'hypothèses (Kirchner, 1998) :

- les flux entre compartiments sont contrôlés par la concentration dans le compartiment donneur ;
- les concentrations dans les différents compartiments sont uniformes ;
- les coefficients de transfert sont indépendants du temps ;
- la sorption des radionucléides est un processus instantané.

En première approche, ce type de modèle permet d'appréhender les vitesses de migration résultantes de tous les phénomènes.

Chapitre III : Etude de la répartition spatiale du Pu et de l'Am

1. *Présentation*

Les apports liés aux deux origines du plutonium et de l'américium que constituent les retombées globales et les rejets du centre de Marcoule dans la zone étudiée ont conduit à une distribution spatiale de la contamination qu'il est nécessaire de déterminer et d'expliquer. Ce chapitre est consacré à cette partie du travail.

La littérature nous apprend que le sol est, dans l'écosystème terrestre, le principal intégrateur des transuraniens (cf Chap.I). C'est donc par l'analyse des activités des sols, constatées par la mesure ou déterminées par le calcul, que l'image de la répartition spatiale des radionucléides peut être établie.

L'exploitation des résultats de mesures acquis aux cours des études radioécologiques déjà mentionnées permet d'établir un premier constat des niveaux d'activités de Pu et Am dans les sols, de quantifier l'activité « bruit de fond » liée aux dépôts atmosphériques globaux et de discerner les possibles zones influencées par les radionucléides issus des rejets du centre de Marcoule. L'acquisition de nouvelles données de terrain et la modélisation des transferts rendent alors possible la quantification des stocks et des flux responsables de l'état constaté.

2. Exploitation des données disponibles

La première étape de ce travail consiste à analyser l'ensemble des résultats de mesures réalisées dans les sols de la partie terminale du bassin rhodanien avant 1998 (Duffa *et al.*, 2001).

Les études radioécologiques du site de Marcoule effectuées par l'IPSN entre 1993 et 1995 (Lumia *et al.*, 1995 ; Descamps *et al.*, 1996, 1997) fournissent 26 résultats de mesures d'actinides significatifs dans les sols de la basse vallée du Rhône. 5 échantillons de sols prélevés en Camargue en 1994 et 1996, et 3 provenant de sols irrigués par le canal BRL (IPSN, 1999) sont également associés à cette étude. Les emplacements des lieux de prélèvements de ces échantillons de sols issus de la basse vallée du Rhône sont reportés Figure III-1.



Figure III-1 : Communes où ont été effectués les prélèvements entre 1991 et 1997

L'ensemble des 34 résultats qui sont exploités est reporté par ordre croissant d'activité de $^{239+240}\text{Pu}$ (Tableau III-1).

Tableau III-1 : Résultats de mesures en ^{241}Am , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ sur 34 sols cultivés prélevés entre 1991 et 1997 ($\text{mBq.kg}^{-1}\text{ sec}$) et rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ correspondants

Date	Dépt.	Commune/lieu	^{241}Am	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
01/09/95	30	Tresques	29 ± 5	< 2	74,2 ± 9	
07/06/93	84	Orange	37 ± 6	< 2	78 ± 8	
20/05/94	84	Avignon	34 ± 6	2 ± 1	79,3 ± 10	0.025 ± 0.013
03/06/93	30	Vénéjean	38 ± 5	2,6 ± 1,0	82 ± 8	0.032 ± 0.013
24/10/96	13	Les Bernacles / Camargue	26 ± 2	4,1 ± 0,7	84 ± 4	0.049 ± 0.009
21/04/94	84	Orange	39 ± 5	1,8 ± 1,0	84,5 ± 10	0.021 ± 0.012
24/05/94	30	Uzès	-	< 1	86 ± 11	
08/06/95	30	Uzès	36 ± 6	< 2	90 ± 10	
24/06/93	30	Saint-Pons-la-Calm	42 ± 7	3,2 ± 1,4	93 ± 10	0.034 ± 0.016
24/06/93	30	Montfaucon	40 ± 3	3,5 ± 1,6	102 ± 2	0.034 ± 0.016
11/08/97	13	Mas d'Asport	39 ± 3	4,2 ± 1,0	105 ± 6	0.040 ± 0.010
03/06/93	84	Avignon	40 ± 5	< 2	107 ± 11	
07/07/93	30	Pont-Saint-Esprit	49 ± 5	< 1	108 ± 12	
18/09/95	84	Caderousse	49 ± 9	3,3 ± 1,0	112 ± 13	0.029 ± 0.010
18/07/95	84	Orange	40 ± 6	2,5 ± 1,0	114 ± 13	0.022 ± 0.009
29/06/93	30	Montfavet	47 ± 5	2,5 ± 1,2	119 ± 14	0.021 ± 0.010
24/10/96	13	Albaron / Camargue	±	4,4 ± 0,6	124 ± 5	0.035 ± 0.005
05/04/93	84	Châteauneuf-du-Pape	65 ± 10	2,6 ± 1,2	125 ± 10	0.021 ± 0.010
24/06/93	30	Cavillargues	51 ± 3	3,5 ± 1,6	125 ± 15	0.028 ± 0.013
12/10/95	30	Fourques, Mas Adrien	56 ± 7	4,5 ± 2	127 ± 12	0.036 ± 0.016
19/09/97	13	Mas d'Asport	48 ± 4	5,3 ± 1	128 ± 6	0.041 ± 0.008
24/10/96	13	Basse Méjane / Camargue	45 ± 3	7,3 ± 0,8	130 ± 6	0.056 ± 0.007
07/10/93	30	Fourques, Mas Adrien	59 ± 12	5,7 ± 1,2	146 ± 13	0.039 ± 0.009
04/10/94	30	Fourques, Mas Adrien	61 ± 14	3,2 ± 2	151 ± 15	0.021 ± 0.013
20/08/97	13	Mas d'Asport	63 ± 5	6,2 ± 1,3	151 ± 9	0.041 ± 0.009
30/03/93	30	Saint-Etienne-des-Sorts	-	4,5 ± 1,5	153 ± 1,7	0.029 ± 0.010
28/09/95	30	Barjac	67 ± 11	6,4 ± 2	178 ± 21	0.036 ± 0.012
04/10/94	13	Figarès / Camargue	197 ± 26	27 ± 4	195 ± 22	0.138 ± 0.026
12/10/95	13	Albaron / Camargue	57 ± 9	5,5 ± 2	197 ± 25	0.028 ± 0.011
06/04/93	30	Barjac	77 ± 11	4,7 ± 1,4	214 ± 24	0.022 ± 0.007
24/10/96	13	Figarès / Camargue	71 ± 5	18 ± 2	239 ± 9	0.075 ± 0.009
02/04/93	30	Codolet	111 ± 14	13 ± 3	373 ± 40	0.035 ± 0.009
18/09/95	30	Codolet	137 ± 20	15,3 ± 3	389 ± 50	0.039 ± 0.009
04/10/94	13	Albaron / Camargue	189 ± 25	9,3 ± 3	396 ± 44	0.023 ± 0.008

Les échantillons présentant à la fois les activités massiques les plus élevées et des rapports $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ supérieurs à 0,035 ont été prélevés sur les communes de Codolet au Sud du centre de Marcoule, et Albaron et Figarès au nord-ouest du delta de Camargue (Figure III-2).

Les rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ les plus forts sont associés aux échantillons de Figarès en Camargue (0,07 et 0,14). De plus, certains sols de Fourques et du Mas d'Asport, bien que ne présentant pas des activités massiques très fortes, montrent des rapports $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ supérieurs à 0,04.

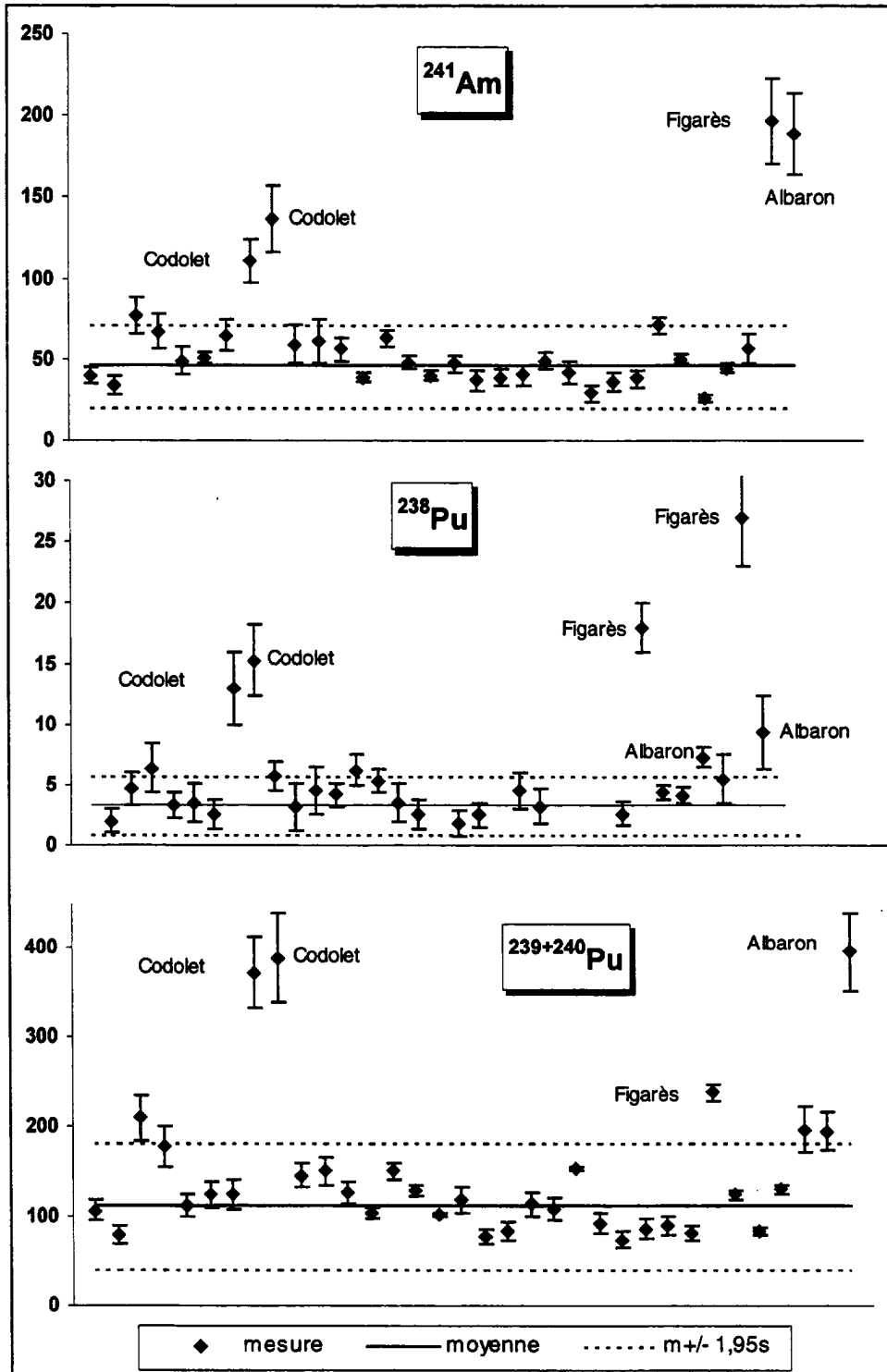


Figure III-2 : Activités massiques de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am mesurées dans les sols du Bas-Rhône de 1991 à 1997 (mBq.kg^{-1}) représentées avec leurs incertitudes de mesure

Les distributions des activités massiques de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am (Figure III-3) mettent en évidence plusieurs groupes de données. La plupart des échantillons appartiennent à une même population correspondant au premier mode de chaque distribution.

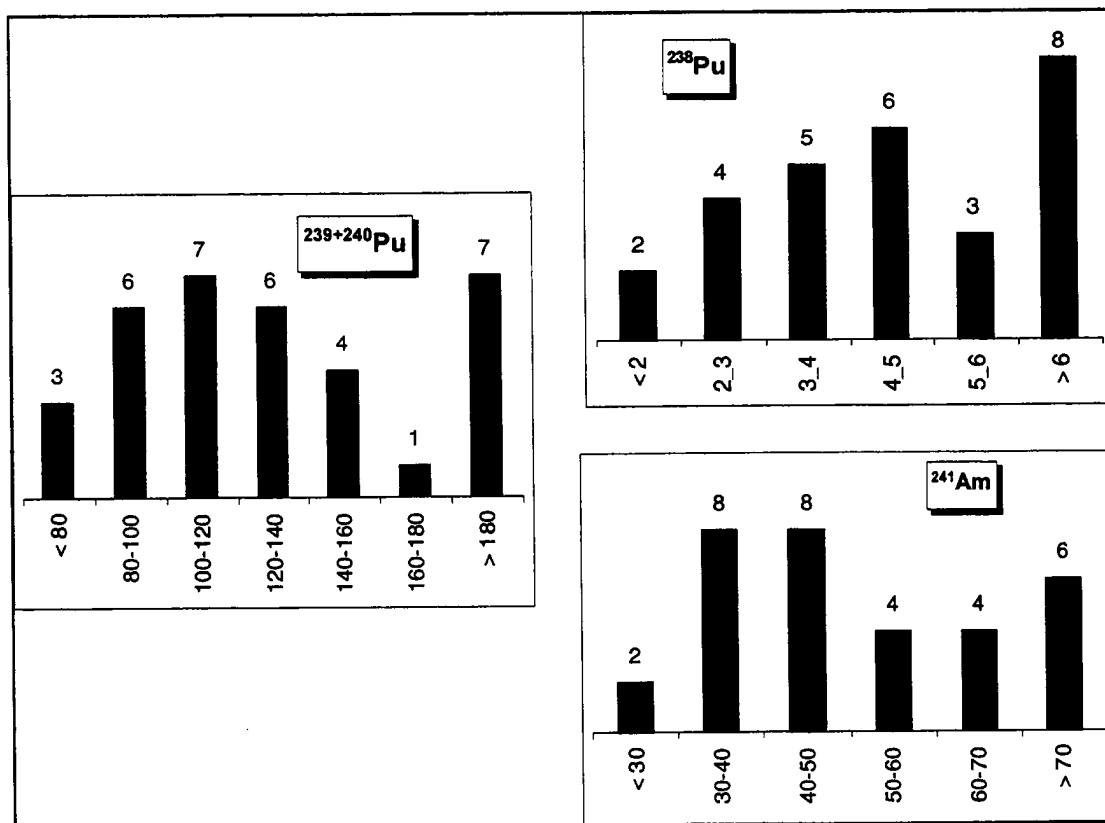


Figure III-3 : Distributions des activités massiques (mBq.kg^{-1})

Les échantillons dont le rapport d'activité est inférieur à 0,035 sont issus de sols agricoles en dehors de toute influence directe ou indirecte de l'installation nucléaire de Marcoule. Leurs activités massiques moyennes et leurs caractéristiques statistiques sont données dans le tableau III-2.

Tableau III-2 : Activités massiques moyennes des sols cultivés du Bas-Rhône témoins des retombées atmosphériques globales et valeurs statistiques associées.

	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am
Valeurs significatives	13	19	17
Activité massique moyenne m ($\times 10^{-3} \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$)	3,3	111,6	46
Ecart type s ($\times 10^{-3} \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$)	1,3	35,7	13
$m-1,95s$ ($\times 10^{-3} \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$)	0,4	42	20,7
$m+1,95s$ ($\times 10^{-3} \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$)	5,8	181	71

Ces sols sont marqués par les seules retombées atmosphériques globales anciennes, comme en témoigne leur rapport d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ moyen (rapport de moyennes) qui est de 0,03.

Tout échantillon appartenant à cette population a 95% de chance de voir son activité massique comprise dans l'intervalle borné par les valeurs de $m \pm 1,95s$ (Tableau III-2). Ces valeurs sont reportées sur la figure III-2. Les échantillons dont les activités massiques sont significativement supérieures à $m + 1,95s$ et/ou les rapports d'activités $\geq 0,035$ témoignent d'une seconde source de contamination sur les sites de prélèvements :

- Codolet est la commune située immédiatement au sud de l'installation de Marcoule, sous l'impact des vents dominants.
- Figarès, et Albaron sont situés dans la partie de la Camargue qui fut inondée par le Rhône en 1993 et 1994.
- Bien que ne présentant pas des activités massiques supérieures à la limite statistique de $m + 1,95s$, les sols du Mas d'Asport, irrigués via le canal BRL, et de Fourques, sols de rizières irrigués par l'eau du Rhône ont des activités qui sont toutes supérieures à la moyenne régionale. De plus, parmi ces échantillons, certains présentent des rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ de 0,04, qui témoignent d'un apport de plutonium originaire des rejets de Marcoule. Les prises d'eau au Rhône à des fins d'irrigation peuvent être des sources d'apports de Pu et Am sur ces sols.

3. Activité rémanente des retombées globale

3.1. Evaluation des activités surfaciques moyennes des sols cultivés

L'analyse des données existantes nous a permis d'établir les activités massiques moyennes rémanentes des retombées globales anciennes. Ces mêmes valeurs sont calculées en termes d'activités surfaciques (Tableau III-3) :

$$A_s = m \times h \times \rho$$

où A_s est l'activité surfacique moyenne du sol (Bq.m^{-2}),

m est l'activité massique moyenne du sol (Bq.kg^{-1}),

h est la hauteur moyenne de labour (m),

ρ est la masse volumique moyenne du sol (kg.m^{-3}).

La masse volumique moyenne des échantillons de sol analysés est de 1400 kg.m^{-3} (moyenne calculée à partir des valeurs de densités mesurées sur une partie des échantillons), et la hauteur moyenne de labour de 30 cm.

L'incertitude sur l'activité surfacique moyenne est donnée par : $I = \frac{E}{\sqrt{n}}$ où E est l'écart type et n le nombre d'échantillons. Celle-ci est égale à 7% de la moyenne pour tous les isotopes.

Tableau III-3 : Activités surfaciques calculées pour les sols cultivés témoins des retombées atmosphériques globales (Bq.m^{-2})

	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am
Valeurs significatives n	13	19	17
Activité surfacique moyenne A_s	1,4	47	19,2
Ecart type E	0,5	15	5,4
Incertainitude sur la moyenne I	0,1	3,4	1,3

La bibliographie nous apprend que les dépôts dépendent surtout de l'intensité moyenne des pluies (cf. Chap.I). Avec 50 résultats de mesures réalisées sur les sols tchèques, Hölgye *et al.* (1995) ont pu établir une relation simple, qui permet de calculer le dépôt moyen de $^{239+240}\text{Pu}$ en fonction de la hauteur moyenne de pluie sur le site de prélèvement (cf. Equation III-1). Cette équation est peu différente de celle déjà établie par Mitchell *et al.* (1990) d'après les résultats de 11 mesures effectuées sur les sols irlandais (Mitchell *et al.*, 1990).

$$D = 13,1 + 0,054 \times P \quad \text{Équation III-1, d'après (Hölgge et al., 1995)}$$

avec D : dépôt surfacique moyen de $^{239+240}\text{Pu}$ (Bq.m^{-2}),

P : hauteur moyenne de pluie tombée annuellement (mm).

L'utilisation de l'équation 1 donne un dépôt moyen de $49,8 \text{ Bq.m}^{-2}$ de $^{239+240}\text{Pu}$ sur la zone d'étude (pluviométrie de 680 mm/an). Cette valeur est comparable à la valeur de 47 Bq.m^{-2} , moyenne des mesures, l'erreur du modèle est alors de 6%. Selon cette même équation, le dépôt moyen serait de 56 Bq.m^{-2} pour l'ensemble de la France, où la pluviométrie moyenne est de 800 mm/an (moyenne 1951-1980).

3.2. Représentativité et variabilité des résultats de mesures

3.2.1. Activités massiques mesurées

Il est important de noter que les données analysées ici ne sont pas représentatives de l'ensemble des sols cultivés français, pour deux raisons principales :

- l'échantillonnage est restreint aux sols de plaines, alors que le relief est un facteur influençant l'intensité du dépôt ;
- les données sont issues de prélèvements effectués dans le Bas-Rhône, région où la pluviosité est inférieure de plus de 10% à la moyenne nationale.

Les données traitées fournissent des valeurs d'activités surfaciques moyennes qui sont inférieures aux activités moyennes des sols français.

L'écart type de chacune des moyennes est indiqué dans le tableau III-3. Sa valeur traduit la dispersion des résultats et correspond à la variabilité englobant les différences d'intensité des dépôts d'activités à l'échelle de la zone entière, et la variabilité pouvant exister à l'échelle d'une parcelle agricole.

3.2.2. Rapports d'activités

Dans l'analyse statistique des résultats de mesures qui a été développée précédemment, les rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ supérieurs à 0,035 sont considérés comme représentatifs d'une influence locale par les rejets d'actinides effectués par le centre de Marcoule. Implicitement, on a supposé que le rapport d'activités caractéristique des retombées atmosphériques globales ($R=0,03$) était relativement stable dans les sols non influencés et qu'aucun fractionnement isotopique ne pouvait avoir eu lieu. Afin de s'assurer que la variabilité de ce rapport est faible, une étude de terrain est menée.

3.2.2.1. Prélèvements effectués

Une série de sept prélèvements, référencés CAR01 à CAR07, est réalisée sur une petite surface (10×10 m) dans une même parcelle agricole. Ces prélèvements sont réalisés en dehors de toute influence possible par les rejets de l'installation de Marcoule, sur la commune de Rognes (Bouches du Rhône).

Chaque échantillon est constitué d'un prélèvement élémentaire de sol réalisé sur une profondeur de 20 cm à l'aide d'une tarière à piston.

3.2.2.2. Résultats et interprétation

Les résultats bruts d'activités sont donnés en Annexe 10. Les rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ déduits des mesures sont reportés sur la figure III-4 pour chacun des échantillons, ainsi que la valeur caractéristique des retombées globales. Pour chaque valeur de rapport, l'incertitude associée correspond aux éventuelles erreurs de mesurages.

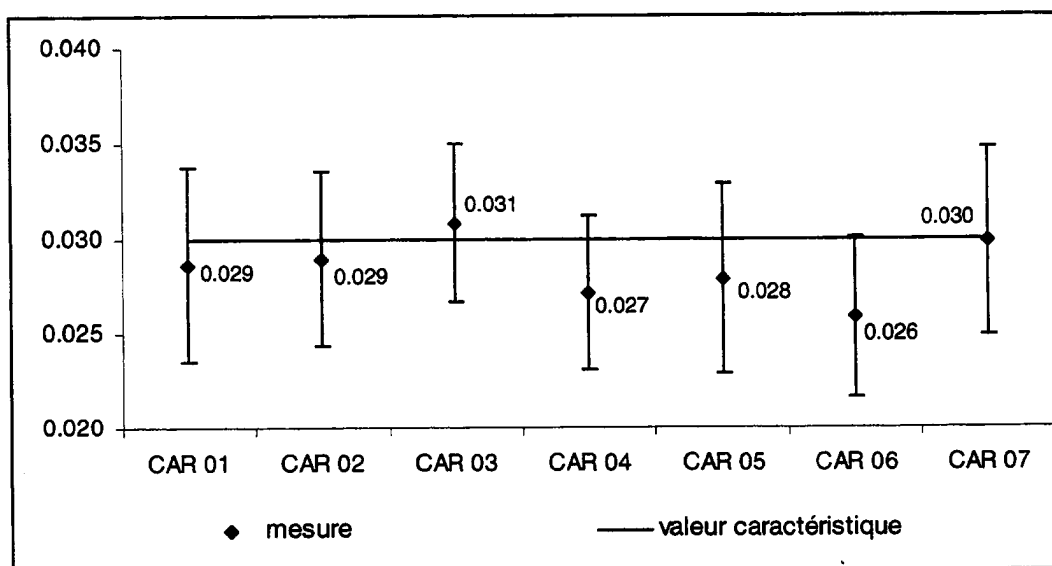


Figure III-4 : Rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ mesurés sur les échantillons CAR01 à CAR07

Le rapport d'activité le plus faible, correspondant à l'échantillon CAR06, est de $0,026 \pm 0,004$ et le rapport d'activité le plus fort (CAR03) est égal à $0,031 \pm 0,004$. La variabilité naturelle des rapports d'activités est faible, et ne peut être discernée des incertitudes liées aux mesurages.

3.3. **Evaluation des stocks de Pu et Am dans les sols**

Les activités surfaciques ont été évaluées pour les sols cultivés, et sont extrapolées à l'ensemble des sols non boisés. Par contre, on sait que sous couvert forestier, les dépôts au sol sont supérieurs de 30% (cf. Chap.I).

En appliquant ce postulat, on obtient les valeurs moyennes d'activités surfaciques des sols de sous-bois, auxquelles on associe les mêmes pourcentages d'incertitudes que pour les sols cultivés (Tableau III-4).

Tableau III-4 : Activités surfaciques des sols de la basse vallée du Rhône (Bq.m⁻²)

Types de sols	²³⁸ Pu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am
Boisés	1,8 ± 0,1	61,1 ± 4,4	25,0 ± 1,7
Cultivés ou autres	1,4 ± 0,1	47 ± 3,4	19,2 ± 1,3

Sur la zone étudiée de 11000 km², 28% de la surface est boisée, et 5% est en eau. Il y a donc 3080 km² de sols boisés et 7370 km² de sols cultivés ou non boisés.

Le stock total d'activité présente dans les sols peut alors être établi (Tableau III-5).

Tableau III-5 : Stocks de ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, ²³⁸Pu et ²⁴¹Am dans les sols de la basse vallée du Rhône (en GBq)

	²³⁸ Pu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am
Sols boisés	5,5 ± 0,3	188 ± 13	77 ± 5
Sols cultivés ou autres	10,3 ± 0,7	346 ± 25	142 ± 10
Total	16 ± 1	535 ± 38	219 ± 15

L'activité totale de Pu et Am issus des retombées globales stockée dans les sols de la zone étudiée est donc estimée à 770 ± 54 GBq.

Dans la suite de ce travail, l'objectif est de quantifier les activités ajoutées par les rejets effectués par les installations de Marcoule sur des zones particulières qui restent à délimiter, tout en caractérisant les différents processus qui en sont responsables.

4. Les environs du centre de Marcoule

4.1. Données existantes

L'étude des mesures effectuées entre 1991 et 1997 par l'IPSN dans les sols de la basse vallée du Rhône montre que 2 échantillons de sols de vignes, prélevés à Codolet, à 600 m au sud-est des limites du centre de Marcoule présentent des activités massiques 2 à 5 fois plus fortes que les activités massiques moyennes liées aux retombées atmosphériques globales (Tableau III-6).

Tableau III-6 : Activités massiques mesurées dans des sols cultivés de Codolet ($Bq.kg^{-1}$)

Date du prélèvement		^{238}Pu	$^{239+240}Pu$	^{241}Am	$^{238}Pu/^{239+240}Pu$
02/04/1993	Mesure	13 ± 3	373 ± 40	111 ± 14	$0,035 \pm 0,009$
	<i>mesure/moyenne</i>	3,9	3,3	2,4	
18/09/1995	Mesure	$15,3 \pm 3,0$	389 ± 50	137 ± 20	$0,039 \pm 0,009$
	<i>mesure/moyenne</i>	4,6	3,5	3,0	

Néanmoins, les rapports d'activités $^{238}Pu/^{239+240}Pu$ de ces deux échantillons ne sont pas représentatifs des rejets récents de Marcoule (0,3), mais sont très proches des valeurs caractéristiques des retombées anciennes (0,03) ou des rejets relatifs au retraitement passé de combustible faiblement irradié (0,05).

Les rejets aériens du site constituent la source d'apport supplémentaire la plus probable. Les échantillons de mousses terrestres et de thym sont prélevés en tant que bio-indicateurs des contaminations atmosphériques. Entre 1993 et 1995, 9 échantillons de mousses ont été prélevés dans les villes situées dans les environs de l'installation (Annexe 8). Leurs rapports d'activité $^{238}Pu/^{239+240}Pu$ sont reportés sur la figure III-5. Ils témoignent incontestablement d'une influence des rejets récents sur une zone au Sud de l'installation (Codolet village). Par contre, les autres lieux de prélèvement montrent que cette influence ne s'étend pas aux centres des villages de Tresques (à l'Ouest), Chusclan (Nord-Ouest) et à la ville d'Avignon.

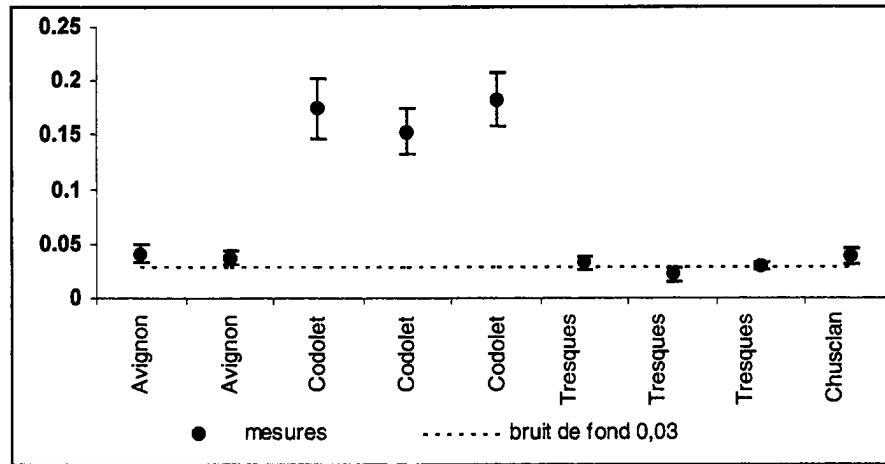


Figure III-5 : Rapports $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ mesurés sur des échantillons de mousse entre 1993 et 1995 aux environs de Marcoule

Les résultats des mesurages de 3 échantillons de thym prélevés sur Codolet montrent également des rapports d'activités compris entre 0,2 et 0,3.

4.2. Données acquises entre 1998 et 2000

Un apport de plutonium et d'américium issu des rejets atmosphériques industriels dans l'environnement proche des installations nucléaires de Marcoulé est mis en évidence suite aux observations réalisées entre 1993 et 1995. Néanmoins, l'importance et la répartition de l'activité ajoutée restent à établir. C'est le but d'une partie des campagnes de mesures réalisées durant cette thèse.

4.2.1. Stratégies d'échantillonnages

Le sol intègre l'ensemble des dépôts liés aux retombées globales et aux apports industriels locaux et les matrices végétales intègrent ces mêmes apports sur une période qui correspond à leur âge. Ces indicateurs, sols et végétaux, peuvent donc refléter la dispersion spatio-temporelle autour d'une source localisée d'émission de rejets radioactifs.

Les résultats des études précédentes ont montré que l'on disposait sur la zone de deux indicateurs végétaux : le thym qui rend compte principalement des rejets de l'année, et les mousses qui intègrent les apports relatifs à plusieurs années. Le thym, produit annuel, n'est plus utilisable comme indicateur en 1999 du fait de la diminution significative des rejets des installations liée à l'arrêt du retraitement de combustible nucléaire. C'est donc sur les sols et les mousses que portent les prélèvements réalisés en 1999 et 2000 pour ce travail.

4.2.1.1. Les mousses

De nombreuses études montrent que les mousses sont de bons indicateurs de la contamination atmosphérique (Sumerling, 1984 ; Jia *et al.*, 1997 ; Testa *et al.*, 1998). En effet, ne disposant pas d'organes absorbant qui pénètrent dans le sol, leur principale voie d'absorption est aérienne. Des processus actifs de conduction d'eau par capillarité et d'échanges d'ions par voie extracellulaire permettent aux mousses de piéger les éléments nécessaires à leur croissance. En plus de ce mode d'intégration actif, les phénomènes passifs d'accumulations des poussières atmosphériques par piégeage mécanique se révèlent très importants. A ce titre, on les utilise dans le cadre de cette étude comme indicateurs des rapports d'activités entre les différents isotopes du Pu dans l'atmosphère.

19 sites de prélèvements de mousses ont été choisis en fonction de leur situation géographique par rapport au point d'émission des rejets atmosphériques, de la rose des vents locale et de la présence de mousses (Figure III-6). Il n'a pas été possible de trouver les mêmes espèces de mousses sur chaque site, mais ne cherchant à comparer que les rapports d'activité des isotopes du Pu, et non pas les activités totales, ce facteur n'est pas limitant. L'âge des mousses prélevées étant de l'ordre de la dizaine d'années, les échantillons acquis en 1999 et en 2000 intègrent les apports atmosphériques depuis plusieurs années, mais pas avant 1980, lors des retombées anciennes des tirs ou des premiers rejets de Marcoule. C'est donc bien ici d'aérosols originaires de la remise en suspension de particules de sols ou de rejets plus récents de Marcoule qu'il s'agit.

4.2.1.2. Les sols

5 échantillons de sols cultivés et 7 sols supposés non remaniés ont été prélevés sur les communes de Codolet, Caderousse et Chusclan (Figure III-8). Les échantillons de 5 sols non remaniés ont été fractionnés en 4 horizons distincts (0-5, 5-10, 10-20, 20-30 cm) pour donner des indications quant à l'historique des rejets industriels.

Deux autres échantillons de sols non remaniés ont été prélevés sur la commune de Caderousse, sur la rive gauche du Rhône. L'interprétation de leurs activités est destinée à être associée à celle des deux mousses prélevées à proximité. Il s'agit d'étudier l'origine de la contamination des mousses : captation directe des rejets atmosphériques de Marcoule, ou remise en suspension de particules de sols elles-mêmes marquées par les rejets liquides ou atmosphériques.

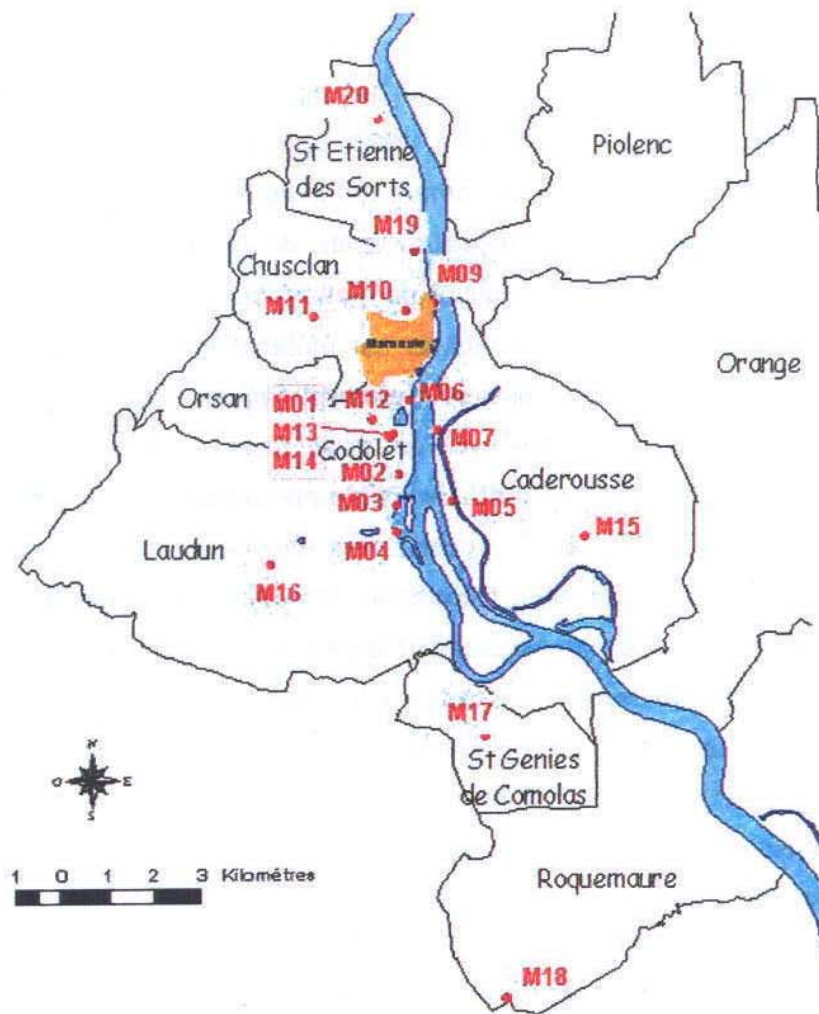


Figure III-6 : Sites de prélèvements des mousses terrestres en 1999 et 2000.



Figure III-7 : Exemple du site de prélèvement de mousses terrestres
M20 : mur du cimetière de St Etienne de Sorts

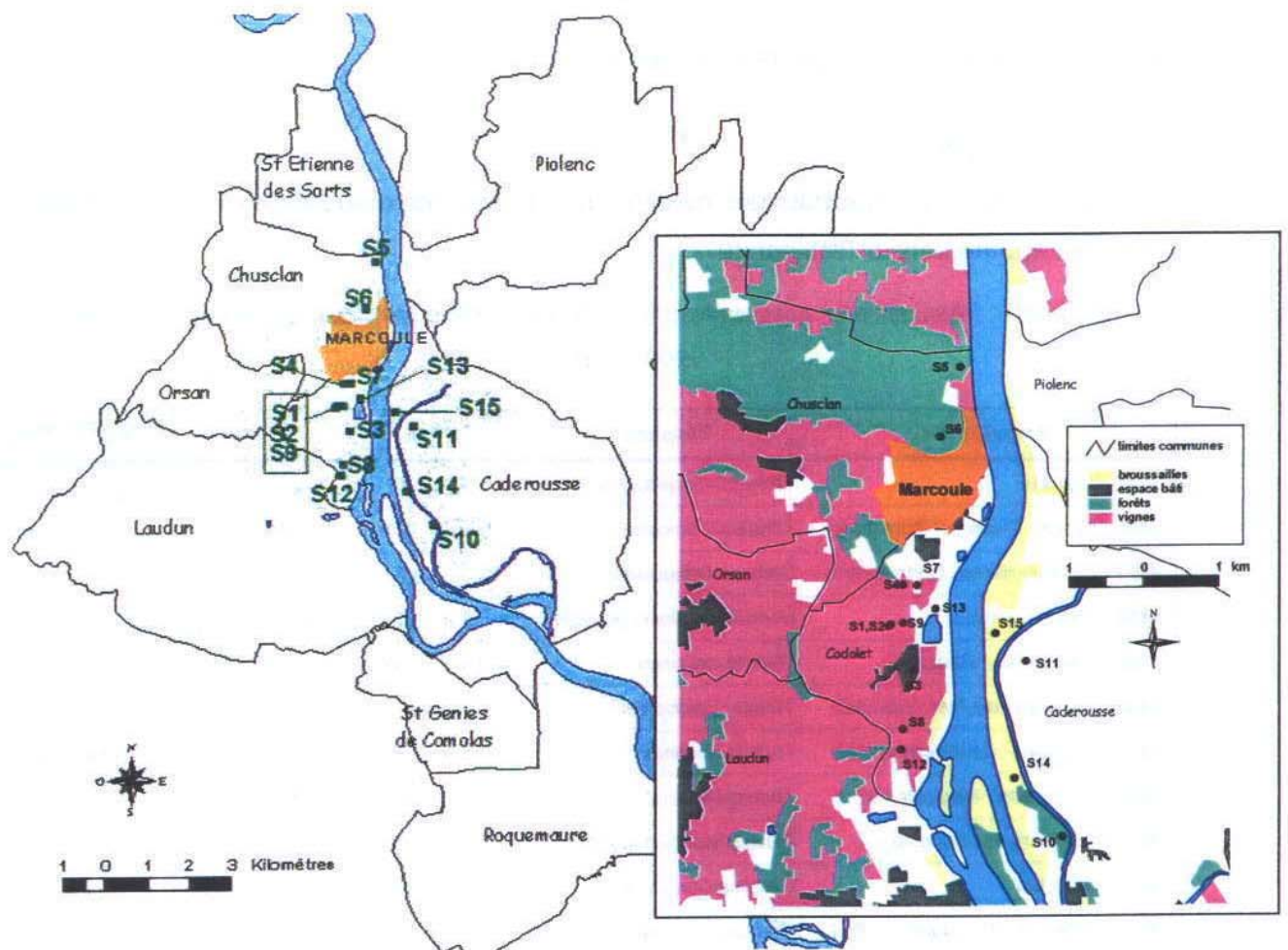


Figure III-8 : Sites de prélèvements des sols en 1999 et 2000



Figure III-9 : Exemple de prélèvement du sol de vigne S09

4.2.2. Résultats et interprétations des mesures

4.2.2.1. Mousses

L'ensemble des résultats des mesures de Pu dans les mousses prélevées en 1999 et 2000 est reporté dans le Tableau III-7.

Tableau III-7 : Résultats des mesures alpha sur les échantillons de mousses prélevées en 1999 et 2000 en Bq/kg sec

Prélèvement		Espèce	$^{239+240}\text{Pu}$	^{238}Pu	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
M01	Codolet	<i>Tortula Intermedia de Not.</i>	1,97 ± 0,07	0,30 ± 0,02	0,15 ± 0,01
M02	Grange Chabert - Codolet sud -	<i>Tortula Calcicolens</i>	0,40 ± 0,03	0,041 ± 0,006	0,10 ± 0,02
M03	Les Piboulières - Codolet Sud -	<i>Grimmia Orbicularis</i>	0,33 ± 0,03	0,037 ± 0,007	0,11 ± 0,02
M04	Port de l'Ardoise	<i>Homalothecium Lutescens</i>	0,151 ± 0,009	0,016 ± 0,002	0,11 ± 0,02
M05	Caderousse - Barrage	<i>Tortella inclinata</i>	0,101 ± 0,009	0,010 ± 0,003	0,10 ± 0,03
M06	La Grangette - Marcoule Sud -	<i>Tortula Calcicolens</i>	0,78 ± 0,05	0,176 ± 0,015	0,23 ± 0,02
M07	Le Panier - Caderousse Nord	<i>Tortella inclinata</i>	0,135 ± 0,008	0,019 ± 0,003	0,14 ± 0,02
M09	La Tourette - Marcoule Est -	<i>Tortella inclinata</i>	0,12 ± 0,01	0,015 ± 0,004	0,12 ± 0,04
M10	Belvédère de Marcoufe	<i>Pleurochaete Squarrosa</i>	0,73 ± 0,03	0,065 ± 0,006	0,09 ± 0,01
M11	Chusclan	<i>Grimmia Orbicularis</i>	1,55 ± 0,07	0,069 ± 0,009	0,04 ± 0,01
M12	Cimetière de Codolet	<i>Grimmia Orbicularis</i>	4,7 ± 0,2	0,21 ± 0,02	0,045 ± 0,004
M13	Codolet – rue de l'église	<i>Tortula spec.</i>	4,77 ± 0,16	0,46 ± 0,02	0,096 ± 0,005
M14	Codolet – rue du pont	<i>Tortula spec.</i>	1,81 ± 0,06	0,162 ± 0,009	0,090 ± 0,006
M15	Caderousse -village	<i>Tortula spec.</i>	0,735 ± 0,030	0,035 ± 0,005	0,048 ± 0,007
M16	Laudun		1,08 ± 0,04	0,037 ± 0,005	0,034 ± 0,004
M17	St-Genies-de-Comolas		1,45 ± 0,05	0,052 ± 0,006	0,036 ± 0,005
M18	Roquemaure		2,42 ± 0,08	0,079 ± 0,007	0,033 ± 0,003
M19	St-Etienne-des-Sorts-Sud		0,283 ± 0,012	0,014 ± 0,002	0,049 ± 0,009
M20	St-Etienne-des-Sorts-cimetière		0,49 ± 0,02	0,027 ± 0,003	0,056 ± 0,007

Les mousses prélevées étant d'espèces et d'âges différents, il n'est pas possible de comparer les valeurs d'activités massiques. C'est pour cette raison qu'on raisonne ici sur les rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$. La figure III-10 permet de comparer les valeurs de ces rapports pour des échantillons prélevés dans le cadre de cette étude (M01 à M20) et pour d'autres échantillons mesurés par l'IPSN provenant du reste de la France (ensemble de points situé à gauche des précédents).

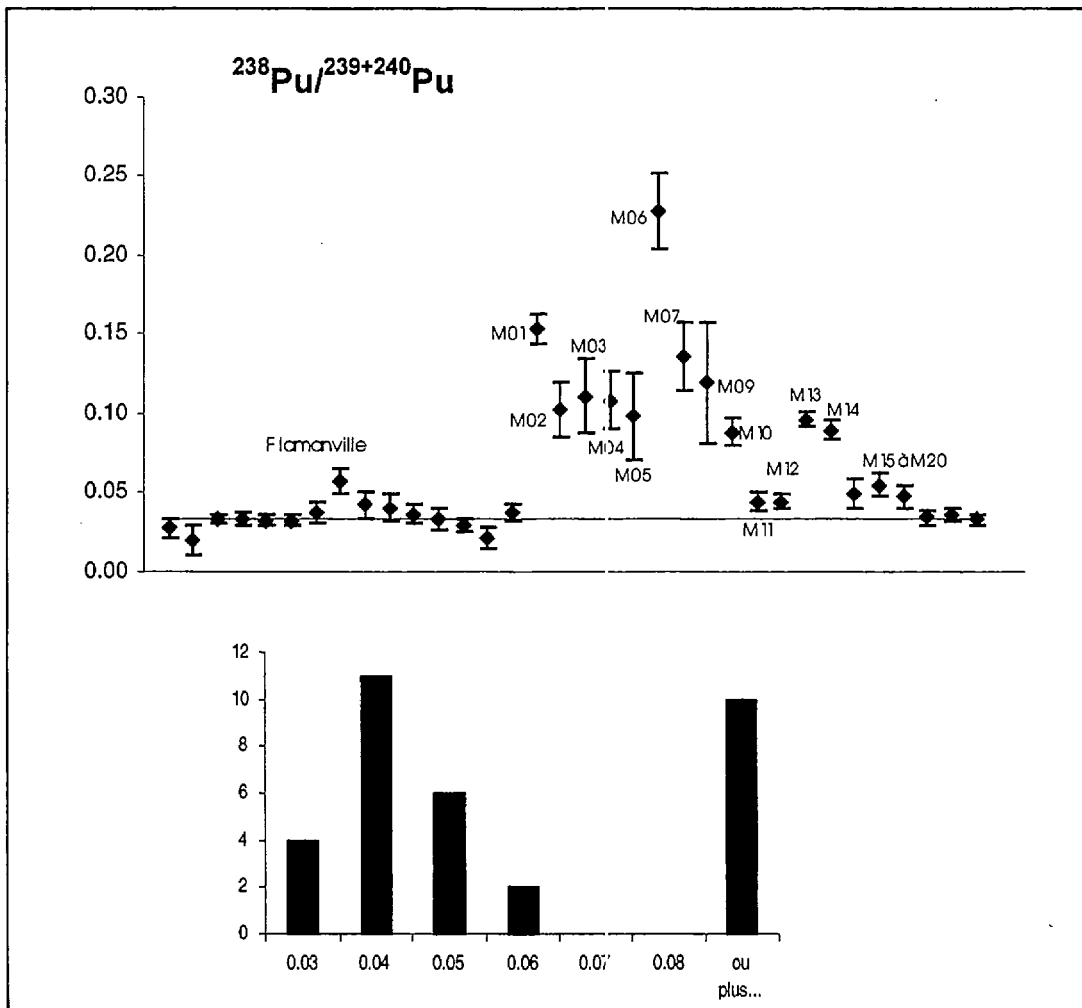


Figure III-10 : Rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ mesurés dans les échantillons de mousses et distribution de fréquences associée

La distribution de fréquence met en évidence deux modes qui déterminent deux ensembles d'échantillons. Avec des rapports supérieurs à 0,08, le premier ensemble correspond aux échantillons influencés par les rejets de Marcoule : tous les échantillons prélevés à Codolet, à l'Ardoise (au sud de Codolet) ou au nord de Caderousse en rive Gauche du Rhône. Avec des rapports plus proches de 0,03 et inférieurs à 0,06, le second ensemble inclut des échantillons moins influencés comme M11 et M12. Parmi les échantillons provenant du reste de la France, celui sur la commune de Flamanville à une vingtaine de kilomètre au sud du centre de La Hague (Masson, 1997), appartient aussi à ce groupe. M18, M19 et M20, prélevés plus loin du centre de Marcoule, à Laudun et St Etienne des Sorts, permettent de délimiter la zone influencée en témoignant de la distance où les rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ redeviennent représentatifs des retombées atmosphériques anciennes.

Les mousses ont intégré la contamination atmosphérique sur une période correspondant à leur âge. Cette période n'a pu être déterminé précisément, mais les vitesses de croissance des mousses variant de 3 à 100 mm par an, les échantillons prélevés n'ont théoriquement pas été présents avant 1980. Les actinides originaires de Marcoule qu'elles ont pu intégrer sont donc issus du retraitement récent de combustibles civils ($R=0,3$). Les valeurs du rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ mesurées dans les mousses sont représentatives de la composition isotopique moyenne dans l'atmosphère pendant toute leur durée de vie. En appliquant la loi des mélanges (cf. Chap.II) entre les deux origines possibles que sont Marcoule ($R_{\text{Marcoule}}=0,3$) et la contamination bruit de fond due à la remise en suspension de particules de sol ($R_{\text{res}}=0,03$), les pourcentages d'activités en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ issues de l'installation sont calculés pour chaque échantillon (Tableau III-8).

Tableau III-8 : Part de Pu issu des rejets de Marcoule et activités volumiques ajoutées dans l'air

Prélèvement	Pourcentage de Pu issu de Marcoule (%)		Activités ajoutées dans l'air (nBq.m^{-3})	
	$^{239+240}\text{Pu}$	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{238}Pu
M01	56	91	2.5	0.6
M02	33	80	1	0.24
M03	37	83	1.2	0.29
M04	36	82	1.1	0.27
M05	31	79	0.9	0.23
M06	90	99	18	5.9
M07	48	89	1.8	0.48
M09	41	85	14	0.34
M10	27	75	0.7	0.18
M11	7	37	0.15	0.04
M12	7	37	0.15	0.04
M13	24	76	0.6	0.19
M14	22	74	0.6	0.17
M15	7	42	0.15	0.04
M16	1	13	0.02	0.009
M17	2	19	0.04	0.01
M18	1	10	0.02	0.007
M19	7	42	0.15	0.04
M20	10	52	0.22	0.07

Pour 12 mousses, l'activité de ^{238}Pu mesurée est due à plus de 70% aux rejets de Marcoule. Pour l'échantillon M06, le plus marqué, prélevé 500m au sud des limites du centre, cette part atteint 99%. Cette fraction des activités mesurées dans les mousses qui provient des rejets de l'installation pourrait résulter :

- de la captation directe des rejets atmosphériques de l'installation ;
- de la remise en suspension de particules provenant de sols eux-mêmes marqués par les rejets liquides lors d'inondations ou par les rejets atmosphériques ;
- de dépôts lors de la submersion de la mousse par les eaux marquées du Rhône.

Pour les mousses M09, M10, M11, M12, M13 et M14, cette fraction ne peut provenir que des rejets aériens de Marcoule. Bien que près du Rhône, M09 a été prélevée en amont du point de rejet liquide. M10 provient du belvédère de la dent de Marcoule, zone non inondable. Comme M09, son rapport d'activité ne peut résulter que de la captation directe des rejets. Pour les échantillons M11 à M14 qui proviennent de Chusclan ou de sommets de murs élevés de Codolet, seule la captation directe peut être envisagée. En effet, ces prélèvements ont été effectués à Codolet en milieu urbain. L'échantillon M01 a été prélevé sur un mur bordant la lône. D'après des témoignages de riverains et d'employés de la municipalité de Codolet, l'eau du Rhône n'a pu les submerger même lors des crues de 1993 et 1994.

La majeure partie des échantillons des mousses est donc indéniablement marquée par les rejets atmosphériques de par l'installation de Marcoule. En supposant que l'activité « bruit de fond » dans l'air, due aux phénomènes de remises en suspension, est égale à 2 nBq.m⁻³ pour le $^{239+240}\text{Pu}$ et 0,06 nBq.m⁻³ pour le ^{238}Pu (cf.Chap I), on peut en déduire une valeur approximative des activités volumiques en $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{238}Pu ajoutées dans l'atmosphère par les rejets de Marcoule :

$$\left[^{239+240}\text{Pu} \right]_{\text{air}, \text{Marcoule}} = \left[^{239+240}\text{Pu} \right]_{\text{air}, \text{res}} \times \frac{\% (^{239+240}\text{Pu})_{\text{Marcoule}}}{\% (^{239+240}\text{Pu})_{\text{res}}}$$

$$\left[^{238}\text{Pu} \right]_{\text{air}, \text{Marcoule}} = R_{\text{Marcoule}} \times \left[^{239+240}\text{Pu} \right]_{\text{Marcoule}}$$

avec $\% (^{239+240}\text{Pu})_{\text{res}} = 1 - \% (^{239+240}\text{Pu})_{\text{Marcoule}}$

$\% (^{239+240}\text{Pu})_{\text{Marcoule}}$ le pourcentage de $^{239+240}\text{Pu}$ issu de Marcoule dans le mélange,

$\left[^{239+240}\text{Pu} \right]_{\text{air}, s}$ l'activité massique en $^{239+240}\text{Pu}$ dans l'air lié à la source s (Bq.m⁻³).

Les activités volumiques estimées dans l'air à faible distance du sol (hauteur des mousses : 0 à 3 m) qui sont ajoutées par les rejets atmosphériques de Marcoule sont reportées dans le tableau III-7. Evidemment, ce type de calculs sous-entend une contamination des mousses par la seule voie atmosphérique.

La figure III-11 présente une cartographie des iso-rapports d'activités calculés après interpolation des résultats de mesures sur les mousses. La zone considérée ici comme influencée est orientée Nord-Sud sur environ 8 km, avec une extension plus importante au sud, conformément à ce que la rose des vents pouvait laisser supposer. Cette zone, dont les rapports d'activité calculés sont supérieurs à 0,06, est représentative de la surface pour laquelle les apports de ^{238}Pu de Marcoule sont supérieurs à 50%. Les communes de Codolet, Caderousse, Laudun, Orsan, Chusclan et Piolenc sont concernées par cet apport. Le maximum se concentre autour du point de prélèvement de la mousse M06, qui présente un rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ de 0,23.

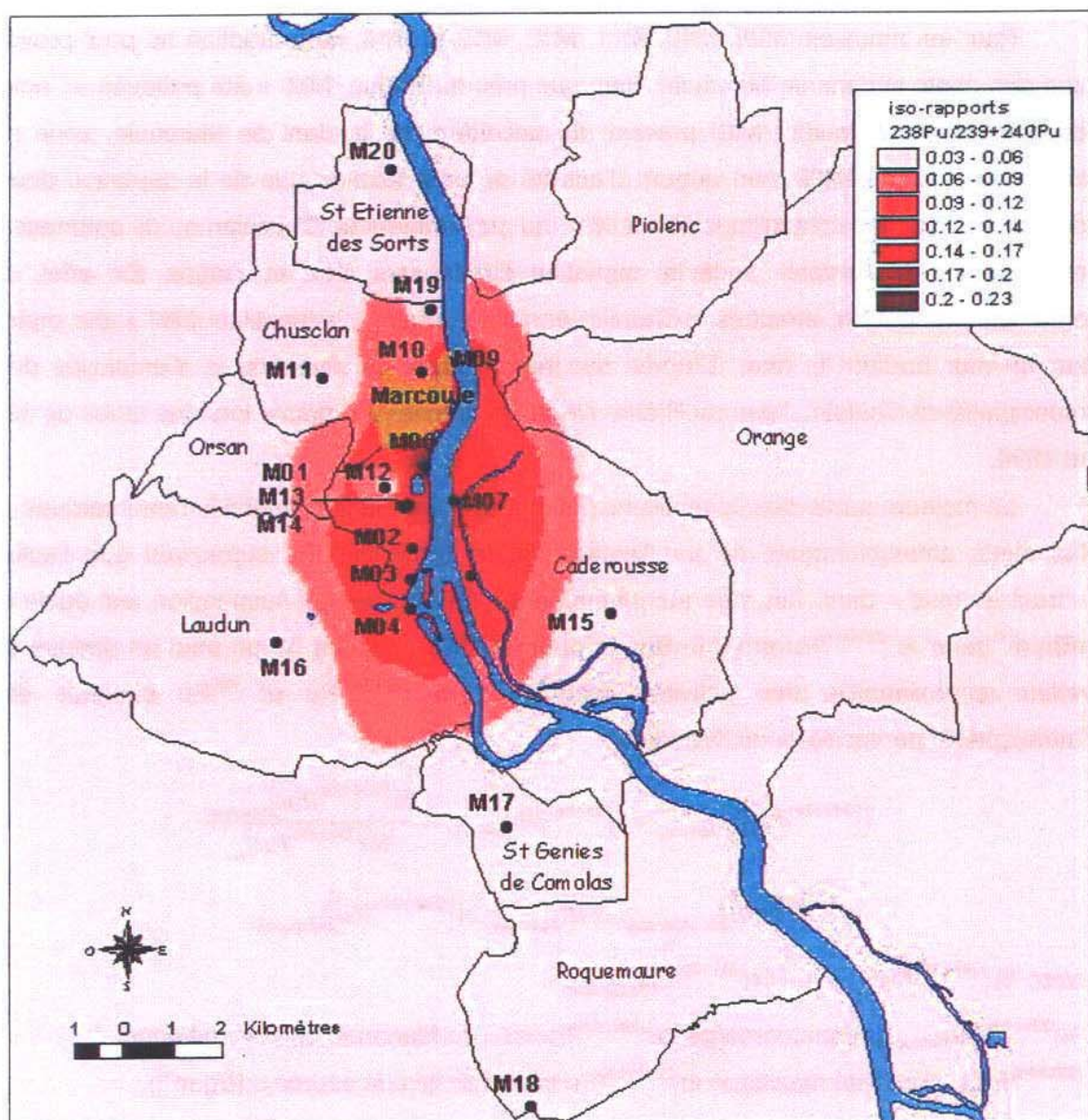


Figure III-11 : Carte des iso-rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ mesurés dans les échantillons de mousses

4.2.2.2. Sols

Les résultats des mesurages des échantillons de sols prélevés pour cette étude sont présentés dans le tableau III-9. Comme pour les mousses, leurs rapports d'activité sont comparés à d'autres sols du Bas-Rhône et du reste du pays (Figure III-12).

Tableau III-9 : Résultats de mesures des échantillons de sols prélevés entre 1993 et 2000 (Bq.m⁻²)

Prélèvement	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²³⁸ Pu	²⁴¹ Am	²³⁸ Pu/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu
S01 Codolet - Château d'eau	157 ± 17	5,5 ± 1,3	46,6 ± 5,9	0,035 ± 0,009
S02 Codolet - Château d'eau	164 ± 21	6,4 ± 1,3	57,4 ± 8,4	0,039 ± 0,009
S03 Codolet - Jardin village	116 ± 5	4,6 ± 0,4	39,1 ± 4,6	0,040 ± 0,004
S04 Codolet - ouest digue	104 ± 4	4,6 ± 0,4	31,7 ± 2,1	0,044 ± 0,004
S05 Chusclan	129 ± 5	4,6 ± 0,4	44,9 ± 3,8	0,036 ± 0,004
S06 Belvédère	58 ± 5	3,7 ± 1,2	26,0 ± 2,0	0,064 ± 0,021
S07 Codolet - Est digue	135 ± 5	6,7 ± 0,4	52,6 ± 3,4	0,050 ± 0,004
S08 Codolet - Granges Chabert	137 ± 5	6,3 ± 0,4	44,0 ± 2,9	0,046 ± 0,003
S09 Codolet - Château d'eau	67 ± 3	2,1 ± 0,3	22,4 ± 2,1	0,031 ± 0,005
S10 Caderousse NE	101 ± 5	-	36,0 ± 5,0	
S11 Caderousse NE	117 ± 6	4,4 ± 0,8	40,0 ± 5,0	0,038 ± 0,007
S12 Codolet - Piboulières	117 ± 7	5,0 ± 1,0	38,0 ± 4,0	0,043 ± 0,009
S13 Codolet - Etang	248 ± 13	44,6 ± 3,6	-	0,180 ± 0,017
S14 Caderousse NE	173 ± 8	21 ± 2	96,5 ± 12,6	0,121 ± 0,013
S15 Caderousse NE	93 ± 5	6,4 ± 1,2	50 ± 25	0,069 ± 0,004

L'examen des rapports d'activité ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu (voir Figure III-12) permet de distinguer trois ensembles d'échantillons correspondant aux trois modes de leur distribution.

- Le premier ensemble est constitué de 17 échantillons dont les rapports d'activités sont proches de 0,03, valeur caractéristique des sols qui ont reçu essentiellement les retombées atmosphériques anciennes.

- Les échantillons S1 à S12, S6 excepté, qui présentent un rapport d'activité plus élevé, constituent le deuxième ensemble. Ils ont été prélevés pour la plupart sur des sols qui, de manière certaine, n'ont pas été inondés depuis 1958.

- Le troisième ensemble est composé d'échantillons influencés par un apport au rapport moyen de 0,3 des rejets liquides de Marcoule. On y retrouve des sols inondés proche de Marcoule, comme S13, S14 et S15, avec des rapports d'activités ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu compris entre 0,07 et 0,2, et des sols de Camargue inondés en 1993 et 1994 lors des crues du Rhône. Parmi les échantillons provenant du voisinage de Marcoule, S13 est le plus

marqué. Il a été prélevé au Nord de Codolet près de la digue construite en 1975. Outre des inondations antérieures à cette date, il est possible que le sol même soit constitué en partie de sédiments du lit du Rhône déposés lors du chantier de construction de la digue. Le sol S14 prélevé près de la digue sur la rive gauche du fleuve sur la commune de Caderousse, et dans une moindre mesure le sol S15 ont eux-aussi pu être inondés par le Rhône.

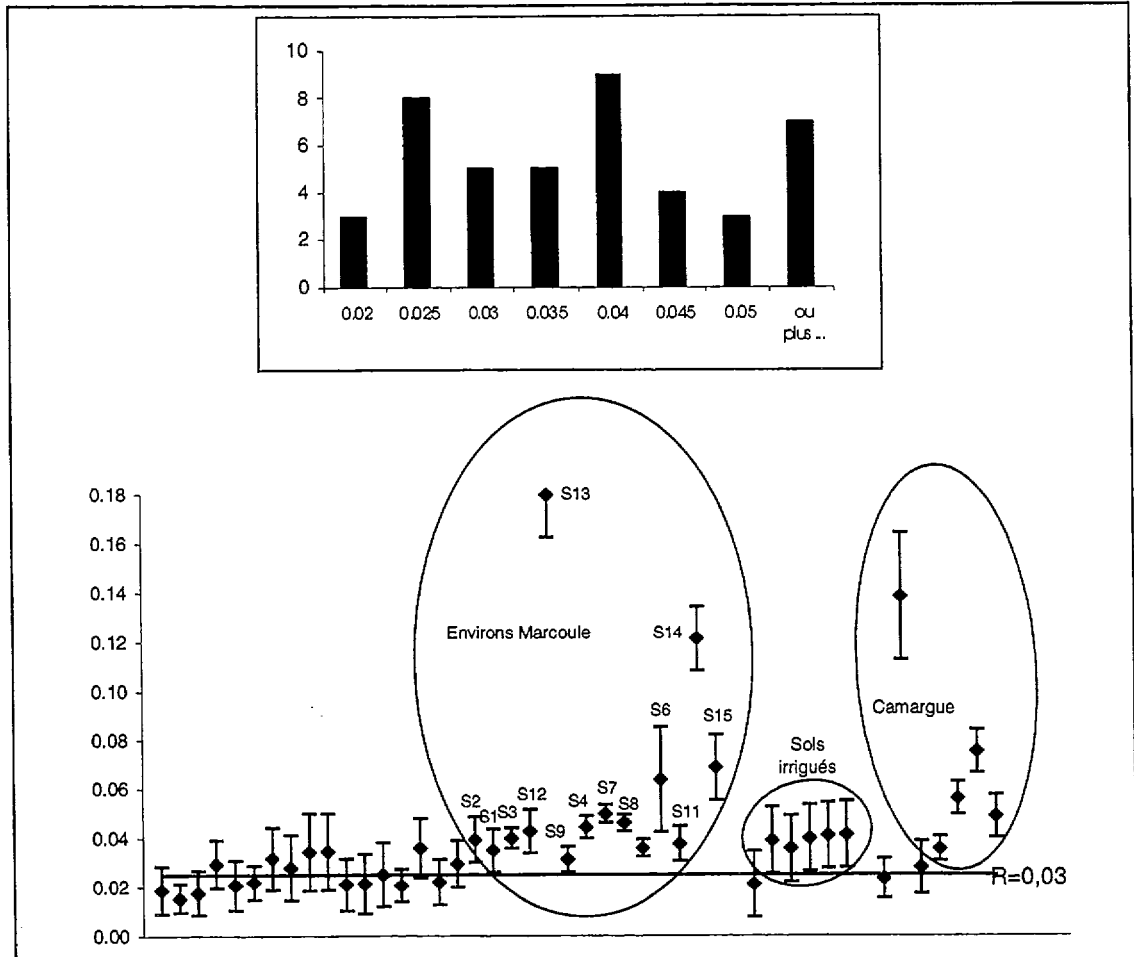


Figure III-12 : Rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ mesurés dans les échantillons de sols et distribution de fréquences associée

Le découpage de l'échantillon S13, le plus marqué, suivant 4 horizons différents montre que le marquage existe à toutes les profondeurs (Tableau III-10). De manière générale dans les 5 échantillons de sols supposés non remaniés, les transuraniens sont mesurables jusqu'à 30 cm de profondeur. Toutefois, il est impossible, en plus de 40 ans, de s'affranchir de tout événement anthropique ayant pu causer une perturbation. Néanmoins, on notera que les concentrations maximales se trouvent dans les 10 premiers centimètres de sols.

L'échantillon S6, prélevé au Belvédère de la dent de Marcoule est le seul à présenter un rapport d'activité plus élevé qui ne puisse être imputable aux rejets liquides de l'installation.

Tableau III-10 : Résultats de mesures des échantillons de sols prélevés en 1999.

Résultats par horizon.

Prélèvement		Profondeur (cm)	$^{239+240}\text{Pu}$ (mBq.kg ⁻¹)	^{238}Pu (mBq.kg ⁻¹)	^{241}Am (mBq.kg ⁻¹)	$\frac{^{238}\text{Pu}}{^{239+240}\text{Pu}}$
S12	Les Piboulières - Codolet Sud	0_5	403 ± 22	23,5 ± 4,8	83 ± 22	0,06 ± 0,01
		5_10	353 ± 23	10 ± 4	140 ± 14	0,03 ± 0,01
		10_20	319 ± 19	13,2 ± 1,9	108 ± 10	0,04 ± 0,01
		20_30	198 ± 13	10,5 ± 1,6	69 ± 6	0,05 ± 0,01
S13	Codolet - Etang	0_5	1094 ± 46	226 ± 15	519 ± 200	0,21 ± 0,02
		5_10	1156 ± 61	247 ± 22	968 ± 55	0,21 ± 0,02
		10_20	418 ± 23	70 ± 5	316 ± 24	0,16 ± 0,02
		20_30	174 ± 10	18 ± 2		0,10 ± 0,01
S06	Belvédère de Marcoule	0_5	469 ± 30	39,4 ± 7,7	209 ± 21	0,08 ± 0,02
		5_10	238 ± 20	13,5 ± 4,8	117 ± 11	0,05 ± 0,02
		10_20	75,6 ± 6,6	4,2 ± 1,3	32 ± 2	0,06 ± 0,02
		20_30	27 ± 4	< 1,5	11 ± 1	< 0,06
S11	Le Panier - Caderousse Nord	0_5	403 ± 22	13,4 ± 3,8	111 ± 15	0,03 ± 0,01
		5_10	404 ± 25	20,1 ± 5	150 ± 14	0,05 ± 0,01
		10_20	323 ± 13	12,3 ± 1,2	124 ± 77	0,038 ± 0,004
		20_30	219 ± 10	7 ± 1	71 ± 14	0,032 ± 0,005
S10	Les Cabanes - Caderousse Nord	0_5	202 ± 20	< 5,7	69 ± 13	< 0,03
		5_10	246 ± 19		77 ± 15	
		10_20	339 ± 12		116 ± 16	
		20_30	84 ± 4		38 ± 5	

Les résultats exprimés en termes d'activités surfaciques sont présentés graphiquement Figure III-13. Pour chacun des isotopes la moyenne des activités des sols non influencés est représentée, ainsi que le seuil au-dessus duquel les sols peuvent être considérés comme significativement influencés avec une confiance de 95%.

14 des 15 sols prélevés aux environs de Marcoule sont significativement supérieurs aux moyennes déjà établies pour les sols non influencés par Marcoule. Ils témoignent d'activités surfaciques 2 à 35 fois supérieures à la moyenne pour ^{238}Pu , et 2 à 5 fois supérieures à la moyenne pour $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am . Les sols S13, S14 et S15, dont les activités surfaciques sont les plus importantes sont également ceux dont les rapports d'activités sont les plus élevés et comparables à ceux des sols inondés de Camargue. Ces activités ajoutées résultent de la présence de sédiments du Rhône déposés lors d'inondation ou de travaux anciens.

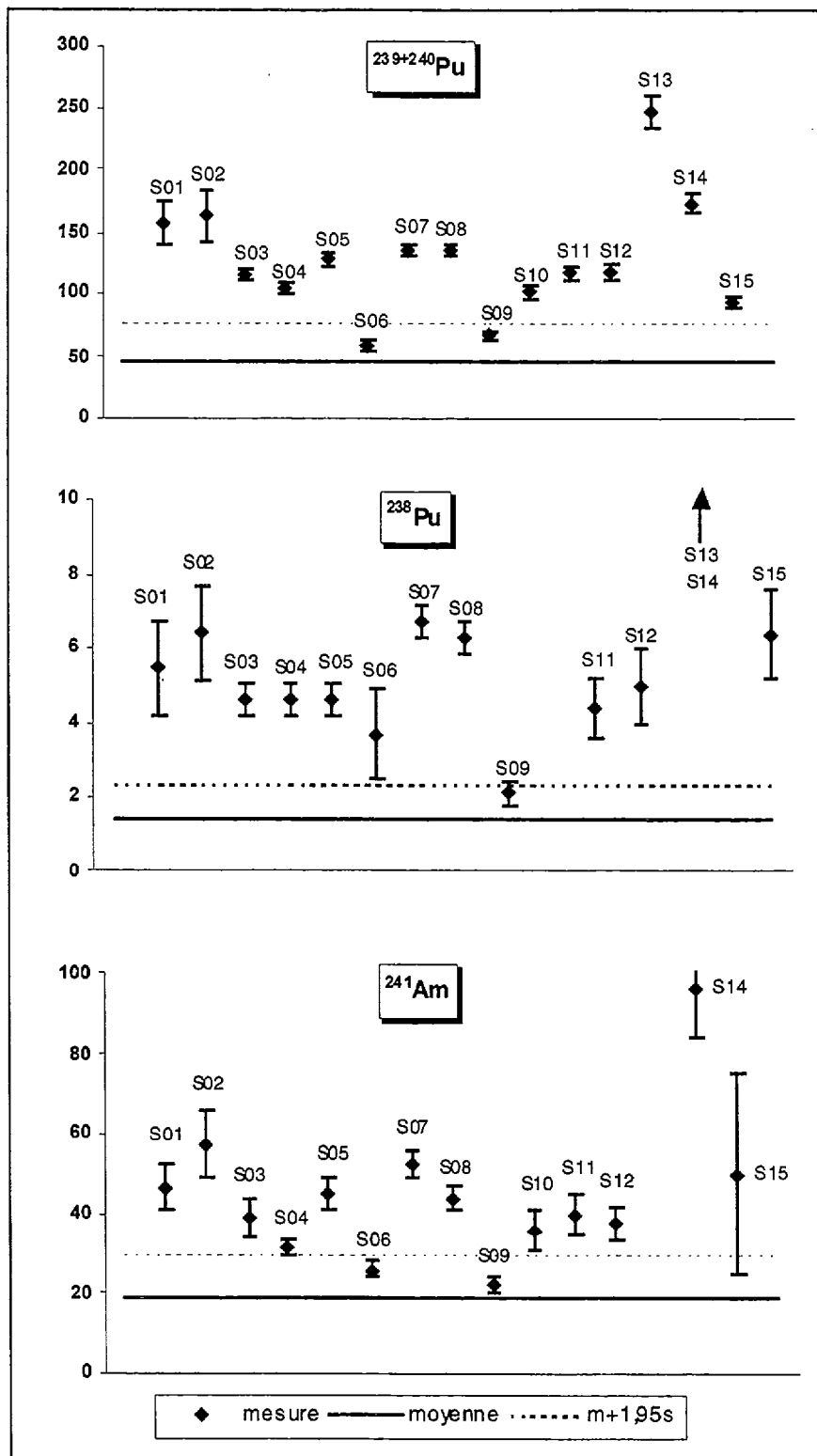


Figure III-13 : Activités surfaciques en actinides des sols prélevés autour de Marcoule ($Bq.m^{-2}$)

Les figures III-14 à III-16 représentent les zones influencées par les rejets de Marcoule calculées par interpolation des résultats de mesures d'activités surfaciques.

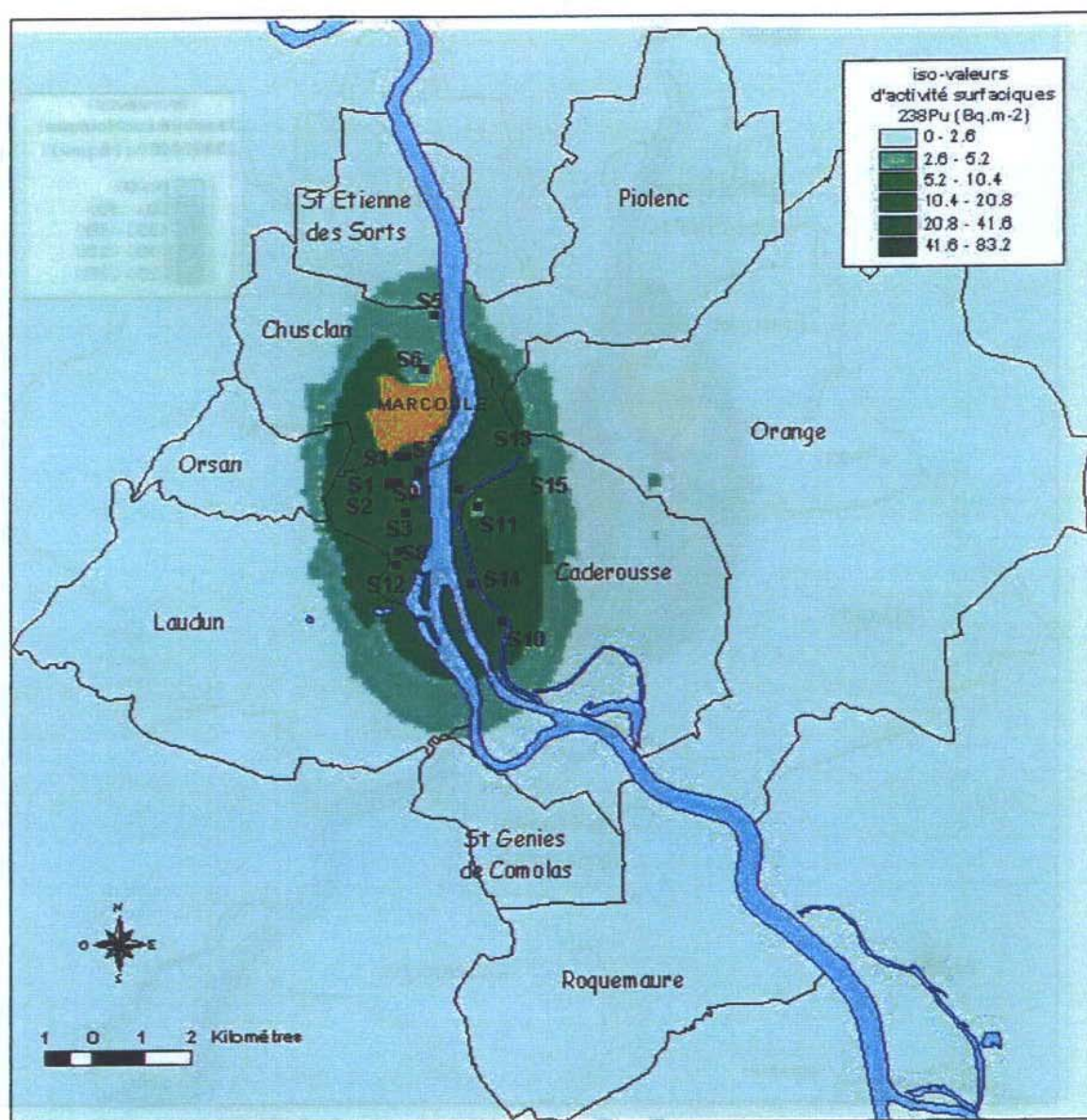


Figure III-14 : surfaces iso-valeurs issues des mesures de ^{238}Pu

Pour le ^{238}Pu , 6 classes d'activités surfaciques ont été définies. La première classe ($0-2,6 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$) est représentative des activités rencontrées dans les sols non influencés de la basse vallée du Rhône. Les classes suivantes représentent des niveaux d'activités de 2 à 32 fois plus forts. Deux zones présentent des valeurs plus de 4 fois supérieures à la moyenne des sols français : l'une est située aux environs de l'étang de Codolet, l'autre dans une zone située entre le Rhône et la rivière l'Aygues. On a déjà vu qu'à ces zones sont associées des suspicions d'apports de sédiments du fleuve par inondation.

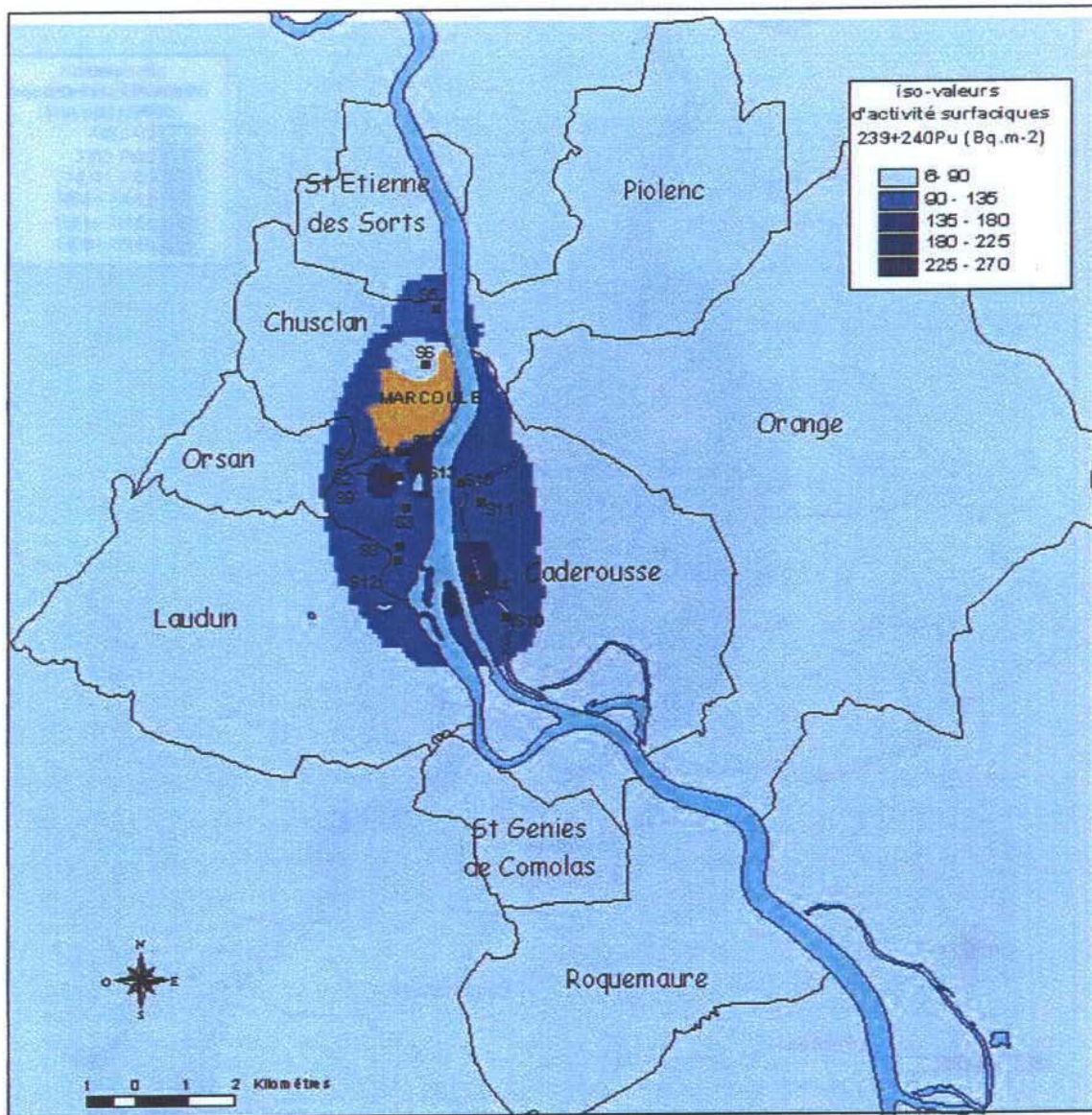


Figure III-15 : surfaces iso-valeurs issues des mesures de $^{239+240}\text{Pu}$

L'analyse de l'interpolation issue des activités des sols en $^{239+240}\text{Pu}$ donne des résultats comparables. La zone ainsi définie comme influencée s'étend au Sud du point de rejet des effluents gazeux jusqu'à la limite de la commune de Laudun, à 4 km, et au Nord jusqu'à St Etienne des Sorts. La classe d'activité principalement représentée dans cette zone correspond à l'intervalle 90-135 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$, soient des activités surfaciques 2 à 3 fois supérieures à la moyenne des sols non influencés par les rejets de Marcoubert dans le Bas-Rhône. Des valeurs encore plus fortes sont mesurées au nord de Codolet et entre le Rhône et l'Aygues à Caderousse.

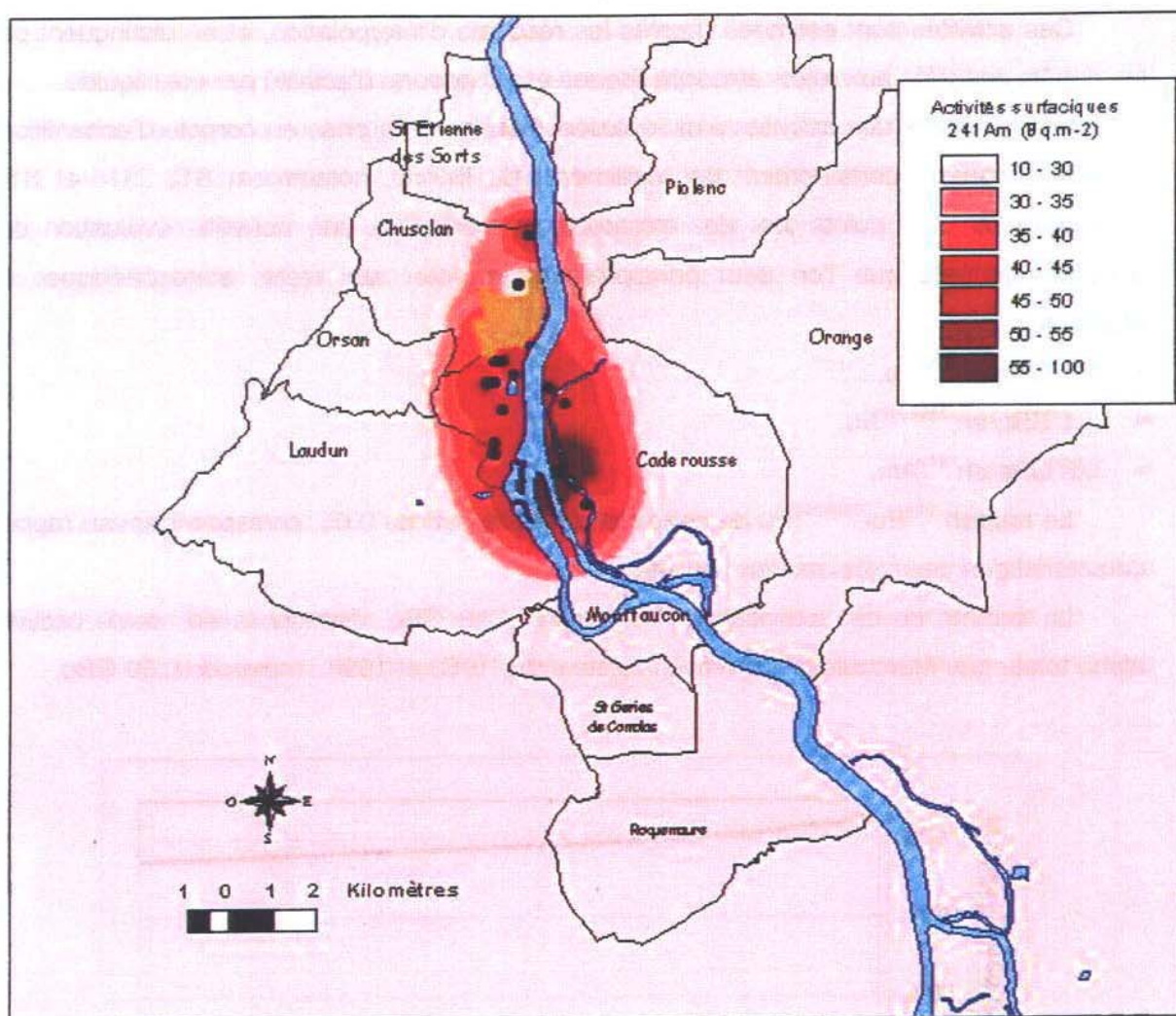


Figure III-16 : surfaces iso-valeurs issues des mesures de ^{241}Am

Là aussi, on peut définir une zone sur laquelle un apport d'activité supérieure aux activités rémanentes des retombées anciennes correspond à un impact, principalement sur la commune de Codolet, des rejets du centre de Marcoule.

4.3. Inventaire de l'activité stockée dans les sols

D'après ces résultats, on peut évaluer les activités ajoutées dans les sols sur une zone d'environ 25 km² autour de l'installation de Marcoule, soit :

- 0,2 GBq en ^{238}Pu ,
- 2,6 GBq en $^{239+240}\text{Pu}$,
- 0,6 GBq en ^{241}Am .

Ces activités sont estimées d'après les résultats d'interpolation, et ne distinguent pas les dépôts associés aux rejets atmosphériques et les apports d'activité par voie liquide. En effet, une partie des activités ainsi évaluées résulte de la prise en compte d'échantillons de sols contenant certainement des sédiments du Rhône, notamment S13, S14 et S15. L'exclusion de ces points lors des interpolations conduit à une nouvelle évaluation des activités ajoutées que l'on peut principalement imputer aux rejets atmosphériques de Marcoule :

- 0,1 GBq en ^{238}Pu ,
- 2,1 GBq en $^{239+240}\text{Pu}$,
- 0,6 GBq en ^{241}Am .

Le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ de cet excès d'activité est de 0,05, correspondant au rapport caractéristique des rejets anciens du site.

La somme de ces activités de Pu et d'Am, 2,8 GBq, dépasse à elle seule l'activité alpha totale que Marcoule déclare avoir rejeté entre 1963 et 1998 : moins de 0,39 GBq.

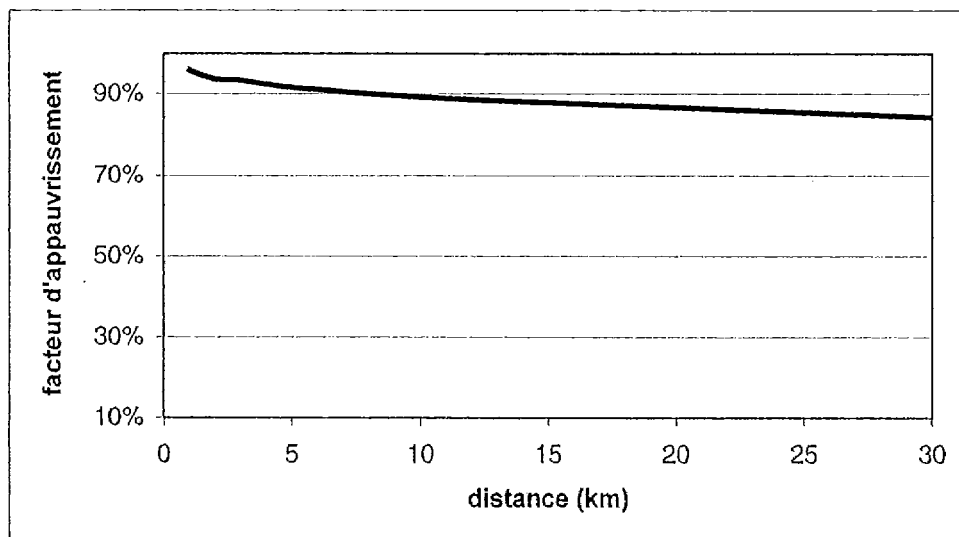


Figure III-17 : Appauvrissement d'un nuage d'actinides dû au dépôt sec pour des conditions de diffusion neutres (vent moyen de 5 m.s^{-1})

De plus, il est probable que cette estimation de 2,8 GBq qui correspond à l'activité ajoutée visible et révélée par les mesures à proximité du site ne représente qu'une petite partie des activités rejetées. En effet, les lois de la dispersion atmosphérique montrent que les dépôts secs issus d'un rejet atmosphérique représentent en champ proche (moins de 10 km) moins de 10% de l'activité totale rejetée (Figure III-17). Or, sur le site de Marcoule, il pleut moins de 4% du temps. L'essentiel des rejets chroniques est donc disséminé sur une grande distance, et leurs dépôts ne sont pas discernables par la mesure.

4.4. Modélisation des apports atmosphériques d'actinides

L'utilisation d'un modèle de dispersion atmosphérique permet de simuler le devenir des radionucléides suite à un rejet issu d'un terme source défini avec des conditions atmosphériques connues. La partie de l'étude exposée ci-dessous est destinée à évaluer les activités dans l'air et les dépôts attendus pour un rejet permanent d'activité par les installations de Marcoule. Il s'agit de : (i) cartographier les lignes d'iso-dépôts obtenues par le modèle afin de les comparer à celles obtenues suite à l'interpolation des mesures de terrain, (ii) estimer les activités moyennes dans l'air pour les comparer aux activités déduites des mesures effectuées sur les mousses, (iii) estimer les dépôts moyens correspondants aux rejets déclarés et les comparer aux activités ajoutées sur les sols.

4.4.1. Données d'entrée pour les rejets d'actinides

L'environnement de Marcoule est soumis à des conditions météorologiques particulières, dans une vallée dont l'orientation influe sur la direction moyenne des vents. Les données nécessaires au modèle de dispersion atmosphérique sont fournies par le PGSE (Plan Général de Sécurité de l'Etablissement) du site de Marcoule et détaillées dans l'Annexe 11.

Les caractéristiques du rejet en radionucléides émetteurs alpha sont les suivantes :

1. Trois émissaires principaux devraient être pris en compte : trois cheminées, hautes de 70m, 40m et 23m. Mais, on ne connaît pas la part des activités rejetées par chacune d'elle. On supposera qu'elles participent à part égale au rejet global. On fait donc l'hypothèse d'un point de rejet unique d'une hauteur de 44 m.
2. En ce point, on simule un rejet annuel moyen de 10 MBq d'oxy-hydroxide de plutonium correspondant à la valeur moyenne des rejets d'alpha totaux déclarés par Marcoule depuis 1963.

4.4.2. Résultats du modèle

Les résultats sont donnés en termes d'activités volumiques dans l'air et de dépôts surfaciques totaux aux distances et dans les directions spécifiées par rapport au point de rejet (Tableaux III-11 et III-12).

Les activités dans l'air obtenues suite à cette simulation (Tableau III-11) sont près de 100 fois supérieures aux activités moyennes estimées pour les années les plus récentes à partir des mesures effectuées sur les mousses (voir Tableau III-8). Dans ce cas, le rejet simulé (soit 10MBq) est beaucoup trop important pour obtenir des activités ajoutées dans l'air vraisemblables après 1980 à la vue des résultats de mesures sur les mousses. Les calculs faits à partir des rapports d'activités des mousses donnent des activités estimées de $^{239+240}\text{Pu}$ dans l'air permettant de justifier d'un rejet moyen annuel d'environ 0,3 MBq par

Marcoule sur la période d'intégration des mousses. Ce rejet moyen annuel rentre dans le cadre des rejets alpha totaux déclarés par l'exploitant.

Tableau III-11 : Activités volumiques moyennes dans l'air autour de Marcoule sur la période 1961-1998 ($nBq \cdot m^{-3}$), pour un rejet de 10 MBq/an

Secteurs\Distances	500 m	1000 m	1500 m	2000 m	2500 m	3000 m	4000 m	5000 m	6000 m	7500 m
0°	129	139	97	68	50	38	25	18	13	10
20°	103	102	72	51	38	29	19	14	10	8
40°	93	87	62	44	33	26	17	12	9	7
60°	127	71	45	32	24	19	13	10	8	7
80°	123	69	44	31	24	19	13	10	8	6
100°	184	104	63	43	32	25	18	14	12	10
120°	363	207	120	79	57	45	32	26	22	19
140°	409	234	135	88	64	50	35	29	25	22
160°	313	404	279	190	137	103	66	47	37	29
180°	208	684	633	482	359	276	177	123	91	63
200°	131	360	331	252	189	146	93	65	48	33
220°	200	99	59	41	31	25	18	15	13	10
240°	137	69	43	31	24	19	14	11	9	7
260°	117	59	38	27	21	17	12	9	8	6
280°	107	54	35	26	20	16	12	9	7	5
300°	175	88	53	37	28	22	16	13	11	8
320°	143	96	61	42	32	25	17	13	10	8
340°	225	155	95	64	47	36	24	19	16	13

Par contre, les résultats de la modélisation obtenus avec un rejet simulé de 10MBq/an indiquent des dépôts au sol cumulés sur 37 ans qui sont très inférieurs aux apports mesurés sur les sols (Tableau III-12). Le modèle donne des valeurs de dépôts inférieures à $4,3 Bq \cdot m^{-2}$ (maximum à 1 km au Sud du point de rejet), ce qui représente moins de 10% des activités moyennes en $^{239+240}Pu$ déjà présentes suite aux retombées anciennes globales. En aucun cas ce dépôt ne pourrait expliquer les activités constatées par la mesure. Il est donc probable que si les activités ajoutées sont d'origine atmosphérique comme on le suppose, elles soient dues à un rejet beaucoup plus important par le terme source. Ce rejet correspond à une période antérieure à 1980, puisque les mousses prélevées n'en portent pas la trace.

Tableau III-12 : Dépôts surfaciques alpha cumulés autour de Marcoule sur la période 1961-1998
(Bq .m²), pour un rejet de 10 MBq/an

Secteurs\Distances	500 m	1000 m	1500 m	2000 m	2500 m	3000 m	4000 m	5000 m	6000 m	7500 m
0°	0,9	0,9	0,7	0,5	0,4	0,3	0,2	0,1	0,1	0,1
20°	0,7	0,7	0,5	0,3	0,3	0,2	0,1	0,1	0,1	0,1
40°	0,6	0,6	0,4	0,3	0,2	0,2	0,1	0,1	0,1	0,0
60°	0,9	0,5	0,3	0,2	0,2	0,1	0,1	0,1	0,1	0,0
80°	0,9	0,5	0,3	0,2	0,2	0,1	0,1	0,1	0,1	0,0
100°	1,3	0,8	0,5	0,3	0,2	0,2	0,1	0,1	0,1	0,1
120°	2,5	1,5	0,9	0,6	0,4	0,3	0,2	0,2	0,2	0,1
140°	2,8	1,7	1,0	0,7	0,5	0,4	0,3	0,2	0,2	0,1
160°	2,0	2,6	1,9	1,3	0,9	0,7	0,5	0,3	0,3	0,2
180°	1,4	4,3	4,0	3,0	2,3	1,8	1,1	0,8	0,6	0,4
200°	0,9	2,3	2,1	1,6	1,2	0,9	0,6	0,4	0,3	0,2
220°	1,4	0,7	0,5	0,3	0,2	0,2	0,1	0,1	0,1	0,1
240°	1,0	0,5	0,3	0,2	0,2	0,1	0,1	0,1	0,1	0,0
260°	0,8	0,4	0,3	0,2	0,2	0,1	0,1	0,1	0,1	0,0
280°	0,8	0,4	0,3	0,2	0,1	0,1	0,1	0,1	0,0	0,0
300°	1,4	0,8	0,5	0,3	0,3	0,2	0,1	0,1	0,1	0,1
320°	1,0	0,8	0,5	0,4	0,3	0,2	0,2	0,1	0,1	0,1
340°	1,5	1,2	0,8	0,6	0,4	0,3	0,2	0,2	0,1	0,1

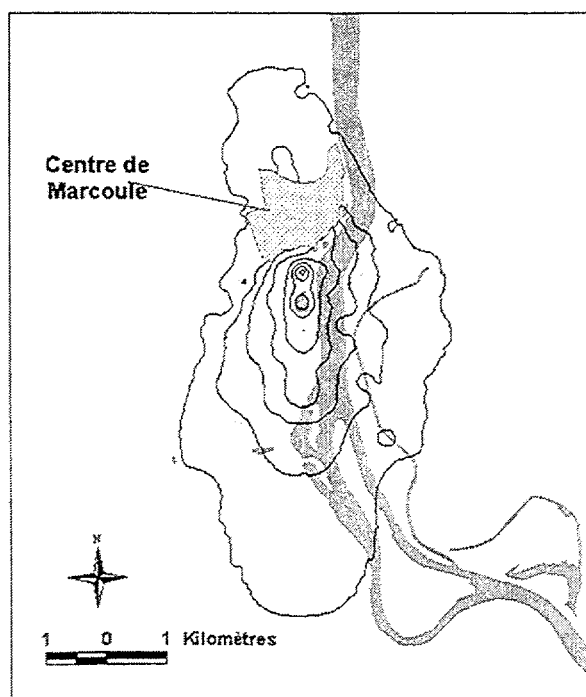


Figure III-18 : Lignes d'iso dépôts tracées à partir des résultats de la modélisation

En outre, il est intéressant de constater que la forme des lignes iso-dépôts déduites de l'interpolation faite à partir des résultats du modèle (Figure III-18) montrent une extension similaire aux lignes d'iso-activités tracées grâce aux résultats des mesures. L'emplacement des activités maximales prédites par le modèle (1000m à 180° du rejet) correspond à une zone où les mesures montrent le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ maximum de 0,23 (mousse M06).

Ces constats pourraient indiquer que les activités mesurées sont le reflet d'un rejet chronique d'actinides sur une certaine période.

4.4.3. Conclusion

Sur les communes voisines du centre de Marcoule, les sols présentent des activités significativement supérieures aux moyennes observées dans les zones soumises aux seules retombées globales. Dans certains cas, les activités ajoutées peuvent résulter d'apports de sédiments du Rhône lors d'inondations ou lors des travaux de réalisation des digues.

Cependant, l'activité totale ajoutée aux sols des environs du site et attribuable principalement aux rejets atmosphériques, serait de l'ordre de 2,8 GBq, ce qui ne représente probablement qu'une petite partie de l'activité totale rejetée.

Les mousses terrestres témoignent de l'existence de ces rejets aériens d'actinides sur les dix à quinze dernières années.

Par contre, le rapport moyen des activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ ajoutées dans les sols, est évalué à 0,05. Il correspond au rapport caractéristique des rejets anciens de Marcoule liés au retraitement de combustibles faiblement irradiés qui pourrait donc être à l'origine des actinides ajoutés dans les sols concernés. Cette hypothèse est cohérente avec les résultats obtenus par modélisation de la dispersion atmosphérique autour de l'installation de Marcoule, qui indiquent que les rejets pouvant expliquer les rapports d'activités mesurés dans les mousses, ne peuvent pas expliquer les dépôts constatés dans les sols. Les rejets ayant entraînés les apports importants mesurés sur les sols auraient eu lieu avant la période d'intégration des mousses prélevées, c'est à dire avant 1980, avec un rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ caractéristique des filières militaires (0,05).

La forme des iso-dépôts déduits des mesures correspondrait à un rejet chronique puisque celle-ci est à l'image des conditions météorologiques moyennes en ce lieu.

5. Les sols irrigués par le Rhône

Dans la basse vallée du Rhône, le fleuve est la principale voie naturelle de transit du plutonium et de l'américium. Ce transfert se fait essentiellement vers la Mer Méditerranée, mais doit nécessairement être quantifié lorsqu'on s'intéresse à la contamination des sols.

En effet, le Rhône constitue également une source de distribution d'eau à des fins principalement agricoles. Ces utilisations d'eau du Rhône en aval des rejets de l'installation de Marcoule sont sources d'apports de Pu et Am sur les sols et les plantes. Il est nécessaire de quantifier cet apport afin d'expliquer ou de prévoir les activités ajoutées à ces compartiments. Pour ce faire, les flux d'actinides transitant par le Rhône doivent être estimés en aval des deux termes sources à considérer ici : les apports du bassin versant au fleuve par érosion des sols et les rejets du centre de Marcoule (Figure III-19). Les retombées directes sur la surface du fleuve sont considérées comme négligeables vis à vis des deux autres sources.

Les sols irrigués en Camargue ou par l'intermédiaire du canal BRL sont les deux termes puits pour lesquels il est nécessaire de quantifier les flux sortant du Rhône.

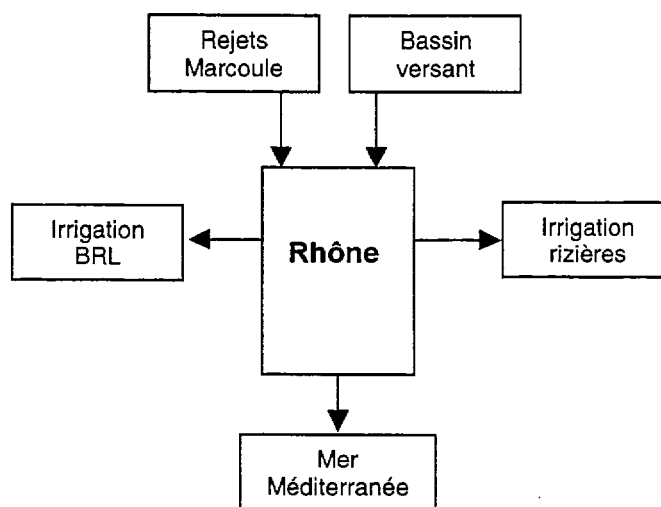


Figure III-19 : Schéma analytique des flux de Pu et Am dans le Bas-Rhône

5.1. Flux entrant

5.1.1. Apports du bassin versant

Les processus d'érosion et de ruissellement à l'origine des apports d'eau et de particules solides vers le fleuve sont autant de vecteurs possibles de transfert des éléments radioactifs déposés. Dans le cas du Pu et de l'Am, fortement liés aux particules solides, l'érosion mécanique du sol est probablement la principale source de leur apport au Rhône.

Afin d'estimer les apports au Rhône, il faut choisir un type de modèle applicable au cas du bassin versant du Rhône.

5.1.1.1. Choix d'un modèle

Des travaux américains, traitant des phénomènes d'entraînement des radionucléides du bassin collecteur, utilisent un modèle d'érosion qui nécessite la connaissance de nombreux paramètres décrivant le bassin versant afin de déterminer le taux d'érosion spécifique (Foster *et al.*, 1984). Ces paramètres sont difficiles à obtenir et trop hétérogènes dans le cas du bassin du Rhône.

Le modèle proposé par Thomas (Thomas, 1988) pour le calcul des apports de ^{137}Cs à la Méditerranée a déjà été repris et adapté au cas du Pu avec les mêmes objectifs (Noël, 1996). Il s'agit d'un modèle systémique qui ne nécessite pas de paramètres précis comme les modèles d'érosion. C'est un modèle compartimental (Figure III-20) dont les coefficients de relaxation ont été déterminés de façon empirique par l'auteur. Le compartiment M1 représente le stock d'activité « entraînable » par érosion et le compartiment M2 le stock d'activité piégée dans les sols du bassin versant.

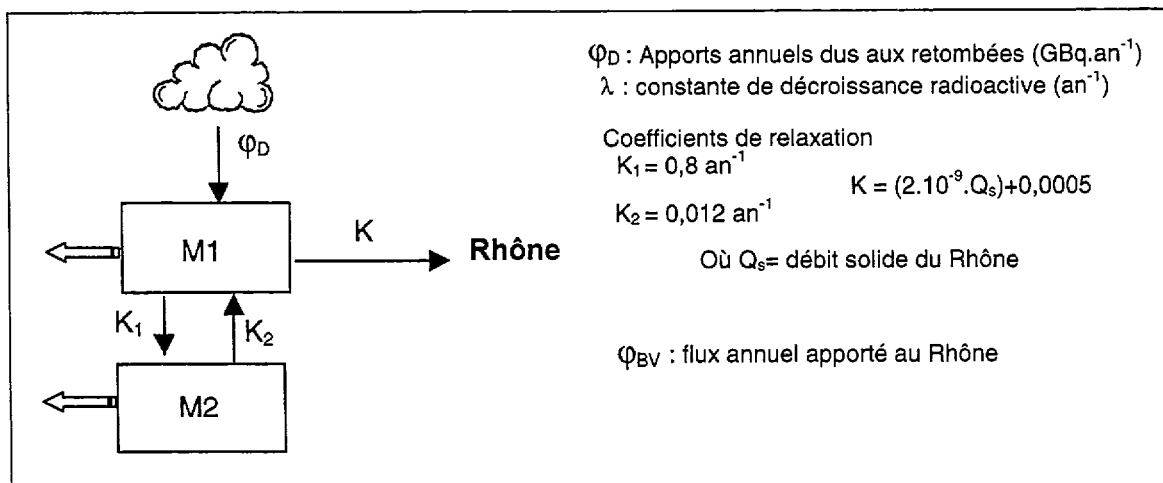


Figure III-20 : Modèle compartimental du Pu dans le bassin versant du Rhône

Les dépôts d'activités suite aux retombées atmosphériques globales se traduisent par un flux ϕ_D vers M1. Les échanges entre M1 et M2 sont caractérisés par les coefficients de relaxation constants K_1 et K_2 . Les pertes par décroissances radioactives sont envisagées dans les compartiments M1 et M2 (λ). Le flux de radionucléides des sols vers le Rhône sont définis par le facteur K . Non constant, ce coefficient est dépendant du débit solide du Rhône à Arles (Q_s).

Deux paramètres d'entrée sont donc nécessaires au modèle : les dépôts annuels de Pu (ϕ_D), et le débit solide moyen annuel du Rhône (Q_s).

Les apports de radionucléides au fleuve sont alors calculés à un pas de temps annuel. D'après ce modèle, le temps de résidence du plutonium sur l'ensemble du bassin versant est d'environ 1500 ans. Suite à ses travaux sur la partie alpine suisse du bassin versant, Dominik (1987) donne une valeur de 800 ans pour le ^{137}Cs qui est considéré comme un élément plus facilement « mobilisable ». Les études américaines montrent que sur les bassins versant étudiés, plus de la moitié du Pu qui s'y est déposé restera stocké pour des centaines d'années. Une diminution significative n'interviendra que dans les 1000 ans. Ces résultats étant cohérents, le choix du modèle de Thomas-Noël paraît judicieux pour cette étude.

5.1.1.2. Application : estimation des flux de Pu et Am originaires du bassin versant du Rhône

➤ *Données d'entrée du modèle :*

Les débits solides

Les débits solides annuels du Rhône ont été estimés par M.H.Noël (Noël, 1996) pour la période 1960–1990. Ces valeurs sont établies par l'auteur à partir d'une relation entre le débit liquide et la charge solide du fleuve, qui permet d'établir les débits solides journaliers :

$$\ln(Cs) = 0.37314.(\ln Q_l)^2 - 3,79713.\ln(Q_l) + 10,803$$

où Cs est le charge solide en mg.l^{-1} , et Q_l le débit liquide en $\text{m}^3.\text{s}^{-1}$ mesuré à Arles par la CNR (Compagnie Générale du Rhône).

Cette même relation est appliquée après 1990, années pour lesquelles l'auteur ne fournit pas de valeur. Seules les années 1993 et 1994 sont des cas particuliers à cause des crues exceptionnelles qui se sont produites. Là, les débits solides considérés sont estimés à partir des valeurs relevées durant les crues (Pont, 1997a).

Les apports solides ainsi calculés (Figure III-21) correspondent à un débit annuel moyen de $3,6 \text{ Mt.an}^{-1}$, valeur située dans l'intervalle des valeurs habituellement mentionnées (2 à 6 Mt.an^{-1} selon (Pont, 1997b)). Pour les années antérieures à 1960, on appliquera cette valeur de $3,6 \text{ Mt/an}$ car les débits moyens journaliers ne sont pas disponibles pour réaliser les calculs.

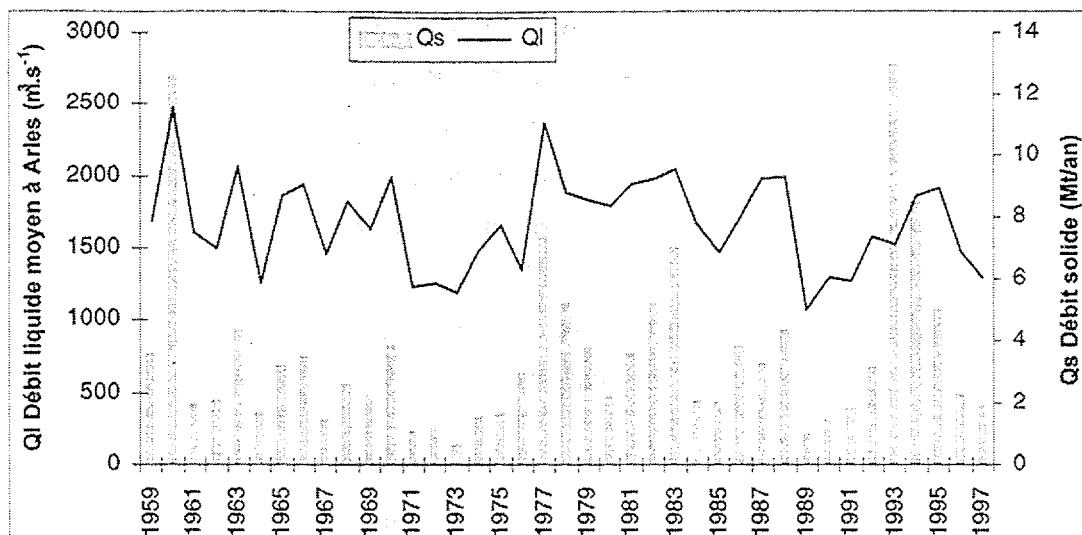


Figure III-21 : Evolution des débits liquides et solides à Arles

Les apports atmosphériques

Comme cela a été déjà mentionné, le cumul des dépôts atmosphériques globaux dépend des précipitations moyennes selon la relation :

$$D = 13,1 + 0,054 \times P \quad \text{Équation 1, d'après (Hölggye et al., 1995)}$$

avec D : dépôt surfacique moyen de $^{239+240}\text{Pu}$ (Bq.m^{-2}),

P : hauteur moyenne de pluie tombée annuellement (mm).

Sur le bassin du Rhône, l'intensité moyenne des pluies est de 1056 mm/an. On en déduit un dépôt moyen de 70 Bq.m^{-2} de $^{239+240}\text{Pu}$ pour l'ensemble du bassin versant. Aucun fractionnement n'étant envisageable, on conserve les rapports existant entre les différents isotopes du Pu (Tableau I-5). On en déduit alors des valeurs de dépôts intégrés moyens de 3 Bq.m^{-2} pour ^{238}Pu ($1,8 \text{ Bq.m}^{-2}$ pour les tirs et $1,2 \text{ Bq.m}^{-2}$ pour le SNAP) et 915 pour ^{241}Pu .

Afin de répondre aux besoins du modèle, il faut établir les apports atmosphériques moyens sur le bassin du Rhône de façon annuelle. L'UNSCEAR (1982) fournit des données de dépôts annuels de strontium 90 en France. En s'appuyant sur le fait que les parts de l'apport total déposées annuellement sont les mêmes pour le strontium et pour le plutonium (ces radioéléments ont sensiblement le même comportement), les dépôts annuels de chaque isotope étudié sont calculés (Tableau III-13). Les dépôts de strontium fournis par l'UNSCEAR ne sont pas donnés de façon détaillée avant 1958. On suppose alors qu'avant cette année là, tout s'est déposé en 1957. Après les dépôts de 1980, une certaine quantité de strontium est encore présente dans la stratosphère. On considère qu'elle se dépose régulièrement jusqu'en 1983. Après cette date, les retombées directes d'éventuelles traces dans l'atmosphère sont négligées.

Concernant le ^{238}Pu , il faut ajouter les apports liés au SNAP (cf. Chap.1), qui se produisent entre 1965 et 1973 de façon irrégulière (Perkins *et al.*, 1980).

Tableau III-13 : Dépôts annuels de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am sur le bassin versant du Rhône (Bq.m^{-2})

Année	Tirs				SNAP	
	% de ^{90}Sr déposé	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Pu	% de ^{238}Pu déposé	^{238}Pu
Jusqu'en 1957	0.15	0.261	10.17	132.87	0	0
1958	0.05	0.091	3.55	46.35	0	0
1959	0.08	0.152	5.92	77.38	0	0
1960	0.02	0.038	1.48	19.29	0	0
1961	0.03	0.051	1.98	25.86	0	0
1962	0.12	0.209	8.13	106.22	0	0
1963	0.21	0.380	14.76	192.95	0	0
1964	0.13	0.240	9.33	121.93	0	0
1965	0.06	0.112	4.35	56.89	1	0.012
1966	0.03	0.047	1.84	24.07	10	0.12
1967	0.01	0.024	0.94	12.33	16	0.192
1968	0.02	0.028	1.10	14.32	32	0.384
1969	0.01	0.021	0.82	10.74	12	0.144
1970	0.02	0.030	1.16	15.12	6	0.072
1971	0.02	0.027	1.07	13.92	12	0.144
1972	0.01	0.013	0.49	6.37	8	0.096
1973	0.00	0.005	0.18	2.39	3	0.036
1974	0.01	0.018	0.68	8.95	0	0
1975	0.00	0.009	0.33	4.38	0	0
1976	0.00	0.004	0.15	1.99	0	0
1977	0.01	0.012	0.46	5.97	0	0
1978	0.01	0.014	0.56	7.36	0	0
1979	0.00	0.005	0.18	2.39	0	0
1980	0.00	0.004	0.17	2.19	0	0
1981	0.00	0.002	0.09	1.19	0	0
1982	0.00	0.002	0.09	1.19	0	0
1983	0.00	0.002	0.09	1.19	0	0

Tous les dépôts surfaciques annuels calculés (Tableau III-13) sont ensuite multipliés par la superficie totale du bassin versant, 98845 km^2 , afin d'obtenir les valeurs de flux annuels en entrée du modèle :

$$\varphi_D = D \times 98845 \cdot 10^6$$

où le flux d'entrée φ_D est exprimé en GBq.an^{-1} , et le dépôt D en Bq.m^{-2} (Tableau III-14).

Tableau III-14 : Flux atmosphériques annuels de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Pu au bassin versant rhodanien (GBq.an⁻¹)

année	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Pu	^{238}Pu
1957	1004.8	13373.6	26.0
1958	350.5	4664.8	9.1
1959	585.1	7787.9	15.1
1960	145.9	1942.0	3.8
1961	195.5	2602.7	5.1
1962	803.2	10690.9	20.8
1963	1459.0	19419.8	37.7
1964	922.1	12272.5	23.8
1965	430.2	5725.8	12.3
1966	182.0	2422.5	16.2
1967	93.3	1241.3	20.8
1968	108.3	1441.5	39.5
1969	81.2	1081.1	15.9
1970	114.3	1521.6	9.8
1971	105.3	1401.4	16.5
1972	48.1	640.7	10.4
1973	18.0	240.2	3.9
1974	67.7	900.9	1.8
1975	33.1	440.4	0.9
1976	15.0	200.2	0.4
1977	45.1	600.6	1.2
1978	55.7	740.8	1.4
1979	18.0	240.2	0.5
1980	16.5	220.2	0.4
1981	9.0	120.1	0.2
1982	9.0	120.1	0.2
1983	9.0	120.1	0.2

➤ Résultats

L'incertitude associée aux résultats du modèle a été quantifiée par M.H. Noël (Noël, 1996) qui l'évalue à 30%. On appliquera donc cette valeur aux flux estimés.

Les apports de ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ au Rhône sont estimés directement par application du modèle, en utilisant le logiciel STELLA (Annexe 12). Dans le cas du ^{241}Am , une adaptation est nécessaire.

La figure III-22 représente les évolutions des flux de $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{238}Pu apportés à la partie terminale du Rhône par les processus d'érosion du bassin versant. Selon cette modélisation, l'apport maximum de plutonium au Rhône par érosion du bassin versant s'est fait en 1960. La discordance entre ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ entre 1967 et 1971 est due à l'augmentation du dépôt de ^{238}Pu suite à l'explosion du SNAP. Bien que le maximum du débit solide moyen annuel du fleuve se situe en 1993, cette année là ne correspond cependant pas au flux annuel le plus élevé car, plus aucun dépôt de plutonium se n'étant produit depuis 1983, l'essentiel des radioéléments est alors stocké dans le compartiment M2, donc non entraînable.

Le flux est modélisé sur la période 1957-1998 mais correspond en réalité à la période 1945-1998, car on a cumulé les dépôts de 23 années (1945-1957) en 1957. Sur la période 1945-1998, 92 ± 28 GBq de $^{239+240}\text{Pu}$ et $3,3 \pm 1$ GBq de ^{238}Pu ont été apportés au Rhône par érosion de son bassin versant.

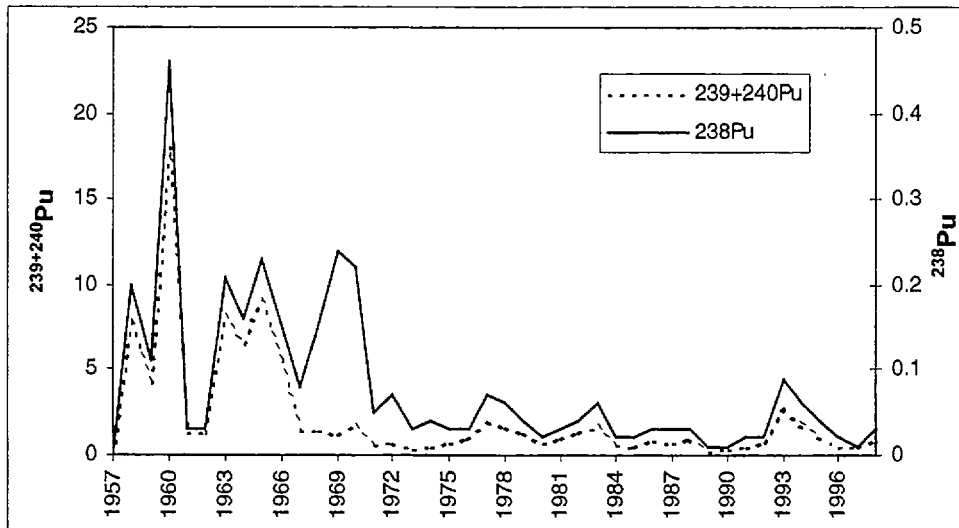


Figure III-22 : Flux de $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{238}Pu du bassin versant au Rhône (GBq)

L'étude du flux de ^{241}Am est plus complexe. Etant produit uniquement par filiation du ^{241}Pu dont la période est relativement courte (14,4 ans), il est généré à partir du stock de ^{241}Pu dans les sols du bassin versant. Son flux au fleuve peut être calculé en adaptant le modèle employé. Comme les comportements du Pu et de l'Am dans les sols sont globalement similaires (cf. Chap.I), on considère alors que les temps de rétention de l'Am dans les compartiments de sol (M1 et M2) sont les mêmes que pour le Pu. Les coefficients K_1 et K_2 sont donc conservés (Figure III-23). L'activité de ^{241}Am héritée par décroissance du ^{241}Pu est définie par l'équation de filiation :

$$A_{Am} = A_{Pu} \cdot \frac{\lambda_{Am}}{\lambda_{Am} - \lambda_{Pu}} \cdot [1 - e^{-(\lambda_{Am} - \lambda_{Pu})t}] \quad (\text{Ivanovich et al., 1992})$$

avec : A_i : Activité de l'isotope i (Bq.m^{-2}),

λ_i : Constante de décroissance radioactive de l'isotope i (an^{-1}).

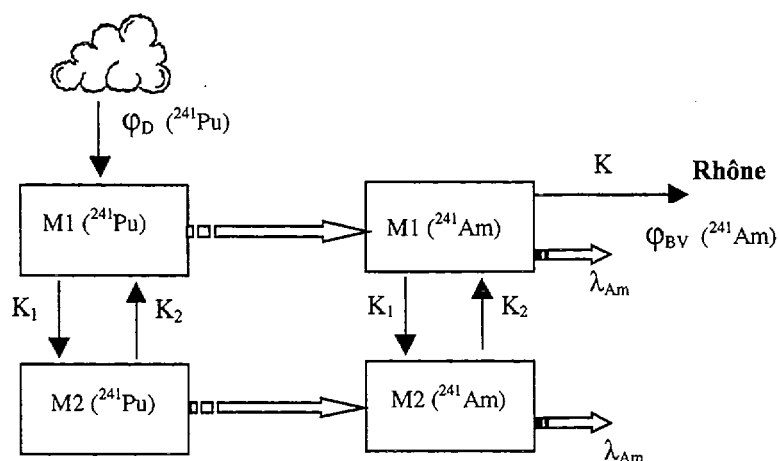


Figure III-23 : Modèle de flux de ^{241}Am dans le bassin versant du Rhône

De même que pour les éléments ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$, on utilise le logiciel STELLA pour modéliser ces transferts (Annexe 12).

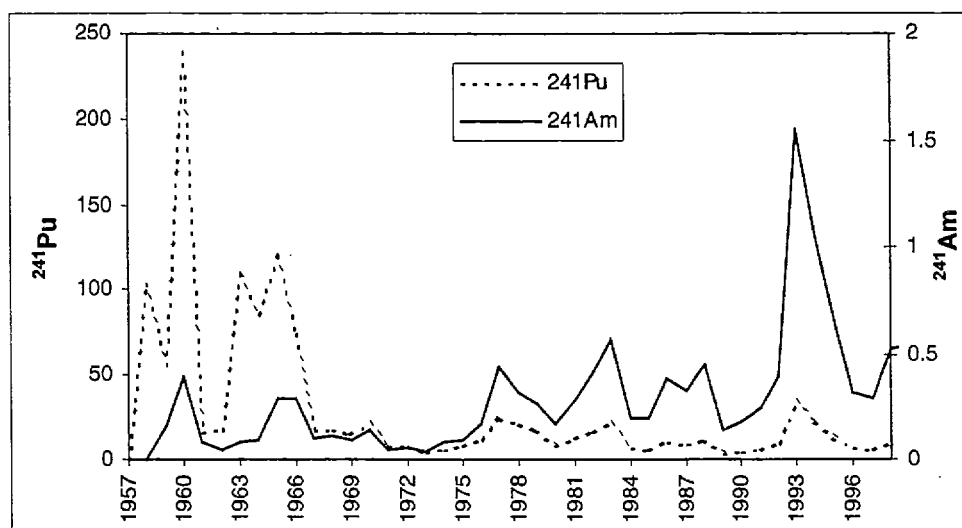


Figure III-24 : Flux de ^{241}Am et ^{241}Pu du bassin versant au Rhône (GBq)

Le flux total de ^{241}Am apporté au Rhône par cette voie est alors estimé à 12 ± 4 GBq entre 1945 et 1998. Alors que pour ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ les apports les plus importants avaient lieu avant 1970, les apports de ^{241}Am augmentent lentement avec le temps (Figure III-24).

5.1.2. Rejets des installations de Marcoule

5.1.2.1. Données

Les données fournies par l'exploitant COGEMA concernent les cumuls annuels des activités des éléments transuraniens rejetés entre 1961 et 1998 (Voir Chap.I).

Avant 1979, une seule valeur annuelle est fournie, incluant les isotopes $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , ^{241}Am et $^{242+244}\text{Cm}$. A partir de 1979, on distingue les isotopes hormis ^{238}Pu et ^{241}Am . De plus, aucune valeur n'est fournie pour les années 1972 et 1973.

Néanmoins, les valeurs connues permettent de distinguer deux grandes périodes de rejets : avant 1967, puis de 1979 à 1991, année de mise en fonctionnement des nouveaux procédés de traitements des effluents (Figure III-25).

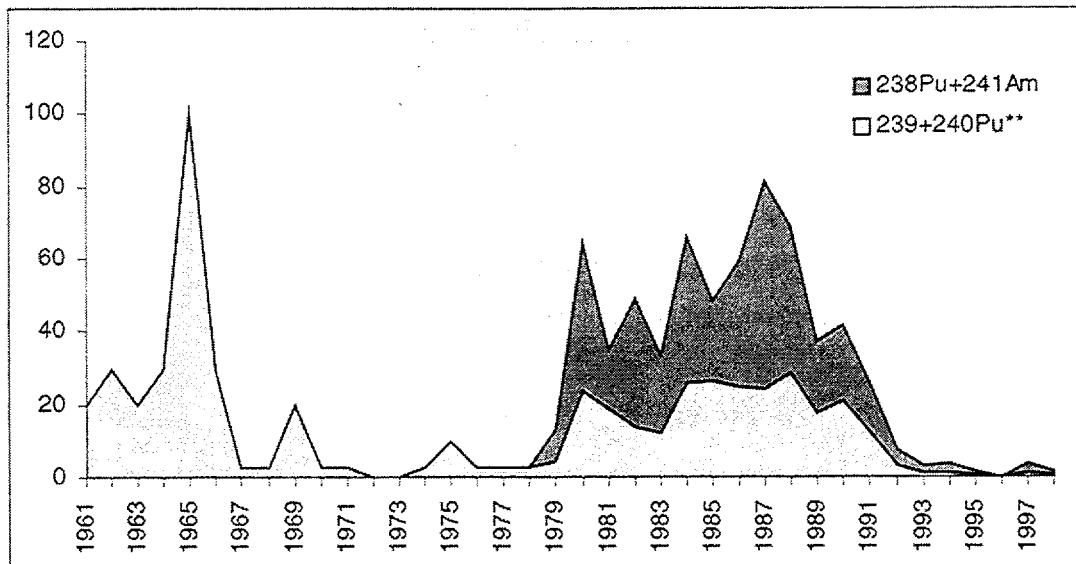


Figure III-25 : Rejets liquides de transuraniens effectués par le centre de Marcoule entre 1961 et 1998 (GBq)

5.1.2.2. Hypothèses

Ces données restent incomplètes et des hypothèses sont nécessaires afin de définir de manière plus précise la composition des rejets :

- On suppose que pour les années où les informations ne sont pas en notre possession, les rejets sont nuls (avant 1961, 1972 et 1973).
- Jusqu'en 1965, date du début du retraitement du combustible en provenance des centrales EDF, le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ des rejets est caractéristique du plutonium à usage militaire, soit $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}=0,05$. A partir de 1965, ce rapport augmente alors régulièrement jusqu'à la valeur de 0,3 caractéristique du plutonium d'origine civile, atteinte en 1976. On considère que le retraitement concernait dès lors principalement l'industrie civile. De 1966 à 1975, la valeur estimée comprise entre 0,05 et 0,3 est le résultat d'un mélange, que l'on considère linéaire faute d'information plus précise, entre les origines militaires et civiles du plutonium retraité (Figure III-26).

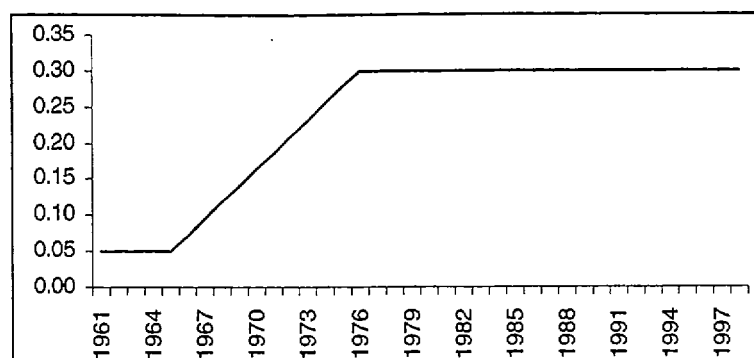


Figure III-26 : Evolution supposée du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les rejets effectués par Marcoule

- Si l'on considère que les rejets d'actinides sont entièrement dus aux activités de retraitement, leur composition isotopique est représentative de celle du combustible traité. Entre 1976 et 1979, les rejets d'actinides transuraniens liés au retraitement pour l'industrie civile, sont calculés en utilisant la composition moyenne connue sur la période 1979-1995 (Charmasson, 1999) : 36,7% de $^{239+240}\text{Pu}$, 54,1% de $^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am}$, et 9,1% de $^{242+244}\text{Cm}$.
- Le combustible d'usage militaire, seul traité de 1961 à 1965, a probablement une composition isotopique différente puisque son taux d'irradiation est plus faible ; l'élément principal est le $^{239+240}\text{Pu}$. Le ^{238}Pu et les actinides mineurs sont théoriquement minoritaires. Ne disposant d'aucune information sur cette composition, les valeurs d'activités rejetées sur cette période sont calculées pour deux cas extrêmes :
 - le cas où le $^{239+240}\text{Pu}$ représente 95% de l'activité alpha totale des transuraniens, proportion maximale afin de garder un rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ de 0,05 (hypothèse A) ;
 - le cas où la répartition entre $^{239+240}\text{Pu}$, $^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am}$, et $^{242+244}\text{Cm}$ est identique à celle qui a été calculée sur la période 1979-1995 (hypothèse B).

Dans les deux cas, le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ est égal à 0,05.

5.1.2.3. Résultats

De là, il est possible d'estimer les rejets liquides de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am effectués entre 1961 et 1998 selon les deux hypothèses A et B (Figure III-27).

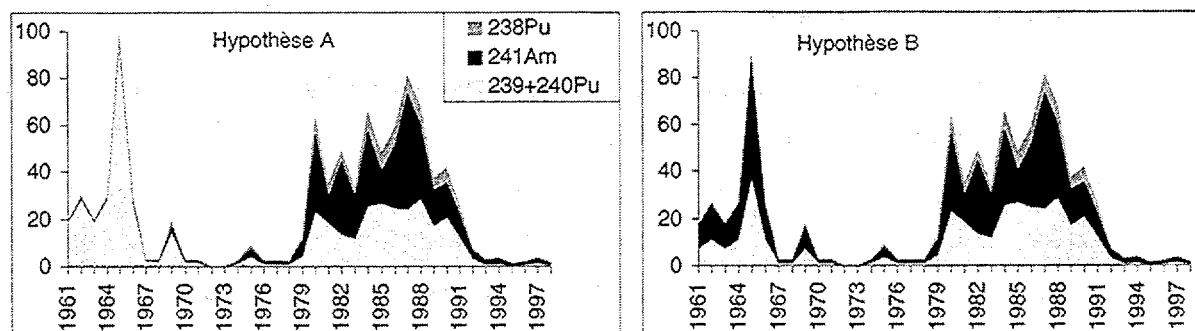


Figure III-27 : Flux de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am issus des installations de Marcoule (GBq)
(Valeurs données en Annexe 13)

Ces rejets constituent le second flux d'entrée de Pu et Am au Rhône.

Selon l'hypothèse A, entre 1961 et 1998, le Rhône aurait véhiculé 512 GBq de $^{239+240}\text{Pu}$, 96 GBq de ^{238}Pu et 322 GBq de ^{241}Am provenant des installations de Marcoule.

Selon l'hypothèse B, ces apports auraient été de 369 GBq de $^{239+240}\text{Pu}$, 87 GBq de ^{238}Pu et 449 GBq de ^{241}Am .

Les écarts à la moyenne entre les valeurs obtenues selon chacune des deux hypothèses correspondent aux incertitudes appliquées à ces données dans la suite du travail. Les flux apportés au Rhône par le centre de Marcoule sont donc de 92 ± 5 GBq de ^{238}Pu , 441 ± 72 GBq de $^{239+240}\text{Pu}$ et 386 ± 64 GBq de ^{241}Am .

5.1.3. Bilan des flux entrant

Dans le fleuve, les radionucléides Pu et Am issus du bassin versant et des installations de Marcoule subissent les mêmes phénomènes qui régissent leur transfert. Ces deux flux sont donc sommés pour la suite de ce travail (Tableau III-15).

Tableau III-15 : Flux de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am entrant dans la partie terminale du Rhône (GBq)

	<i>Bassin versant</i>	<i>Rejets Marcoule</i>	<i>Total</i>
^{238}Pu	3 ± 1	92 ± 5	95 ± 6
$^{239+240}\text{Pu}$	92 ± 28	441 ± 72	533 ± 100
^{241}Am	12 ± 4	386 ± 64	398 ± 68

On constate que les flux par le Rhône des radionucléides étudiés sont à près de 90% issus des rejets du centre de Marcoule.

5.2. Transit par le Rhône

Ces apports de Pu et Am de Marcoule au Rhône sont ensuite dissous dans la masse d'eau brute issue du drainage du bassin versant.

Etant donné que les connaissances sur les flux sortant seront quantifiées en terme de volume d'eau exporté par unité de temps, il est intéressant de ramener les activités apportées au Rhône en activités volumiques et rapports d'activités (Figure III-28), et de s'intéresser à la répartition des éléments entre les différentes phases porteuses. Pour cela, on admet qu'un état d'équilibre concernant la spéciation des radionucléides est atteint au niveau des flux de sortie.

Les activités volumiques sont calculées comme suit :

$$A_{i,Rhône} = \frac{\varphi_{i,BV} + \varphi_{i,Marcoule}}{Q_i}$$

où $A_{i,Rhône}$ est l'activité volumique de l'isotope i en entrée du Bas-Rhône ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$),

$\varphi_{i,BV}$ est le flux annuel de l'isotope i apporté par érosion du bassin versant ($\text{Bq}\cdot\text{an}^{-1}$),

$\varphi_{i,Marcoule}$ est le flux annuel de l'isotope i apporté par les rejets du centre de Marcoule ($\text{Bq}\cdot\text{an}^{-1}$),

Q_i est le débit liquide annuel moyen du Rhône au niveau de Marcoule ($\text{m}^3\cdot\text{an}^{-1}$).

Les rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ moyens correspondent aux rapports des activités

volumiques moyennes calculées pour chaque année : $\frac{^{238}\text{Pu}}{^{239+240}\text{Pu}} = \frac{A_{238,Rhône}}{A_{239+240,Rhône}}$.

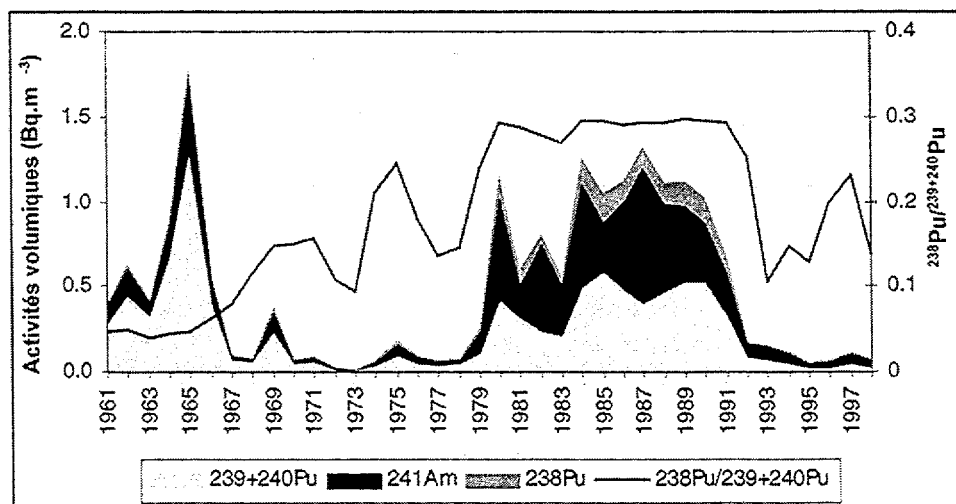


Figure III-28 : Evolution des activités volumiques moyennes annuelles de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$), et du rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dans le Rhône en entrée du Bas-Rhône (Annexe 14)

Les travaux de Charmasson (1999) ont permis de déterminer la part des radionucléides artificiels émetteurs gamma (notamment ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{106}Ru , ^{125}Sb) rejetés par le complexe de Marcoule au Rhône transitant vers la Méditerranée sous forme dissoute. Pour cela, l'auteur a établi une corrélation entre les activités mesurées dans l'eau du Rhône à Fourques et les activités volumiques rejetées. Les mesures concernant Pu et Am dissous dans l'eau du Rhône sont quasi-inexistantes. Noël mentionne plusieurs mesures de Pu effectuées sur les MES (Matières en suspension) à Arles entre 1984 et 1995 (Noël, 1996). En se basant sur ces résultats, une éventuelle relation entre les activités volumiques liées aux MES mesurées et les activités volumiques totales entrant dans le Rhône est recherchée (Figure III-29).

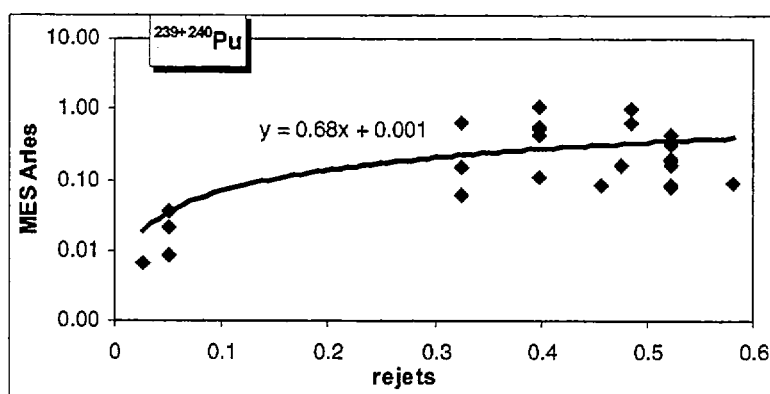


Figure III-29 : Relation linéaire entre les activités de $^{239+240}\text{Pu}$ mesurées dans les MES à Arles (Bq.m^{-3}) et les activités volumiques rejetées (Bq.m^{-3})

La valeur de la pente moyenne de la courbe établissant une relation linéaire entre les activités mesurées et les activités globales estimées donne une information qui paraît cohérente avec les connaissances actuelles sur le comportement du Pu en milieu aquatique, principalement associé aux particules en suspension. En effet, la relation établie ici de façon empirique indique qu'environ 70% de l'activité volumique en Pu entrant dans le Bas-Rhône est décelée dans les MES à Arles. Sachant que les activités arrivant effectivement à Arles ont été diluées par les apports des affluents du Rhône en aval de Marcoule (Cèze, Gardon, Aygues, Ouvèze et Durance augmentent le débit annuel moyen du Rhône de 10%), on peut conclure que 80% des activités présentes au niveau de Marcoule qui sont associées aux MES.

Or, il a été montré par ailleurs que, dans des échantillons d'eau du Rhône prélevés à Arles, 85% du Pu présent est associé aux MES (Eyrolle, 1998). En couplant ces deux informations, on en déduit que, en régime normal, environ 94%, soit la quasi-totalité du plutonium entrant dans le Bas-Rhône est disponible en sortie du système. Les pertes, que l'on peut attribuer aux phénomènes de sédimentation au niveau des barrages du fleuve en aval de Marcoule, sont minimales.

Un tel calcul n'est pas possible pour l'américium pour lequel trop peu de résultats de mesures par spectrométrie alpha existent dans des échantillons d'eau du Rhône. Néanmoins, la bibliographie nous apprend que le coefficient de distribution K_d entre phase solide et phase liquide pour cet élément est légèrement inférieur à celui du plutonium ($5 \cdot 10^3 \text{ l.kg}^{-1}$ selon l'IAEA (1994) ; $4 \cdot 10^5 \text{ l.kg}^{-1}$ selon Grauby *et al.* (1986). En appliquant $K_d = 10^4 \text{ l.kg}^{-1}$, on estime que 67% de l'Am se trouve sous forme particulaire dans le Rhône (contre 85% pour le Pu).

La répartition des flux de plutonium et américium entre les différentes phases physiques dans le milieu aquatique est déduite de l'ensemble des informations obtenues ci-dessus (Tableau III-16).

Tableau III-16 : Flux d'activités transitant par le Bas-Rhône de 1961 à 1998 selon leur support physique dans le fleuve

Support physique	MES		Dissous / colloïdal	
	Part	Flux (GBq)	Part	Flux (GBq)
^{238}Pu	85%	81 ± 5	15%	14 ± 1
$^{239+240}\text{Pu}$	85%	453 ± 85	15%	80 ± 15
^{241}Am	67%	267 ± 46	33%	131 ± 22

5.3. Flux sortant

Même si le principal flux de sortie du Rhône se fait vers la Méditerranée (Charmasson, 1999), dans le cadre de cette étude portant sur le milieu terrestre, il est nécessaire de définir les possibles voies de retour des radionucléides vers celui-ci. Il est possible de distinguer deux principales sources de prélèvements chroniques d'eau vers les sols et les végétaux terrestres par irrigation : le canal BRL, et les pompages effectués par les riziculteurs en Camargue.

5.3.1. Le canal B.R.L.

Le volume moyen prélevé annuellement est de $105 \cdot 10^6 \text{ m}^3$, dont 76% d'avril à septembre, période où la demande en eau est la plus importante (BRL-E, 1998).

5.3.1.1. Calculs des flux dans le canal

Ayant déjà établi que les activités volumiques de l'eau du Rhône en sortie du système étaient comparables à celles qui ont été évaluées en entrée, il est maintenant possible de calculer les flux moyens annuels de Pu et d'Am associés aux prélèvements par le canal BRL depuis 1961 :

$$F_{i,BRL} = \sum_{1961}^{1998} (A_{i,Rhône} \times V_{BRL})$$

où $F_{i,BRL}$: Flux total de l'isotope i exporté vers le canal BRL (Bq),

$A_{i,Rhône}$: Activité volumique moyenne annuelle de l'isotope i dans l'eau du Rhône ($Bq \cdot m^{-3}$),

V_{BRL} : Volume moyen annuel pompé par BRL (m^3).

Les flux moyens annuels de ^{238}Pu , $^{239+240}Pu$ et ^{241}Am exportés vers le canal sur la période 1961-1998 sont respectivement de $0,19 \pm 0,01$, $1,0 \pm 0,2$ et $0,77 \pm 0,13$ GBq.

Afin de limiter les apports de matières solides gênants, un canal d'aménée de 12 km de long sert de milieu de décantation des eaux du Rhône pompées. Ainsi, à l'aval de ce canal d'aménée, la teneur en MES est assez régulière de l'ordre de $10 \text{ mg} \cdot l^{-1}$, alors que dans le Rhône la teneur moyenne est de $65 \text{ mg} \cdot l^{-1}$. On peut donc estimer que près de 85% des MES pompées au Rhône sont piégées dans le canal d'aménée. Ce phénomène a d'ailleurs conduit la compagnie d'exploitation du canal à devoir effectuer un curage des premiers kilomètres du tronçon en 1991. Connaissant la répartition entre apports particuliers et apports dissous, une première approximation conduirait à considérer que 85% de l'activité liée aux MES reste stockée dans le canal d'aménée. En appliquant ce pourcentage de perte aux flux annuels de MES pompés au Rhône, on en déduit alors les flux cumulés de Pu et Am en sortie du canal d'aménée (Tableau III-17).

Tableau III-17 : Flux totaux d'activités et activités volumiques moyennes de l'eau en sortie du canal d'aménée BRL (1961 à 1998)

	Flux totaux d'activité ($\cdot 10^6$ Bq)			Activité volumique ($\cdot 10^6$ Bq.l ⁻¹)		
	MES	Dissous	Total	minimum	maximum	moyenne
^{238}Pu	24 ± 1	29 ± 2	53 ± 3	0,2	45	13
$^{239+240}Pu$	128 ± 24	151 ± 28	279 ± 52	2,3	340	67
^{241}Am	78 ± 13	255 ± 43	333 ± 56	0,4	340	82

Les activités de ^{238}Pu , $^{239+240}Pu$ et ^{241}Am piégées dans le canal d'aménée de 1961 à 1998 sont alors évaluées respectivement à $(138 \pm 8) \cdot 10^6$, $(728 \pm 136) \cdot 10^6$, et $(559 \pm 95) \cdot 10^6$ Bq. Suite à ces pertes d'activités dues à une forte sédimentation dans le canal d'aménée, le flux de Pu ou Am dans le réseau d'irrigation BRL sous forme dissoute devient supérieur à celui qui se fait par l'intermédiaire des MES.

5.3.1.2. Apports aux sols et cultures par l'irrigation

Les apports liés à l'irrigation sont très variables, dépendant du type de culture et du mode d'irrigation.

Les évaluations moyennes qui sont effectuées ci-après sont appliquées à l'exemple du site d'expérimentation du Mas d'Asport, sur lequel ont été réalisées les mesures dont nous disposons. L'eau utilisée pour irriguer les cultures est filtrée à 100µm, ce qui réduit d'autant plus les apports sous forme particulaire vers le milieu terrestre. Cette perte d'activité n'étant pas quantifiée, on se placera dans le cas pénalisant où aucun radionucléide ne serait retenu par les dispositifs de filtration.

Sur cette zone, l'irrigation par aspersion est pratiquée depuis 30 ans, avec un apport moyen d'eau de 600 l.m⁻².an⁻¹. Il est possible d'évaluer les dépôts moyens de ²³⁸Pu, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et ²⁴¹Am originaires du Rhône, soit respectivement 0,27±0,02 Bq.m⁻², 1,0±0,2 Bq.m⁻² et 1,6±0,3 Bq.m⁻². Comme présenté dans le tableau III-18, ces estimations, bien que majorantes, donnent des apports qui restent très faibles par rapport aux activités héritées des retombées directes. Ces dernières sont calculées d'après l'équation III-1 qui donne le dépôt moyen de ²³⁹⁺²⁴⁰Pu en fonction de la pluviométrie, et dont on a déjà vérifié la validité.

L'augmentation de l'activité de ²³⁸Pu de 23% entraîne la hausse du rapport ²³⁸Pu/²³⁹⁺²⁴⁰Pu qui est alors estimé à 0,035 dans les sols irrigués de 1969 à 1998.

Tableau III-18 : Bilan des activités surfaciques des sols irrigués depuis 30 ans au Mas d'Asport (Bq.m⁻²). P : Pluviométrie moyenne

	Retombées globales (P= 700 mm)	Dépôts par irrigation	Total
²³⁸ Pu	1,5 ± 0,1	0,27 ± 0,02	1,8 ± 0,1
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	51 ± 3	1,0 ± 0,2	52 ± 3
²⁴¹ Am	19 ± 1	1,6 ± 0,3	20 ± 1
²³⁸ Pu/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	0,029 ± 0,004	0,27 ± 0,07	0,035 ± 0,004

5.3.1.3. Comparaison avec les activités mesurées

3 résultats de mesures effectuées en 1997 (IPSN, 1999) sont disponibles au Mas d'Asport. Ceux-ci sont présentés dans le tableau III-19 en termes d'activités surfaciques.

Les activités mesurées et les activités estimées suite aux calculs des flux apportés par l'irrigation sont peu différentes. Les estimations de flux semblent donc très robustes malgré le grand nombre d'hypothèses qui ont dû être posées.

Tableau III-19 : Activités surfaciques mesurées dans les échantillons de sols irrigués du Mas d'Asport ($Bq.m^{-2}$)

Date de prélèvement	11/08/97	20/08/97	19/09/97
^{238}Pu	$1,8 \pm 0,4$	$2,6 \pm 0,5$	$2,2 \pm 0,4$
$^{239+240}\text{Pu}$	$44,1 \pm 2,5$	$63,4 \pm 3,8$	$53,8 \pm 2,5$
^{241}Am	$16,4 \pm 1,3$	$26,5 \pm 2,1$	$20,2 \pm 1,7$
$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	$0,04 \pm 0,01$	$0,04 \pm 0,01$	$0,04 \pm 0,01$

5.3.2. La riziculture camarguaise

Pendant les 150 jours que dure une campagne rizicole en Camargue, le volume d'eau fourni est d'environ $28000 \text{ m}^3.\text{ha}^{-1}$ (Chauvelon, 1996). Les surfaces rizicoles actuelles occupent quelques 15000 ha, mais depuis 1960, leur étendue a fortement fluctué. En 1960, 16500 ha étaient déjà exploités pour le riz, mais cette superficie est passée à 3500 ha en 1981. Un plan de relance du riz a alors inversé la tendance (Figure III-30).

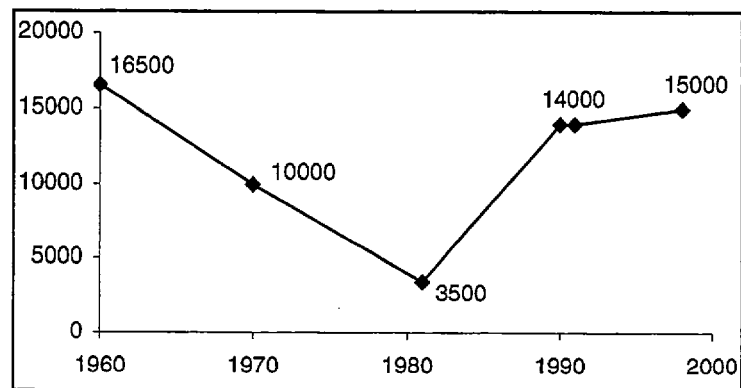


Figure III-30 : Evolution des surfaces rizicoles en Grande Camargue depuis 1960 (ha)

5.3.2.1. Calculs des flux empruntés au Rhône

Le volume total d'eau prélevé au Rhône depuis 1961 représente un flux d'activité quantifié ci-dessous :

$$F_{i,Riz} = \sum_{1961}^{1998} (A_{i,Rhône} \times V_{Riz})$$

où $F_{i,Riz}$: Flux total de l'isotope i prélevé au Rhône pour l'irrigation des rizières en Camargue (Bq),

$A_{Rhône}$: Activité volumique moyenne annuelle de l'isotope i dans l'eau du Rhône ($Bq.m^{-3}$),

V_{Riz} : Volume moyen annuel pompé par l'ensemble des stations de pompage en Camargue (m^3).

Les flux totaux de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am pompés au Rhône sur la période 1961-1998 sont respectivement de $0,50 \pm 0,03$, $3,0 \pm 0,6$ et $2,0 \pm 0,3$ GBq.

5.3.2.2. Apports aux sols et cultures

Les flux d'activité empruntés au fleuve ne sont pas transférés de manière intégrale aux rizières. Comme pour le système d'irrigation BRL, il y a des pertes d'activités, dues notamment aux piégeages des MES lors des conceptions d'eau dans les canaux d'irrigation. Ces pertes paraissent difficiles à estimer à cause de la multiplicité des conduites réalisées afin d'amener l'eau vers chacune des parcelles agricoles. Il est dans tous les cas sûr qu'une sédimentation s'opère, car les exploitants attestent de curages réguliers. Néanmoins, les produits de ces curages sont ensuite déposés sur les sols de rizières ou utilisés pour construire les lévadons^{*}. Pour la suite des calculs et afin de se placer dans le cas le plus pénalisant, on choisit de considérer que toute l'activité pompée dans le Rhône est apportée aux sols de rizières.

Contrairement aux sols irrigués par l'intermédiaire du canal BRL, les sols de rizières n'accumulent pas la totalité des activités qu'ils reçoivent par irrigation. Les pratiques culturales en Camargue sont généralement basées sur le principe de « surverse » afin de maintenir une hauteur d'eau constante dans la rizière. Ainsi, sur les 28 000 m³ d'eau apportés sur chaque hectare de rizière pendant une saison, 8 000 à 12 000 m³ sont exportés vers un réseau de drainage (Chauvelon, 1996), qui draine alors ces eaux soit gravitairement vers l'étang du Vaccarès, soit vers le Rhône par l'intermédiaire de pompes de refoulement. Il a déjà été montré par ailleurs (Lambrechts *et al.*, 1998) que les sédiments de fond de ces canaux d'assainissement des rizières étaient marqués par le plutonium originaire du centre de Marcoule. Il y a donc bien encore un transfert d'activité qui se fait des rizières vers ces canaux. Il s'agit de quantifier la part d'activité qui reste stockée au niveau des sols de rizières. Une estimation moyenne de 18 000 m³.ha⁻¹ nets d'eau restant au niveau de la rizière conduit aux évaluations des activités totales déposées sur un sol où l'on cultiverait le riz depuis 10 ans (Tableau III-20). Ces activités apportées sont cumulées aux retombées globales directes sur cette région de Camargue où la pluviométrie moyenne est de 600 mm/an.

^{*} Lévadon : levée de terre constituée autour de chaque rizière afin de contenir le niveau d'eau suffisant à la culture.

Tableau III-20 : Bilan des activités surfaciques d'un sol de rizière irrigué annuellement de 1989 à 1998 ($Bq.m^{-2}$). P : Pluviométrie moyenne

	Retombées globales (P=600 mm)	Dépôts par irrigation	Total
^{238}Pu	1,35 ± 0,08	0,83 ± 0,05	2,2 ± 0,1
$^{239+240}\text{Pu}$	45,5 ± 2,7	3,1 ± 0,6	49 ± 3
^{241}Am	18,6 ± 1,1	2,6 ± 0,4	21 ± 2
$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	0,029 ± 0,004	0,27 ± 0,07	0,045 ± 0,005

5.3.2.3. Comparaison avec des activités mesurées

Les seuls résultats de mesures sur des sols de rizières, en dehors de la zone inondée en 1993 et 1994 disponibles avant 1998, sont issus d'échantillons prélevés à Fourques (Lumia *et al.*, 1995 ; Descamps *et al.*, 1996, 1997). Dans le cadre de ce travail, le résultat de mesure sur un autre échantillon de sol de rizière prélevé au Mas du Grand Manusclas dans le bassin de Fumemorte est donné à titre comparatif. Le prélèvement de cet échantillon a été fait également dans le but d'étudier le transfert du sol au riz, et sera à ce titre détaillé dans le chapitre suivant.

La comparaison de ces résultats de mesures (Tableau III-21) avec les estimations faites plus haut ne peut être réalisée qu'à titre indicatif. En effet, le calcul a été fait dans l'exemple d'un sols type irrigué pendant les dix dernières années, ce qui ne correspond pas forcément à chacun des sols prélevés.

Tableau III-21 : Activités surfaciques mesurées dans les échantillons de sols de rizières prélevés à Fourques et Fumemorte ($Bq.m^{-2}$)

Date de prélèvement	07/10/93	04/10/94	12/10/95	30/09/98
Lieu	Fourques	Fourques	Fourques	Fumemorte
^{238}Pu	1,8 ± 0,4	2,6 ± 0,5	2,2 ± 0,4	2,4 ± 0,3
$^{239+240}\text{Pu}$	44,1 ± 2,5	63,4 ± 3,8	53,8 ± 2,5	63,0 ± 2,5
^{241}Am	16,4 ± 1,3	26,5 ± 2,1	20,2 ± 1,7	21,8 ± 3,3
$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	0,04 ± 0,01	0,04 ± 0,01	0,04 ± 0,01	0,037 ± 0,005

Les estimations des flux apportés aux sols de rizières semblent plausibles aux vues des différents résultats de mesures obtenus.

5.4. Conclusion sur les zones irriguées

Le principal flux de transuraniens dans la basse vallée du Rhône se fait par l'intermédiaire du fleuve. Celui-ci est alimenté depuis 1945 par les apports issus de l'érosion des sols du bassin versant qui ont été modélisés, et depuis 1961 par les rejets des installations de Marcoule. Les zones irriguées par cette eau portent de façon plus ou moins perceptible la marque de cet ajout d'activité. C'est le cas des sols du Mas d'Asport, irrigués par l'intermédiaire du canal BRL depuis plusieurs dizaines d'années, et des sols de rizières en Camargue. Les activités apportées vers le milieu terrestre à partir du Rhône ont été estimées (Tableaux III-22). Elles sont faibles par rapport aux activités exportées vers la Méditerranée.

Tableau III-22 : Bilan des flux d'activités entrant et sortant du Bas-Rhône

	Terme source ou terme puits	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am	Total (Pu+Am)
Flux entrant	Bassin versant	3 ± 1	92 ± 28	12 ± 4	107 ± 33
	Marcoule	92 ± 5	441 ± 72	386 ± 64	919 ± 141
Flux sortant	Canal BRL	$0,19 \pm 0,01$	$1,0 \pm 0,2$	$0,8 \pm 0,1$	$2,0 \pm 0,3$
	Riziculture	$0,50 \pm 0,03$	$3,0 \pm 0,6$	$2,0 \pm 0,3$	$5,5 \pm 0,9$
	Méditerranée	95 ± 6	529 ± 101	395 ± 68	1020 ± 175

6. Les zones inondées de Camargue

Les deux inondations qui ont eu lieu en octobre 1993 et janvier 1994 (cf. Chap.I) ont engendré des apports sédimentaires importants en Camargue auxquels sont liés des apports de Pu et Am. L'étude des résultats de mesures sur des échantillons prélevés dans l'aire inondée montre des valeurs d'activités importantes associées à des rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ forts, comme par exemple à Figarès ou Albaron (cf. Figure III-2).

Bien que l'on connaisse les limites de l'extension des 20000 ha inondés (Figure III-31), les apports totaux d'activités et leur répartition sur cette zone sont inconnus. Cette partie du travail doit permettre de les évaluer en couplant résultats de calculs et de mesures.

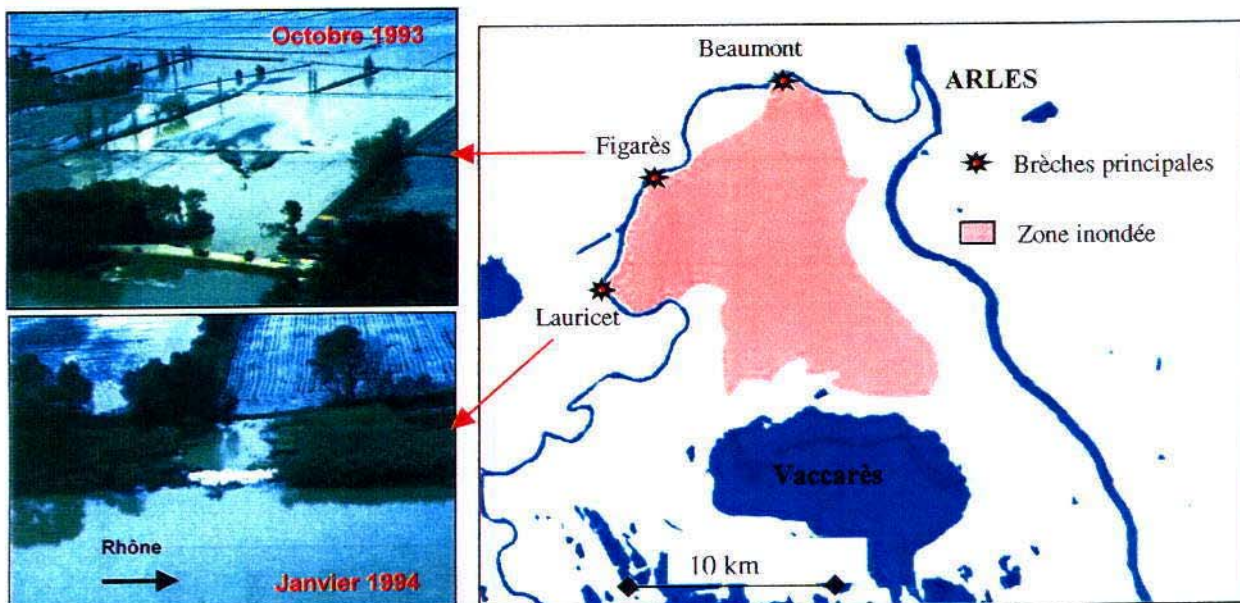


Figure III-31 : Etendue globale des inondations de 1993-1994 et vues des deux brèches majeures après leur comblement

6.1. Estimation des apports totaux

La démarche suivie ici est différente de celle qui a été utilisée pour les estimations des apports chroniques par irrigation. En effet, les flux d'activités transportés par le Rhône déjà calculés sont des moyennes annuelles, représentatives d'un régime moyen du fleuve. Lors des crues, ce régime a été totalement modifié, une part importante des matériaux transportés en suspension provenait des remises en suspension de sédiments accumulés dans le lit du Rhône ou piégés par les barrages en aval du centre de Marcoule. Les activités volumiques effectives dans l'eau du Rhône durant cette période ne sont donc pas quantifiables par la modélisation dans l'état actuel des connaissances sur le fonctionnement du Bas-Rhône en période de crue.

Les charges solides dans le fleuve pendant les deux épisodes de crue étant très importantes, on considère que les flux d'activités en Pu et Am importés en Camargue sous forme dissoute lors des inondations sont négligeables vis-à-vis des flux sous forme particulaire.

Une première estimation des volumes de sédiments importés par les différentes brèches a été proposée à partir des données hydrologiques mesurées (débit, charge en suspension, etc.) (Pont, 1997a). Ceux-ci seraient de 226000 t en octobre 1993 et 165000 t en janvier 1994, soit 391000 t au total.

Selon ces estimations, les flux d'activités associés aux deux inondations peuvent être calculés à condition de connaître les activités massiques des sédiments importés.

6.1.1. Activités massiques des apports sédimentaires

Aux débits atteints pendant les crues de 1993 et 1994, COGEMA-Marcoule n'a plus l'autorisation d'effectuer des rejets (Figure III-32).

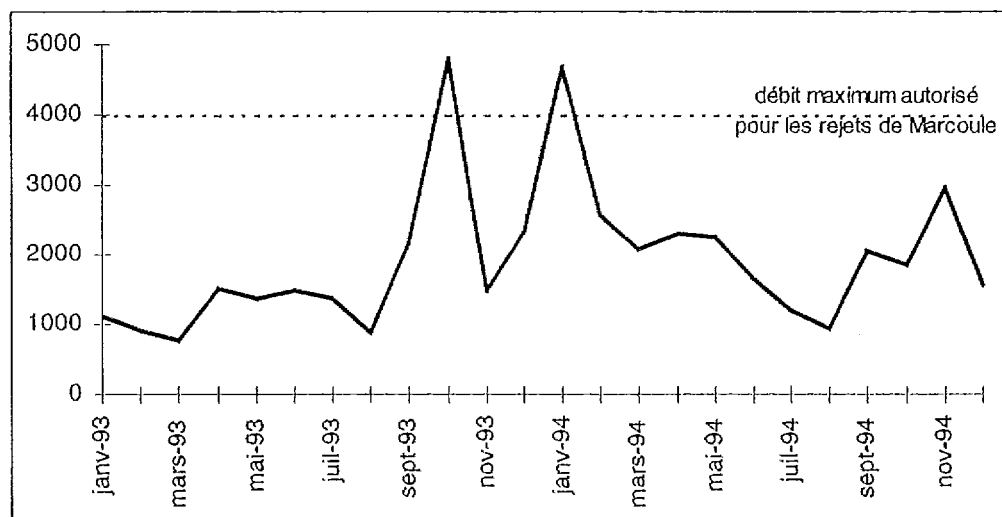


Figure III-32 : Evolution des débits liquides ($m^3.s^{-1}$) mesurés à Caderousse par la CNR

Par conséquent, la contamination des MES au moment des ruptures de digues est liée d'une part aux apports par érosion du bassin versant, et d'autre part, à la reprise de sédiments du lit du fleuve en aval des installations de Marcoule, portant le marquage d'une contamination plus ancienne. Seule la mesure peut nous donner l'information nécessaire concernant les activités massiques des sédiments importés et déposés à l'intérieur de la Camargue lors des inondations.

Pendant le second épisode d'inondation, en janvier 1994, d'importants dépôts sédimentaires se sont produits de façon visible dans des lieux particuliers. C'est notamment le cas face à la brèche de Lauricet (Figure III-31), où des témoignages d'habitants font état d'un déblaiement important suite au retrait définitif des eaux.

C'est à partir du tas constitué avec ces sédiments qu'un échantillon de référence a été constitué et mesuré (Tableau III-23).

Tableau III-23 : Activités de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am (mBq.kg^{-1}) et rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les sédiments déposés par les inondations en Camargue

Date de prélèvement	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
27/04/2000	$38,8 \pm 2,6$	231 ± 9	212 ± 7	$0,17 \pm 0,01$

6.1.2. Flux total d'activité apporté

En faisant l'hypothèse que la totalité du sédiment apporté lors des deux inondations avait l'activité massique de l'échantillon de référence, les flux d'activités importées en Camargue peuvent être estimés (Tableau III-24) :

$$F_i = m \times A_i$$

où F_i : Flux total d'activité en radionucléide i importée en Camargue lors des inondations (Bq),

m : masse de sédiments importée en Camargue lors des inondations (kg sec),

A_i : Activité massique en radionucléide i dans les sédiments importés (Bq.kg^{-1} sec).

Tableau III-24 : Flux total de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am apporté par les inondations ($\cdot 10^6$ Bq)

	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am
Flux	$15,2 \pm 1$	90 ± 3	83 ± 3

6.1.3. Répartition des radionucléides déposés

Sachant que la masse volumique du sédiment de référence est de 1600 kg.m^{-3} , le calcul d'une épaisseur moyenne de dépôt sédimentaire sur les 13000 ha submergés donne 1,9 mm.

Or, cette estimation n'est pas représentative de la réalité car les dépôts ont été répartis de manière très hétérogène, avec des accumulations visibles sur les surfaces les plus proches des brèches. La configuration et la quantification de ce dépôt ne peuvent être étudiées que par une campagne de mesures *in situ*.

L'étendue de l'aire inondée étant trop importante pour envisager un échantillonnage complet, il apparaît plus opportun de réaliser des mesures sur une surface réduite. La zone de travail est alors choisie afin de fournir des informations sur le flux d'activité apporté et sa répartition sur les sols.

6.2. Etude particulière des apports par la brèche de Lauricet

Le choix se porte immédiatement sur les environs de la brèche de Lauricet, à laquelle la mesure du sédiment de référence correspond.

6.2.1. Plan d'échantillonnage

7 échantillons de sols cultivés ont été prélevés le 20 avril 2000 face à l'emplacement de l'ancienne brèche de Lauricet (Figure III-33). Chaque échantillon correspond à trois prélèvements élémentaires opérés grâce à une tarière à piston sur une profondeur de 20cm dans un rayon de 2m.

Les échantillons numérotés de 1 à 4 ont été prélevés le long d'un transect A-B correspondant au sens d'écoulement de l'eau lors de l'inondation de janvier 1994. Le point de prélèvement de l'échantillon n°4 est à 500 m de la digue.

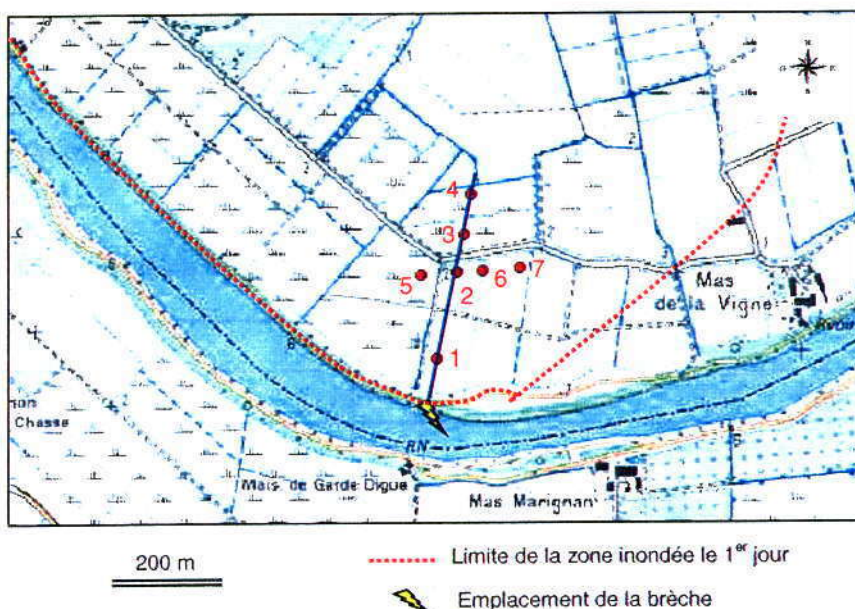


Figure III-33 : Points de prélèvements de sols cultivés face à la brèche de Lauricet

Les échantillons 1, 2, 6 et 7 proviennent de champs de luzerne. Les échantillons 3 et 4 ont été prélevés dans des rizières. L'échantillon 5 est issu d'un champ de blé.

6.2.2. Résultats de mesures

Les résultats des mesures alpha pratiquées sur ces échantillons sont présentés dans le tableau III-25.

Tableau III-25 : Activités en ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am ($\text{mBq.kg}^{-1}\text{sec}$) et rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ mesurés sur les échantillons de sols cultivés prélevés face à la brèche de Lauricet

Echantillon	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
n°1	23.9 ± 1.7	207.9 ± 7.8	151.5 ± 8.7	0.115 ± 0.009
n°2	10.4 ± 1.2	196.3 ± 7.7	100.1 ± 4.8	0.053 ± 0.006
n°3	15.5 ± 1.3	150.2 ± 5.9	106.0 ± 3.9	0.103 ± 0.009
n°4	15.3 ± 1.3	181.5 ± 6.7	100.3 ± 4.8	0.084 ± 0.008
n°5	16.4 ± 1.4	166.3 ± 5.8	113.8 ± 4.9	0.099 ± 0.009
n°6	10.3 ± 1.1	188.7 ± 6.8	82.4 ± 4.0	0.055 ± 0.006
n°7	31.0 ± 1.8	252.7 ± 8.7	171.7 ± 6.8	0.123 ± 0.008

Tous les échantillons présentent des activités massiques et des rapports d'activités supérieurs aux valeurs rencontrées dans les sols cultivés de la basse vallée du Rhône non influencés par les rejets de Marcoule (Figure III-34 et III-35).

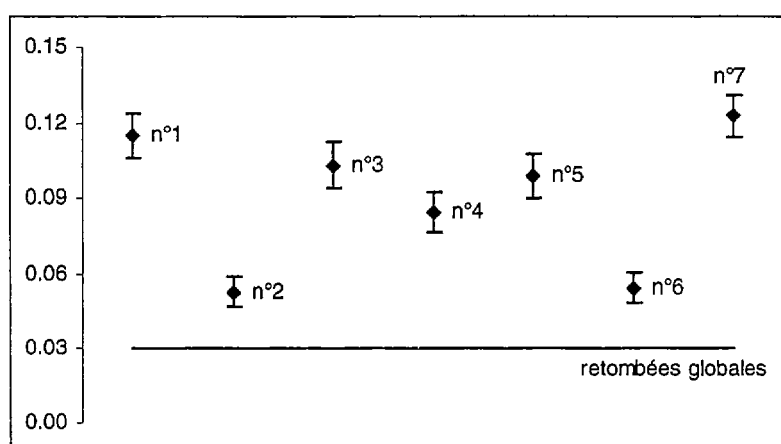


Figure III-34 : Rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les échantillons prélevés face à la brèche de Lauricet ; comparaison avec le rapport caractéristique des retombées globales

Les activités massiques maximales sont mesurées dans les échantillons n°1 et 7. Les moins fortes ne correspondent pas aux mêmes échantillons selon l'isotope étudié.

Les rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ les plus élevés sont mesurés dans les échantillons n°1 et 7 ; les plus faibles dans les échantillons n°2 et 6.

D'après les propriétaires des parcelles cultivées sur lesquelles ces prélèvements ont été effectués, une partie des dépôts sédimentaires visibles suite aux inondations ont été déblayés. Ces travaux ont été effectués aux environs des prélèvements n°2 et 6. Cela explique qu'ils présentent les rapports d'activités les plus faibles. Ils doivent donc être exclus de l'interprétation.

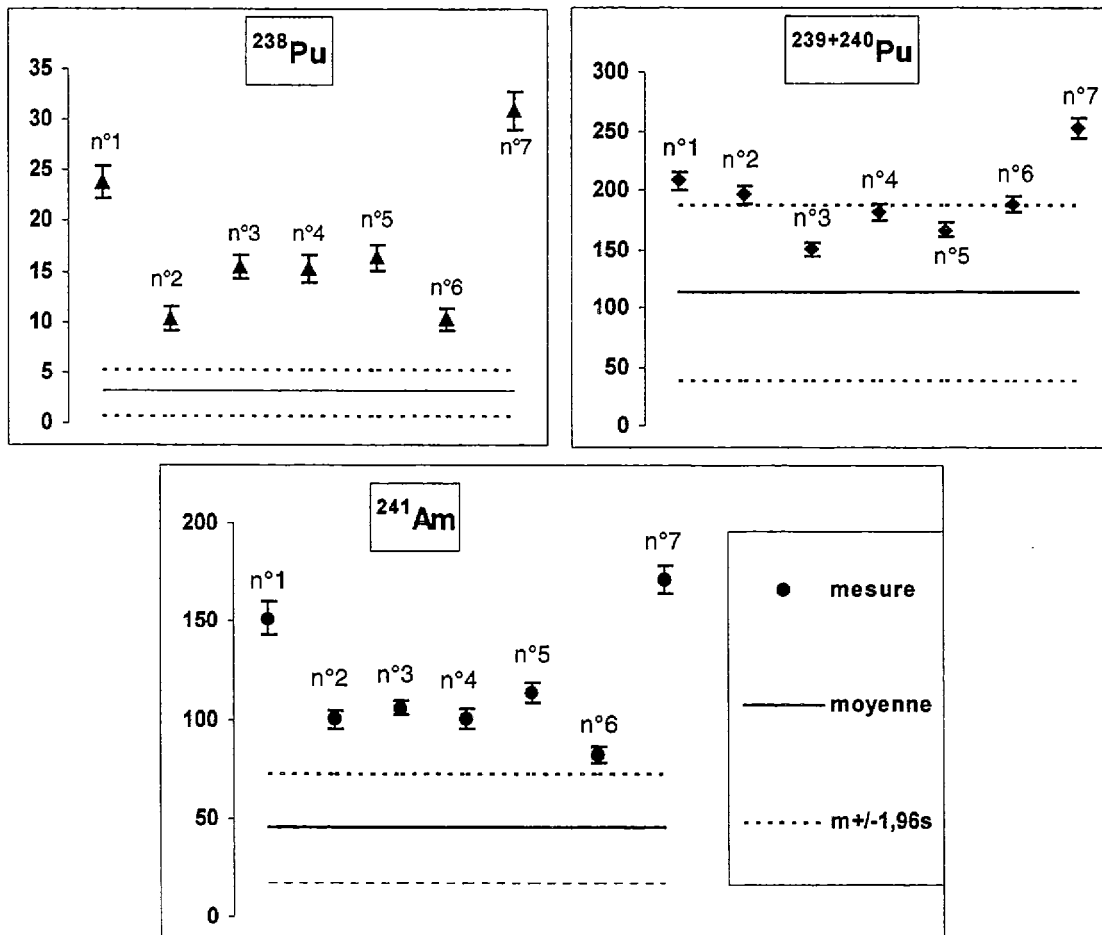


Figure III-35 : Activités massiques ($mBq.kg^{-1} sec$) des échantillons prélevés face à la brèche de Lauricet ; comparaison avec les intervalles de confiance à 95% des sols cultivés non influencés.

6.2.3. Evaluation des épaisseurs de sédiments déposés

Cette partie permet de montrer le principe développé afin de quantifier un dépôt sédimentaire à partir de données de mesures ponctuelles. L'application au cas réel de la brèche de Lauricet est présenté à titre d'exemple, mais il serait nécessaire d'effectuer un plus grand nombre de mesures afin d'établir de façon certaine les résultats proposés ici.

Le rapport d'activité $^{238}Pu/^{239+240}Pu$ de $0,17 \pm 0,01$ mesuré sur l'échantillon de référence peut être utilisé comme traceur des apports sédimentaires.

Chaque sol ayant reçu des dépôts de sédiments du Rhône lors de cette inondation montre un rapport d'activité $^{238}Pu/^{239+240}Pu$ témoin du mélange entre ces apports et les activités des sols dues aux contaminations globales antérieures. On peut donc établir une loi de mélange entre les activités déposées et les activités des sols avant les inondations, de laquelle on tire la part de $^{239+240}Pu$ issue des apports de sédiments dans le mélange :

$$\%({}^{239+240}\text{Pu})_{\text{sédiment}} = \frac{R_{\text{mélange}} - R_{\text{retombées}}}{R_{\text{sédiment}} - R_{\text{retombées}}} \times 100$$

où $R_{\text{mélange}}$ est le rapport d'activité ${}^{238}\text{Pu}/{}^{239+240}\text{Pu}$ mesuré dans un sol inondé,
 $R_{\text{sédiment}}$ est le rapport d'activité ${}^{238}\text{Pu}/{}^{239+240}\text{Pu}$ des sédiments apportés (0,17);
 $R_{\text{retombées}}$ est le rapport d'activité ${}^{238}\text{Pu}/{}^{239+240}\text{Pu}$ des retombées globales (0,03).

A partir de là, il est possible d'établir l'épaisseur e du dépôt sédimentaire attribuable aux inondations :

$$e = h \times \frac{R_{\text{mélange}} - R_{\text{retombées}}}{R_{\text{sédiment}} - R_{\text{retombées}}} \times \frac{A({}^{239+240}\text{Pu})_{\text{mélange}}}{A({}^{239+240}\text{Pu})_{\text{sédiment}}}$$

où h est la profondeur du mélange (mm) ,

$A({}^{239+240}\text{Pu})_{\text{mélange}}$ est l'activité massique en ${}^{239+240}\text{Pu}$ mesurée dans un sol inondé,

$A({}^{239+240}\text{Pu})_{\text{sédiment}}$ est l'activité massique en ${}^{239+240}\text{Pu}$ dans les sédiments déposés.

A partir des valeurs de rapports d'activités mesurés dans les échantillons prélevés face à la brèche de Lauricet (sauf n°2 et 6), on peut utiliser l'équation ci-dessus pour estimer en chaque point l'épaisseur du dépôt sédimentaire occasionné par l'inondation (Tableau III-26).

Tableau III-26 : Epaisseur du dépôt sédimentaire estimée pour les échantillons n°1, 3, 4, 5 et 7 prélevés face à la brèche de Lauricet.

	e (mm)
n°1	110± 13
n°3	68± 9
n°4	61± 8
n°5	71± 9
n°7	145± 15

Les échantillons 1, 3 et 4 ont été prélevés le long du transect A-B, au droit de la brèche. Les épaisseurs de dépôts diminuent linéairement avec la distance à la brèche (Figure III-36).

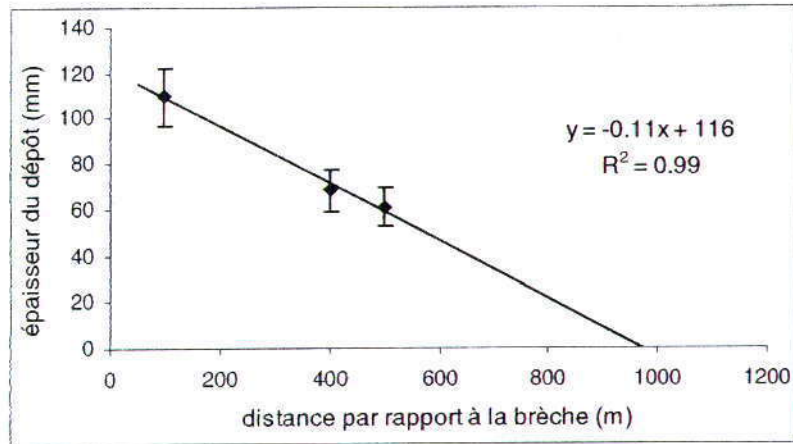


Figure III-36 : Epaisseur du dépôt sédimentaire au droit de la brèche de Lauricet

Selon cette modélisation, le dépôt de sédiments se serait fait jusqu'à une distance maximale d'environ 1 km. Cela constitue la première hypothèse utilisée afin d'essayer d'évaluer le volume total de sédiments introduit en Camargue par cette brèche.

On suppose que la totalité du dépôt a eu lieu pendant le premier jour. Les limites d'extension du dépôt sont donc imposées par cette seconde hypothèse (cf. Figure III-31).

A partir des épaisseurs estimées des dépôts aux emplacements des prélèvements et des deux conditions aux limites exprimées ci-dessus, une carte issue de l'interpolation des épaisseurs de dépôts en chaque point est dressée (Figure III-37).

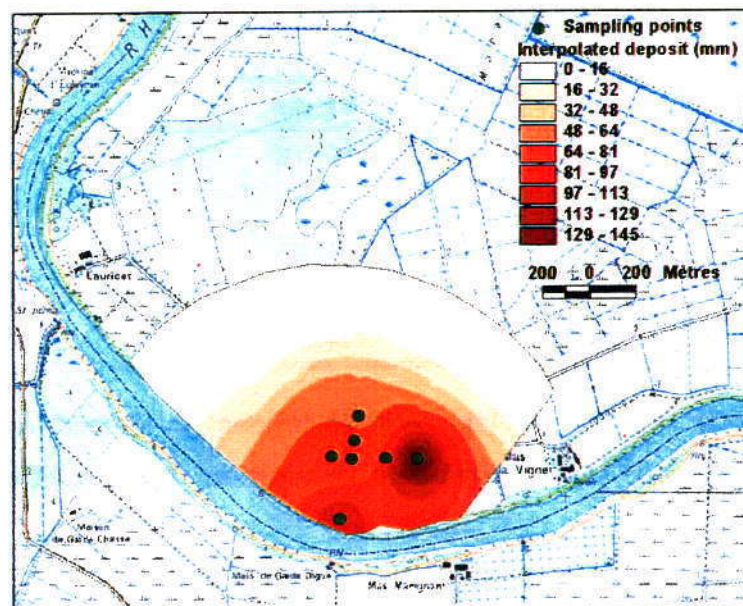


Figure III-37 : Modélisation des épaisseurs de dépôts sédimentaires face à la brèche de Lauricet

Le volume total de sédiments qui auraient été déposés dans cette zone est évalué à partir de cette modélisation à 70 000 m³.

La masse volumique de ces sédiments étant de 1600 kg.m^{-3} (d'après l'échantillon de référence), il y aurait donc 112 000 t de sédiments qui auraient été introduits par cette brèche. Le Parc Naturel de Camargue indique que lors de l'inondation de janvier 1994, sur 60.10^6 m^3 au total, 43.10^6 m^3 d'eau sont passés par la brèche de Lauricet (Vianet, 1994). Cela permet de déduire que la charge solide de l'eau ayant pénétré par cette voie aurait été de $2,6 \text{ g.l}^{-1}$ en moyenne. L'inondation de janvier 1994 aurait donc apporté en tout 156 000 t de matières solides du Rhône sur les sols de Camargue. Cette estimation est tout à fait comparable à la valeur de 165 000 t estimée par D.Pont (Pont, 1997a).

6.3. Conclusions sur les zones inondées

En couplant données bibliographiques et résultats de mesures, une estimation des flux d'activités indique qu'environ 188 MBq de plutonium et d'américium ont été apportés par les inondations de 1993 et 1994 en Camargue. L'hétérogénéité des résultats de mesures obtenus exprime la disparité des dépôts sédimentaires.

Les dépôts les plus importants, entraînant les ajouts d'activités les plus forts, se sont produits près des brèches de digues. N'ayant pu réaliser des mesures en chacun de ces lieux, une campagne de mesures particulière face à la brèche de Lauricet a permis de le confirmer.

Les rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ mesurés dans les sols peuvent être utilisés comme traceurs des apports sédimentaires. Un exemple d'utilisation de cette méthode permet d'estimer qu'environ $70\,000\text{m}^3$ de sédiments auraient pénétré par la brèche de Lauricet en janvier 1994. D'autres mesures seraient nécessaires afin de confirmer cette valeur et d'utiliser cette méthode pour une estimation globale des apports sédimentaires.

7. Synthèse du chapitre III

L'ensemble des résultats présentés dans ce chapitre permet d'établir une image synthétique de la répartition spatiale du plutonium et de l'américium dans les sols de la basse vallée du Rhône. L'analyse des données existantes avant 1998 montre que l'on peut définir une activité omniprésente et homogène dans les sols du bas-Rhône. Cette activité est due aux retombées atmosphériques globales et représente $1,4 \pm 0,1 \text{ Bq.m}^{-2}$ de ^{238}Pu , $47 \pm 3 \text{ Bq.m}^{-2}$ de $^{239+240}\text{Pu}$ et $19 \pm 1 \text{ Bq.m}^{-2}$ de ^{241}Am dans les sols cultivés. Ces activités surfaciques sont inférieures de plus de 10% aux moyennes françaises car la pluviométrie est relativement faible dans cette région. Sur l'ensemble de la zone d'étude, le stock de Pu et Am contenu dans les sols est estimé à $770 \pm 54 \text{ GBq}$.

Localement, les niveaux d'activités des sols peuvent être significativement plus élevés. C'est notamment le cas sur la commune de Codolet, située aux environs immédiats du centre de Marcoule. Deux campagnes de mesures réalisées sur des échantillons de mousses et de sols mettent en évidence les apports atmosphériques de Pu et Am issus de l'installation nucléaire. Sur une zone délimitée de 30 km^2 , dont l'étendue reflète la rose des vents moyenne du site, $2,8 \text{ GBq}$ d'isotopes émetteurs alpha du Pu et de l'Am portant le marquage de rejets anciens ($R=0,05$) sont disséminés dans les sols. Ce constat indique que les activités rejetées dans l'air par le centre de Marcoule représenteraient plus de 28 GBq . De plus, ponctuellement, certains sols ont subi des apports d'activités par des inondations qui ont pu se produire sur les communes de Codolet et Caderousse.

L'eau du Rhône transporte les éléments transuraniens issus de l'érosion de son bassin versant et des rejets d'effluents liquides effectués par l'établissement de Marcoule. Cette eau est utilisée afin d'irriguer certains sols. Il est possible de quantifier le flux d'actinides apportés aux rizières en Camargue et aux sols irrigués par l'intermédiaire du canal BRL. Ceux-ci sont estimés respectivement à $5,5 \text{ GBq}$ et 2 GBq pour la période 1961-1998. Les activités ajoutées aux sols par irrigation restent inférieures aux activités cumulées des retombées globales. Pourtant cet apport se traduit par une augmentation décelable des rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dans ce type de sols.

En octobre 1993 et janvier 1994, 2 inondations au Nord Est du delta de Camargue ont provoqué l'apport d'environ $0,2 \text{ GBq}$ de Pu et Am. Les activités massiques des sédiments du Rhône apportés par les inondations sont le reflet d'un mélange entre les isotopes rejetés par Marcoule et ceux hérités de l'amont du fleuve. Ces sédiments se sont déposés de façon hétérogène, principalement aux environs des brèches de digues. Les mesures réalisées en

attestent, en particulier à Figarès et Lauricet. D'autres campagnes de mesures seraient nécessaires en Camargue pour déterminer précisément la répartition des radionucléides, et appliquer la méthode proposée d'estimation des volumes de sédiments apportés par chaque brèche.

Chapitre IV : Distribution du Pu et de l'Am au sein des différents milieux

1. Les milieux cultivés

Les surfaces agricoles représentent 33,8% de la superficie totale étudiée, soit 3718 km² sur lesquels l'occupation du sol est partagée entre viticulture, cultures céréalières et fourragères, vergers et maraîchages.

1.1. Activités des principales plantes cultivées

A cause des très faibles activités massiques rencontrées généralement dans les végétaux, c'est à dire souvent moins de un millibecquerel par kilogramme de produit sec, les quantités qu'il est nécessaire de prélever sont importantes. Chaque résultat de mesure est donc représentatif de l'activité moyenne de plusieurs kilogrammes de matière.

1.1.1. Plantes non influencées par les rejets de Marcoule

La majeure partie des plantes cultivées sur la zone étudiée sont hors de l'influence directe ou indirecte des rejets du centre de Marcoule, et leur contamination actuelle en plutonium et américium est uniquement liée aux transferts à partir du sol de radionucléides issus des retombées globales.

1.1.1.1. Données disponibles

A partir des études radioécologiques menées entre 1993 et 1995 (Lumia *et al.*, 1995 ; Descamps *et al.*, 1996, 1997), 35 échantillons de divers produits agricoles ont été mesurés par spectrométrie alpha (Annexe 7). Parmi eux, 6 proviennent de Codolet et sont donc susceptibles d'avoir été marqués par les rejets de Marcoule. Les échantillons de riz prélevés en Camargue peuvent être également écartés car ils ont pu être influencés par les apports du Rhône via l'irrigation ou les inondations. De plus, afin d'éviter de se baser sur des résultats de mesures trop discutables, seules les valeurs dont l'incertitude associée est inférieure à 50% sont exploitées. Ces valeurs sont présentées en grisé dans les tableaux ci-après. Il reste alors 13 échantillons dont au moins une partie des résultats peut être exploitée (Tableau IV-1).

Tableau IV-1 : Activités massiques moyennes des produits agricoles mesurés entre 1993 et 1997 dans la basse vallée du Rhône (mBq.kg⁻¹ sec)

Nature	Lieu de prélèvement	²³⁸ Pu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am
Salades	Avignon	< 0,5	< 1,3	7,8 ± 1,5
Salades	Avignon	< 0,5	< 1,6	1,4 ± 0,4
Salades	Orange	< 0,3	< 0,8	4,7 ± 0,8
Salades	Orange	< 2	2,9 ± 0,7	2,8 ± 0,7
Salades	Uzès	< 0,7	< 1,7	2,6 ± 0,7
Salades	Uzès	< 3	1,7 ± 1,0	3,2 ± 1,1
Salades	Cavillargue	< 1,8	< 4,8	3,6 ± 1,2
Pêches	Pont St Esprit	< 0,4	< 1,3	3,6 ± 0,9
Pêches	Montfaucon	< 0,3	< 0,8	1,2 ± 0,5
Pêches	St Pons La Calm	< 0,4	< 1,2	2,8 ± 0,8
Pommes	Tresques	< 0,97	0,51 ± 0,17	< 0,31
Raisin	Barjac	< 0,3	< 0,9	9,1 ± 1,3
Raisin	Barjac	0,48 ± 0,26	0,79 ± 0,17	< 0,17

Sur l'ensemble de ces résultats disponibles, aucune valeur d'activité massique de ²³⁸Pu n'est significative, celles-ci étant toujours soit inférieures aux seuils de détection de la méthode, soit attachées à de trop grandes incertitudes de mesure.

1.1.1.2. Données acquises

Afin de compléter ces données, 5 mesures ont été réalisées en 1998 sur divers produits agricoles. Des échantillons de légumes-fruits (melons et tomates) ont notamment été prélevés afin de combler les manques. L'ensemble des résultats de mesure est reporté dans le tableau IV-2. Comme précédemment, les résultats exploitables sont grisés. Là encore, aucun résultat d'activité massique en ²³⁸Pu n'est disponible. Sur les 5 échantillons mesurés, 2 d'entre eux ne donnent aucun résultat exploitable : les échantillons de tomates et de melons prélevés à Laudun.

Tableau IV-2 : Activités massiques mesurées dans différents produits agricoles en 1998 dans la basse vallée du Rhône ($mBq.kg^{-1} sec$)

Nature	Date de prélèvement	Lieu de prélèvement	^{238}Pu	$^{239+240}Pu$	^{241}Am
Figues	19/08/98	Salier	< 0,1	$0,17 \pm 0,08$	$0,17 \pm 0,07$
Tomates	19/08/98	Salier	< 0,3	$0,4 \pm 0,2$	$0,4 \pm 0,2$
Tomates	20/08/98	Laudun	< 0,16	$0,3 \pm 0,2$	< 0,17
Melons	19/08/98	Salier	< 0,2	$0,8 \pm 0,2$	$0,8 \pm 0,2$
Melons	20/08/98	Laudun	< 0,3	< 0,2	$0,3 \pm 0,3$

1.1.1.3. Activités massiques moyennes

En associant les résultats obtenus en 1998 avec les résultats des études antérieures, soit 16 échantillons différents dont 7 échantillons de légumes-feuilles, 7 de fruits et 2 de légumes-fruits, les activités massiques moyennes en $^{239+240}Pu$ et ^{241}Am peuvent être estimées. Les activités de ^{238}Pu non mesurables dans ces produits agricoles sont calculées d'après les activités de $^{239+240}Pu$ en supposant que le rapport d'activité $^{238}Pu/^{239+240}Pu$ est le même dans la plante que dans le sol sur lequel elle pousse, soit 0,03. Cette hypothèse implique qu'il n'y ait pas de fractionnement isotopique du plutonium lors du transfert du sol vers la plante. Or, comme cela a déjà été évoqué dans le Chapitre I, certains auteurs pensent que le ^{238}Pu serait plus bio-disponible que le $^{239+240}Pu$ (Brown, 1979), mais cela ne peut être vérifié dans le cadre de cette étude. D'ailleurs, les transferts qui s'opèrent sur le terrain ne sont pas uniquement des transferts racinaires, comme cela sera précisé plus loin, et donc une éventuelle différence de bio-disponibilité ne pourrait influencer que très peu sur le rapport $^{238}Pu/^{239+240}Pu$ dans la plante.

L'ensemble des activités massiques moyennes est reporté dans le tableau IV-3.

Tableau IV-3 : Activités massiques moyennes des principaux produits agricoles de la basse vallée du Rhône.

Nature	Activités massiques ($mBq.kg^{-1} sec$) ± incertitudes sur la moyenne (σ/\sqrt{n})		
	^{238}Pu	$^{239+240}Pu$	^{241}Am
Fruits	$0,015 \pm 0,007$	$0,5 \pm 0,2$	$3,4 \pm 1,5$
Légumes-feuilles	$0,07 \pm 0,02$	$2,3 \pm 0,6$	$3,7 \pm 0,8$
Légumes-fruits	$0,018 \pm 0,006$	$0,6 \pm 0,2$	$0,6 \pm 0,2$

Les différents produits agricoles présentent des activités massiques croissantes dans l'ordre : légumes-feuilles > légumes-fruits ≈ fruits.

Les activités d'Am sont supérieures à celles de Pu. Cela est en adéquation avec les connaissances sur le comportement des deux éléments, l'Am pouvant se trouver en plus grande proportion dans la phase soluble (cf. Chap.I).

Les transferts racinaires, quantifiables par des valeurs de facteurs de transfert comprises entre 10^{-4} et 10^{-6} (Linsley *et al.*, 1978 ; IAEA, 1994) sont 10 à 100 fois trop faibles pour expliquer les activités massiques mesurées.

De même, les transferts indirects par dépôt sur la surface foliaire de particules remises en suspension ne pourraient entraîner une telle contamination. En effet, l'activité apportée par ce biais au végétal est estimable par la relation :

$$A_{res} = A_{sol} \times \int_0^t \frac{K_{res} R_c V_d \cdot e^{-\lambda_x \cdot t}}{R_{dt}}$$

avec A_{res} : Activité massique apportée à la plante par remise en suspension (Bq.kg^{-1}),

A_{sol} : Activité surfacique du sol (Bq.m^{-2}),

K_{res} : Coefficient de remise en suspension (m^{-1}),

V_d : Vitesse de dépôt (m.s^{-1}),

R_c : Rapport de captation par dépôt sec,

λ_w : constante de décroissance liée au lessivage et au développement de la plante (j^{-1}),

R_{dt} : Rendement cultural,

t : temps de croissance de la plante.

Or, pour les salades par exemple, une contamination par cette voie impliquerait un facteur de remise en suspension K_{res} d'environ 10^{-2} m^{-1} . Sachant que les valeurs préconisées sont généralement supérieures à 10^{-9} m^{-1} à 1m de hauteur, il est exclu que la contamination des plantes aux niveaux d'activités mesurés soit due à la remise en suspension par temps sec.

La pluie ou l'irrigation peuvent également être responsables de remise en suspension de particules de sol. Les quantités de matière déposées sur les plantes déterminent les activités mesurées dans les plantes. Les valeurs reportées dans la bibliographie sont comprises entre 1 et 250 mg de sol par gramme de plante (Pinder *et al.*, 1989). Les masses les plus faibles sont associées aux céréales. Dreicer *et al.* (1984) ont observé des concentrations de 17 mg de sol par gramme sec de tomate.

La mesure réalisée dans cette thèse en 1998 à Salier ($0,4 \text{ mBq.kg}^{-1} \text{ sec de } ^{239+240}\text{Pu}$) permet d'estimer la masse de sol adhérente à $3,6 \text{ mg}$ de sol par gramme sec d'échantillon si on écarte toute autre voie de contamination.

Les végétaux poussant à faible hauteur et ayant un fort développement foliaire sont plus à même de capter ces particules de sol. Cela permet notamment d'expliquer pourquoi les légumes-feuilles mesurés présentent des activités massiques supérieures aux autres produits. D'après les activités massiques moyennes mesurées sur les salades du bas-Rhône depuis 1993 ($2,3 \text{ mBq.kg}^{-1} \text{ sec de } ^{239+240}\text{Pu}$), la masse de sol entraînée est estimée à 20 mg.g^{-1} d'échantillon sec. Cela correspond à $1,4 \text{ g}$ de sol pour 1 kg frais de salade. Il serait intéressant de distinguer la fraction de Pu et Am réellement absorbée par la plante de celle qui reste labile. Ce travail n'a pu être réalisé lors de cette étude, mais reste un sujet de recherche envisageable.

1.1.2. Plantes potentiellement influencées par les rejets de Marcoule

Les activités massiques des cultures peuvent être plus importantes si un apport supplémentaire d'activité vers la plante s'est produit. Des mesures sont alors nécessaires afin de déterminer les activités ajoutées. Deux types d'apports de plutonium et américium originaires des rejets de Marcoule sont possibles : les transferts par l'eau d'irrigation, ou les dépôts atmosphériques directs.

1.1.2.1. Les cultures irriguées par l'eau du Rhône

➤ *La riziculture de Camargue*

Les plantes de riz (*Oryza sativa L.*) qui poussent en Camargue sont irriguées par l'eau du Rhône, par lequel transite un flux de Pu et Am issu à 90% des rejets liquides du centre de Marcoule (voir Chap.III).

Prélèvements effectués

Des grains et des pailles de riz, ainsi que les sols et racines associés ont été prélevés sur deux sites de production distincts : le Mas du Juge à Albaron au nord-est de la Camargue et le Mas du Grand Manusclas dans le bassin de Fumemorte au sud-ouest du delta. Le riz prélevé est du riz cargo, c'est à dire déjà décortiqué, fourni par les producteurs. La paille mesurée est également celle qui est habituellement récoltée par les exploitants.

Résultats

Les résultats des mesures sont présentés dans le tableau IV-4.

Tableau IV-4 : Activités massiques de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am mesurées dans les échantillons de riz, paille de riz, racines et sol associé ($\text{mBq.kg}^{-1}\text{ sec}$)

Prélèvement	Nature	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am	$^{238}\text{Pu}/^{239+241}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239+241}\text{Pu}$
Albaron-Camargue Le 29/09/98	Riz	< 0,03	$0,25 \pm 0,06$	$0,17 \pm 0,06$		$0,7 \pm 0,3$
	Paille	< 0,1	$1,3 \pm 0,2$	$0,8 \pm 0,2$		$0,57 \pm 0,16$
	Racines	$3,3 \pm 0,5$	$74,4 \pm 3,5$	$31,8 \pm 4,8$	$0,04 \pm 0,01$	$0,43 \pm 0,07$
	Sol	$5,5 \pm 0,9$	125 ± 6	52 ± 8	$0,04 \pm 0,01$	$0,42 \pm 0,07$
Fumemorte-Camargue Le 29/09/98	Riz	< 0,03	$0,10 \pm 0,04$	$0,06 \pm 0,03$		$0,57 \pm 0,40$
	Paille	< 0,25	$1,3 \pm 0,5$	$0,5 \pm 0,1$		$0,40 \pm 0,19$
	Racines	$2,6 \pm 1,6$	$52, \pm 9$	$19,7 \pm 3,2$	$0,05 \pm 0,03$	$0,38 \pm 0,09$
	Sol	$5,6 \pm 0,7$	150 ± 6	52 ± 8	$0,037 \pm 0,005$	$0,35 \pm 0,05$

Un gradient décroissant des activités massiques moyennes du sol vers le grain est mis en évidence par les résultats : sol > racines > paille > grain (Figure IV-1).

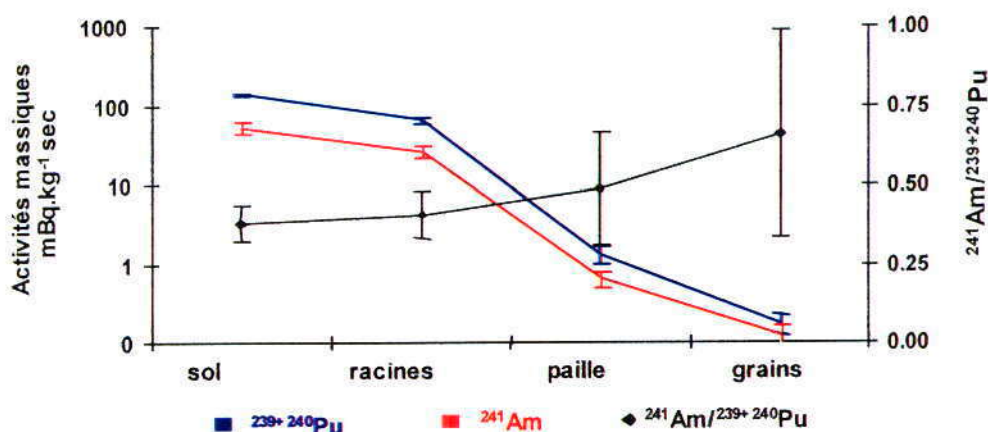


Figure IV-1 : Activités massiques et rapport d'activité $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ moyennes dans les différentes parties de la plante de riz

Interprétation

Les résultats doivent permettre d'établir les activités moyennes des matrices végétales d'une part, et de quantifier les transferts sol-plante d'autre part afin de les extrapoler aux autres céréales pour lesquelles aucune mesure de Pu et Am n'est disponible dans la basse vallée du Rhône.

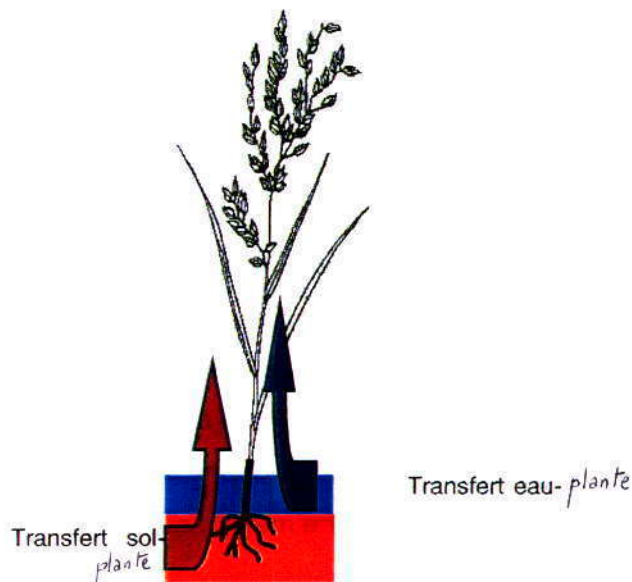


Figure IV-2 : Origines étudiées des transferts des radionucléides du milieu extérieur vers le riz

Les valeurs des transferts sol-plante correspondent aux rapports des activités massiques moyennes de la partie de la plante à laquelle on s'intéresse par les activités massiques moyennes des sols. Néanmoins il est nécessaire de s'assurer qu'aucun transfert des éléments transuraniens n'a pu se faire par contact direct de l'eau de submersion avec la tige de la plante, auquel cas les valeurs calculées ne correspondraient plus à un transfert unique du sol (Figure IV-2). Cette possibilité est envisagée car la base de la plante reste immergée pendant toute la durée de sa croissance sous 10 à 20 cm d'eau. Ce type de transfert de l'eau d'irrigation à la plante a déjà été établi pour d'autres radionucléides comme le césium (Myttenaere *et al.*, 1969).

La discrimination entre les deux origines possibles des transuraniens dans la plante se fait par le traçage des transferts. En effet, le sol porte principalement le marquage des retombées globales, alors que l'eau d'irrigation est fortement marquée par les rejets du centre de Marcoule. Etant données les limites de détection de la méthode, le ^{238}Pu ne peut pas être mesuré dans les grains et les pailles de riz. C'est donc ici le rapport d'activité $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ qui est utilisé comme traceur.

Les rapports $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les deux sols de rizières sont égaux à $0,42 \pm 0,07$ et $0,35 \pm 0,05$. Celui caractéristique de l'eau du Rhône en 1998 est de 1,4 (année d'irrigation des échantillons prélevés).

Ce rapport a donc été calculé pour chaque partie de la plante (cf. Tableau IV-4). Le profil, représenté sur la figure IV-1, montrerait une légère augmentation du rapport $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ du sol vers le grain de la plante, bien que les barres d'erreurs ne

La mesure réalisée dans cette thèse en 1998 à Salier ($0,4 \text{ mBq.kg}^{-1} \text{ sec}$ de $^{239+240}\text{Pu}$) permet d'estimer la masse de sol adhérente à $3,6 \text{ mg}$ de sol par gramme sec d'échantillon si on écarte toute autre voie de contamination.

Les végétaux poussant à faible hauteur et ayant un fort développement foliaire sont plus à même de capter ces particules de sol. Cela permet notamment d'expliquer pourquoi les légumes-feuilles mesurés présentent des activités massiques supérieures aux autres produits. D'après les activités massiques moyennes mesurées sur les salades du bas-Rhône depuis 1993 ($2,3 \text{ mBq.kg}^{-1} \text{ sec}$ de $^{239+240}\text{Pu}$), la masse de sol entraînée est estimée à 20 mg.g^{-1} d'échantillon sec. Cela correspond à $1,4 \text{ g}$ de sol pour 1 kg frais de salade. Il serait intéressant de distinguer la fraction de Pu et Am réellement absorbée par la plante de celle qui reste labile. Ce travail n'a pu être réalisé lors de cette étude, mais reste un sujet de recherche envisageable.

1.1.2. Plantes potentiellement influencées par les rejets de Marcoule

Les activités massiques des cultures peuvent être plus importantes si un apport supplémentaire d'activité vers la plante s'est produit. Des mesures sont alors nécessaires afin de déterminer les activités ajoutées. Deux types d'apports de plutonium et américium originaires des rejets de Marcoule sont possibles : les transferts par l'eau d'irrigation, ou les dépôts atmosphériques directs.

1.1.2.1. Les cultures irriguées par l'eau du Rhône

➤ *La riziculture de Camargue*

Les plantes de riz (*Oryza sativa L.*) qui poussent en Camargue sont irriguées par l'eau du Rhône, par lequel transite un flux de Pu et Am issu à 90% des rejets liquides du centre de Marcoule (voir Chap.III).

Prélèvements effectués

Des grains et des pailles de riz, ainsi que les sols et racines associés ont été prélevés sur deux sites de production distincts : le Mas du Juge à Albaron au nord-est de la Camargue et le Mas du Grand Manusclas dans le bassin de Fumemorte au sud-ouest du delta. Le riz prélevé est du riz cargo, c'est à dire déjà décortiqué, fourni par les producteurs. La paille mesurée est également celle qui est habituellement récoltée par les exploitants.

Résultats

Les résultats des mesures sont présentés dans le tableau IV-4.

permettent pas de l'affirmer. Cependant, cette possibilité peut s'expliquer sachant que l'Am est légèrement plus biodisponible que le Pu lors des transferts racinaires.

Toutefois, ce qu'il faut retenir de ces résultats est que le Pu et l'Am présents dans la paille et les grains de riz analysés n'ont pas été transférés par contact direct avec l'eau ou que, s'il y a eu transfert, il n'est pas perceptible ici. En effet, un tel transfert aurait été décelé si l'évolution du rapport d'activité $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ du sol vers le grain avait montré une inflexion notable au niveau des parties aériennes. Or, les résultats obtenus montrent une évolution régulière de ce rapport (Figure IV-1). Ces interprétations ne signifient pas que les transferts de l'eau vers la plante par contact direct ne sont pas possibles, mais que pour de très faibles concentrations en Pu et Am dans l'eau (1 à 5 $\mu\text{Bq.l}^{-1}$), ces transferts ne peuvent pas être mis en évidence.

Extrapolation des résultats aux autres céréales et fourrages

Ayant mis en évidence que le Pu et l'Am contenus dans la paille et les grains de riz étaient originaires du sol, les transferts sol-plante moyens sont calculés (Tableau IV-5) : Activité de la plante ($\text{Bq.kg}^{-1}\text{sec}$) / Activité du sol sous jacent ($\text{Bq.kg}^{-1}\text{sec}$).

Les valeurs obtenues sont cohérentes avec les résultats de terrain connus (Adriano *et al.*, 1981).

Tableau IV-5 : Transferts sol-plante déduits des mesures réalisées sur des échantillons de riz ($\text{Bq.kg}^{-1}\text{sec}/\text{Bq.kg}^{-1}\text{sec}$)

<i>Nature</i>	<i>Pu</i>	<i>Am</i>
Grains	$(1,2 \pm 0,4).10^{-3}$	$(2 \pm 1).10^{-3}$
Pailles de riz	$(9 \pm 3).10^{-3}$	$(1,3 \pm 0,5).10^{-2}$

Pour la suite du travail, ces transferts sont extrapolés aux autres types de céréales et fourrages afin d'obtenir des valeurs moyennes d'activités massiques qui pourront être utilisées pour établir les stocks de Pu et Am dans les différents produits végétaux.

Tableau IV-6 : Activités massiques moyennes mesurées dans le riz et calculées pour les autres céréales ($\text{mBq.kg}^{-1}\text{sec}$) et incertitudes sur la moyenne

<i>Nature</i>	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am
Riz	$0,007 \pm 0,003$	$0,17 \pm 0,07$	$0,11 \pm 0,08$
Autres céréales	$0,004 \pm 0,001$	$0,13 \pm 0,05$	$0,09 \pm 0,05$
Fourrages	$0,03 \pm 0,01$	$1,0 \pm 0,3$	$0,6 \pm 0,2$

1.1.2.2. Les cultures irriguées par le canal BRL

Le canal BRL fournit de l'eau à 10000 exploitants agricoles, ce qui représente 130000 ha de surfaces cultivées. Dans le chapitre précédent, il a été montré que les activités totales des sols irrigués n'étaient pas significativement différentes de celles des autres sols. Les activités transférées des sols aux produits agricoles ne sont donc pas significativement influencées. Par contre, il apparaît primordial de quantifier le dépôt sur les plantes lors des irrigations par aspersion d'eau marquée par le Pu et l'Am rejetés par l'installation nucléaire. Les légumes-feuilles présentant le développement foliaire le plus important sont alors les plus susceptibles d'être contaminés par cette voie.

Des mesures sur des échantillons de salades irriguées par aspersion au Mas d'Asport servent de témoins (IPSN, 1997). L'estimation de la part du dépôt direct à la contamination globale des salades a été proposée pour des échantillons récoltés en 1997 dont les activités massiques en ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am sont respectivement de $0,9 \pm 0,2$, $6,9 \pm 0,6$ et $5,8 \pm 0,6$ Bq.kg⁻¹ sec. Ces valeurs sont effectivement supérieures aux activités massiques moyennes des légumes-feuilles hors de l'influence des rejets de Marcoule (cf. Tableau IV-3). D'ailleurs, le rapport d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ de 0,13 met en évidence un marquage par les radioéléments rejetés par le centre de Marcoule via l'eau d'irrigation.

L'activité de l'eau d'irrigation a été mesurée sur une aliquote prélevée quotidiennement lors de cette récolte : 7,35 µBq.l⁻¹ de ^{238}Pu , 25,75 µBq.l⁻¹ de $^{239+240}\text{Pu}$, et 32,1 µBq.l⁻¹ de ^{241}Am . D'après la loi des mélanges, et sachant que le rapport d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ de l'eau du Rhône en 1997 est égal à 0,29, les parts respectives de ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ issues d'une contamination par l'eau d'irrigation sont évaluées à 86% et 38%. Ces parts correspondent à des activités massiques en ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ de 0,77 Bq.kg⁻¹ sec et 2,6 Bq.kg⁻¹ sec respectivement.

En outre, l'apport aux salades dû au dépôt direct peut être estimé par la relation :

$$A_d = \frac{A_{eau} \times V \times I_c}{R_d}$$

où : A_d est l'activité massique des salades entraînée par le dépôt direct (Bq.kg⁻¹),

A_{eau} est l'activité volumique de l'eau d'irrigation (Bq.l⁻¹),

V est le volume d'eau apporté pendant la durée de la culture (305 l.m⁻²),

I_c est l'indice de captation (0,3),

R_d est le rendement des plants de salades (1,5 kg sec/m⁻²).

Par cette modélisation du phénomène de dépôt direct, les activités de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am apportées aux salades par cette voie sont évaluées respectivement à 0,45, 1,6 et 1,9 $\text{mBq.kg}^{-1} \text{sec}$. Elles semblent sous-estimées par rapport à ce que l'on peut déduire de l'analyse du rapport d'activités, mais restent du même ordre de grandeur.

Tableau IV-7 : Activités massiques calculées dues au dépôt direct par irrigation ($\text{mBq.kg}^{-1} \text{sec}$)

	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am
1961	0,23	4,84	2,68
1962	0,37	7,58	4,28
1963	0,23	5,58	2,10
1964	0,49	11,21	5,13
1965	1,02	21,75	11,57
1966	0,42	6,80	3,51
1967	0,09	1,17	0,52
1968	0,11	0,91	0,44
1969	0,60	4,06	3,07
1970	0,13	0,87	0,45
1971	0,15	0,94	0,69
1972	0,03	0,28	0,04
1973	0,01	0,14	0,03
1974	0,13	0,63	0,68
1975	0,37	1,52	2,02
1976	0,15	0,82	0,87
1977	0,09	0,68	0,59
1978	0,11	0,78	0,69
1979	0,42	1,73	3,35
1980	2,11	7,22	15,81
1981	1,55	5,42	4,91
1982	1,13	4,05	13,26
1983	0,96	3,56	7,57
1984	2,47	8,39	16,18
1985	2,91	9,85	7,86
1986	2,35	8,06	13,47
1987	1,97	6,73	21,25
1988	2,33	7,99	13,26
1989	2,62	8,85	11,75
1990	2,62	8,86	9,32
1991	1,60	5,50	6,59
1992	0,34	1,36	2,07
1993	0,13	1,28	1,89
1994	0,13	0,86	1,48
1995	0,06	0,45	0,65
1996	0,10	0,48	0,91
1998	0,07	0,49	1,08

Ce moyen est le seul dont nous disposons afin d'estimer les activités apportées par l'irrigation les autres années. Ces apports sont calculables à partir des valeurs d'activités volumiques estimées dans le canal BRL pour la période 1961-1998 (Tableau IV-7).

On voit que les activités apportées par cette voie sont restées de l'ordre de quelques dixièmes à dizaines de millibecquerels par kilogramme de salades.

Rappelons que ces estimations ont été effectuées pour des cultures de légumes-feuilles irrigués par aspersion. C'est le cas le plus pénalisant pour une culture vis-à-vis d'un marquage de l'eau d'irrigation.

1.1.2.3. Les cultures sous l'influence atmosphérique des rejets de Marcoule

Une zone restreinte s'étendant au Sud du centre de Marcoule est influencée par ses rejets atmosphériques (cf.Chap.III). Même si sa superficie (30 km²) est peu importante vis-à-vis de l'étendue de la zone d'étude (11000 km²), il paraît intéressant d'évaluer les activités apportées aux végétaux par le dépôt direct sur les plantes.

La vigne, en particulier, occupe 20% de la surface totale sur cette zone. Les mesures réalisées en 1993 et 1994 (Lumia *et al.*, 1995 ; Descamps *et al.*, 1996) montrent, à la vue des rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, un marquage par les rejets de l'installation sur les échantillons de raisins dont les résultats sont reportés dans le tableau IV-8. En effet, ce marquage ne peut venir d'une contamination par les sols, dont le rapport d'activités moyen est de 0,05. De plus, les activités massiques sont supérieures aux activités moyennes des fruits déjà présentées (Tableau IV-3). Cette remarque concerne en particulier l'échantillon prélevé en 1994 qui montre les activités massiques les plus fortes.

Une mesure effectuée en 1998, dans le cadre de cette thèse, indique un apport de Pu et d'Am local moins important mais décelable (Tableau IV-8). Son rapport d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ égal à 0,15 permet, là encore, d'attribuer cet apport aux rejets industriels.

Le marquage du raisin est attribué au piégeage des aérosols atmosphériques dans les grappes.

Tableau IV-8 : Résultats des mesures réalisées en 1993, 1994 et 1998 sur des échantillons de raisins de Codolet (mBq.kg⁻¹ sec)

Année	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am	$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$
1993	1,1 ± 0,5	3,7 ± 1,1	11 ± 4	0,30 ± 0,16
1994	7,9 ± 1,8	35,4 ± 4,3	8,6 ± 1,9	0,22 ± 0,06
1998	0,17 ± 0,07	1,1 ± 0,1	0,5 ± 0,1	0,15 ± 0,07

Ne connaissant pas l'historique des rejets atmosphériques particuliers aux éléments Pu et Am, il n'est actuellement pas possible de déterminer les activités des productions antérieures.

1.2. Exportations par les récoltes

Les flux d'activités liés aux récoltes sont estimables à partir des activités massiques déjà évaluées dans chaque type de matrice. Il est alors nécessaire de connaître les masses récoltées annuellement sur l'ensemble de la zone d'étude. Les productions principales sont : les fruits, les légumes, le vin, les céréales et les cultures fourragères (Figure IV-3).

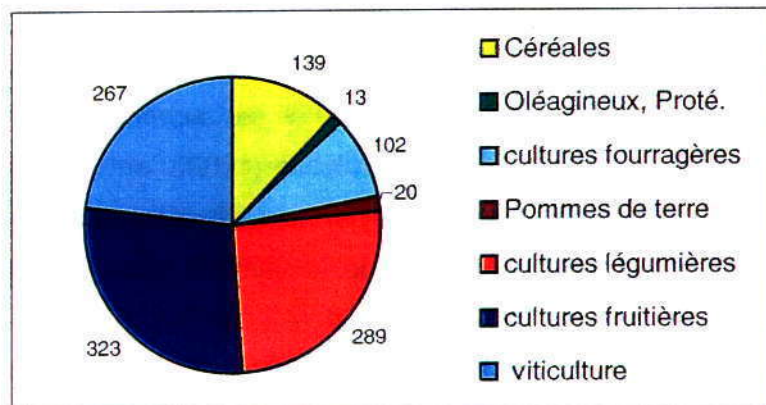


Figure IV-3 : Productions en milliers de tonnes des principales cultures dans la basse vallée du Rhône

La contamination des végétaux par les retombées globales concerne l'ensemble de la zone étudiée. Le flux lié aux productions est quantifiable grâce aux connaissances acquises dès lors pour chaque type de culture.

Dans le cas des plantes irriguées par aspersion via le canal BRL, il serait nécessaire de connaître les quantités produites annuellement afin d'envisager un calcul de flux global lié aux récoltes. Ce cas particulier est donc exclu des estimations de flux sur l'ensemble de l'aire d'étude.

1.2.1. Les fruits

Les cultures fruitières sur la zone d'étude représentent 323000 t/an. D'après l'ensemble des données acquises par l'IPSN, on établit que le rapport de poids sec/frais moyen des fruits est de 0,16. La production s'élève donc à 52000 t/an en matière sèche.

Les fruits produits sont principalement des fruits de vergers : pommes, pêches, cerises et poires. Les valeurs d'activités moyennes sont considérées comme équivalentes pour chacun de ces fruits, ce qui est généralement admis en radioécologie.

Les activités de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am associées aux productions annuelles, calculées à partir des valeurs d'activités massiques moyennes déjà déterminées (Tableau IV-3), sont respectivement de $0,8 \cdot 10^3$ Bq, $26 \cdot 10^3$ Bq et $177 \cdot 10^3$ Bq.

1.2.2. Les légumes

Les cultures légumières, avec 289000 t/an produites constituent la seconde production de la basse vallée du Rhône.

1.2.2.1. Les légumes-feuilles

Ils représentent environ 75% de la production, soit 217000 t de matière fraîche. Le rapport moyen de poids sec/frais étant de 0,07, cela représente 15200 t de matière sèche.

A partir des valeurs d'activités massiques moyennes mesurées (Tableau IV-3), les activités de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am associées aux productions annuelles de légumes-feuilles sont respectivement évaluées à $1,1 \cdot 10^3$ Bq, $35 \cdot 10^3$ Bq et $56 \cdot 10^3$ Bq.

1.2.2.2. Les légumes-fruits

Avec 25% de la production annuelle de légumes, les légumes-fruit frais représentent 72 300 t/an. Cette production est équivalente à 4300 t de matière sèche (rapport moyen sec/frais = 0,06).

De là, les activités de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am auxquelles correspond cette production sont respectivement estimées à : $0,08 \cdot 10^3$ Bq, $2,6 \cdot 10^3$ Bq et $2,6 \cdot 10^3$ Bq.

1.2.3. Le vin

La viticulture représente environ $267 \cdot 10^4$ hl de vin produits annuellement. Il faut réglementairement 130 kg de raisin pour produire 1 hl de vin. La production est donc équivalente à 347 000 t de raisin frais, soit 66 000 t de matière sèche (rapport sec/frais = 0,19).

En prenant les valeurs d'activités moyennes des fruits (Tableau IV-3) comme représentatives du raisin, les activités associées aux productions annuelles sont calculées. Elles s'élèvent en moyenne à $1 \cdot 10^3$ Bq de ^{238}Pu , $33 \cdot 10^3$ Bq de $^{239+240}\text{Pu}$ et $224 \cdot 10^3$ Bq de ^{241}Am .

La production de vin issue de la zone influencée par les rejets atmosphériques de Marcoule, soit environ $24\,000 \text{ hl} \cdot \text{an}^{-1}$ sur 6 km^2 de vignes (rendement moyen = $40 \text{ hl} \cdot \text{ha}^{-1}$, cf. annexe 5) représente $3120 \text{ t} \cdot \text{an}^{-1}$ de raisin. Cela correspond en masse à moins de 1% de la production totale sur la zone entière mais pourrait représenter une activité ajoutée importante. En effet, prenons l'exemple de l'année 1998 :

Si l'on considère que l'activité massique moyenne du raisin produit sur la commune de Codolet en 1998 est égale aux activités mesurées (Tableau IV-7), on évalue l'activité associée à la production annuelle à : $0,5 \cdot 10^3$ Bq de ^{238}Pu , $3,4 \cdot 10^3$ Bq de $^{239+240}\text{Pu}$ et $1,6 \cdot 10^3$ Bq de ^{241}Am .

Ces activités exportées en 1998 correspondent respectivement à 50%, 10% et 0,7% de l'ensemble de la production hors influence de la basse vallée du Rhône estimée plus haut.

Malheureusement, dans l'état actuel des connaissances, aucune évaluation quantitative ne peut être envisagée pour les productions passées dans cette zone restreinte. Le calcul effectué pour l'année 1998 n'est en rien extrapolable aux autres années de production, et ne doit être considéré qu'à titre informatif.

Aussi, pour la suite du travail, on ne prendra pas en compte les activités apportées au vin par les rejets atmosphériques du centre de Marcoule.

1.2.4. Les céréales

La production de céréales est de $139\,000 \text{ t}\cdot\text{an}^{-1}$. Parmi les céréales produites dans la zone d'étude, environ 70% sont du riz. Les 30% restant sont principalement du blé. Les activités associées aux productions annuelles de riz et des autres céréales sont calculées d'après les mesures réalisées dans le cadre de cette thèse (Tableau IV-6).

1.2.4.1. Le riz

Le rapport de poids sec/frais moyen relevé sur les échantillons de riz est de 0,78. La production annuelle est donc estimée à $75\,900 \text{ t}$ de riz en poids sec.

Les activités de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am auxquelles correspond cette production sont respectivement de $0,5 \cdot 10^3$ Bq, $13 \cdot 10^3$ Bq et $8 \cdot 10^3$ Bq.

1.2.4.2. Le blé

Le rapport sec/frais moyen du blé est de 0,86. $36\,000 \text{ t}$ de produit sec issu de la basse vallée du Rhône représentent $0,14 \cdot 10^3$ Bq de ^{238}Pu , $4,7 \cdot 10^3$ Bq de $^{239+240}\text{Pu}$ et $3,2 \cdot 10^3$ Bq de ^{241}Am .

1.2.5. Les fourrages

Les cultures fourragères représentent $102\,000 \text{ t}\cdot\text{an}^{-1}$. Leur rapport de poids sec/frais moyen est de 0,86. La production est donc de $88\,000 \text{ t}\cdot\text{an}^{-1}$ de matière sèche, ce qui correspond à $2,6 \cdot 10^3$ Bq de ^{238}Pu , $88 \cdot 10^3$ Bq de $^{239+240}\text{Pu}$ et $53 \cdot 10^3$ Bq de ^{241}Am .

1.2.6. Bilan des flux exportés par les récoltes

L'ensemble des activités liées aux productions agricoles annuelles est reporté dans le Tableau IV-9. Actuellement, le flux total d'actinides exportés par cette voie est évalué à $727.10^3 \text{ Bq.an}^{-1}$. On pourra supposer que depuis 1984, date depuis laquelle ont cessé les retombées globales, ce flux a été constant. Par contre, pour les années antérieures, des travaux plus poussés seraient nécessaires afin de considérer la contribution des dépôts directs sur les plantes.

Tableau IV-9 : Activités exportées annuellement par les récoltes ($.10^3 \text{ Bq}$)

Nature	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am
Fruits	0,8	26	177
Légumes	1,1	35	56
Vin	1,0	33	224
Céréales	0,6 2	18	11
Fourrages	2,6	88	53
Total	6,1	200	521

2. Les milieux naturels

Dans la zone d'étude, environ 3080 km² sont des milieux boisés. Le pouvoir de captation des particules atmosphériques par la canopée en fond d'importants milieux récepteurs des contaminations aériennes. C'est pourquoi les dépôts y sont majorés d'environ 30%.

Les milieux forestiers rencontrés dans la zone d'étude sont de type méditerranéen. Ils sont caractérisés par une biomasse et une productivité primaire des biomes relativement faibles à cause de la sécheresse estivale. La biocénose est composée de deux populations principales : les chênes verts et des conifères (Ramade, 1984). Dans une forêt de chênes, la biomasse végétale aérienne moyenne est répartie de la façon suivante : 1,5% de feuillage, 96% de parties aériennes pérennes (dont les $\frac{3}{4}$ sont les arbres et $\frac{1}{4}$ la végétation de sous-bois), 2,5% de litière.

Une recherche bibliographique montre que peu d'études ont été menées concernant les transuraniens dans les milieux forestiers, et les données radioécologiques sont rares.

Quelques auteurs ont développé des modèles de flux de radionucléides dans l'écosystème forestier. Garten (1978) a développé un modèle de transfert du plutonium en forêt de feuillus. Plus récemment le modèle FORESTPATH (Schell *et al.*, 1996 ; Linkov *et al.*, 1997), plus général, a été proposé afin de rendre compte de la distribution de la contamination suite à un dépôt atmosphérique.

Les compartiments où les activités des éléments transuraniens sont les plus concentrées sont le sol et la litière.

Les champignons sont connus pour être des espèces sensibles aux contaminations en éléments traces des sols (Ban-Nai *et al.*, 1997).

L'ensemble de ces informations bibliographiques doit permettre de définir les données à acquérir et de les interpréter le mieux possible.

2.1. Données acquises

2.1.1. Stratégie d'échantillonnage

Pour l'écosystème dans son ensemble, en croisant toutes les informations, on voit alors qu'en termes de stocks possibles de radionucléides, il est nécessaire de considérer les compartiments suivant :

- le sol, qui en termes de masse et de concentration constitue le principal stock de Pu et Am ;

- la litière, qui, malgré sa faible biomasse, présente des concentrations de Pu et Am importantes ;
- les arbres et la végétation de sous-bois, qui représentent la plus forte biomasse végétale du système ;
- les champignons pour connaître leurs niveaux d'activité.

Afin de rendre compte de l'état moyen des niveaux d'activité dans l'écosystème forestier de la zone étudiée, les prélèvements doivent être réalisés dans une forêt de type mixte (feuillus et conifères) non influencée par les rejets du centre de Marcoule. Le site choisi se trouve sur la commune de Tresques.

2.1.1.1. Le sol et sa litière

Prélevé en octobre 1998, le sol est échantillonné par horizons. Le choix du découpage vertical du sol est calqué sur les mesures effectuées par K. Bunzl (1998) et son équipe qui ont étudié la distribution verticale du plutonium dans un sol forestier en Allemagne.

La litière est prélevée manuellement sur une surface de 1 m².

Le sol proprement dit est prélevé sur une surface de 30×30 cm, en utilisant le gabarit déjà présenté dans le chapitre II. L'horizon organique du sol (humus) et 4 horizons minéraux, correspondant aux profondeurs 0-2, 2-5, 5-10 et 10-20 cm, sont distingués. Le profil de sol ainsi constitué est traité afin d'y mesurer les activités massiques en ²³⁸Pu, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu et ²⁴¹Am, mais aussi ses caractéristiques physico-chimiques (granulométrie, teneur en matière organique, pH, CEC).

2.1.1.2. La végétation

Les échantillons végétaux sont prélevés sur le même site que le sol en février 2000.

- Deux échantillons de bois sont constitués : un échantillon de bois de pin et un échantillon de bois de chêne. Les rapports de poids cendres/frais déterminés par avance ($7,5 \cdot 10^{-3}$ pour le pin et $37 \cdot 10^{-3}$ pour le chêne) conduisent à prélever près de 10 kg de chaque espèce, dans les parties pérennes (troncs et branches principales).

- Un mélange constitué de végétaux de sous bois, prélevés de façon systématique dans un carré de 10×10 m est broyé et homogénéisé et un échantillon de 5 kg en est extrait pour être traité et analysé par spectrométrie alpha. Les espèces végétales représentées dans cet échantillon sont données en Annexe 15.

- 3 kg de champignons de type *russula emetica* sont prélevés afin de constituer un échantillon représentatif d'une des espèces dominantes dans ce milieu.

2.1.2. Résultats de mesures

2.1.2.1. Le sol et sa litière

Les résultats des activités massiques mesurées sur les échantillons de litière et de sol de forêt sont donnés dans le tableau IV-10.

Tableau IV-10 : Résultats des mesures alpha réalisées sur la litière et les horizons de sol de forêt ($mBq.kg^{-1} sec$)

horizon	Poids sec/frais	^{241}Am	$^{239+240}Pu$	^{238}Pu	$^{238}Pu/^{239+240}Pu$
litière	0.704	26 ± 2	72 ± 2	2.4 ± 0.2	0.033 ± 0.003
humus	0.599	418 ± 12	1196 ± 38	40.5 ± 1.9	0.034 ± 0.002
0-2 cm	0.847	640 ± 30	1834 ± 59	51.8 ± 2.7	0.028 ± 0.002
2-5 cm	0.877	128 ± 7	429 ± 15	9.9 ± 1.0	0.023 ± 0.002
5-10 cm	0.893	53 ± 9	148 ± 6	3.7 ± 0.6	0.025 ± 0.004
10-20 cm	0.901	15 ± 2	46 ± 2	1.2 ± 0.4	0.027 ± 0.008

Les résultats des mesures physico-chimiques sont reportés dans le Tableau IV-11. On voit que l'acidité du sol diminue avec la profondeur. Les teneurs en matière organique, la capacité d'échange cationique et la granulométrie des différents horizons de sol sont très variables. En ce sens, ce sol ne présente pas un profil vertical homogène (Figure IV-4).

Tableau IV-11 : Caractéristiques physico-chimiques des horizons de sol prélevés

Caractéristiques	0-2cm	2-5cm	5-10cm	10-20cm
Argiles (%)	8,3	12,3	18,3	14,5
Limons fins (%)	18,9	15,1	19,4	16,7
Limons grossiers (%)	38,5	11,7	27,7	34,4
Sables fins (%)	27,5	18,3	26,2	24,4
Sables grossiers (%)	6,8	42,7	8,4	10
Matières organiques totales ($g.kg^{-1}$)	14	80	60	40
Capacité d'échange cationique ($cmol.kg^{-1}$)	23	16,6	15	12,6
pH	7,59	8,07	8,21	8,28

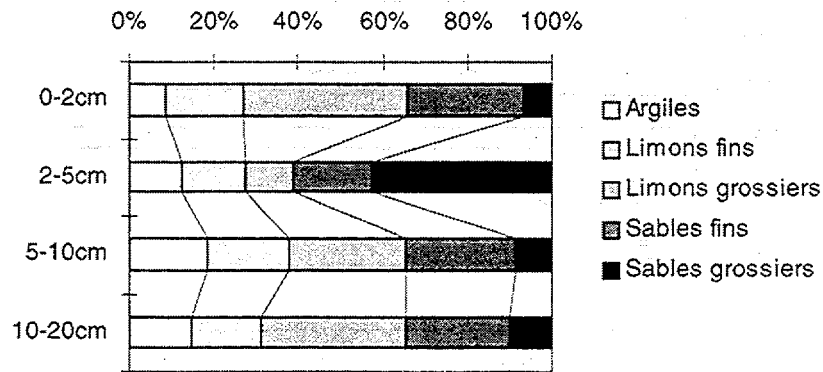


Figure IV-4 : Granulométrie comparée des différents horizons de sol prélevés

2.1.2.2. La végétation

Les activités massiques mesurées dans les végétaux de forêt sont données dans le tableau IV-12.

Tableau IV-12 : Résultats des mesures réalisées sur les échantillons végétaux naturels prélevés en 2000 ($\text{mBq.kg}^{-1} \text{ sec}$)

Matrice végétale	^{241}Am	$^{239+240}\text{Pu}$	^{238}Pu
Champignons	$7,9 \pm 0,4$	$23,9 \pm 3,9$	$0,7 \pm 0,4$
Végétation de sous-bois	$2,4 \pm 0,2$	$4,40 \pm 0,37$	$0,09 \pm 0,05$
Bois de pin	$1,98 \pm 0,05$	$0,69 \pm 0,05$	$0,02 \pm 0,01$
Bois de chêne	$9,2 \pm 0,5$	$19,2 \pm 0,8$	$0,74 \pm 0,08$

2.2. Distribution des activités dans le sol

2.2.1. Profil vertical de la contamination

Les activités mesurées dans les différents horizons de sol et la litière permettent d'établir un profil des teneurs en plutonium (Figure IV-5). Ce profil est identique quelque soit l'isotope choisi puisque les activités massiques de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am sont parfaitement corrélées (Figure IV-6).

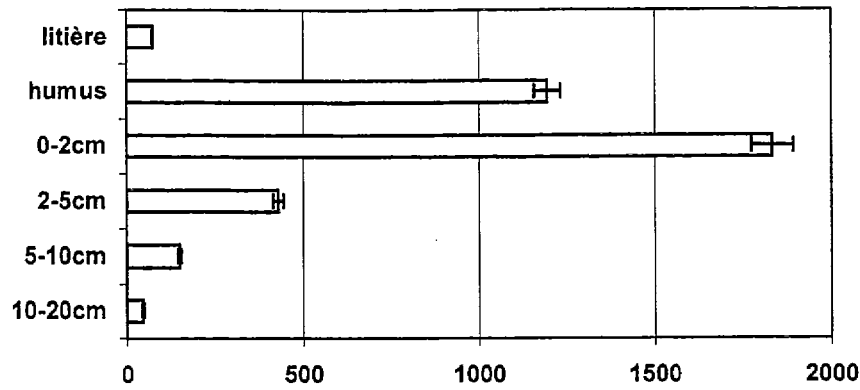


Figure IV-5 : Activités massiques de $^{239+240}\text{Pu}$ comparées des différents horizons de sol et de la litière (mBq.kg⁻¹ sec)

	^{241}Am	$^{239+240}\text{Pu}$	^{238}Pu
^{241}Am	1		
$^{239+240}\text{Pu}$	1	1	
^{238}Pu	0.99	0.99	1

Figure IV-6 : Matrice de corrélations entre les activités massiques des différents isotopes dans la litière et les horizons de sol de forêt

Les activités massiques en Pu et Am des horizons minéraux du sol montrent une diminution exponentielle avec la profondeur.

Le tableau IV-13 présente les résultats en termes d'activités surfaciques. 70% de l'activité est stockée dans les 5 premiers centimètres de sol, et que moins de 20% a migré en deçà de 10 cm.

Tableau IV-13 : Activités surfaciques dans les différents horizons (Bq.m⁻²)

horizon	kg/m ²	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am
litière	1,27	0,0021 ± 0,0002	0,064 ± 0,002	0,023 ± 0,002
humus	8	0,194 ± 0,009	5,7 ± 0,2	2,00 ± 0,06
sol 0-2cm	18,4	0,81 ± 0,04	28,6 ± 0,9	10,0 ± 0,5
sol 2-5cm	36	0,31 ± 0,03	13,5 ± 0,5	4,0 ± 0,2
sol 5-10cm	73	0,24 ± 0,04	9,7 ± 0,4	3,4 ± 0,6
sol 10-20cm	280	0,31 ± 0,10	11,6 ± 0,5	3,9 ± 0,5
total		1,9 ± 0,2	69 ± 2	23 ± 2

On a déjà établi que les stocks d'activités de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am dans les sols de forêt sur l'ensemble de la zone étudiée étaient respectivement de $5,5 \pm 0,3$ GBq, 188 ± 11 GBq et 77 ± 4 GBq, soit 270 ± 15 GBq au total (cf. Chap. III. 3.3). Suite aux résultats obtenus ici, on peut estimer qu'environ 189 GBq d'actinides Pu et Am sont contenus dans les 5 premiers centimètres des sols forestiers.

2.2.2. Modélisation de la migration verticale des radionucléides dans le sol

A partir des mesures d'activités réalisées sur ce profil de sol, les flux des radioéléments peuvent être appréhendés par la modélisation. En effet, il s'agit ici de simuler les dépôts et migrations passées afin d'estimer ces flux.

2.2.2.1. Principes du modèle

Un modèle compartimental simple adapté à partir du modèle proposé par Garten (1978) est schématisé sur la Figure IV-7. L'évaluation des coefficients de relaxation k_n du modèle va permettre d'estimer les temps de rétention et les vitesses de migration des éléments dans chacun des horizons considérés.

Pour chaque compartiment l'activité A_n ($n \geq 1$), l'année t (ans) est définie par la relation suivante :

$$A_n(t) = \sum_{i=1}^t \left[(1 - k_{n+1})^{t-i} \times k_n \cdot A_{n-1}(i) \right] \quad \text{Équation IV-1}$$

Pour A_0 cette relation devient :

$$A_0(t) = \sum_{i=1}^t \left[(1 - k_1)^{t-i} \times D(i) \right]$$

où D est le dépôt sur la litière, englobant dépôt atmosphérique direct et dépôt via la végétation (chute des feuilles principalement).

Connaissant les activités A_n à $t=1998$, on cherche à déterminer les coefficients k_n ($1 \leq n \leq 5$).

L'équation IV-1 est une équation polynomiale d'ordre supérieur à 4 qui, par conséquent, ne possède pas de solution analytique, La détermination des coefficients k_n se fait donc par la recherche d'une solution numérique à l'aide du logiciel STELLA.

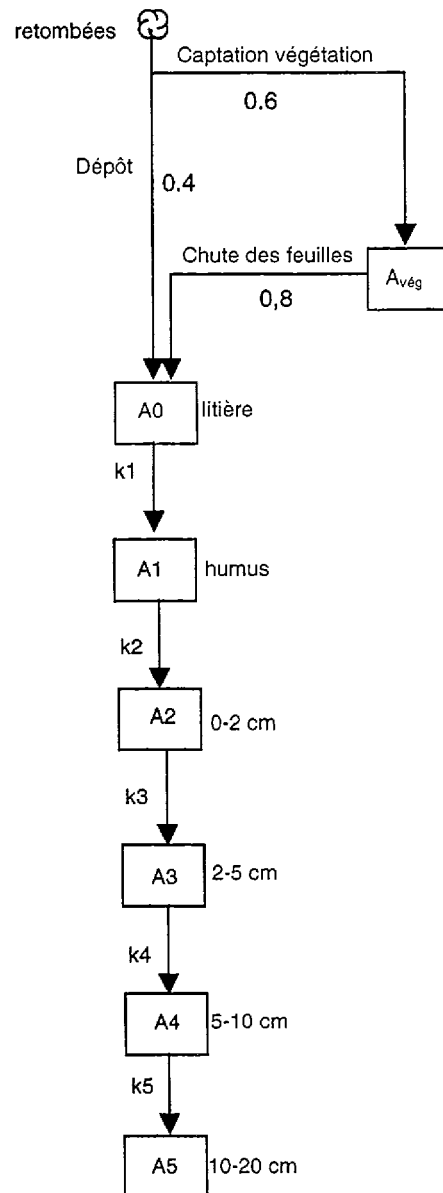


Figure IV-7 : Modèle compartimental proposé de migration du plutonium et de l'américium dans les sols de forêts

2.2.2.2. Données d'entrée

Afin de déterminer les coefficients de relaxation et les vitesses de migration, les données d'entrée du modèle proposé sont :

- La part des dépôts captée par la canopée ; d'après les études réalisées pour le modèle FORESTPATH (Linkov *et al.*, 1997), l'interception moyenne est de 80% pour les forêts de conifères et de 50% pour les forêts de feuillus. Sur la zone d'étude, les surfaces boisées sont recouvertes en moyennes de 57% de feuillus contre 43% de conifères (voir Chap.I), On appliquera donc un coefficient d'interception moyen de 0,6 (soit 60% d'interception).

▪ Le transfert de la végétation vers la litière est principalement lié à la chute des feuilles ; selon Garten (1978), ce coefficient serait égal à 0,95 pour la végétation de sous-bois, et 0,92 pour les arbres feuillus. On peut estimer qu'il serait plus faible pour les conifères, qui ne perdent pas la totalité de leurs épines chaque année. En effet, la valeur de 0,67 est préconisée par Schell (1996). Dans le modèle simplifié tel qu'il est conçu ici, une seule valeur est nécessaire, englobant les 3 phénomènes. Une valeur moyenne de 0,8 est donc représentative du cadre local.

▪ Les valeurs finales des activités surfaciques de $^{239+240}\text{Pu}$ stockées dans chaque compartiment (A0 à A5) sont égales aux valeurs mesurées en 1998 (Tableau IV-13).

2.2.2.3. Résultats

Les coefficients k_n déterminés permettent d'établir les périodes de rétention du Pu et de l'Am dans chaque compartiment (Tableau IV-14), et montrent notamment que la première couche minérale de sol (0-2 cm) retient fortement les radionucléides. Pourtant, l'horizon 0-2 cm présente des faibles taux de matière organique et d'argiles par rapport aux horizons suivants (voir Tableau IV-11), alors que ces paramètres sont généralement connus pour être sources de rétention des radionucléides. Par contre, on note une bonne corrélation négative entre la vitesse de migration dans les 3 couches minérales de sol et leur capacité d'échange cationique ($R = -0,9$). Cela indique que la rétention des radionucléides est d'autant plus importante que la capacité d'échanges de cations avec les minéraux est forte.

Tableau IV-14 : Coefficients de relaxation et périodes de rétention des transuraniens dans les différents compartiment de sol

	k (an^{-1})	Périodes de rétention (ans)	Vitesses moyennes de migration (cm,an^{-1})
litière	$k_1 = 0,2128$	3,3	-
humus	$k_2 = 0,085$	8,2	-
0-2 cm	$k_3 = 0,0425$	16,3	0,12
2-5 cm	$k_4 = 0,1026$	6,8	0,4
5-10 cm	$k_5 = 0,1085$	6,4	0,8
10-20 cm	-	∞	-

En climat tempéré, les vitesses de migration des transuraniens habituellement rencontrés sont comprises entre 0,1 et 1 cm.an⁻¹ et augmentent avec la profondeur (Komosa, 1999). Les résultats obtenus ici (Tableau IV-14) sont tout à fait cohérents avec ces données. En effet, on obtient des vitesses de migration comprises entre 0,12 et 0,8 cm.an⁻¹, augmentant avec la profondeur.

2.3. Distribution des activités dans les principales formations végétales

2.3.1. Niveaux d'activités

Les activités massiques mesurées dans les différentes matrices végétales sont calculées par rapport aux poids frais et sont reportées dans le tableau IV-15.

Tableau IV-15 : Activités massiques des échantillons végétaux naturels (mBq.kg⁻¹ frais)

Matrice végétale	Poids sec/frais	²⁴¹ Am	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²³⁸ Pu
Litière	0,704	18 ± 1	51 ± 1	1,7 ± 0,1
Champignons	0,155	1,23 ± 0,06	3,7 ± 0,5	0,11 ± 0,06
Végétation de sous-bois	0,546	1,3 ± 0,1	2,4 ± 0,2	0,05 ± 0,03
Bois de pin	0,625	0,24 ± 0,03	0,43 ± 0,03	0,010 ± 0,005
Bois de chêne	0,833	7,7 ± 0,4	16,0 ± 0,7	0,62 ± 0,07

2.3.1.1. La litière

Parmi les matrices végétales, la litière est le compartiment où les actinides sont présents en plus forte concentration.

2.3.1.2. Les arbres

Les échantillons de bois de pin et de chêne présentent des activités massiques très différentes. Le bois de chêne contient près de 35 fois plus d'actinides que le bois de pin. Peu d'auteurs font référence à des mesures de transuraniens réalisées sur des arbres. Des mesures réalisées en France près de Nancy font état d'activités liées aux retombées globales comprises entre 0 et 2,7 mBq.kg⁻¹ dans du bois de sapin et entre 0 et 9,4 mBq.kg⁻¹ dans des épicéas (Garrec *et al.*, 1995). Les activités mesurées dans les arbres de la basse vallée du Rhône sont du même ordre de grandeur.

2.3.1.3. La végétation de sous-bois

Les niveaux d'activités mesurés dans la végétation de sous-bois témoignent de transferts sol-plante équivalents à ceux qui existent pour les plantes cultivées.

2.3.1.4. Les champignons

Les champignons ont des teneurs en Pu et Am 10 à 100 fois supérieures à celles de tous les produits cultivés hors de l'influence des rejets du centre de Marcoule déjà évaluées. Comme pour d'autres radionucléides, ils sont, parmi les produits consommables, des compartiments plus sensibles à la contamination des sols. Néanmoins, cette sensibilité n'est pas forcément à relier à une plus importante capacité de transfert des radioéléments, car ces organismes sont contaminés par les couches supérieures du sol. Or, dans le cas d'un sol de forêt, les horizons de surface ont des activités massiques près de 10 fois plus importantes que les couches inférieures.

2.3.2. **Evaluation des stocks de Pu et Am dans les compartiments végétaux**

A partir des activités mesurées dans les différentes formations végétales (arbres, végétation, litière), et des biomasses correspondantes, les stocks d'activité dans ces compartiments peuvent être évalués.

Par défaut, on supposera que les résultats obtenus sur le chêne (Tableau IV-12) sont extrapolables aux autres arbres feuillus et que les résultats obtenus sur le pin le sont pour l'ensemble des conifères.

Sur l'ensemble des 3080 km² de milieux boisés, les biomasses sont estimées d'après les données de l'IFN (Inventaire Forestier National, voir Annexe 5) à 1,6.10⁶ t de feuillus et 1,17.10⁶ t de conifères, Sachant que ces 2,77.10⁶ t d'arbres représentent les ¾ de la biomasse totale arbre+végétation, on en déduit la biomasse de la végétation de sous-bois : 0,92.10⁶ t, De même, la litière constituant 2,5% de la biomasse aérienne totale alors qu'arbres+végétation en représente 96%, sa biomasse est estimée à 96.10³ t.

De là, les stocks d'activités estimés sont donnés dans le Tableau IV-16.

Tableau IV-16: Activités de Pu et Am stockées dans les compartiments végétaux naturels (.10⁶ Bq)

Matrice végétale	Biomasse (*10 ⁶ kg frais)	²⁴¹ Am	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²³⁸ Pu	Pu+Am
Litière	96	1,7 ± 0,1	4,9 ± 0,1	0,16 ± 0,01	6,7 ± 0,3
Végétation de sous-bois	920	1,20 ± 0,09	2,2 ± 0,2	0,05 ± 0,03	3,4 ± 0,3
Bois de pin	1170	0,28 ± 0,03	0,50 ± 0,03	0,011 ± 0,006	0,80 ± 0,08
Bois de chêne	1600	12,3 ± 0,6	25,6 ± 1,1	0,99 ± 0,11	39 ± 2

3. Synthèse du chapitre IV

3.1. Milieux cultivés

Les activités massiques moyennes des principaux produits de l'agriculture pratiquée dans la basse vallée du Rhône ont été évaluées dans ce chapitre. Pour cela, les études réalisées entre 1993 et 1995 fournissent plusieurs résultats de mesures exploitables. Cinq échantillons prélevés et analysés lors de ce travail permettent de compléter ces données. Les activités massiques liées à la contamination globale des sols par les retombées sont de l'ordre de $0,1$ à $10 \text{ mBq.kg}^{-1} \text{ sec}$, selon le type de matrice végétale considérée et l'isotope étudié.

Les apports locaux d'actinides issus des activités industrielles du centre de Marcoule conduisent à étudier de manière particulière certaines zones de productions agricoles.

- Le riz produit en Camargue est en grande partie irrigué par l'eau du Rhône. Cette partie a permis de montrer que les transferts directs de Pu et d'Am de l'eau de submersion vers la plante, et le grain en particulier, sont négligeables vis à vis des autres voies de transfert.
- L'eau du Rhône est également utilisée via le canal BRL pour irriguer d'autres types de cultures. L'étude des activités transférées lors d'une irrigation par aspersion aux salades par voie directe montre que ces apports ont pu conduire à des contaminations mesurables, du même ordre de grandeur que les contaminations par le sol.
- Les rejets atmosphériques du centre de Marcoule sont une seconde source potentielle de contamination des végétaux cultivés dans un périmètre proche de l'installation. Les échantillons de raisins prélevés à Codolet en 1993, 1994 et 1998 montrent en effet un marquage par le Pu et l'Am issus des rejets locaux.

Les récoltes réalisées annuellement sur l'ensemble de la zone étudiée constituent un flux d'activité. Celui-ci peut être estimé actuellement à $727.10^3 \text{ Bq.an}^{-1}$ de Pu et Am, essentiellement dû aux productions de fruits et de vin. Cette estimation ne tient pas compte des transferts directs de radionucléides rejetés par le centre de Marcoule aux végétaux par irrigation ou dépôts atmosphériques, très limités dans l'espace, et impossibles à estimer de façon globale dans l'état actuel des connaissances.

3.2. Milieux boisés

Les milieux naturels sont un terme puits pour les actinides. En effet, les dépôts globaux y sont majorés de 30% en moyenne et les exportations de matière sont négligeables dans la zone étudiée. Afin de connaître la distribution des activités au sein de cet écosystème, des prélèvements de sol et de matrices végétales ont été effectués.

Les résultats acquis sur les échantillons de sol montrent une diminution exponentielle de l'activité avec la profondeur qui est identique pour le Pu et l'Am. 70% des activités sont contenues dans les 5 premiers centimètres de sol. Cela s'explique par des vitesses de migration estimées par modélisation faibles, de 0,1 à 0,8 cm.an⁻¹.

Des échantillons de bois de pin et de chêne, principales essences rencontrées dans les forêts de type méditerranéen, de végétation mixte de sous-bois, de litière et de champignons ont été prélevés et mesurés. Les niveaux d'activités mesurées rendent compte d'une hétérogénéité relativement importante entre ces différentes matrices végétales. Les stocks d'activités sont évalués en couplant les informations obtenues sur les activités massiques des végétaux et leurs biomasses estimées. On aboutit ainsi à un total d'environ 50 MBq ($^{238}\text{Pu} + ^{239+240}\text{Pu} + ^{241}\text{Am}$) actuellement contenus dans les compartiments végétaux, soit moins de 0,1% de l'activité totale présente dans ces écosystèmes.

Chapitre V : Bilan des stocks et des flux d'actinides

1. Etat de la répartition spatiale des actinides

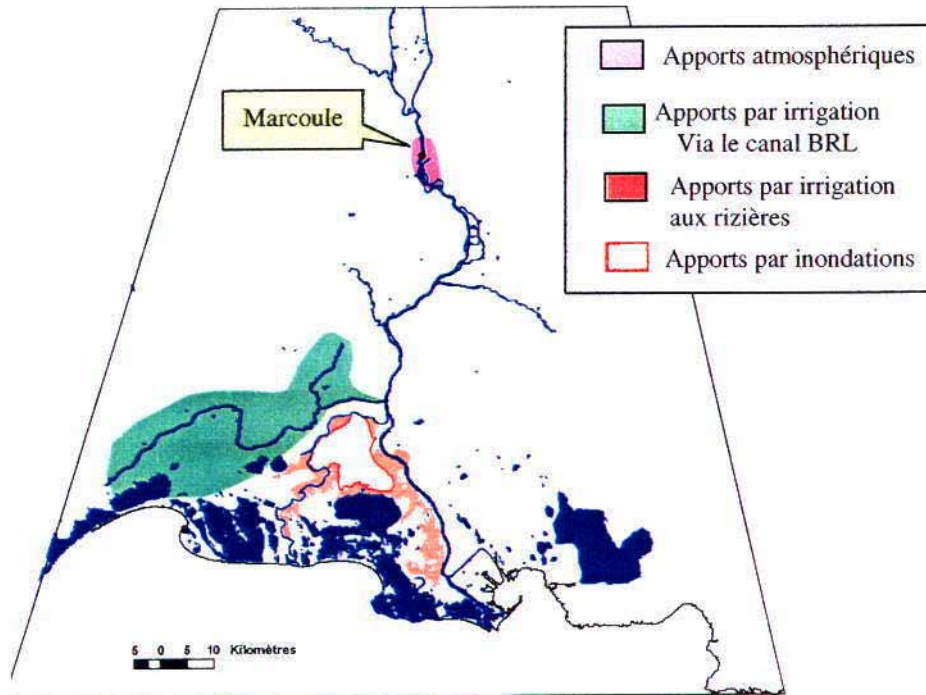


Figure V-1 : Localisation des zones ayant reçu des apports de Pu et Am issus des rejets de Marcoule

L'étude de la répartition spatiale du plutonium et de l'américium dans la basse vallée du Rhône a permis de mettre en évidence trois points essentiels :

- Les activités issues des retombées globales des tirs et de l'accident du satellite sont réparties de façon homogène dans les sols cultivés. Ce constat a pu être établi par la mesure. Les activités surfaciques moyennes calculées, $1,4 \pm 0,1 \text{ Bq.m}^{-2}$ de ^{238}Pu , $47 \pm 3 \text{ Bq.m}^{-2}$ de $^{239+240}\text{Pu}$ et $19 \pm 1 \text{ Bq.m}^{-2}$ de ^{241}Am , sont la conséquence d'une pluviométrie moyenne relativement faible dans cette région.

- Une faible partie des activités issues des rejets liquides effectués par les installations de Marcoule dans le Rhône est parvenue sur le milieu terrestre par voies indirectes ; ces redistributions sont dues à deux causes particulières : les inondations et l'irrigation.

Les dépôts de sédiments du Rhône entraînés lors des inondations de 1993/1994 en Camargue sont répartis de manière très hétérogène dans les sols. Les mesures qui ont été effectuées dans cette aire particulière rendent compte de cette hétérogénéité. Les dépôts les plus importants ont notamment été révélés à proximité des points de ruptures de digues.

Mais trop peu de résultats sont disponibles pour tracer de façon précise l'allure de la répartition des radionucléides apportés accidentellement par cette voie.

L'irrigation est un moyen de transfert chronique des transuraniens du Rhône vers les sols cultivés. Cette pratique conduit à un apport modéré d'activité vers les rizières et vers les zones cultivées dépendant du canal BRL.

- Environ 10% des activités rejetées par le centre de Marcoule dans l'atmosphère se sont déposées dans une zone de 30 km² proche de l'installation, centrée sur la commune de Codolet. Là, les activités des sols atteignent des valeurs plus de 2 fois supérieures aux moyennes régionales. La majeure partie des rejets aériens s'est dispersée sur de plus longues distances et, les dépôts par unité de surface ne peuvent être mis en évidence par la mesure.

La figure V-1 met en évidence les différentes zones du milieu terrestre « vulnérables » vis à vis des rejets radioactifs effectués par le centre de Marcoule.

2. *Etat de la distribution compartimentale*

L'étude de la distribution compartimentale des actinides dans l'écosystème terrestre, telle qu'elle est traitée ici, porte d'une part sur la répartition verticale des radionucléides dans les sols et d'autre part, sur le partage des activités entre sols et végétaux.

L'étude de la distribution verticale de la contamination montre que 70% des activités sont actuellement contenues dans les 5 premiers centimètres de sol et que la première couche minérale du sol (0-2 cm) présente la plus forte période de rétention des transuraniens. Les résultats obtenus informent également sur l'analogie des comportements du plutonium et de l'américium dans les horizons organiques et minéraux du sol, puisque leur répartition est parfaitement identique.

Les compartiments végétaux analysés montrent des teneurs mesurables en ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am . Les activités massiques constatées en milieu naturel permettent d'établir un ordre des niveaux de contamination :

bois de chêne > végétation de sous-bois \approx champignons > bois de pin.

Néanmoins ces activités massiques sont 10 à 1000 fois inférieures aux activités moyennes des sols.

Les mesures effectuées sur des produits végétaux cultivés montrent une distribution de la contamination entre sol et plante similaire au milieu naturel, avec les rapports de concentrations moyens de 10^{-2} . Dans tous les cas, les mesures révèlent des transferts d'activités sol-plantes meilleurs pour l'américium que pour le plutonium.

3. Les flux d'actinides

La répartition actuelle des transuraniens dans la partie terminale du bassin rhodanien résulte des phénomènes de dispersions et d'accumulations naturelles ou anthropiques. Ces phénomènes sont ici regroupés sous le terme de flux. Leur identification et leur quantification, faites à partir de la connaissances des termes sources et/ou des stocks résultants et de l'analyse du système « bas-Rhône », permet d'en dresser un bilan global (Figure V-2).

Le Rhône est la principale voie de transit des actinides Pu et Am dans la zone étudiée. Il a véhiculé entre 1945 et 1998 près de 1027 GBq dont 90% sont issus des rejets liquides de Marcoule et 10% des apports dus à l'érosion du bassin versant. Les deux modes de transferts du Rhône vers les milieux terrestres ont été quantifiés.

Les apports en Camargue lors des inondations de 1993/1994 représentent 0,2 GBq.

L'irrigation intense pratiquée depuis 1960 pour la riziculture en Camargue a entraîné un apport homogène d'environ 5,5 GBq de Pu et Am, dont plus d'un tiers ne s'est pas déposé sur les sols mais a été drainé vers des canaux d'assainissement.

Par ailleurs, on estime à 0,6 GBq l'apport cumulé sur près de 40 ans aux sols irrigués par l'intermédiaire du canal BRL.

Les flux d'activités exportés par les productions agricoles sont évalués à 0,7 MBq/an actuellement. Ils sont extrapolables aux années postérieures aux retombées atmosphériques globales (après 1983), mais ne sont pas représentatives des années antérieures, pour lesquelles d'autres évaluations sont nécessaires.

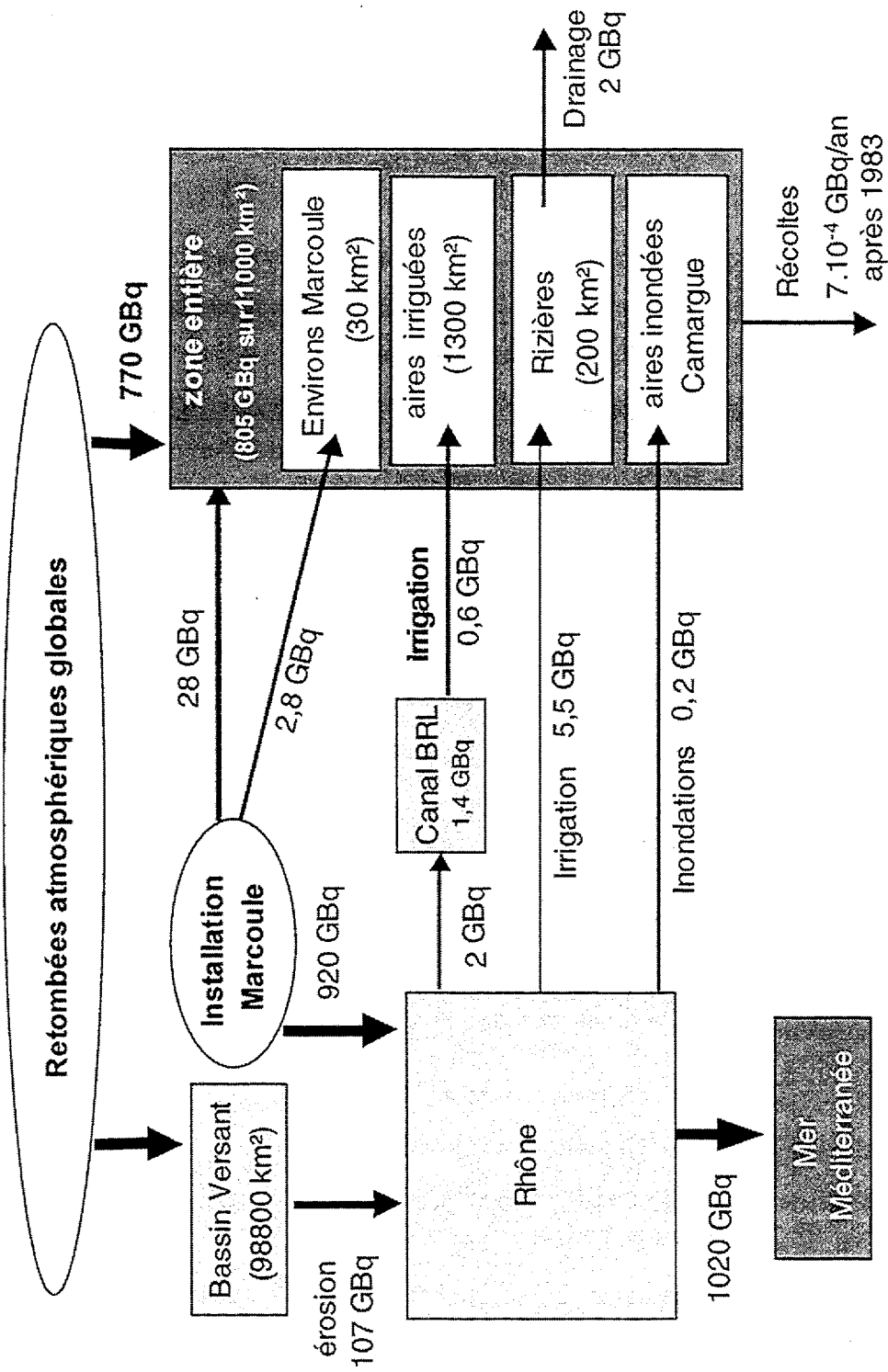


Figure V-2 : Bilan des flux de plutonium et américium intégrés sur la période 1945-1998 dans la basse vallée du Rhône

4. Les stocks résultants

4.1. Milieu terrestre

Sur l'ensemble de la zone d'étude, l'inventaire des actinides montre que près de 805 GBq de Pu 238, 239, 240 et Am 241 sont stockés dans l'écosystème terrestre dont : 70% de $^{239+240}\text{Pu}$, 28% de ^{241}Am et 2% de ^{238}Pu .

Les actinides rejetés par Marcoule représentent moins de 5% de ce stock total, mais sont en partie accumulés dans des termes puits particuliers :

- 2,8 GBq sont décelables sur une zone de 30 km² délimitée par la mesure autour du centre nucléaire,
- 0,6 GBq sont répartis sur une zone de 1300 km² desservie par le canal BRL,
- 3,5 GBq sont stockés dans 200 km² de rizières passées ou présentes,
- 0,2 GBq sont accumulés sur des surfaces restreintes proches des brèches de digues provoquées par les inondations en Camargue.

Près d'un tiers du stock global, soit 270 GBq, est accumulé dans les milieux naturels boisés.

Le sol y est le principal réservoir de plutonium et d'américium puisqu'il contient plus de 99% des transuraniens. En effet, dans ce milieu, la végétation naturelle (arbres + végétation de sous-bois) ne contient que 43 MBq de Pu et Am.

4.2. Milieu aquatique

Afin de calculer les flux apportés vers le milieu terrestre, le découpage du système a conduit à devoir considérer des compartiments aquatiques en tant que zones tampons entre les termes sources et les termes puits. A ce titre, l'évaluation des activités piégées dans ces compartiments permet de fournir des estimations des stocks de radionucléides.

- La mer Méditerranée serait le principal terme puits et aurait accumulé environ 1020 GBq de Pu et Am apportés par le Rhône de 1945 à 1998.
- 1,4 GBq auraient été piégés dans les sédiments du canal d'amenée BRL en 28 ans.
- 2 GBq seraient stockés dans le système de canaux collecteurs en Camargue.

5. Cohérence des résultats

Certaines comparaisons peuvent être faites avec d'autres travaux concernant les niveaux d'activités des éléments ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am et leur distribution dans l'écosystème terrestre.

5.1. Niveaux d'activités dus aux retombées globales

Les niveaux d'activités mesurés dans les sols non influencés par les rejets de Marcoule de la basse vallée du Rhône peuvent être comparés aux valeurs mesurées dans d'autres pays européens proches : Allemagne (Bunzl *et al.*, 1995), Irlande (Mitchell *et al.*, 1990), République Tchèque (Hölgge *et al.*, 1995) (Tableau V-1)

Tableau V-1 : Activités surfaciques moyennes mesurées en Europe occidentale (Bq.m^{-2})

	Allemagne	Rép. Tchèque	Irlande	Cette étude
^{238}Pu	/	1,7 (0,5-6,2)	/	$1,4 \pm 0,1$ (0,7-2,7)
$^{239+240}\text{Pu}$	55 ± 6	49,3 (10-108)	70 (33-127)	47 ± 3 (31-90)
^{241}Am	18 ± 2	/	/	19 ± 1 (12-32)

Sachant que les différences topographiques, climatiques et de latitudes sont les principales causes de disparité entre les dépôts locaux, les résultats des mesures obtenus lors de cette étude sont complémentaires et cohérents avec les autres travaux mentionnés.

5.2. Distribution des stocks entre compartiments végétaux et minéraux

Concernant la distribution des stocks entre sol et compartiments végétaux, deux études fournissent des éléments de comparaison : Dahlman *et al.* (1980) et Little *et al.* (1980). Ces travaux réalisés sur les sites de Oak Ridge et Los Alamos aux Etats Unis, tous deux contaminés par des rejets de plutonium, montrent respectivement que 99,7% et 99,9% du Pu présent est stocké dans les sols (Tableau V-2).

Les résultats obtenus dans la basse vallée du Rhône sont du même ordre de grandeur, bien que les écosystèmes soient différents. Ces résultats montrent encore une fois l'importance du sol en tant que réservoir de plutonium. Pour l'américium, cette étude indique que, comme le plutonium, 99,9% de l'Am est stocké dans le sol.

Tableau V-2: Distribution du stock de plutonium présent dans 3 environnements différents

	<i>Oak Ridge</i>	<i>Los Alamos</i>	<i>Cette étude</i>
sol	0,999	0,997	0,999
bois	$2 \cdot 10^{-6}$	$6 \cdot 10^{-5}$	Chêne $1,4 \cdot 10^{-4}$ Pin $3 \cdot 10^{-6}$
litière	$2 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-5}$

5.3. Distribution verticale des activités dans les sols

Le profil de concentration établi ici pour Pu et Am dans un sol de forêt montre que 70% des radionucléides sont présents dans les 5 premiers centimètres du sol.

Ibrahim (1996) a montré que, sur le site de Rocky Flats, contaminé en 1959, 80% du Pu était présent dans les 9 cm de surface et 50% dans les 3 premiers centimètres. Hölgye (2000) a montré que, dans les sols tchèques, 40% de l'activité de $^{239+240}\text{Pu}$ était accumulée dans les 5 premiers centimètres et 90% dans 15 cm.

Par ailleurs, les temps de rétention et les vitesses de migration calculés (0,1 à 0,8 $\text{cm}\cdot\text{an}^{-1}$) sont cohérents avec les résultats obtenus en Allemagne (Bunzl *et al.*, 1994).

Conclusion

Dans la basse vallée du Rhône, deux sources sont responsables de la dissémination des isotopes émetteurs alpha 238, 239 et 240 du plutonium et 241 de l'américium :

- les retombées atmosphériques liées aux essais thermonucléaires (1945-1980) et à l'explosion d'un satellite dans la haute atmosphère en 1964 ;
- les rejets d'effluents radioactifs effectués par le centre de Marcoule (1958-1998).

L'objectif de cette thèse était d'établir la répartition de ces radionucléides à vie longue dans la basse vallée du Rhône. Ce travail passait par l'inventaire des stocks d'actinides dans les principaux compartiments de l'environnement terrestre et la détermination des flux ayant conduit à cette distribution. Sur l'ensemble de ces points, des réponses ont pu être apportées.

La méthode de travail adoptée, basée sur un couplage entre mesures et modélisation a permis d'effectuer les bilans attendus et de les expliquer.

Pour étudier un système à grande échelle, il a fallu répondre à deux principales exigences :

- collecter des données de terrain selon des stratégies d'échantillonnage précises ;
- analyser et simplifier le système afin de pouvoir le comprendre et le modéliser.

Le rapport d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, qui est un traceur sûr de l'origine des actinides apportés, est un des outils principaux d'aide à l'interprétation des résultats.

La répartition spatiale du Pu et de l'Am dans l'environnement terrestre est aujourd'hui un état résultant suite aux apports de faibles quantités de Pu et Am entre 1945 et 1998.

Les retombées atmosphériques globales sont responsables d'une contamination diffuse de l'environnement. Sur la basse vallée du Rhône, 770 GBq d'actinides Pu et Am ont été ainsi distribués dans les sols de façon relativement homogène au sein de chaque milieu. On distingue les milieux boisés où les dépôts d'actinides ont été majorés de 30% des milieux cultivés ou de prairie. Néanmoins, aucun phénomène de reconcentration des dépôts n'a été mis en évidence.

Par contre, les rejets des installations de Marcoule ont conduit à des contaminations localisées, héritées parfois d'événements naturels ou anthropiques passés. C'est le cas des régions inondées ou irriguées par l'eau du Rhône, sur lesquelles des radionucléides rejetés dans le fleuve ont été déposés. Une contamination directe ancienne par voie atmosphérique

de l'environnement terrestre proche de l'installation a également été mise en évidence. Les mesures réalisées sur des échantillons de sol et les modélisations effectuées dans ce travail ont permis de quantifier les dépôts d'actinides sur chacune de ces zones. On aboutit à un total de près de 32 GBq de Pu et d'Am, originaires des rejets passés du centre de Marcoule, actuellement stockés dans les sols de la basse vallée du Rhône. Cette activité représente moins de 5% de l'activité apportée par les retombées globales, mais n'ayant pas été distribuée de façon homogène, elle est décelable sur les zones considérées.

L'étude de la distribution des activités au sein et entre les différents compartiments de l'environnement terrestre conduit à deux principaux résultats :

- Le sol est le principal réservoir de plutonium et d'américium, contenant plus de 99,9% des actinides. Les exportations par les récoltes de produits cultivés représentent un flux minime par rapport au stock existant dans les sols, et on peut estimer que par cette voie moins de 0,1% de l'activité totale des sols cultivés du bas-Rhône aura été entraînée en 1000 ans, en supposant que les conditions restent identiques à celles qui existent actuellement (mêmes productions, mêmes transferts des radionucléides vers les plantes). L'essentiel des activités présentes dans les sols y restera donc stockée sous réserve qu'aucun événement extérieur ne vienne les perturber.
- Dans les sols non remaniés, actuellement, 70% des activités sont piégées dans les 5 centimètres de surface. Une migration jusqu'à 20 cm a été constatée et sa vitesse quantifiée, mais les processus responsables de ce flux n'étant pas différenciés (phénomènes d'entraînement physiques, chimiques ou bioturbation), il n'est pas possible ici de prévoir les migrations futures de ces radionucléides vers des horizons plus profonds.

Les résultats obtenus lors de ce travail de thèse mettent en évidence certains développements ou éléments de recherche envisageables.

- Les activités de Pu et Am des végétaux mesurées *in situ* ne sont pas explicables par la prise en compte du seul transfert racinaire, quantifié en laboratoire. Il semble que les transferts physiques par remise en suspension de particules de sol par le vent et par les éclaboussures aient un rôle important. La détermination des contributions respectives de chaque type de transfert est un travail qui n'a jamais été réalisé sur le terrain. Ce travail est actuellement envisageable avec les limites de détection existantes en spectrométrie α .

- L'ancienneté des rejets à l'origine des dépôts d'activités mesurées dans les sols autour de l'installation de Marcoule reste à déterminer. L'utilisation des cernes d'arbres afin de dater cet événement qui a déjà été envisagé pourrait s'avérer difficile. En effet, d'autres études montrent que le Pu incorporé dans le bois des troncs peut encore migrer de façon radiale (Garrec *et al.*, 1995).
- Les stocks d'actinides piégés dans les sédiments du canal d'aménée BRL ont été estimés globalement, en cumulant les valeurs de dépôts annuels de 1961 à 1998. Or, il s'avère que ce tronçon du canal a été dragué en 1991 afin d'éviter un colmatage. Des études plus précises sur ce thème paraissent nécessaires afin de fournir une évaluation du stock actuel restant dans le canal, et d'établir le devenir et le « potentiel de contamination » lié aux sédiments déjà extraits.
- Les milieux cultivés et naturels ont été étudiés dans ce travail. Aucune évaluation des stocks et des flux n'a été réalisée pour les milieux urbains. Il est probable que les dépôts atmosphériques qui s'y sont produits aient été entraînés par le ruissellement et que les boues des stations d'épurations des différentes agglomérations aient constitué des termes puits pour ces apports. Il serait intéressant d'étudier leur devenir et notamment les conséquences d'éventuels épandages. Cette piste de recherche concerne également les boues de stations de traitement des communes qui utilisent, ou ont utilisé, le Rhône comme ressource en eau potable.
- Le flux estimé d'actinides vers la Méditerranée est de 1020 GBq pour la période 1945-1998. Il est probable qu'une grande partie de cette activité ait été piégée dans le prodelta du fleuve. Des études sont possibles sur ce thème. L'analyse d'une carotte sédimentaire réalisée au droit de l'embouchure du Grand Rhône pourrait permettre certaines comparaisons.

L'arrêt en 1998 des activités de retraitement effectuées au centre de Marcoule ne peut pas être considéré comme le terme des émissions de transuraniens. Les phases de mise à l'arrêt et de démantèlement des installations impliquent le nettoyage de certaines parties et donc de nouveaux rejets possibles. Dès lors que l'on suit l'évolution de ces rejets jusqu'à leur disparition définitive, on pourra établir un état radioécologique du milieu terrestre de référence pour les années futures.

Bibliographie

- Adriano D. C., McLeod K. W., et Ciravolo T. G., 1981**, Plutonium, curium, and other radionuclide uptake by the rice plant from a naturally weathered, contaminated soil, *Soil Science* 132 : p 83-88.
- Arnold D., Wershofen H., 1999**, Plutonium isotopes in ground level air in Northern Germany since 1990, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 243 : p 409-413.
- Baize D., 1999**, Teneurs totales en éléments traces métalliques dans les sols, INRA éditions.
- Ban-Nai T., Muramatsu Y., Yoshida S., Uchida S., Shibata S., Ambe S., Ambe F., Susuki A., 1997**, Multitracer studies on the accumulation of radionuclides in mushrooms, *Journal of Radiation Research* 38 : p 213-218.
- Beauvy M., 1996**, Solid state chemistry and thermophysical properties of actinides, Kluwer Academic Publishers, Congrès "Actinides and the environment", Malerme, Crète.
- Bondiatti E. A.**, Mobile species of Pu, Am, Cm, Np and Tc in the environment, Pages 81-85 in I.A.E.A. editons.
- Bonnefoy R., Royer P., 1994**, Désordres relevés sur les digues de Camargue pendant les crues du Rhône d'Octobre 1993 et Janvier 1994 et premiers travaux d'urgences, note technique Comité Français des Grands Barrages.
- Bonnett P. J. P., 1990**, A review of the erosional behaviour of radionuclides in selected drainage basins, *Journal of Environmental Radioactivity* 11 : p 251-266.
- Bourelle P. H., Berthelin J., 1998**, Contamination des sols par les éléments en traces : les risques et leur gestion, n°42, Ed. Académie des Sciences.
- BRL-E, 1998**, Informations techniques sur les prises d'eau au Rhône pour alimentation du canal BRL, Lettre du 19/08/1998.
- Brown K. W., 1979**, Plutonium-239 and Americium-241 uptake by plants from soil, EPA-600/3-79-026, U.S. Environmental Protection Agency, Las Vegas.
- Bruneau F., 1999**, Mesure des isotopes du plutonium des sédiments marins par spectrométrie de masse à plasma couple inductivement haute résolution (HR ICP-MS), Doctorat de l'Université de Caen, spécialité : Constituants Élémentaires, U.F.R. de SCIENCES.
- Bunzl K., Kracke W., 1987**, Soil to plant transfer of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{137}Cs and ^{90}Sr from global fallout in flour and bran from wheat, rye, barley and oats, as obtained by field measurements, *The Science of the Total Environment* 63 : p 111-124.
- Bunzl K., Kracke W., 1988**, Cumulative deposition of ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am from global fallout in soils from forest, grassland and arable land in Bavaria (FRG), *Journal of Environmental Radioactivity* 8 : p 1-14.
- Bunzl K., Förster H., Kracke W., Schimmack W., 1994**, Residence times of fallout $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am and ^{137}Cs in the upper horizons of an undisturbed grassland soil, *Journal of Environmental Radioactivity* 22 : 11-27.
- Bunzl K., Flessa H., Kracke W., Schimmack W., 1995**, Association of fallout $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am with various soil components in successive layers of a grassland soil, *Environmental Science and Technology* 29 : 2513.
- Bunzl K., Kracke W., Schimmack W., Zelles L., 1998**, Forms of fallout Cs137 and Pu239+240 in successive horizons of a forest soil, *Journal of environmental radioactivity* 39 : p 55-68.

- Burrough P. A., McDonnell R. A., 1998**, Principles of Geographical Information Systems, Oxford University Press.
- Cawse P. A., Colle C., 1988**, Comparision of radionuclide deposition to soil and vegetation, IVème symposium international de radioécologie, "Impact des accidents d'origine nucléaire sur l'environnement", Cadarache, France.
- Charmasson S., 1999**, -Cycle du combustible nucléaire et milieu marin - Devenir des effluents rhodaniens en Méditerranée et des déchets immergés en Atlantique nord-est, Thèse de Doctorat d'Etat, Université Aix-Marseille II.
- Chauvelon P., 1996**, Hydrologie quantitative d'une zone humide méditerranéenne aménagée : Le bassin de Fumemorte en Grande Camargue, delta du Rhône, Université Montpellier II.
- Cigna A. A., Rossi L. C., Sgorbini S., Zurlini G., 1987**, Environmental study of fallout plutonium in soils from the Piemonte region (North-West Italy), Journal of Environmental Radioactivity 5 : p 71-81.
- COGEMA**, Rapports mensuels, Contrôle de l'environnement de l'établissement, COGEMA-Marcoule.
- COGEMA, 1997**, Marcoule 1955-1997 ou l'aventure du retraitement, Brochure bureau communication COGEMA-Marcoule.
- Cotton S., 1991**, Lanthanides and actinides, Mac Millan Ed., Physical Science Series.
- CRII-RAD, 1994**, Etude radioécologique d'Avignon. Synthèse.
- Dahlman R. C., Garten C. T., Hakanson T. E., 1980**, Comparative distribution of plutonium in contaminated ecosystems at Oak Ridge, Tennessee, and Los Alamos, New Mexico, Pages 371-380 in W. C. Hanson editor, "Transuranic elements in the environment" TIC/US DOE.
- DeBertoli M. C., Gaglione P., 1969**, SNAP plutonium-238 fallout at ISPRA, Italy, Health Physics 16 : p 197-204.
- Deprés A., 1995**, Les sources de plutonium dans l'environnement, Revue Générale du Nucléaire 1 : p 24-29.
- Descamps B., Lumia G., 1996**, Etude radioécologique de l'environnement terrestre du site de Marcoule -Année 1994-, Rapport IPSN/DPRE/SERE 96/019.
- Descamps B., 1997**, Etude radioécologique de l'environnement terrestre du site de Marcoule -Année 1995-, Rapport IPSN/DPRE/SERE 97/002.
- Deville-Cavelin G., Crabol B., Monfort M., 1994**, Description du code COTRAM 2 de coefficients de transfert atmosphérique moyens, Note technique SEAC 94/188, IPSN.
- Dominik J., Burrus D., Vernet J. P., 1987**, Transport of the environmental radionuclides in an alpine watershed, Earth and Planetary Science Letters 84 : p 165-180.
- Dreicer M., Hakonson T. E., White G. C., Whicker F. W., 1984**, Rainsplash as a mechanism for soil contamination of plant surfaces, Health Physics 46 : p 177-187.
- Duffa C., Renaud Ph, Calmet D., 2001**, Activités de ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ dans les sols cultivés de la basse vallée du Rhône, Comptes-rendus de l'Académie des Sciences, Sciences de la Terre et des Planètes, à paraître.
- Eberhard L. L., Gilbert R. O., 1980**, Statistics and sampling in transuranic studies, Pages 173-186 in W. C. Hanson editor, "Transuranic elements in the environment", U.S. DOE.

- Eyrolle F., 1998**, Rôle des substances colloïdales dans les mécanismes de transfert des radionucléides drainés par le Rhône vers la mer Méditerranée, Rapport de Post-Doctorat IPSN/DPRE/LERCM.
- Foster G. R., Hakonson T. E., 1984**, Predicted erosion and sediment delivery of fallout plutonium, *Journal of Environmental Quality* 13 : p 595-602.
- Foulquier L., Jourdeuil L., Lambrechts A., Morello M., Miara P., Pally M., 1996**, Plutonium and americium in the Rhone sediments, IRPA9, Vienne, Autriche.
- Garcia-Olivares A., Iranzo C. E., 1997**, Resuspension and transport of plutonium in the Palomares area, *Journal of Environmental Radioactivity* 37 : p 101-114.
- Garrec J. P., Susuki T., Mahara Y., Santry D. C., Miyahara S., Sugahara M., Zheng J., Kudo A., 1995**, Plutonium in tree rings from France and Japan, *Appl. Radiat. Isot.* 46 : p 1271-1278.
- Garten C. T., Gardner R. H., Dahlman R. C., 1978**, A compartment model of plutonium dynamics in a deciduous forest ecosystem, *Health Physics* 34 : p 611-619.
- Geering J. J., Froideveaux P., Schmittler T., Buchillier T., Valley J. F., 1999**, Mesures de Plutonium et d'Américium dans l'environnement, Pages B.7.2.1-B.7.2.9 in H. Völkle and M. Gobet editors. "Radioactivité de l'environnement et doses de rayonnements en Suisse", Office fédéral de la Santé Publique - Division radioprotection.
- Gilbert R. O., 1987**, Statistical methods for environmental pollution monitoring, John Wiley & Sons Inc.
- Goutelard F., Morello M., Calmet D., 1998**, Alpha spectrometry measurement of Am and Cm at trace level in environmental samples using extraction chromatography, *Journal of Alloys and Compounds* 271-273 : p 25-30.
- Grauby A., Foulquier L., Colle C., Baudin-Jaulent Y., Saas A., Morello M., 1986**, Cycle des actinides dans l'environnement terrestre et dulcaquicole, *Journal of the Less-Common Metals* 122 : p 499-514.
- Guillaumont R., Adloff J. P., 1992**, Behaviour of environmental plutonium at very low concentration, *Radiochimica Acta* 58/59 : p 53-60.
- Hakonson T. E., Watters R. L., Hanson W. C., 1981**, The transport of plutonium in terrestrial ecosystems, *Health Physics* 40 : p 63-69.
- Hanson W. C., 1975**, Ecological considerations of the behaviour of plutonium in the environment, *Health Physics* 28 : p 529-537.
- Hardy E. P., Krey P. W., Volchok H. L., 1973**, Global inventory and distribution of fallout plutonium, *Nature* 241 : p 444-445.
- Harley J. H., 1980**, Plutonium in the environment - A review, *Journal of Radiation Research* 21 : p,83-104.
- Henry P., 1986**, Exposition professionnelle dans les usines de retraitement, *Radioprotection* 21 : p 213-229.
- Hölgge Z., Filgas R., 1995**, Inventory of ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ in the soil of Czechoslovakia in 1990, *Journal of Environmental Radioactivity* 27 : p 181-189.
- Hölgge Z., Filgas R., 1996**, Concentrations of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{238}Pu in the surface air of Prague in 1993, 1994 and 1995, *Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry* 214 : p 303-308.

- Hölgge Z., Maly M., 2000**, Sources, vertical distribution, and migration rates of $^{239,240}\text{Pu}$, ^{238}Pu and ^{137}Cs in grassland soil in three localities of central Bohemia, *Journal of Environmental Radioactivity* 47 : p 135-147.
- Holm E., Aarkrog A., 1988**, Fallout deposition of actinides in Monaco and Denmark following the Chernobyl accident, IV symposium international de radioécologie de Cadarache, Cadarache, France.
- IAEA, 1994**, Handbook of parameters values for the prediction of radionuclide transfer in temperate environment, Technical Report 364, Vienne.
- Ibrahim S. A., Salazar W. R., 2000**, Physicochemical speciation of americium in soils from Rocky Flats, Colorado, USA, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 243 : p 347-351.
- Ibrahim S. A., Schierman M. J., Whicker F. W., 1996**, Comparative distribution of ^{241}Am and $^{239,240}\text{Pu}$ in soils around the Rocky Flats Environmental Technology Site, *Health Physics* 70 : p 520-526.
- IPSN, 1993**, Point zéro radioécologique du site de Civaux - Écosystèmes aquatiques et terrestres -, Rapport IPSN/SERE 93/085.
- IPSN, 1995**, Bilan radioécologique décennal (1993) de l'environnement terrestre et aquatique du centre nucléaire de production d'électricité du Blayais, Rapport IPSN/SERE/95/027.
- IPSN, 1996**, Bilan radioécologique décennal de l'environnement terrestre et aquatique du centre nucléaire de production d'électricité de Cruas, Rapport IPSN/SERE 96/008.
- IPSN, 1997**, Radioactivité des sédiments, des matières en suspension et des eaux prélevés dans les canaux du Bas-Rhône-Languedoc -Année 1995-, Rapport IPSN/DPRE/97/024.
- IPSN, 1999**, Etude radioécologique des canaux du Bas-Rhône Languedoc (BRL) 1997-1998, Rapport contractuel IPSN/DPRE/SERNAT/99-5.
- Ivanovich M., Harmon R. S., 1992**, Uranium-series disequilibrium : Applications to earth, marine, and environmental sciences, 2nd edition, Clarendon Press, Oxford.
- Jia G., Desderi D., Guerra F., Meli M. A., Testa C., 1997**, Concentration and vertical distribution of plutonium and americium in Italian mosses and lichens, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 222 : p 3-9.
- Kirchner G., 1998**, Applicability of compartmental models for simulating the transport of radionuclides in soil, *Journal of Environmental Radioactivity* 38 : p 339-352.
- Komosa A., 1999**, Migration of plutonium isotopes in forest soil profiles in Lublin region (Eastern Poland), *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 240 : p 19-24.
- Lambrechts A., Duffa C., 1998**, Concentrations des transuraniens dans des sédiments des deux bras du Rhône et de la Camargue prélevés en mars 1997, Rapport IPSN/SERE 98/009.
- Lambrechts A., Foulquier L., 1994**, Suivi radioécologique du Rhône de l'amont du site de Marcoule à l'embouchure (1992-1993), IPSN/DPEI/SERE/94/026.
- Levy F., Clech A., Giordani J. M., Mistral J. P., 1992**, Control and discharge of radioactive liquid effluents from the Marcoule complex, Radioprotection, "Environmental impacts of Nuclear installations", Fribourg.
- Linkov I., Belinkaia E., Kandlikar M., Schell W. R., 1997**, Radionuclide transport in forest ecosystem : parameters for modelling, "Nuclear data for science and technology", G. Reffo editor Bologne.
- Linsley G. S., Simmonds J. R., Kelly G. N., 1978**, An evaluation of the food chain pathway for transuranium elements dispersed in soils, R81, NRPB, Oxon (UK).

- Little C. A., Whicker F. W., Winsor T. F., 1980**, Plutonium in grassland ecosystem at Rocky Flats, *Journal of Environmental Quality* 9 : p 350-354.
- Lumia G., Descamps B., 1995**, Etude radioécologique de l'environnement terrestre du site de Marcoule -Année 1993-, IPSN/DPEI/SERE 95/028.
- Madic C., 1995**, Le plutonium - Une brève introduction à ses propriétés nucléaires et physico-chimiques, *Revue Générale du Nucléaire* 1 : p 7-13.
- Martin J. M., Thomas A. J., 1988**, Anomalous concentrations of atmospheric plutonium-238 over Paris, *Journal of Environmental Radioactivity* 7 : p 1-16.
- Masson M., 1997**, Bilan radioécologique décennal du centre nucléaire de production d'électricité de Famanville : 1996, IPSN/DPRE/SERE 97/016.
- Métivier H., 1984**, Physico-chimie du plutonium, *Radioprotection* 19 : p 115-128.
- Mitchell P. I., Sanchez-Cabeza J. A., Ryan T. P., McGarry A. T., Vidal-Quatras A., 1990**, Preliminary estimates of cumulative caesium and plutonium deposition in the Irish terrestrial environment, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles* 138 : p 241-256.
- Monte L., 1995**, Evaluation of radionuclide transfer function from drainage basins of fresh water systems, *Journal of Environmental Radioactivity* 26 : p 71-82.
- Muramatsu Y., Rühm W., Yoshida S., Tagami K., Ushida S., Wirth E., 2000**, Concentrations of ^{239}Pu and ^{240}Pu and their isotopic ratios determined by ICP-MS in soils collected from the Chernobyl 30 km zone, *Environmental Sciences and Technology*.
- Myttenaere C., Bourdeau P., Masset M., 1969**, Relative importance of soil and water in the indirect contamination of flooded rice with radiocaesium, *Health Physics* 16 : p 701-707.
- Nassiet Y., 1984**, Le Valcarès à la Camargue, Brochure du Parc Naturel Régional de Camargue, Arles.
- Naudet G., 1995**, Les quantités de plutonium en jeu dans le monde, *Revue Générale du Nucléaire* 1 : p 46-49.
- Noël M.H., 1996**, Le plutonium comme traceur du transfert et de l'accumulation des apports particuliers du Rhône en Méditerranée Nord Occidentale, Thèse de 3^{ème} cycle, Paris XII.
- Okajima S., Shimasaki T., Kubo T., 1990**, Measurement of ^{239}Pu in soil and plants in the Nishiyama District of Nagasaki, *Health Physics* 58 : p 591-596.
- OPRI**, Tableaux mensuels des mesures. Rapports mensuels, Le Vésinet.
- Pan V., Stevenson A., 1996**, Temporal variation analysis of plutonium baseline concentration in surface air from selected sites in the continental US, *Journal of Environmental Radioactivity* 32 : p 239-257.
- Perkins R. W., Thomas C. W., 1980**, Worldwide Fallout. Pages 53-82 in W. C. Hanson editor. "Transuranic elements in the environment", U.S. DOE, USA.
- Pinder J. E., McLeod K. W., 1989**, Mass loading of soil particles on plant surfaces, *Health Physics* 57 : p 935-942.
- Pont D., 1997a**, Informations sur les inondations de 1993 et 1994 en Camargue, *Courrier*, 05/05/97.
- Pont D., 1997b**, Les débits solides du Rhône à proximité de son embouchure : données récentes (1994-1995), *Revue de Géographie de Lyon* 72 : p23-33.

- Quinault J. M., Cartier Y., Bourdeau F., 1989**, Guide d'évaluation de l'impact de rejets radioactifs atmosphérique, EDF Département Sites Environnement Information.
- Ramade F., 1984**, Eléments d'écologie - Ecologie fondamentale, McGraw-Hill.
- Renaud P., Duffa C., Descamps B., Louvat D., 2000**, Répartition de ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ et ^{241}Am dans l'environnement de l'installation du Centre de Marcoule. Rapport IPSN/DPRE/SERNAT/2000-02.
- Robouch P., 1987**, Contribution à la prévision du comportement de l'américium, du plutonium et du neptunium dans la géosphère ; Données chimiques, Thèse de 3ème cycle, Université Louis Pasteur de Strasbourg.
- Rodier J., Estournel R., Court R., Gallissian F., 1966**, Retour des eaux usées dans le milieu ; expérience tirée de sept années de fonctionnement du centre de production de plutonium de Marcoule, IAEA, "Disposal of radioactive wastes into seas, oceans and surface waters" : Symposium on disposal of radioactive wastes into seas, oceans and surface waters, Vienne 16-20/05/1966.
- Roditis J. C., 1993**, Caractérisation de la charge solide en suspension et alluvionnement du Rhône dans le secteur Beaucaire-Arles. Crues et modalités du transfert sédimentaire, Rapport de DEA, Université Aix-Marseille I.
- Romney E. M., Wallace W., Schulz R. K., Kinnear J., Wood R. A., 1981**, Plant uptake of ^{237}Np , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am and ^{244}Cm from soils representing major food production areas of the United States, Soil Science 132 : p 40-59.
- Roussel-Debet S., 1999**, Bilan bibliographique. Comportement des actinides transuraniens en milieu terrestre. Conséquences en matière de modélisation des transferts aux végétaux, Rapport IPSN/DPRE/SERLAB/99-019.
- Schell W. R., Linkov I., Myttenaere C., Morel B., 1996**, A dynamic model for evaluating radionuclide distribution in forests from nuclear accidents, Health Physics 70 : p 318-335.
- Schulz R. K., Ruggieri M. R., 1981**, Uptake and translocation of Neptunium-237, Plutonium-238, Plutonium-239,240, Americium-241 and Curium-244 by a wheat crop, Soil Science 132 : p 77-82.
- Schulz W. W., Penneman R. A., 1986**, Americium, Pages 887-947 in J. Katz, G. T. Seaborg, and L. R. Morss, editors. "The chemistry of actinide elements". Chapman and Hall.
- Seaborg G. T., 1948**, Search for elements 94 and 93 in nature. Presence of ^{94}Pu in Pitchblende. Journal of American Chemistry Society 70 : p 1571-1573.
- Skipperud L., Oughton D., Salbu B., 2000**, The impact of Pu speciation on distribution coefficients in Mayak soil, The Science of the Total Environment 257 : p 81-93.
- Smith J. N., Ellis K. M., 1982**, Transport mechanism for Pb-210, Cs-137 and Pu fallout radionuclides through fluvial-marine systems, Geochimica et Cosmochimica Acta 46 : p 941-954.
- Sumerling T. J., 1984**, The use of mosses as indicators of airborne radionuclides near a major nuclear installation, The Sciences of the Total Environment 35 : p 251-265.
- Testa C., Degetto S., Jia G., Gerdot R., Desideri D., Meli M. A., Guerra F., 1998**, Plutonium and americium concentrations and vertical profiles in some italian mosses used as bioindicators, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 234 : p 273-276.
- Thomas A. J., 1988**, Géochimie des éléments naturels et artificiels. Application à l'étude de l'interface Continent-Océan, Doctorat de Sciences, Paris VI.

UNSCEAR, 1974, Rayonnements ionisants : niveaux et effets, Volume I.

UNSCEAR, 1982, Rayonnements ionisants : sources et effets biologiques.

Vianet R., 1994, Inondation de Camargue ; suivi première phase, octobre 1993 ; suivi et bilan, novembre 1993 ; synthèse, janvier 1994, Rapport d'étude Parc Naturel Régional de Camargue, Arles.

Watters R.L., Ednington D.N., Hakonson T.E., Hanson W.C., Smith M.H., Wicker F.W., Wildung R.E., 1980, Transuranic elements in the environment, Rapport US-DOE/TIC-22800, W.C. Hanson Ed.

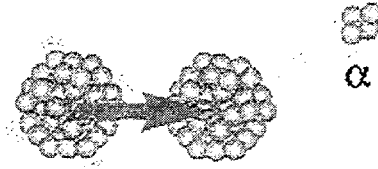
Weigel F., Katz J. J., Seaborg G. T., 1986, Plutonium, Pages 499-839 in J. Katz, G. T. Seaborg, and L. R. Morss editors, "The chemistry of actinide elements", Chapman and Hall.

Wildung R. E., Garland T. R., 1974, Influence of soil plutonium concentration on plutonium uptake and distribution in shoots and roots of barley, Journal of Agricultural Food Chemistry 22 : p 836-838.

ANNEXES

ANNEXE 1

Points de radiotoxicologie et de radioprotection



Les isotopes ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu du plutonium et ^{241}Am de l'américium sont émetteurs alpha à vie longue.

Les rayonnements α (particules d'hélium ^4_2He) sont arrêtés par les couches les plus superficielles de la peau mais très fortement radiotoxiques par contamination interne. Cette radiotoxicité est liée à l'émission de particules alpha et de neutrons de fission.

Les deux principales voies d'atteinte à l'homme sont l'ingestion, l'inhalation ou l'entrée par blessure. Une fois incorporés dans l'organisme, ils s'accumulent dans le squelette et dans le foie, et vont alors conduire à une irradiation interne. Leur période d'élimination est estimée à 40 ans dans le foie, et environ 100 ans dans les os.

La LAI (Limite Annuelle d'Incorporation) définit pour un adulte l'activité ingérable maximale pour atteindre un équivalent de dose de 5 mSv/an. Cette unité n'est plus utilisée à l'heure actuelle, mais permet de donner des ordres de grandeur par rapport aux activités mesurées dans l'environnement.

<i>Isotopes</i>	<i>Période (ans)</i>	<i>Activité spécifique (Bq.g⁻¹)</i>	<i>LAI (Bq)</i>
^{238}Pu	87,7	$6,43 \cdot 10^{11}$	20000
^{239}Pu	24 100	$2,30 \cdot 10^9$	30000
^{240}Pu	6 563	$8,35 \cdot 10^9$	30000
^{241}Am	432,7	$1,19 \cdot 10^{11}$	5000

La Communauté européenne définit un niveau d'exemption des matériaux solides de 1000 Bq.kg^{-1} pour tous les isotopes étudiés.

ANNEXE 2

Calcul des activités surfaciques de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Pu dues aux retombées globales en France

(à partir des données fournies par l'UNSCEAR (1982) et Perkins (1980))

Les dépôts annuels en plutonium dus aux retombées des tirs sont calculés à partir des données de l'UNSCEAR (1982) pour le strontium. En effet, ces radioéléments ont sensiblement le même comportement.

Après les dépôts de 1980, une certaine quantité de strontium est encore présente dans la stratosphère. On considère qu'elle se dépose régulièrement jusqu'en 1983.

Année	% de ^{90}Sr déposé	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Pu
Avant 1957	14.52%	0.218	8.423	110.075
1958	5.07%	0.076	2.938	38.394
1959	8.46%	0.127	4.905	64.100
1960	2.11%	0.032	1.223	15.984
1961	2.83%	0.042	1.639	21.422
1962	11.61%	0.174	6.733	87.994
1963	21.09%	0.316	12.230	159.839
1964	13.33%	0.200	7.729	101.012
1965	6.22%	0.093	3.606	47.128
1966	2.63%	0.039	1.526	19.939
1967	1.35%	0.020	0.782	10.217
1968	1.57%	0.023	0.908	11.864
1969	1.17%	0.018	0.681	8.898
1970	1.65%	0.025	0.958	12.523
1971	1.52%	0.023	0.883	11.535
1972	0.70%	0.010	0.403	5.273
1973	0.26%	0.004	0.151	1.977
1974	0.98%	0.015	0.567	7.415
1975	0.48%	0.007	0.277	3.625
1976	0.22%	0.003	0.126	1.648
1977	0.65%	0.010	0.378	4.943
1978	0.80%	0.012	0.467	6.097
1979	0.26%	0.004	0.151	1.977
1980	0.24%	0.004	0.139	1.813
1981	0.13%	0.002	0.076	0.989
1982	0.13%	0.002	0.076	0.989
1983	0.13%	0.002	0.076	0.989

Dépôts annuels de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Pu issus des tirs (Bq.m^{-2})

Ces chiffres correspondent à des dépôts annuels, uniquement dus aux essais militaires. Pour avoir les dépôts réels, il faut y ajouter les apports du SNAP en ^{238}Pu . Ces apports se sont faits entre 1965 et 1973, de façon irrégulière tant au point de vue de la répartition géographique que de la répartition annuelle. En utilisant les résultats de mesures effectuées dans l'air à New York durant cette période (Perkins, 1980, p76-77), on évalue la part du ^{238}Pu issue du SNAP déposée chaque année à nos latitudes de 1965 à 1973.

Année	% déposé	²³⁸ Pu
1965	1	0.0096
1966	10	0.096
1967	16	0.1536
1968	32	0.3072
1969	12	0.1152
1970	6	0.0576
1971	12	0.1152
1972	8	0.0768
1973	3	0.0288

Dépôts annuels de ²³⁸Pu issu du SNAP (Bq.m²)

On a l'ensemble des valeurs des dépôts atmosphériques annuels jusqu'en 1983. Il est possible d'établir les activités surfaciques cumulées chaque année jusqu'à aujourd'hui, c'est à dire en prenant compte des dépôts antérieurs et de la décroissance radioactive.

Pour chaque isotope du Pu, on aura :

$$A_i(a) = A_i(a-1) \times \exp(-\lambda_i) + D_i(a)$$

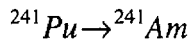
avec $A_i(a)$: concentration intégrée en isotope i pour l'année a (Bq.m⁻²),

λ_i : constante de décroissance radioactive de l'isotope i (an⁻¹),

$D_i(a)$: dépôt surfacique en isotope i durant l'année a (Bq.m⁻²),

a : année considérée (ans).

De même, on peut calculer les activités en ²⁴¹Am générées par la décroissance du ²⁴¹Pu. Pour cela, il faut établir l'équation de filiation :



$$\frac{d[\text{Pu}]}{dt} = -\lambda_{\text{Pu}} \cdot [\text{Pu}]$$

$$\frac{d[\text{Am}]}{dt} = -\lambda_{\text{Am}} \cdot [\text{Am}] + \lambda_{\text{Pu}} \cdot [\text{Pu}] \quad (1)$$

$$\frac{d[\text{Am}]}{dt} = -\lambda_{\text{Am}} \cdot [\text{Am}] + \lambda_{\text{Pu}} \cdot [\text{Pu}]_0 \cdot e^{-\lambda_{\text{Pu}} t}$$

soit $[\text{Am}] = K(t) \cdot e^{-\lambda_{\text{Am}} t}$

$$\frac{d[\text{Am}]}{dt} = -\lambda_{\text{Am}} \cdot K(t) \cdot e^{-\lambda_{\text{Am}} t} + \frac{dK}{dt} e^{-\lambda_{\text{Am}} t} \quad (2)$$

en identifiant (1)=(2)

$$\frac{dK}{dt} = \lambda_{\text{Pu}} \cdot [\text{Pu}]_0 \cdot e^{(\lambda_{\text{Am}} - \lambda_{\text{Pu}}) t}$$

$$K(t) = \frac{\lambda_{\text{Pu}}}{\lambda_{\text{Am}} - \lambda_{\text{Pu}}} \cdot [\text{Pu}]_0 \cdot e^{(\lambda_{\text{Am}} - \lambda_{\text{Pu}}) t} + C \quad \text{où } C \text{ est une constante}$$

$$[\text{Am}] = \frac{\lambda_{\text{Pu}}}{\lambda_{\text{Am}} - \lambda_{\text{Pu}}} \cdot [\text{Pu}]_0 \cdot e^{-\lambda_{\text{Pu}} t} + C \cdot e^{-\lambda_{\text{Am}} t}$$

$$t = 0 \Rightarrow C = [\text{Am}]_0 - \frac{\lambda_{\text{Pu}}}{\lambda_{\text{Am}} - \lambda_{\text{Pu}}} \cdot [\text{Pu}]_0$$

$$\text{De là on a : } [\text{Am}] = [\text{Am}]_0 \cdot e^{-\lambda_{\text{Am}} t} + \frac{\lambda_{\text{Pu}} [\text{Pu}]_0}{\lambda_{\text{Am}} - \lambda_{\text{Pu}}} \cdot (e^{-\lambda_{\text{Pu}} t} - e^{-\lambda_{\text{Am}} t})$$

On obtient donc l'équation permettant de calculer l'activité surfacique pour le ²⁴¹Am l'année a :

$$A_{\text{Am}}(a) = A_{\text{Am}}(a-1) \cdot e^{-\lambda_{\text{Am}}} + \frac{\lambda_{\text{Pu}} \cdot A_{\text{Pu}}(a-1)}{\lambda_{\text{Am}} - \lambda_{\text{Pu}}} \cdot (e^{-\lambda_{\text{Pu}}} - e^{-\lambda_{\text{Am}}})$$

avec : $A_i(a)$: Concentration intégrée de l'isotope i l'année a (Bq.m^{-2}),
 λ_i : Constante de décroissance radioactive de l'isotope i (an^{-1}).

A partir des données déjà établies, et en tenant compte des différentes décroissances radioactives, on calcule les activités surfaciques intégrées pour ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am .

Année	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Pu	^{241}Am
Avant 1957	0.22	8.42	110.07	0.18
1958	0.29	11.36	143.30	0.42
1959	0.42	16.27	200.66	0.74
1960	0.44	17.49	207.22	1.08
1961	0.48	19.13	218.90	1.44
1962	0.65	25.86	296.61	1.92
1963	0.97	38.09	442.51	2.65
1964	1.16	45.82	522.72	3.50
1965	1.25	49.43	545.29	4.39
1966	1.38	50.95	539.60	5.27
1967	1.54	51.73	524.46	6.12
1968	1.86	52.64	511.67	6.95
1969	1.98	53.32	496.53	7.75
1970	2.04	54.28	485.71	8.53
1971	2.17	55.16	474.42	9.30
1972	2.24	55.57	457.40	10.03
1973	2.25	55.72	437.88	10.73
1974	2.25	56.29	424.72	11.41
1975	2.24	56.56	408.39	12.07
1976	2.22	56.69	390.84	12.69
1977	2.22	57.07	377.42	13.29
1978	2.21	57.53	365.78	13.86
1979	2.20	57.68	350.56	14.42
1980	2.18	57.82	335.90	14.94
1981	2.17	57.90	321.11	15.45
1982	2.15	57.97	307.00	15.93
1983	2.14	58.05	293.56	16.38
1984	2.12	58.05	279.77	16.81
1985	2.10	58.05	266.62	17.22
1986	2.09	58.05	254.09	17.61
1987	2.07	58.05	242.15	17.98
1988	2.05	58.05	230.77	18.33
1989	2.04	58.05	219.93	18.66
1990	2.02	58.05	209.59	18.98
1991	2.01	58.05	199.74	19.27
1992	1.99	58.05	190.35	19.56
1993	1.97	58.05	181.41	19.82
1994	1.96	58.05	172.88	20.07
1995	1.94	58.05	164.76	20.31
1996	1.93	58.05	157.01	20.54
1997	1.91	58.05	149.64	20.75
1998	1.90	58.05	142.60	20.95
1999	1.88	58.05	135.90	21.14
2000	1.87	58.05	129.52	21.32

Activités surfaciques intégrées en Bq.m^{-2}

Le rapport isotopique $\frac{^{238}\text{Pu}}{^{239+240}\text{Pu}}$ caractéristique des retombées atmosphériques globales est actuellement de 0,03 et est toujours resté compris entre 0,025 et 0,045.

ANNEXE 3

3a : Occupation du sol

(données Corine Land Cover®)

Département	Bouches du Rhône		Gard		Vaucluse	
Surface des départements (ha)	525530		587259		357470	
Formations principales	Surface (ha)	%	Surface (ha)	%	Surface (ha)	%
BOIS et FORET						
Futaie de pin d'Alep	27353	5.2	0	0	9860	2.8
Futaie de pin maritime	0	0.0	4774	0.8	0	0.0
Futaie de pin noir	0	0.0	0	0.0	1742	0.5
Futaie de pin Sylvestre	0	0.0	0	0.0	0	0.0
Futaie de Hêtre	0	0.0	4228	0.7	0	0.0
Futaie de conifères indifférenciés	0	0.0	10249	1.7	4170	1.2
Futaie de Sapin Epicea	0	0.0	0	0.0	0	0.0
Futaie de Douglas	0	0.0	0	0.0	0	0.0
Futaie de Cèdre	0	0.0	0	0.0	385	0.1
Futaie mixte feuillus et conifères	0	0.0	3077	0.5	0	0.0
Reboisement de conifères indiffér.	3852	0.7	8498	1.4	2199	0.6
Reboisement de feuillus indiffér.	0	0.0	0	0.0	2902	0.8
Mélange de futaie de feuillus sur taillis	0	0.0	0	0.0	0	0.0
Mélange de futaie de conifères sur taillis	9766	1.9	24158	4.1	16095	4.5
Taillis de Châtaignier	0	0.0	10516	1.8	0	0.0
Taillis de Chêne pubescent	3667	0.7	0	0.0	18766	5.2
Taillis de Chêne décidus	0	0.0	14864	2.5	0	0.0
Taillis de Chêne vert	7726	1.5	52077	8.9	6889	1.9
Taillis de Hêtre	0	0.0	0	0.0	1077	0.3
Taillis de feuillus indifférenciés	0	0.0	27014	4.6	10427	2.9
Boisement morcelé ou lache feuillus	1753	0.3	17220	2.9	11824	3.3
Boisement morcelé ou lache de conifères	6077	1.2	2030	0.3	7721	2.2
Forêt ripicole de feuillus	897	0.2	0	0.0	2630	0.7
Forêt ripicole de conifères	47	0.0	0	0.0	0	0.0
Total conifères	47095	9.0	51248	8.7	42172	11.8
Total feuillus	14043	2.7	127457	21.7	54515	15.3
Total forêts	61138	11.7	178705	30.4	96687	27.09
GARRIGUES BOISEES						
Garrigue boisée de feuillus	9559	1.8	23076	4	19640	5.5
Garrigue boisée de conifères	15626	3.0	4748	0.8	5935	1.7
Total Garrigues	25185	4.8	27824	4.8	25575	7.2
LANDES (- de 10% de couvert boisé)						
Landes des terrains salés	39	0	36	0	-	-
Lande montagnarde	-	-	250	0	-	-
Lande non montagnarde	-	-	80	0	-	-
Total landes y compris non différenciées	83052	15.8	88720	15.1	29662	8.3
INCULTES OU FRICHES						
Total inculte	135753	25.8	48333	8.2	73866	20.6
EAU						
Total eau	57510	11	15381	2.6	3691	1
AGRICOLE						
Total agricole	151480	28.7	217770	37	127590	35.7
GARRIGUES NON BOISEE						
Total garrigue non boisée	2410	0.5	1330	0.2	0	0
ESPACES VERTS URBAINS						
Total espace vert urbain ou de littoral	2984	0.6	1428	0.2	401	0.1
AUTRES						
Total autres	6018	1.1	7768	1.5	0	0

ANNEXE 3

3b : Biomasses des principales formations végétales

(données IFN Inventaire Forestier National)

Principales formations	Bouches du Rhône		Gard		Vaucluse	
	Volume sur pied m ³	Masse t	Volume sur pied m ³	Masse t	Volume sur pied m ³	Masse t
FEUILLUS						
Arbousier	0	0	23304	10487	0	0
Autre fruitier	0	0	22056	9925	15276	6874
Grand aulne	0	0	61607	27107	0	0
Bouleau	0	0	23951	12455	0	0
Cerisier ou merisier	0	0	45805	21528	0	0
Chêne pubescent	364186	240363	1625064	1072542	1473333	972400
Chêne vert	306926	171879	715589	400730	413207	231396
Chêne pédonculé	0	0	0	0	0	0
Chêne rouvre	0	0	196238	109893	0	0
Charme	0	0	0	0	0	0
Châtaignier	0	0	2261904	1130952	0	0
Grand érable	0	0	0	0	0	0
Petit érable	0	0	37059	19271	17683	9195
Frêne	37101	20777	104700	58632	18865	10564
Hêtre	0	0	1171047	655786	172458	96576
Peuplier non cultivé	109042	43617	401240	160496	214595	85838
Peuplier cultivé	0	0	0	0	0	0
Robinier faux acacia	0	0	80710	52462	0	0
Saule	0	0	11196	3807	81813	27816
Tilleul	0	0	0	0	0	0
Tremble	20870	8348	0	0	68082	27233
Autres feuillus	41993	18897	42258	19016	23496	10573
Total volume et masse Feuillus	880118	503880	6823728	3765089	2498808	1478466
CONIFERES						
Pin maritime	0	0	1457699	641388	193955	85340
Pin Larico	0	0	857878	360309	13201	5544
Pin sylvestre	14819	6372	370373	159260	371356	159683
Pin d'Alep	2494813	1047821	344517	144697	1526177	640994
Pin noir	0	0	321875	135188	618123	259612
Pin à crochets	0	0	131062	56357	89824	38624
Pin pignon	0	0	119403	50149	0	0
Epicéa commun	0	0	530391	201549	0	0
Epicéa de Sitka	0	0	0	0	0	0
Sapin pectine	0	0	187174	69254	0	0
Sapin de Vancouver	0	0	0	0	0	0
Sapin de Nordmann	0	0	0	0	0	0
Melèze d'Europe	0	0	40264	19327	0	0
Cèdre de l'Atlas	0	0	31560	15464	80634	39511
Douglas	0	0	102812	42153	0	0
Autres conifères	24736	10389	17845	7495	6771	2844
Total volume et masse conifères	2534368	1064583	4512853	1902589	2900041	1232153
TOTAL TOUTES ESSENCES	3414486	1568462	11336581	5667678	5398849	2710619

ANNEXE 4

4a : Surfaces agricoles (données AGRESTE et DDAF)

Cultures	Bouches du Rhône		Gard		Vaucluse	
	Surface (ha)	%	Surface (ha)	%	Surface (ha)	%
CEREALES						
Blé tendre	500	0.1	1500	0.2	2200	0.6
Blé dur	24000	4.6	22500	3.8	13900	3.89
Seigle	10	0.0	150	0	250	0.07
Orge	400	0.1	1800	0.3	1200	0.34
Avoine	50	0.0	300	0.1	100	0.03
Mais	2300	0.4	1250	0.2	1300	0.36
Sorgho	300	0.1	550	0.1	500	0.14
Triticale	10	0.0	150	0	100	0.03
Riz	11600	2.2	5200	0.9	0	0
Mélange céréales	40	0.0	150	0	120	0.03
Total Céréales	39210	7.0	33550	5.7	19670	5.49
OLEAGINEUX et PROTEAGINEUX						
Colza	1550	0.3	2100	0.3	1200	0.3
Tournesol	3550	0.7	6000	1.0	3500	1.0
Soja	420	0.1	105	0.0	50	0.0
Pois protéagineux	50	0.0	180	0.0	400	0.1
Total Oléagineux et Proté.	5580	1.1	8385	1.4	5150	1.4
PLANTES AROMATIQUES et MEDICINALES						
Total plantes aromatiques	125	0.02	237	0	3640	1
CULTURES FOURRAGERES						
Fourrages annuels	610	0.1	230	0	65	0.02
Luzerne	1130	0.2	4900	0.8	2150	0.6
Autres légumineuses	570	0.1	130	0	200	0.06
Mélange graminées	820	0.2	1100	0.2	250	0.07
Prairies	17240	3.3	7100	1.2	2850	0.8
Parcours, landes, alpages	32060	6.1	54500	9.3	3800	1.06
Total cultures fourragères	52625	10	68165	12	9370	2.62
POMMES DE TERRE						
Total Pommes de terre	810	0.1	760	0.1	590	0.1
CULTURES LEGUMIERES						
Ail	180	0	25	0	240	0.1
Artichauts	390	0.1	80	0	100	0.03
Asperges	90	0.0	2300	0.4	580	0.16
Aubergines	170	0.0	28	0	100	0.03
Bettes et cardes	40	0.0	35	0	30	0.01
Betteraves polagères	60	0.0	5	0	15	0
Carottes	370	0.1	256	0	750	0.21
Céleris branches	25	0.0	40	0	25	0.01
Choux fleurs	550	0.1	45	0	100	0.03
Choux autres	250	0.0	79	0	122	0.03
Concombres	80	0.0	10	0	15	0
Courgettes	765	0.1	360	0.1	475	0.13
Épinards	340	0.1	100	0	100	0.03
Fraises	8	0.0	45	0	260	0.07
Haricots verts	140	0.0	100	0	340	0.1
Haricots à écosser	40	0.0	90	0	90	0.03
Melons	630	0.1	1322	0.2	1930	0.54
Navets	160	0.0	75	0	200	0.06
Oignons	210	0.0	122	0	120	0.03
Petits pois	25	0.0	100	0	30	0.01
Persil	110	0.0	5	0	20	0.01
Poireaux	130	0.0	20	0	100	0.03
Poivrons	90	0.0	28	0	180	0.05
Potirons, courges, citrouil.	160	0.0	16	0	130	0.04
Radis	80	0.0	100	0	120	0.03
Salades	2850	0.5	535	0.1	639	0.18
Tomates	1010	0.2	559	0.1	1080	0.3
Total cultures légumières	8960	1.7	6520	1.1	8016	2.3
CULTURES FRUITIERES						
Abricots	1165	0.2	4450	0.7	755	0.2
Cerises	315	0.1	1050	0.2	3640	1.02
Pêches	2880	0.5	3800	0.6	245	0.07
Prunes	290	0.1	295	0.1	520	0.15
Poires	2525	0.5	425	0.1	1220	0.34
Pommes	4800	0.9	1850	0.3	4670	1.31
Toutes Olives	2240	0.4	1310	0.2	1210	0.34
Amandes	180	0.0	1280	0.2	100	0.03
Kiwis	20	0.0	245	0	32	0.01
Coings	10	0.0	10	0	30	0.01
Figues	30	0.0	20	0	20	0.01
Raisin de table	670	0.1	1225	0.2	6130	1.71
Total cultures fruitières	15125	2.9	16380	2.7	18572	5.18
VITICULTURE						
AOC	5540	1	20200	3.5	41000	11.5
Autres vins, jus et moûts	4850	0.9	45410	7.7	6300	1.7
Total viticulture	10390	1.9	65610	11	47400	13.2
JACHERES						
Total jachères	14400	2.7	12845	2.2	8090	2.2
TOTAL AGRICOLE	147225	28	212519	36	120498	33.5

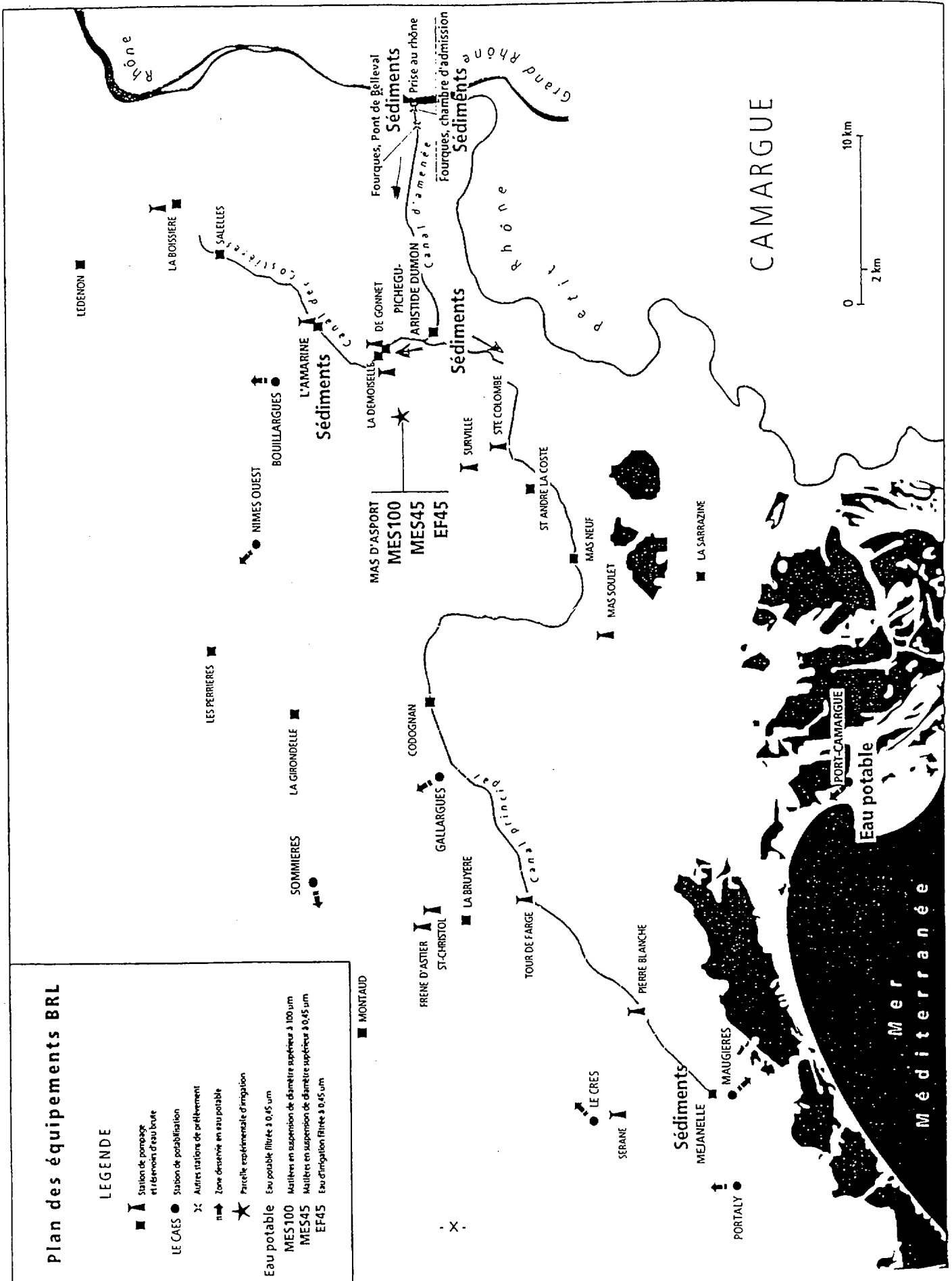
ANNEXE 4

4b : Production et rendement des cultures (données AGRESTE et DDAF)

Production en t et rendements en t/ha	Bouches du Rhône		Gard		Vaucluse	
	Production	Rdt	Production	Rdt	Production	Rdt
CEREALES						
Blé tendre	2000	4	5250	3,5	7040	3,2
Blé dur	108000	4,5	82000	3,6	51430	3,7
Seigle	20	2	375	2,5	750	3
Orge	1680	4,2	6800	3,8	5000	3,3
Avoine	110	2,2	745	2,5	200	2
Maïs	15100	6,5	9100	7,8	9910	5,8
Sorgho	1560	5,2	3025	5,5	2650	5,3
Triticale	40	4	375	2,5	380	3,8
Riz	71920	6,2	29650	5,7	0	0
Mélange céréale	120	3	450	3	220	1,9
Total Céréales et Rdt moyen	200550	4.18	137770	4.04	77580	3.2
OLEAGINEUX et PROTEAGINEUX						
Colza	2945	1,9	3750	1,8	2450	2,1
Toumesol	9940	2,8	8550	1,4	7700	1,9
Soja	1300	3,1	220	2,1	150	2,2
Pois protéagineux	100	2	450	2,5	1040	2,6
Total Oléagineux, Proté., Rdt moy	14305	2	12970	1.3	11340	1.5
PLANTES AROMATIQUES et MEDICINALES						
Total plantes aromatiques, Rdt moy	7	0.07	7.9	0.04	158.2	0.041
CULTURES FOURRAGERES						
Choux et tubercules fourra.	155	31	1035	30	100	20
Fourrages annuels	3765	6,2	820	3,5	440	6,8
Luzerne	9640	8,5	31350	6,4	13222,5	6,2
Autres légumineuses	2891	5,1	455	3,5	1230	6,2
Mélange graminées	5305	6,5	5050	4,6	1625	6,5
Prairies	5520	0,3	19880	5,9	1855	0,7
Parcours, landes, alpages	32060	1,0	39880	0,7	1520	0,4
Total cultures fourragères, Rdt moy.	173974	6.6	99315	5.4	33560	5.3
POMMES DE TERRE						
Total Pommes de terre, Rdt moy.	25720	32.7	17600	19	15633	26.33
CULTURES LEGUMIERES						
Ail	2200	12,2	125	5	2400	10,0
Artichauts	1560	4,0	528	6,6	600	6,0
Asperges	280	3,1	5050	2,2	2100	3,6
Aubergines	6800	40,0	940	3,4	3500	35,0
Bettes et cardes	2040	51,0	875	25	600	20,0
Betteraves potagères	1440	24,0	75	15	340	22,7
Carottes	16210	43,8	6700	34	30810	41,1
Céleris branches	1125	45,0	1200	30	750	30,0
Choux fleurs	11140	20,3	652	14,5	1600	16,0
Choux autres	6200	24,8	1189	15,1	2430	19,9
Concombres	20230	252,9	280	26	2100	140,0
Courgettes	74050	96,8	8400	23,3	21750	45,8
Epinards	5440	16,0	920	9,2	2200	22,0
Fraises	180	22,5	945	21	5330	20,5
Haricots verts	1610	11,5	600	6	2720	8,0
Haricots à écosser	240	6,0	900	10	405	4,5
Melons	21515	34,2	18400	13,9	39420	20,4
Navets	3680	23,0	1650	22	4500	22,5
Oignons	9630	45,9	6265	45	2560	21,3
Pastèques	160	80,0	1575	63	1200	15,0
Petits pois	125	5,0	620	6,2	215	7,2
Persil	2860	26,0	67,5	13,5	340	17,0
Poireaux	2210	17,0	300	15	2850	28,5
Poivrons	3960	44,0	632,5	22,6	6480	36,0
Potirons, courges, citrouil.	6240	39,0	320	20	5850	45,0
Radis	1200	15,0	3200	32	1260	10,5
Salades	116940	41,0	16450	30,7	20745	32,5
Tomates	200320	198,3	34500	61,7	65300	60,5
Total cultures légumières, Rdt moy	519690	40.7	115374	19.2	230613	25.0
CULTURES FRUITIERES						
Abricots	9540	8,2	14000	3,4	7800	10,3
Cerises	1110	3,5	2170	2,3	21450	5,9
Pêches	77770	27	68400	20,7	3160	14
Prunes	3410	11,8	1981	7,3	7770	14,9
Poires	67290	24	7020	17,6	127330	26,5
Pommes	222590	46,4	37600	23,5	198100	37
Toutes Olives	2980	1,1	1825	1,3	1600	1,2
Amandes	245	1,4	155	0,5	270	2,7
Kiwis	280	14	3500	15,2	570	17,8
Framboises	0	0	0	0	0	0
Coings	115	11,5	200	1	120	4
Figues	300	10	80	4	50	2,5
Raisin de table	9684	14,5	8220	6,7	59300	9,7
Total cultures fruitières et Rdt moy.	395314	10.8	145364,5	6.5	427520	9.2
VITICULTURE (en hl)						
AOC (en hl)	288210	52	1062100	53	1862053	45,8
Autres vins, jus et moûts (en hl)	336600	69	3224943	71	1210963	192
Total viticulture et Rdt moyen	624810	40.3	4287043	41.3	3088922	91.6

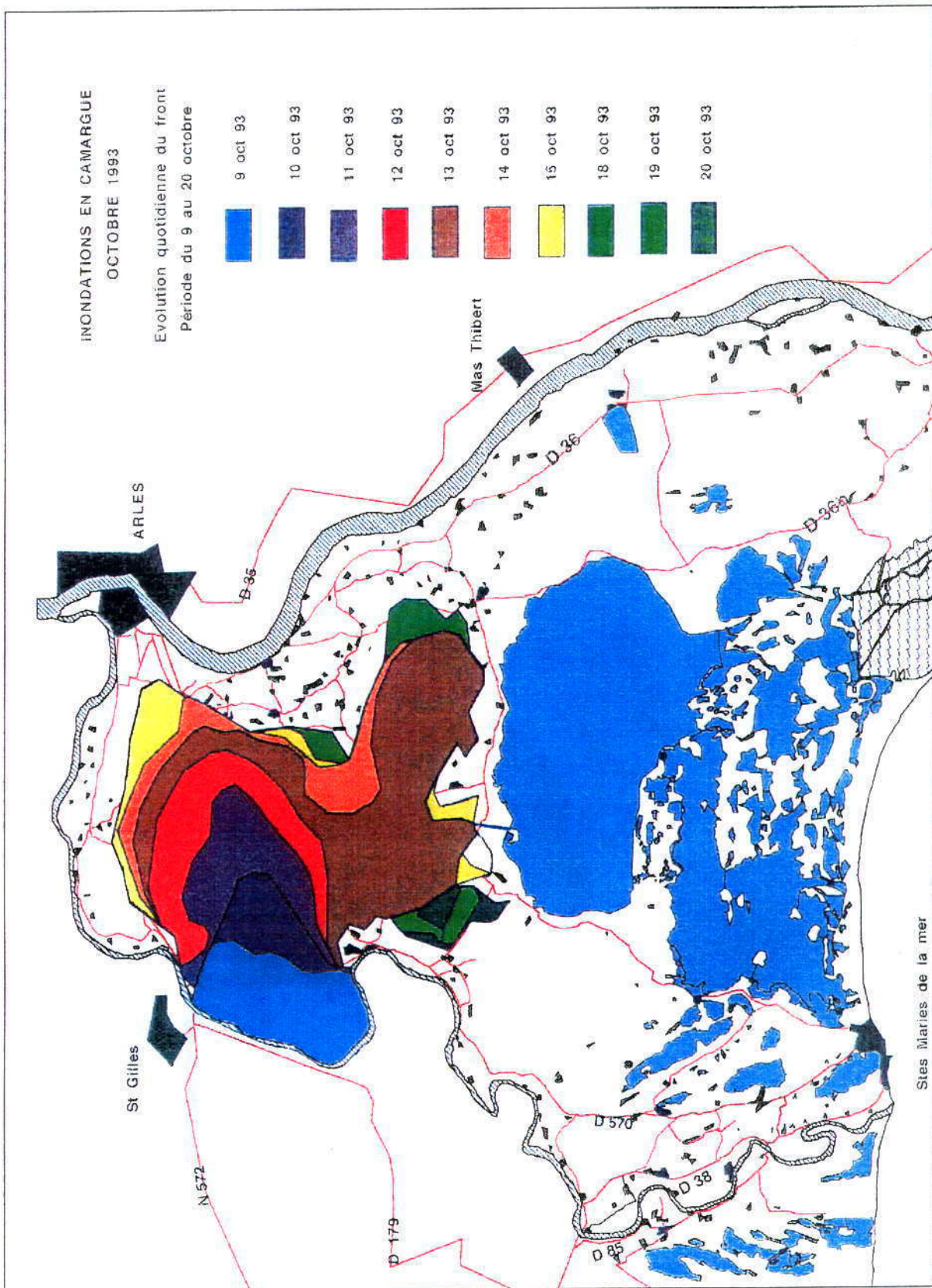
ANNEXE 5

Plan des équipements BRL



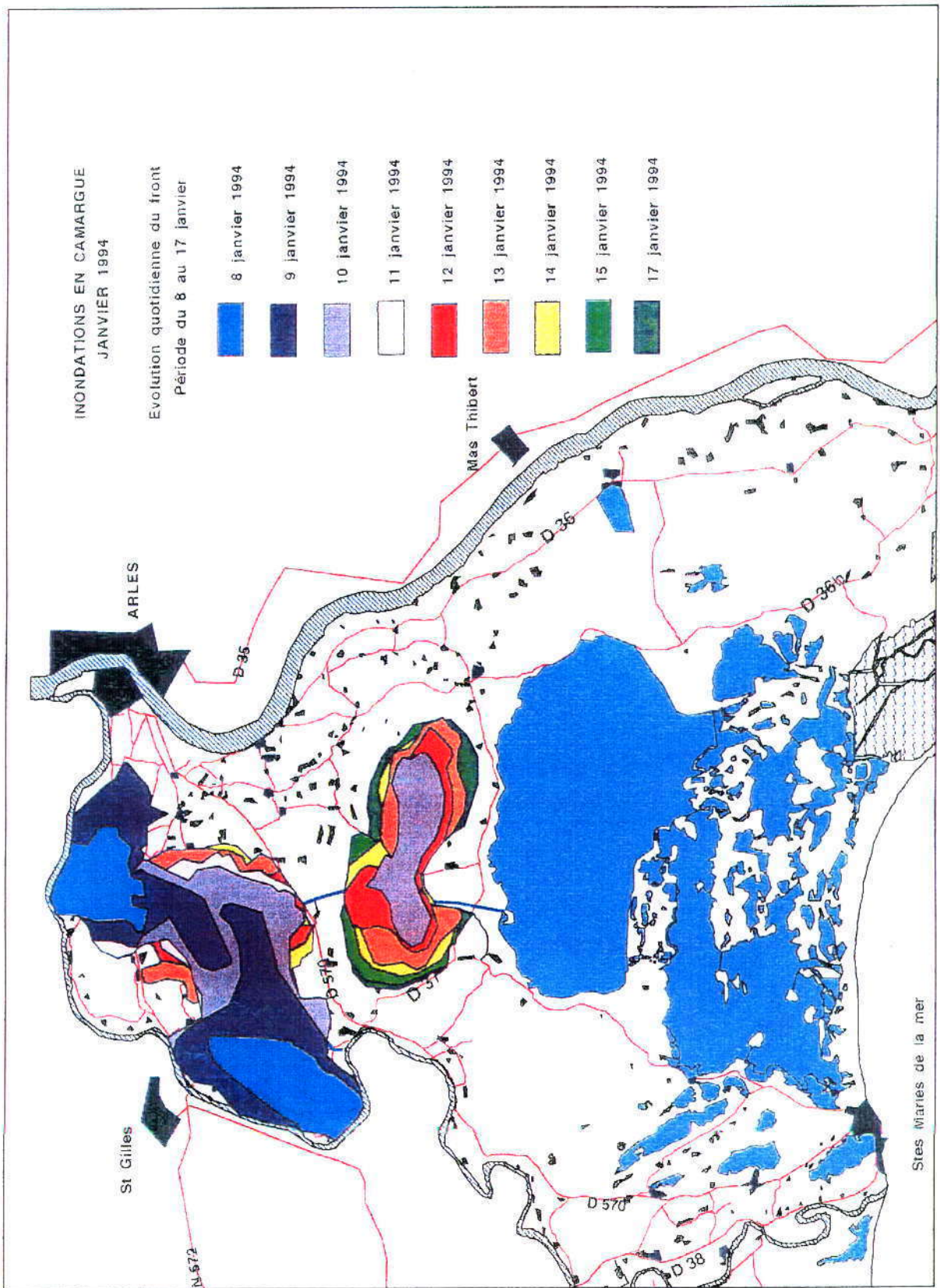
ANNEXE 6

6a : Carte éditée par le Parc Naturel Régional de Camargue



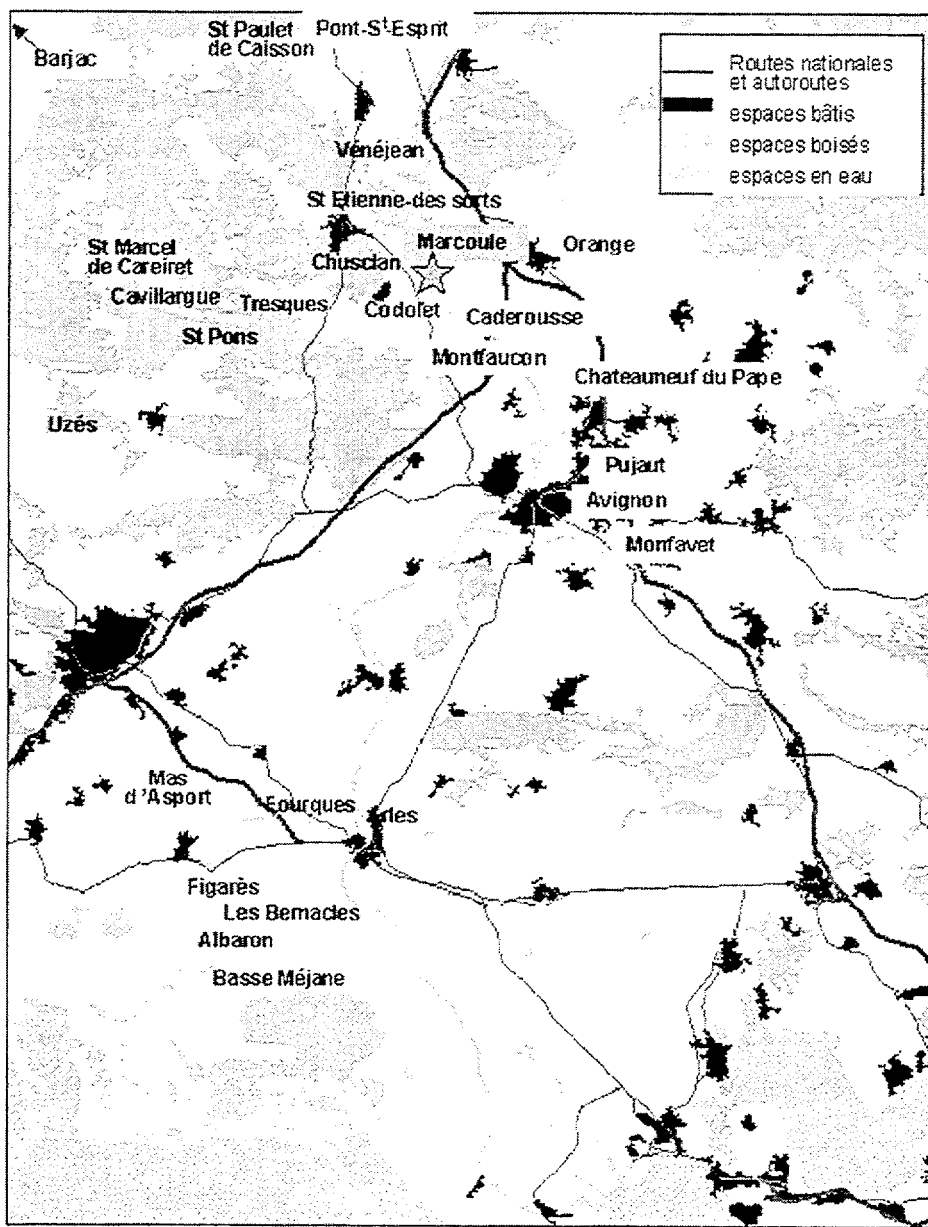
ANNEXE 6

6b : Carte éditée par le Parc Naturel Régional de Camargue



ANNEXE 7

Résultats des mesures réalisées de 1993 à 1995 lors des études d'impact radioécologiques du site de Marcoule



Emplacement des stations de prélèvements

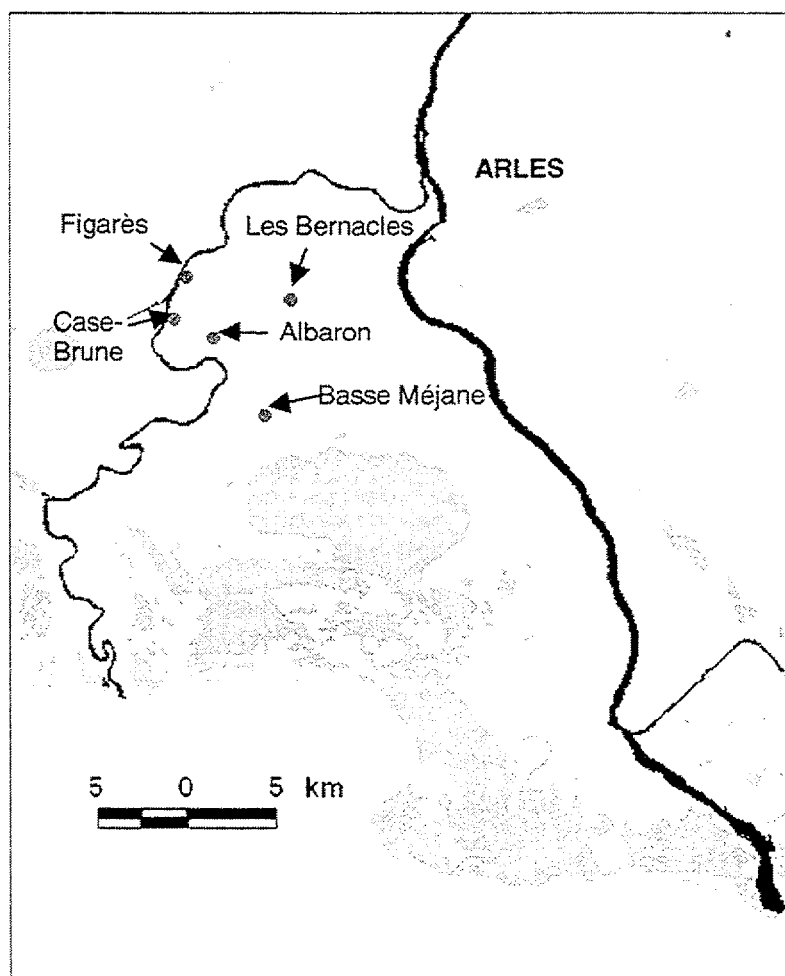
Activités massiques (mBq/kg sec ou mBq/l) mesurées entre 1993 et 1995 dans les différentes matrices. Les incertitudes affichées ne concernent que la métrologie. Les résultats interprétables, dont les incertitudes de métrologie sont inférieures à 50% de la valeur annoncée, sont en grisé.

Salades	Avignon		Orange		Uzès		Cavillargue	
²³⁸ Pu	< 0,5	< 0,5	< 2	< 0,3	< 2,02	< 0,7	< 2,97	< 1,8
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	< 1,3	< 1,6	4,6 ± 3,5	< 0,8	2,9 ± 0,7	< 1,7	1,7 ± 1,0	< 4,8
²⁴¹ Am	7,8 ± 1,5	1,4 ± 0,4	5,4 ± 2,9	4,7 ± 0,8	2,8 ± 0,7	2,6 ± 0,7	3,2 ± 1,09	3,6 ± 1,2
Pêches	Avignon		Montfaucon	Pont S' Esprit	S' Pons la calme		Roquemaure	
²³⁸ Pu	< 0,2	< 0,4	< 0,3	< 0,4	< 0,2	< 0,4	< 0,2	
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	< 0,6	< 1,1	< 0,8	< 1,3	< 0,5	< 1,2	< 0,4	
²⁴¹ Am	< 0,5	< 0,4	1,2 ± 0,5	3,6 ± 0,9	< 0,5	2,8 ± 0,8	< 0,4	
Pommes	Tresques Caderousse		Raisins		Codolet		Barjac	
²³⁸ Pu	< 0,97	< 0,83			²³⁸ Pu	1,1 ± 0,5	7,9 ± 1,8	< 0,57
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	0,51 ± 0,17	< 0,3			²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	3,7 ± 1,1	35,4 ± 4,3	0,98 ± 0,16
²⁴¹ Am	< 0,31	< 0,25			²⁴¹ Am	11 ± 4	8,6 ± 1,9	0,52 ± 0,16
Vin	Codolet		Barjac		S'Etienne des S		Chateauneuf du P	
²³⁸ Pu	< 0,02	< 0,6	< 0,77	< 0,02	< 0,8	< 0,42	< 0,01	< 0,02
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	< 0,05	< 1,7	0,49 ± 0,21	< 0,05	< 2,3	< 0,16	< 0,03	< 0,05
²⁴¹ Am	< 0,01	< 1,3	0,76 ± 0,25	< 0,01	< 1,8	< 0,15	< 0,008	< 0,01
Riz	Fourques		Albaron					
²³⁸ Pu	< 0,2	< 0,2	0,21 ± 0,14	< 0,3	< 0,41			
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	< 0,7	< 0,5	1,02 ± 0,14	0,19 ± 0,11	0,31 ± 0,09			
²⁴¹ Am	< 0,2	< 0,5	< 0,14	0,50 ± 0,27	0,18 ± 0,09			
Herbages	Pujaut		Vénéjean		Tresques			
²³⁸ Pu	< 0,7	< 0,5	1,97 ± 0,7	< 0,7	< 1,02			
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	3,9 ± 1,6	< 1,3	66,19 ± 7,94	< 1,9	0,90 ± 0,47			
²⁴¹ Am	40 ± 5	2,8 ± 0,8	35,37 ± 4,43	256 ± 19	1,75 ± 0,47			
Lait de chèvre	Pujaut		S' Paulet		Fromages de chèvre		Pujaut	Tresques
²³⁸ Pu	< 0,04	< 0,3	< 0,04	< 0,3		²³⁸ Pu	< 0,76	< 0,74
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	< 0,11	< 0,8	< 0,10	< 0,8		²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	< 0,29	< 0,27
²⁴¹ Am	< 0,04	< 0,8	< 0,03	< 0,8		²⁴¹ Am	0,48 ± 0,17	1,05 ± 0,23
Mousses	Avignon		Codolet		Tresques		Chusclan	
²³⁸ Pu	48 ± 8	41 ± 6	789 ± 90	662 ± 67	582 ± 56	53 ± 9	40 ± 12	23,3 ± 3
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	1162 ± 145	1109 ± 115	4522 ± 505	4317 ± 425	3184 ± 286	1618 ± 174	1870 ± 198	793 ± 57
²⁴¹ Am	448 ± 55	480 ± 60	2895 ± 372	2858 ± 320	2054 ± 268	536 ± 68	796 ± 105	308 ± 31
Thym	S'Marcel		Codolet		Lapins		Caderousse	Tresque
²³⁸ Pu	< 0,4	< 1,42	30 ± 4	83 ± 8	7,1 ± 2,8		²³⁸ Pu	< 0,67
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	6,7 ± 1,4	3 ± 1,0	93 ± 12	217 ± 25	34,5 ± 5,3		²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	0,4 ± 0,17
²⁴¹ Am	5,4 ± 0,9	2,5 ± 0,5	188 ± 20	110 ± 14	28,2 ± 4,1		²⁴¹ Am	< 0,34
Sols maraichers	Avignon		Orange		Uzès		Vénéjean	Cavillargue
²³⁸ Pu	< 2	2,0 ± 1,0	< 2	1,8 ± 1,0	2,5 ± 1,0	< 1,0	< 2	2,6 ± 1,0
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	107 ± 11	79 ± 10	76 ± 8	85 ± 10	78 ± 8	86 ± 11	90 ± 10	82 ± 8
²⁴¹ Am	40 ± 5	34 ± 6	37 ± 6	38,8 ± 5	37 ± 6	88 ± 12	36 ± 6	38 ± 5
Sols de verger	Avignon	Montfaucon	Pont S' Esp.	S' Pons la C	Arles	Tresques	Caderousse	
²³⁸ Pu	2,5 ± 1,2	3,5 ± 1,6	< 1	3,2 ± 1,4	5,7 ± 1,2	< 2	3,3 ± 1,0	
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	119 ± 14	102 ± 2	108 ± 12	93 ± 12	146 ± 13	75 ± 9	114 ± 13	
²⁴¹ Am	47 ± 5	40 ± 3	49 ± 5	42 ± 7	59 ± 12	29 ± 5	40 ± 6	
Sols de vigne	Codolet		Barjac		St Etienne les S	Chateauneuf du P.		
²³⁸ Pu	13 ± 3	15,3 ± 3,0	4,7 ± 1,4	6,4 ± 2,0	4,5 ± 1,5	2,6 ± 1,2		
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	373 ± 40	390 ± 50	214 ± 24	178 ± 21	153 ± 17	125 ± 16		
²⁴¹ Am	111 ± 14	137 ± 20	77 ± 11	68 ± 11	9 ± 3	65 ± 10		
Sols de rizière	Fourques		Albaron		Sols non cultivés		Pujaut	Vénéjean
²³⁸ Pu	5,7 ± 2,2	4,5 ± 2,0	3,5 ± 1,6	5,5 ± 2,0			²³⁸ Pu	5,1 ± 1,6
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	146 ± 13	127 ± 12	102 ± 2	198 ± 25			²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	193 ± 21
²⁴¹ Am	59 ± 12	56 ± 7	40 ± 3	67 ± 9			²⁴¹ Am	80 ± 9

ANNEXE 8

Prélèvements IPSN réalisés en 1994 et 1996 en Camargue

Date de prélèvement	Lieu de prélèvement	Matrice	Activité massique (mBq.kg ⁻¹ sec)		
			²³⁸ Pu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²⁴¹ Am
04/10/1994	Figarès	Sol	27 ± 4	195 ± 22	197 ± 26
24/10/1996	Figarès	Sol	18 ± 2	239 ± 9	71 ± 5
24/10/1996	Albaron	Sol	4 ± 1	124 ± 5	50 ± 3
24/10/1996	Les Bernacles	Sol	4 ± 1	84 ± 4	26 ± 2
24/10/1996	Basse Méjane	Sol	7 ± 1	130 ± 6	45 ± 3
24/10/1996	Figarès	Riz	< seuil	2.6 ± 1.8	2.0 ± 1.3



ANNEXE 9

Protocole radiochimique pour le mesurage alpha des éléments ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$
et ^{241}Am

A. PREPARATION DE L'ECHANTILLON (cendres)

- A.1 Tarer un bécher. Imprimer son poids.
- A.2 Ajouter 100 à 200 g de cendre dans un bécher de 2 000 ml . Peser. Imprimer.
- A.3 Sécher à l'étuve en couche mince une nuit entre 80-100°C.
- A.4 Mettre au dessiccateur. Peser. Imprimer.
- A.5 Coller les rapports d'impression de la balance sur la feuille de suivi des pesées (P4010.9.A2.7) et reporter les valeurs dans la base de données.
- A.6 Mouiller les cendres avec de l'eau (obtention d'un gâteau).

Marquage des échantillons avec les traceurs radioactifs Pu^{242} et Am^{243} dans la salle des sources

- A.7 Disposer le bécher contenant les cendres et le flacon contenant la solution de traçage dans la hotte.
- A.8 Mettre des gants.
- A.9 Ouvrir le flacon de la solution de traçage en maintenant le bouchon avec un papier absorbant.

Ajout d'une quantité de traceur supérieure à 0,5 ml.

- A.10 Pipeter à l'aide d'une pipette pasteur (dont le bout est effilé) environ 1 ml de la solution de traceur radiochimique.
- A.11 Peser la pipette disposée dans un flacon réservé à cet effet. Imprimer la valeur. Tarer. Imprimer la valeur. .
- A.12 Ajouter la quantité désirée de la solution sur les cendres mouillées.
- A.13 Peser la pipette disposée dans la fiole. Imprimer la valeur.
- A.14 Recommencer ces quatre dernières opérations jusqu'au dernier échantillon du groupe.
- A.15 Verser le surplus de la solution de traçage dans son flacon. Jeter la pipette dans le bac à déchets radioactifs combustibles.
- A.16 Fermer le flacon.

Ajout d'une quantité de traceur inférieure à 0,5 ml.

- A.17 Evaluer le volume nécessaire approximatif de traceur. Disposer à l'aide du pipetteur automatique équipé d'embout avec piston (évitant ainsi tout risque de contamination) le volume correspondant plus 40 μl dans un flacon compte goutte.
 - A.18 Peser le flacon avec son bouchon sur la balance. Imprimer le poids. Tarer. Imprimer.
 - A.19 Imprimer le numéro de l'échantillon à marquer. Verser sur les cendres la quantité de poids de traceur désirée sachant qu'une goutte pèse environ 33 mg.
 - A.20 Renouveler ces deux dernières opérations pour les échantillons suivants constituant le groupe.
 - A.21 Jeter le flacon compte goutte dans le bac à déchets radioactifs combustibles.
-
- A. 22 Coller l'étiquette imprimée par la balance sur la feuille de suivi des pesées (P4010.9.A2.7a ou b) et entrer les valeurs dans la base de données.

B. MISE EN SOLUTION

Cet étape consiste à mettre en solution les minéraux présents sous forme d'oxydes dans la matrice. Cette opération ne permet pas de dissoudre la silice qui constitue la majeure partie de la fraction insoluble (B1 à B16). Cependant, une faible fraction de silice peut être entraînée lors du lavage à l'acide des cendres. Cette silice gênante pour la suite du protocole doit être éliminée (Étapes B17 à B26).

Pour certains cas particuliers (végétaux, produits alimentaires) il s'avère nécessaire de dissoudre par l'acide fluorhydrique la totalité de la fraction insoluble (Étapes B27 à B36).

Attaque à l'acide nitrique

- B.1 Ajouter 200 ml pour les sols et 400 ml pour les sédiments [50 ml pour 50 g de cendre d'une autre matrice] d'acide nitrique concentré. Introduire délicatement par fraction de 10 ml les 50 à 100 premiers ml pour éviter les projections sur les parois.
- B.2 Ajouter 50 ml [20 ml] de H₂O₂ par fraction de 10 ml et laisser agir jusqu'à la fin de l'effervescence.
- B.3 Chauffer à température douce (80°C) toute la journée en ajoutant H₂O₂ régulièrement par fraction de 10 à 30 ml. Agiter régulièrement. Si la couleur rouille de l'échantillon persiste ajouter 50 à 100 ml d'HCl concentré.
- B.4 Laisser refroidir.
- B.5 Centrifuger.
- B.6 Transvaser le surnageant dans un bécher de 1000 ml [600 ml] réduire le volume jusqu'à limite de cristallisation.
- B.7 Attaquer à nouveau le culot avec 200 ml d'HNO₃ 8M pour les sols et 400 ml pour les sédiments.
- B.8 Chauffer doucement (à 80 °C) toute la journée. Agiter et ajouter régulièrement H₂O₂.
- B.9 Laisser refroidir.
- B.10 Centrifuger.
- B.11 Ajouter le surnageant obtenu au surnageant précédent conservé dans le bécher de 1000 ml.
- B.12 Laver la fraction insoluble avec 200 ml d'eau distillée.
- B.13 Centrifuger et joindre le surnageant aux autres déjà conservés.
- B.14 Transvaser la fraction insoluble dans le bécher utilisé pour la minéralisation et recouvrir d'un papier joseph.
- B.15 Le sécher sur bain de sable (température très douce : 40 à 50 °C). Peser. Reporter la valeur sur la feuille de suivi des pesées.
- B.16 Pour attaquer la partie insoluble lorsque c'est nécessaire reprendre à l'étape B.29.

Récupération et attaque de la silice entraînée

- B.17 Réduire le volume du surnageant jusqu'à la limite de cristallisation, soit environ 100-300 ml ; la silice floccule.
- B.18 Centrifuger.
- B.19 Réserver le surnageant dans un bécher de 3000 ml [1000 ml].
- B.20 Laver le culot de centrifugation, avec 50 à 100 ml d'eau.
- B.21 Transvaser, dans un bécher téflon annoté (N° échantillon), le culot de centrifugation en remettant en suspension la silice dans 5 à 10 ml HNO₃ 8 M.
- B.22 Porter à sec sur bain de sable (intercaler une plaque inox pour que le bécher ne fonde pas).
- B.23 Ajouter quelques dizaines de ml d'HF et amener à sec.
- B.24 Renouveler l'opération précédente 2 à 3 fois.
- B.25 Reprendre le résidu par 20 ml d'HNO₃ concentré et 5 à 20 ml de H₂O₂. Si un résidu subsiste, filtrer sur filtre d'acétate de cellulose et jeter le résidu.
- B.26 Verser la solution de reprise ou le filtrat dans le bécher de 3000 ml.

Attaque de la fraction insoluble

- B.27 Verser la fraction insoluble dans un bécher téflon annoté (N° échantillon).
- B.28 Ajouter délicatement 20 à 30 ml d'acide fluorhydrique.
- B.29 Ramener à sec sur bain de sable en disposant le becher sur une plaque inox (afin d'éviter qu'il ne fonde).
- B.30 Renouveler l'attaque une seconde fois.
- B.31 Dissoudre le résidu dans HNO₃ concentré et du H₂O₂ (le H₂O₂ facilite la mise en solution des agrégats, procéder par petits ajouts successifs, la réaction pouvant être vive).
- B.32 Si un résidu d'alumine est observé, dissoudre les oxydes minéraux avec HNO₃ et H₂O₂ et filtrer. Jeter le filtre et le résidu.
- B.33 Si il reste des particules noires en suspension, filtrer sur filtre en fibres de cellulose (filtres millipores AGW 45 mm).
- B.34 Réunir le filtrat au surnageant conservé dans le bécher de 3000 ml.
- B.35 Passer le filtre au four à 550 °C (2 à 3 heures) et l'attaquer avec 10 à 50 ml d'acide nitrique concentré et quelques ml de H₂O₂. Verser la solution dans le bécher de 3000 ml.
- B.36 Rincer le bécher avec 30 ml d'HNO₃. Joindre le liquide aux surnageants contenus dans le bécher de 3 litres.

C. PRECIPITATION DES OXALATES DE CALCIUM

- C.1 Dissoudre à chaud dans 500 ml [200 ml] d'eau osmosée ultra-pure, le même poids d'acide oxalique que de cendres.
- C.2 Ajouter un barreau magnétique dans le bécher de 3000 ml et y verser la solution d'acide oxalique.
- C.3 Etendre le volume de la solution à 1400 ml avec H₂O osmosée ultra-pure.
- C.4 Etalonner le titrateur (protocole PT4010.9.3).
- C.5 Ajuster le pH à 1,5 avec NH₄OH concentré par la méthode « précip. Ca pH=1.5 » du titrateur selon le protocole PT4010.9.3. Si le pH de la solution est initialement inférieure à - 0,2 ajouter 100 ml d'ammoniac concentré. Vers pH=1, il y a apparition d'un précipité blanc. Si le précipité n'est pas visible ajouter 5 ml de la solution de CaCl₂ (100 mg/ml).
- C.6 Agiter la solution pendant 1 heure en chauffant à 70-80 °C.
- C.7 Laisser décanter.
- C.8 Soutirer le surnageant et le réserver dans un flacon.
- C.9 Centrifuger.
- C.10 Rincer le précipité avec une solution aqueuse d'acide oxalique ajusté à pH 1,5 jusqu'à disparition de la couleur verte pomme. Remettre en suspension le précipité avec un agitateur plastique à bout plat. L'oxalate de calcium doit être blanc.
- C.11 Sécher à l'étuve le précipité pendant au moins 24 heures.
- C.12 Réunir les surnageants dans le bécher de 3000 ml [2000ml].
- C.13 Dissoudre dans 50 ml d'eau ultra-pure 50 g [20 g] d'acide oxalique. Le verser dans le bécher de 3000 ml [2000 ml].
- C.14 Ajouter 5 ml de CaCl₂ (Solution à 100 mg/ml de Ca²⁺).
- C.15 Ajuster le pH à 1,5 avec NH₄OH concentré à l'aide du titrateur avec la méthode « 2 oxa. pH1,5 ».
- C.16 Chauffer à 70-80 °C et agiter pendant 1/2 heure.
- C.17 Laisser décanter.
- C.18 Soutirer le surnageant.
- C.19 Centrifuger.
- C.20 Sécher le culot de centrifugation.
- C.21 Réunir les précipités secs dans un creuset en silice de 1000 ml préalablement taré. Reporter le poids des différents précipités sur la feuille de suivi des pesées.
- C.22 Placer le creuset dans un autre bécher de 3 000 ml. Recouvrir d'un verre de montre. Calciner avec le programme « Calcination des oxalates alpha » dans le four 1 ou 2.
- C.23 A la sortie du four, laisser refroidir les échantillons. Les peser. Reporter la valeur sur la feuille de suivi des pesées (P4010.9.A2.7) et la base de données.
- C.24 Vérifier le rapport poids d'oxalate/poids de carbonate (= 1,6 expérimentalement).

D. PRECIPITATION DE L'HYDROXYDE FERRIQUE

- D.1 Transvaser le carbonate dans un bécher annoté (N° lot, N° échantillon) de 2000 ml [1000 ml].
- D.2 Mouiller le carbonate avec 50 ml d'eau ultra-pure.
- D.3 Reprendre le précipité par fraction de 10 ml d'HCl concentré ou 9 M jusqu'à dissolution complète. Une grosse effervescence se produit.
- D.4 Rincer le creuset silice et le bécher avec HCl concentré et de l'eau
- D.5 Ajouter 20 à 30 ml de H₂O₂ et chauffer jusqu'à fin d'ébullition.
- D.6 Si une couleur noire persiste filtrer l'échantillon sur filtre d'acétate de cellulose et le calciner 1 h à 550 °C. Reprendre le résidu de calcination avec 20 ml d'HCl 9 M.
- D.7 Etendre le volume de la solution à 1400-1600 ml.
- D.8 Ajouter 20 g de NH₄Cl.
- D.9 Ajuster le pH à 8,5 avec NH₄OH concentré par la méthode « Prec. FeOH pH 8,5 » du titrateur préalablement étalonné. Un précipité colloïdal marron rouille se forme. En l'absence de précipité, ajouter 0,5 mL de FeCl₃ 27,5 %.
- D.10 Agiter pendant 1 h.
- D.11 Laisser décanter. Soutirer le surnageant et le réserver.
- D.12 Centrifuger.
- D.13 Réunir les surnageants dans le bécher de 2000 ml utilisée précédemment. Réserver le précipité.
- D.14 Ajouter 0,5 ml de FeCl₃ 27,5%. Ajuster le pH à 8,5 avec NH₄OH concentré par la méthode « 2 prec FeOH pH 8,5 » du titrateur.
- D.15 Agiter 1/2 heure.
- D.16 Laisser décanter. Soutirer le surnageant.
- D.17 Centrifuger. Réunir les surnageants les conserver pour faire la mesure du ⁹⁰Sr sinon les jeter (procédure MO4010.11).

E. PRECIPITATION DES OXALATES DE CALCIUM

- E1. Annoter un bécher de 1000 ml [600 ml]. Ajouter un barreau magnétique
- E2. Y dissoudre à chaud 20 g d'acide oxalique dans 200 ml d'eau.
- E3. Reprendre les précipités d'hydroxyde ferrique avec HNO₃ concentré. Ajouter 5ml de H₂O₂ pour faciliter la dissolution. Verser la solution dans le bécher annoté. Rincer les tubes à centrifuger avec HNO₃.
- E4. Etalonner le titrateur.
- E5. Ajuster le pH à 1,5 avec NH₄OH concentré par la méthode « oxa. 3 pH 1,5 » du titrateur. Vers pH=1, il y a apparition d'un précipité blanc. Si le précipité n'est pas visible, ajouter 2,5 ml de la solution de CaCl₂ (100 mg/ml).
- E6. Agiter la solution pendant ½ heure.
- E7. Laisser décanter.
- E8. Centrifuger.
- E9. Jeter le surnageant.
- E10. Rincer le culot de centrifugation avec 50 ml d'une solution aqueuse d'acide oxalique ajustée à pH 1,5 jusqu'à disparition de la couleur verte pomme. L'oxalate de calcium doit être blanc.
- E11. Redissoudre le culot avec 10 à 30 ml HNO₃ concentré et 5 à 20 ml de H₂O₂. Verser dans un ballon de 250 ml et laisser bouillir à reflux (avec un verre de montre) pendant 2 heures jusqu'à disparition des vapeurs rousses.
- E12. Enlever le verre de montre et porter à sec.
- E13. Reprendre le résidu sec dans 40 ml HNO₃ 8 M.

F. SEPARATION Pu, Am : 1^{er} PASSAGE SUR COLONNE

Lors de tous les passages sur colonnes les éluats seront conservés jusqu'à analyse de l'échantillon.

- F.1 Ajouter 1 ml d'H₂O₂ dans le ballon. Chauffer sur bain de sable jusqu'à fin d'ébullition pour chasser l'excès de H₂O₂.
- F.2 Ajouter 200 à 300 mg de NaNO₂ en sortant le ballon du bain de sable. Recouvrir d'un verre de montre.
- F.3 Laisser refroidir la solution et filtrer sur filtre en fibres de verre Wathman GFA. Récupérer le filtrat dans un ballon de 150 ml anoté. Rincer le filtre avec 10 ml HNO₃ 8M. Le jeter.
- F.4 Couvrir d'un verre de montre et laisser reposer une nuit la solution.
- F.5 Préparer une colonne de diamètre intérieur 10 mm avec 6,4 g de résine AG1-X8 (MO4010.9.2).
- F.6 Disposer l'embout gros débit au bas de la colonne.
- F.7 Equilibrer la colonne avec 50 ml HNO₃ 8 M.
- F.8 Après tout ajout de réactif, indiquer par une marque dans la case correspondante sur la feuille de suivi des passages sur colonne (P4010.9.A2.10), que l'opération a été réalisée.
- F.9 Remplacer l'embout gros débit par celui de petit débit.
- F.10 Verser l'échantillon dans l'ampoule à décanter située en haut de la colonne. Placer un erlen anoté (N° lot, N° échantillon, Fraction Am) de 125 ml en sortie de colonne.
- F.11 Rincer le ballon contenant initialement l'échantillon avec les 40 ml d' HNO₃ 8 M. Les faire passer ensuite sur la colonne. Récupérer le filtrat dans le même erlen anoté¹.
- F.12 Porter à sec à température douce (60°C) sur le bain de sable.
- F.13 Disposer un flacon de récupération sous la colonne.
- F.14 Laver la colonne avec 2x50 ml d'HCl 9M.
- F.15 Jeter les solutions de lavage. Puis, remplacer le flacon de récupération en bas de colonne par une fiole cylindro-conique de 125 ml anoté (N° lot, N° échantillon Fraction Pu).
- F.16 Peser 579,6 mg de NH₄I par échantillon les dissoudre dans 1 ml d'eau distillée, ajouter 39 ml d'HCl 12 M².
- F.17 Eluer le Pu avec les 40 ml de la solution HCl/NH₄I 0,1M préparée comme décrit précédemment juste avant passage sur colonne. L'élution peut être réalisée avec l'embout gros débit.
- F.18 Recommencer une nouvelle fois l'opération (étapes F.16 à F.17).
- F.19 Rincer les parois de l'ampoule à décanter et de la colonne avec 5 ml d'HCl 12 M.
- F.20 Ajouter 5 ml d'HNO₃ concentré dans l'éluat de colonne et disposer la fiole cylindro-conique sur le bain de sable. Ramener à sec à température douce (60°C).

Poursuivre les traitements de la fraction Pu, par les étapes G,L et les traitements de la fraction Am par les étapes H, I, J, K, L.

¹Ces deux phases consiste à fixer le Pu sur la colonne et éluer le Fe, l' U, l'Am, le Cm.

² Pour un lot de 4 échantillons, peser 2,90 g de NH₄I. Les dissoudre dans environ 2ml d'eau ultra-pur. Transvaser dans une fiole de 5 cc. Ajuster le volume. Transvaser la solution dans un bécher de 5 ml. Introduire 1 ml de la solution dans un bécher de 50 ml et ajouter 39 ml d'HCl concentré . verser dans l'ampoule à décanter.

G. PURIFICATION DU Pu : 2nd PASSAGE SUR COLONNE

- G.1 Ajouter dans la fiole cylindro-conique (étape F.20) 10 ml d' HNO_3 concentré et quelques gouttes de H_2O_2 . Chauffer à ébullition couvert d'un verre de montre pendant $\frac{1}{4}$ d'heure et amener à sec.
- G.2 Reprendre le résidu sec avec 10 ml d' HNO_3 8M.
- G.3 Ajouter 0,1 ml d' H_2O_2 130 V. Chauffer à ébullition pour chasser l'excès de H_2O_2 .
- G.4 Ajouter environ 100 à 200 mg de NaNO_2 . La solution est prête pour le deuxième passage sur colonne.
- G.5 Préparer une colonne de diamètre intérieur 8 mm avec 1,5 g de résine **AG1X8** (MO4010.9.2).
- G.6 Disposer l'embout gros débit au bas de la colonne. Installer un flacon de récupération en sortie de colonne.
- G.7 Conditionner la colonne avec 30 ml HNO_3 8 M. Jeter l'éluat.
- G.8 Remplacer l'embout gros débit par celui de petit débit.
- G.9 Verser l'échantillon dans l'ampoule à décanter et le faire passer sur la colonne.
- G.10 Faire passer ensuite 30 ml d' HNO_3 8 M sur la colonne en rinçant le béccher contenant initialement l'échantillon.
- G.11 Laver la colonne avec 24 ml d' HCl 12 M.
- G.12 Remplacer le flacon de récupération en bas de colonne par une fiole cylindro-conique de 50 ml annoté (N lot, Fraction Pu).
- G.13 Peser 231,8 mg de NH_4I par échantillon. Les dissoudre dans 1 ml d'eau distillée, ajuster la solution à 16 ml avec HCl 12 M³. Eluer le Pu avec la solution ainsi préparée juste avant le passage sur colonne.
- G.14 Rincer les parois avec 5 ml d' HCl 12 M.
- G.15 Ajouter dans l'éluat 5 ml d' HNO_3 concentré. Déposer la fiole cylindro-conique sur le bain de sable et réduire le volume de l'échantillon à 10 ml.
- G.16 Attendre environ 10 minutes et ajouter 2,5 ml de HNaSO_4 à 5%. Ramener à sec.

Poursuivre le traitement de la fraction Pu, par l'étape L, phase de préparation de la source

H. SEPARATION Am/Fe, U, Th : COLONNE DOUBLE

- H.1 Porter à température très douce l'éluat de la première colonne (étape F.20) réservé dans l'erien de 250 ml anoté fraction Am.
- H.2 Reprendre le résidu rouille avec 20 ml HCl 9M.
- H.3 Ajouter 0,2 ml de H_2O_2 130 V.
- H.4 Porter à ébullition.
- H.5 Préparer une colonne double de diamètre intérieur 10 mm avec 6,5 g de résine **AG1X8** et 2 g de résine **AG50W-X8** (MO4010.9.2).
- H.6 Disposer l'embout gros débit au bas de la colonne. Installer un flacon de récupération en sortie de colonne.
- H.7 Conditionner la colonne avec 30 ml HCl 9 M. Jeter l'éluat.
- H.8 Placer un béccher anoté (N° lot, N° échantillon, Fraction Am) de 250 ml sous la colonne.
- H.9 Verser l'échantillon dans l'ampoule à décanter et le faire percoler sur la colonne.
- H.10 Continuer à éluer avec 3×5 ml d' HCl 9M en rinçant l'erien contenant initialement l'échantillon.
- H.11 Récupérer l'éluat dans un béccher anoté de 250 ml.

³ Pour un lot de 4 échantillons, peser 1,16 g de NH_4I . Les dissoudre dans environ 2 ml d'eau ultra-pur. Transvaser dans une fiole de 5 cc. Ajuster le volume. Transvaser la solution dans un béccher de 5 ml. Introduire 1 ml de la solution dans un béccher de 50 ml et ajouter 15 ml d' HCl concentré. Verser dans l'ampoule à décanter

I. PRECIPITATION A L'HYDROXYDE D'ALUMINIUM

- I.1 Reprendre l'éluat en sortie de colonne (étape H.11).
- I.2 Ajouter 3 ml de de $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ 1M. Ajuster le volume de la solution à 60 ml H_2O ultra pure.
- I.3 Etalonner le titrateur .
- I.4 Ajuster le pH à 8 avec NH_4OH concentré par la méthode « $\text{Al}(\text{OH})_3$ pH=8 » du titrateur.
- I.5 Agiter la solution pendant ¼ heure.
- I.6 Centrifuger.
- I.7 Jeter le surnageant.
- I.8 Dissoudre le culot avec 10 à 20 ml HNO_3 concentré et 2 ml de H_2O_2 . Verser dans le bécher de 100 ml et ramener à sec à température douce (70-80°C).
- I.9 Renouveler cette dernière opération.

J. SEPARATION Am/ métaux Cu, Ni : COLONNE TRU-SPEC

Pour les échantillons contenant peu de métaux (herbes, fucus, mousses ...), poursuivre le traitement par les étapes J.1 à J.8 puis l'étape K

- J.1 Reprendre le résidu avec 2,5 ml d' HNO_3 8 M et 5,5 ml d' H_2O .
- J.2 Ajouter ensuite 2 ml de $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ 1M afin d'obtenir 10 mL de solution HNO_3 2M- $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ 0,5M
- J.3 Filtrer l'échantillon avant passage sur colonne sur filtre en acétate de cellulose (ou système de préfiltre installé sur une seringue)
- J.4 Préparer une colonne de diamètre intérieur 8 mm avec 0,66 g de résine TRU-spec (MO4010.9.2).
- J.5 Conditionner la colonne avec 5 ml HNO_3 2 M.
- J.6 Faire percoler l'échantillon sur la colonne.
- J.7 Rincer avec 2 x 5 ml HNO_3 2 M.
- J.8 Eluer avec 12 ml d' HNO_3 0,03 M. Récupérer l'éluat dans un petit erlen de 50 ml.

Pour les échantillons traités selon le mode opératoire SEDIMENT. Poursuivre le traitement par les étapes J.9 à J.10 puis l'étape K

- J.9 Reprendre le résidu avec 7,5 ml d' HNO_3 8 M et 10,5 ml d' H_2O .
- J.10 Ajouter 12 ml de $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ 1M afin d'obtenir 30 mL de solution HNO_3 2M et $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ 0,5M.
- J.11 Filtrer l'échantillon avant passage sur colonne sur filtre en acétate de cellulose
- J.12 Préparer une colonne de diamètre intérieur 8 mm avec 2,0 g de résine TRU-spec (MO4010.9.2).
- J.13 Conditionner la colonne avec 30 ml HNO_3 2 M.
- J.14 Faire percoler l'échantillon sur la colonne.
- J.15 Rincer avec 2 x 40 ml HNO_3 2 M.
- J.16 Eluer avec 40 ml d' HNO_3 0,03 M. Récupérer l'éluat dans un petit erlen de 0 ml.

K. SEPARATION Am/Terres Rares : COLONNE AG1X4

- K.1 Ramener l'éluat de la colonne TRU-SPEC à sec, à température douce (70°C).
- K.2 Reprendre le résidu (blanc) avec 25 ml du mélange HNO₃ 1M/CH₃OH 93%.
- K.3 Préparer une colonne de diamètre intérieure 8 mm avec 4 g de résine AG1-X4 sans ajouter le sable de fontainebleau (MO4010.9.2).
- K.4 Placer l'embout gros débit en bas de colonne et un flacon de récupération de 250 ml.
- K.5 Conditionner la colonne avec 25 ml du mélange HNO₃ 1M/CH₃OH 93%.
- K.6 Après l'éluat éliminer les petites bulles qui se sont formées lors du passage des 25 ml de la solution précédente en mélangeant la résine à l'aide d'un tige recourbée.
- K.7 Reconditionner la colonne avec 25 ml du mélange HNO₃ 1M/CH₃OH 93%. Les bulles ne doivent pas se reformer - sinon recommencer l'opération précédente.
- K.8 Ajouter 1 à 2 ml du mélange HNO₃ 1M/CH₃OH 93%.
- K.9 Ajouter quelques spatules de sable de fontainebleau de manière à obtenir environ 0,5 cm de sable au dessus de la résine.
- K.10 Evacuer le liquide. Refermer le robinet dès que le liquide disparaît dans le sable.
- K.11 Remplacer l'embout gros débit par l'embout petit débit.
- K.12 Injecter l'échantillon sur la colonne. Surveiller le niveau du liquide . La colonne ne doit jamais se vidanger.
- K.13 Rincer avec 10 ml du mélange HNO₃ 1M/CH₃OH 93%. A partir de ce moment la colonne n'a plus tendance à se vidanger.
- K.14 Eluer les terres rares avec 80 ml du mélange HCl 0,1M/NH₄SCN 0,5N/CH₃OH 80% préparé à la dernière minute.
- K.15 Rincer la colonne avec 22 ml du mélange HNO₃ 1M/CH₃OH 93%.
- K.16 Placer un erlen anoté de 125 ml en bas de colonne.
- K.17 Eluer l'Am avec 75 ml du mélange HCl 1,5 M/CH₃OH 86%.
- K.18 Ajouter 5 ml d'HNO₃ concentré.
- K.19 Ajouter 2,5 ml de HNaSO₄ 5% et ramener à sec.

L. ELECTRODEPOSITION

- L.1 Dissoudre le résidu sec (étape G.15 et K.19) dans 0,2 ml d'HNO₃ concentré et 2,5 ml d'H₂O ultra-pure. Transvaser dans un flacon à scintillation liquide en verre. Rincer la fiole cylindro-conique ou l'erlen en deux fois avec 3 et 3,5 ml de Na₂SO₄ à 15%.
- L.2 Ajouter 100 µl d'indicateur coloré et 100 µl de DTPA.
- L.3 Ajuster le pH de la solution à 1,8-2,0 au pH mètre réservé et préalablement calibré. Rincer l'électrode avec 0,5 ml d'eau ultra pure.
- L.4 Décaper le disque inox pendant 15 minutes à 1,2 A avec 10 ml de la solution de décapage (MO9.3 étape 1 à 3).
- L.5 Jeter la solution. Rincer à plusieurs reprise le système avec H₂O.
- L.6 Transvaser la solution à électrolyser dans le flacon plastique. Rincer le flacon de scintillation liquide en verre avec 0,5 ml d'eau distillée.
- L.7 Electrodeposer la solution pendant 2 heures à 1 A, puis ajouter 5 ml de NH₄OH 2,5N.
- L.8 Remonter l'électrode hors du flacon et alors seulement arrêter le courant.
- L.9 Enlever le porte cathode. Verser la solution dans le flacon de scintillation liquide contenant initialement la solution à électrodeposer et la conserver jusqu'au comptage de l'électrodeposition.
- L.10 Démontez le flacon. Le jeter. Extraire le disque inox. Le rincer à l'eau ultra pure.
- L.11 Résorber une grande partie du liquide en appliquant le bord de la capsule inox inclinée sur un papier absorbant puis déposer sur le porte électrodeposition en inox et la sécher à température douce sur plaque chauffante.
- L.12 Démontez l'électrode tournante de l'électrodeposeur et l'installer dans le béccher correspondant contenant HNO₃ 8 M . La laisser chauffer ¼ d'heure.
- L.13 Rincer l'électrode à l'eau.

ANNEXE 10**Résultats des mesures effectuées sur les sols de Rognes****(Bq.kg⁻¹ sec)**

	²³⁸ Pu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu
CAR 01	6.3 ± 1.1	218.6 ± 10.6
CAR 02	6.3 ± 1.0	217.4 ± 9.5
CAR 03	6.7 ± 0.9	216.5 ± 8.6
CAR 04	6.1 ± 0.9	223.4 ± 9.6
CAR 05	5.5 ± 1.0	198.5 ± 9.5
CAR 06	4.9 ± 0.8	189.6 ± 7.7
CAR 07	6.0 ± 1.0	201.4 ± 9.5

ANNEXE 11

Données météorologiques du site de Marcoule pour la modélisation de la dispersion des rejets atmosphériques

Probabilités en ‰

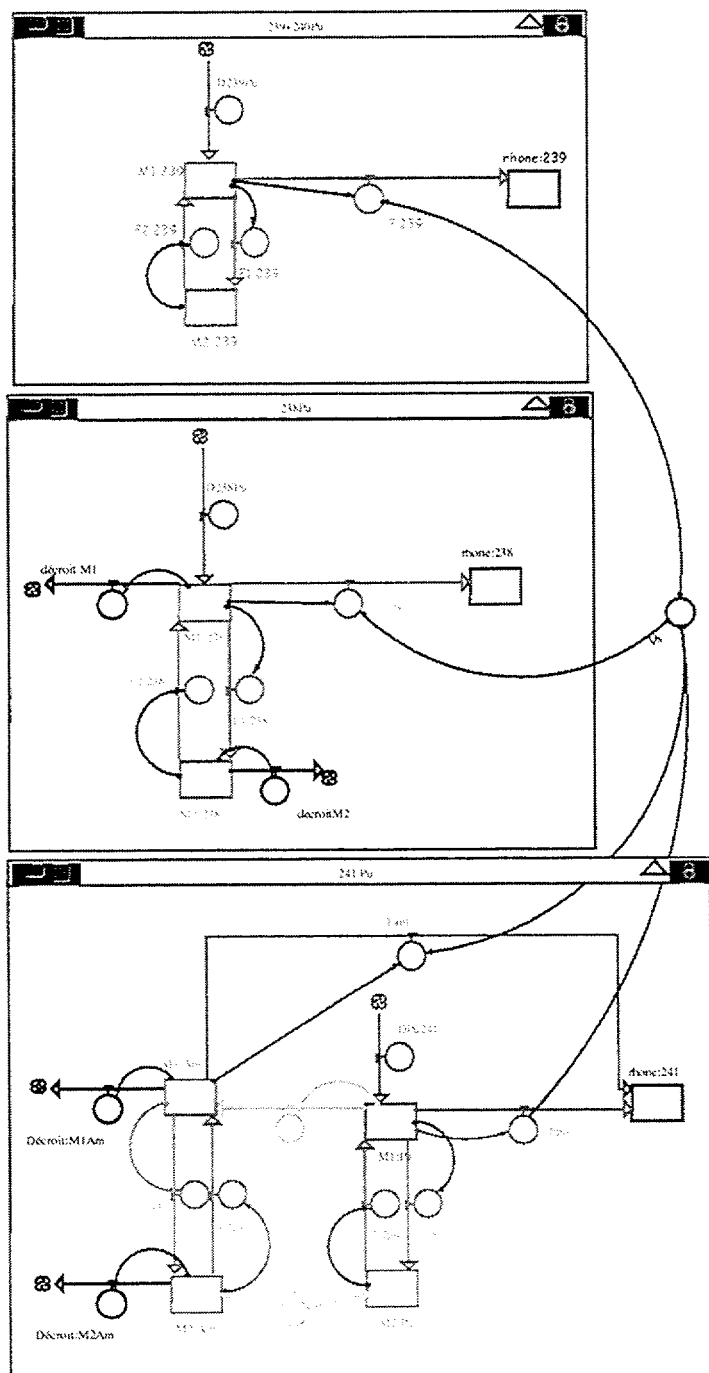
DN : Diffusion neutre ; DF : Diffusion faible

Vitesses en m.s⁻¹

Classes\Secteurs	0°	20°	40°	60°	80°	100°	120°	140°	160°
DN sec - vitesse 0,5	3	3	3	3	3	3	3	3	3
DN sec - vitesse 2.6	0	0	11	7	5	4	9	0	0
DN sec - vitesse 2.9	0	0	0	0	0	0	0	0	0
DN sec - vitesse 3.1	0	0	0	0	0	0	0	0	0
DN sec - vitesse 3.5	0	0	0	0	0	0	0	9	18
DN sec - vitesse 5.1	0	0	0	0	0	0	0	0	0
DN sec - vitesse 7.2	143	73	0	0	0	0	0	0	0
DF - vitesse 0,5	4	4	4	4	4	4	4	4	4
DF - vitesse 2.6	0	0	16	9	7	6	12	0	0
DF - vitesse 2.9	0	0	0	0	0	0	0	0	0
DF - vitesse 3.1	0	0	0	0	0	0	0	0	0
DF - vitesse 3.5	0	0	0	0	0	0	0	12	24
DF - vitesse 5.1	0	0	0	0	0	0	0	0	0
DF - vitesse 7.2	55	28	0	0	0	0	0	0	0
DN pluie - vitesse 0,5	0	0	0	0	0	0	0	0	0
DN pluie - vitesse 3.1	0	0	1	1	1	1	2	0	0
DN pluie - vitesse 5.1	4	2	0	0	0	0	0	2	3
Total	209	109	35	23	19	17	29	30	51

Classes\Secteurs	180°	200°	220°	240°	260°	280°	300°	320°	340°
DN sec - vitesse 0,5	3	3	3	3	3	3	3	3	3
DN sec - vitesse 2.6	0	0	0	0	0	0	0	0	0
DN sec - vitesse 2.9	0	0	0	0	0	0	0	0	0
DN sec - vitesse 3.1	0	0	0	7	6	11	27	31	0
DN sec - vitesse 3.5	0	0	0	0	0	0	0	0	0
DN sec - vitesse 5.1	17	11	9	0	0	0	0	0	59
DN sec - vitesse 7.2	0	0	0	0	0	0	0	0	0
DF - vitesse 0,5	4	4	4	4	4	4	4	4	4
DF - vitesse 2.6	0	0	0	0	0	0	0	0	0
DF - vitesse 2.9	0	0	0	0	0	0	0	0	0
DF - vitesse 3.1	0	0	0	9	8	16	38	43	0
DF - vitesse 3.5	0	0	0	0	0	0	0	0	0
DF - vitesse 5.1	19	13	10	0	0	0	0	0	66
DF - vitesse 7.2	0	0	0	0	0	0	0	0	0
DN pluie - vitesse 0,5	0	0	0	0	0	0	0	0	0
DN pluie - vitesse 3.1	0	0	0	1	1	1	2	3	0
DN pluie - vitesse 5.1	1	1	1	0	0	0	0	0	3
Total	44	32	27	23	22	35	74	84	135

ANNEXE 12

Flux de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am issus du bassin versant du Rhône

	^{238}Pu	$^{239+240}\text{Pu}$	^{241}Am
1957	0	0	0
1958	0.2	7.74	0
1959	0.11	4.19	0.17
1960	0.46	17.97	0.41
1961	0.03	1.25	0.08
1962	0.03	1.3	0.05
1963	0.21	8.13	0.09
1964	0.16	6.41	0.09
1965	0.23	8.99	0.3
1966	0.15	5.55	0.3
1967	0.08	1.35	0.1
1968	0.15	1.35	0.12
1969	0.24	1.16	0.09
1970	0.22	1.63	0.15
1971	0.05	0.62	0.05
1972	0.07	0.65	0.06
1973	0.03	0.32	0.05
1974	0.04	0.46	0.09
1975	0.03	0.66	0.1
1976	0.03	0.93	0.18
1977	0.07	1.86	0.46
1978	0.06	1.6	0.34
1979	0.04	1.33	0.28
1980	0.02	0.65	0.18
1981	0.03	0.95	0.29
1982	0.04	1.24	0.43
1983	0.06	1.63	0.6
1984	0.02	0.53	0.21
1985	0.02	0.47	0.21
1986	0.03	0.86	0.4
1987	0.03	0.71	0.35
1988	0.03	0.92	0.47
1989	0.01	0.27	0.14
1990	0.01	0.35	0.19
1991	0.02	0.43	0.25
1992	0.02	0.69	0.41
1993	0.09	2.66	1.62
1994	0.06	1.72	1.08
1995	0.04	1.05	0.68
1996	0.02	0.51	0.34
1997	0.01	0.44	0.3
1998	0.03	0.77	0.55
total	3	92	12

ANNEXE 13

Rejets liquides du centre de Marcoule estimés selon deux hypothèses

Hypothèse A : $^{239+240}\text{Pu}$ représente 95% de l'activité alpha totale des transuraniens et $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}=0,05$ dans les rejets correspondant à la période de 1961 à 1965.

hypothèse A	1961	1962	1963	1964	1965	1966	1967	1968	1969	1970	1971	1972	1973	1974	1975	1976	1977	1978	1979
$^{239+240}\text{Pu}$	19.0	28.5	19.0	28.5	95.0	26.9	2.5	2.4	14.8	2.1	1.9	-	-	1.4	4.3	1.1	1.1	1.1	4.6
^{241}Am	0.1	0.1	0.1	0.1	0.3	0.8	0.2	0.3	2.4	0.5	0.6	-	-	1.0	3.6	1.2	1.2	1.2	7.1
^{238}Pu	1.0	1.4	1.0	1.4	4.8	2.0	0.2	0.3	2.1	0.3	0.4	-	-	0.4	1.2	0.3	0.3	0.3	1.4

1980	1981	1982	1983	1984	1985	1986	1987	1988	1989	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998
23.4	18.7	13.7	12.0	25.7	26.6	24.8	24.1	28.8	17.4	21.1	12.6	3.3	1.0	1.3	0.5	0.8	1.4	0.5
33.8	11.2	31.1	18.1	32.4	13.7	27.3	50.2	31.4	15.0	14.4	9.8	3.5	1.9	2.3	0.8	1.3	2.1	1.2
7.0	5.6	4.1	3.6	7.7	8.0	7.4	7.2	8.6	5.2	6.3	3.8	1.0	0.3	0.4	0.2	0.2	0.4	0.1

Activités de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am estimées dans les rejets liquides (GBq) – hypothèse A

Hypothèse B : la répartition entre $^{239+240}\text{Pu}$, $^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am}$, et $^{242+244}\text{Cm}$ est identique à celle qui a été calculée sur la période 1979-1995, soit 36,7% de $^{239+240}\text{Pu}$, 54,1% de $^{238}\text{Pu}+^{241}\text{Am}$, et 9,1% de $^{242+244}\text{Cm}$. Le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ reste de 0,05 entre 1961 et 1965.

	1961	1962	1963	1964	1965	1966	1967	1968	1969	1970	1971	1972	1973	1974	1975	1976	1977	1978	1979
$^{239+240}\text{Pu}$	7.5	11.3	7.5	11.3	37.6	11.3	1.1	1.1	7.5	1.1	1.1	-	-	1.1	3.8	1.1	1.1	1.1	4.6
^{241}Am	10.2	15.2	10.2	15.2	50.8	15.0	1.5	1.4	9.5	1.4	1.4	-	-	1.3	4.2	1.2	1.2	1.2	7.1
^{238}Pu	0.4	0.6	0.4	0.6	1.9	0.8	0.1	0.1	1.1	0.2	0.2	-	-	0.3	1.0	0.3	0.3	0.3	1.4

1980	1981	1982	1983	1984	1985	1986	1987	1988	1989	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998
23.4	18.7	13.7	12.0	25.7	26.6	24.8	24.1	28.8	17.4	21.1	12.6	3.3	1.0	1.3	0.5	0.8	1.4	0.5
33.8	11.2	31.1	18.1	32.4	13.7	27.3	50.2	31.4	15.0	14.4	9.8	3.5	1.9	2.3	0.8	1.3	2.1	1.2
7.0	5.6	4.1	3.6	7.7	8.0	7.4	7.2	8.6	5.2	6.3	3.8	1.0	0.3	0.4	0.2	0.2	0.4	0.1

Activités de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am estimées dans les rejets liquides (GBq) – hypothèse B

ANNEXE 14

Concentrations moyennes de $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am et ^{238}Pu dans les eaux du bas-Rhône (Bq.m^{-3}) et rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$

	1961	1962	1963	1964	1965	1966	1967	1968	1969	1970	1971	1972	1973
$^{239+240}\text{Pu}$	0,286	0,448	0,330	0,662	1,285	0,402	0,069	0,054	0,240	0,051	0,055	0,016	0,009
^{241}Am	0,102	0,163	0,080	0,195	0,441	0,134	0,020	0,017	0,117	0,017	0,026	0,002	0,001
^{238}Pu	0,014	0,022	0,013	0,029	0,060	0,025	0,006	0,006	0,035	0,008	0,009	0,002	0,001
$^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$	0,05	0,05	0,04	0,04	0,05	0,06	0,08	0,12	0,15	0,15	0,16	0,11	0,09

1974	1975	1976	1977	1978	1979	1980	1981	1982	1983	1984	1985	1986	1987	1988
0,037	0,090	0,048	0,040	0,046	0,102	0,426	0,320	0,239	0,210	0,496	0,582	0,476	0,398	0,472
0,026	0,077	0,033	0,022	0,026	0,127	0,602	0,187	0,505	0,288	0,616	0,299	0,513	0,809	0,505
0,008	0,022	0,009	0,005	0,007	0,025	0,125	0,092	0,067	0,056	0,146	0,172	0,139	0,116	0,138
0,21	0,24	0,18	0,14	0,15	0,24	0,29	0,29	0,28	0,27	0,29	0,3	0,29	0,29	0,29

1989	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998
0,523	0,523	0,325	0,080	0,075	0,051	0,026	0,028	0,044	0,029
0,447	0,355	0,251	0,079	0,072	0,056	0,025	0,035	0,058	0,041
0,155	0,155	0,095	0,020	0,008	0,007	0,003	0,006	0,010	0,004
0,3	0,3	0,29	0,25	0,1	0,15	0,13	0,2	0,23	0,14

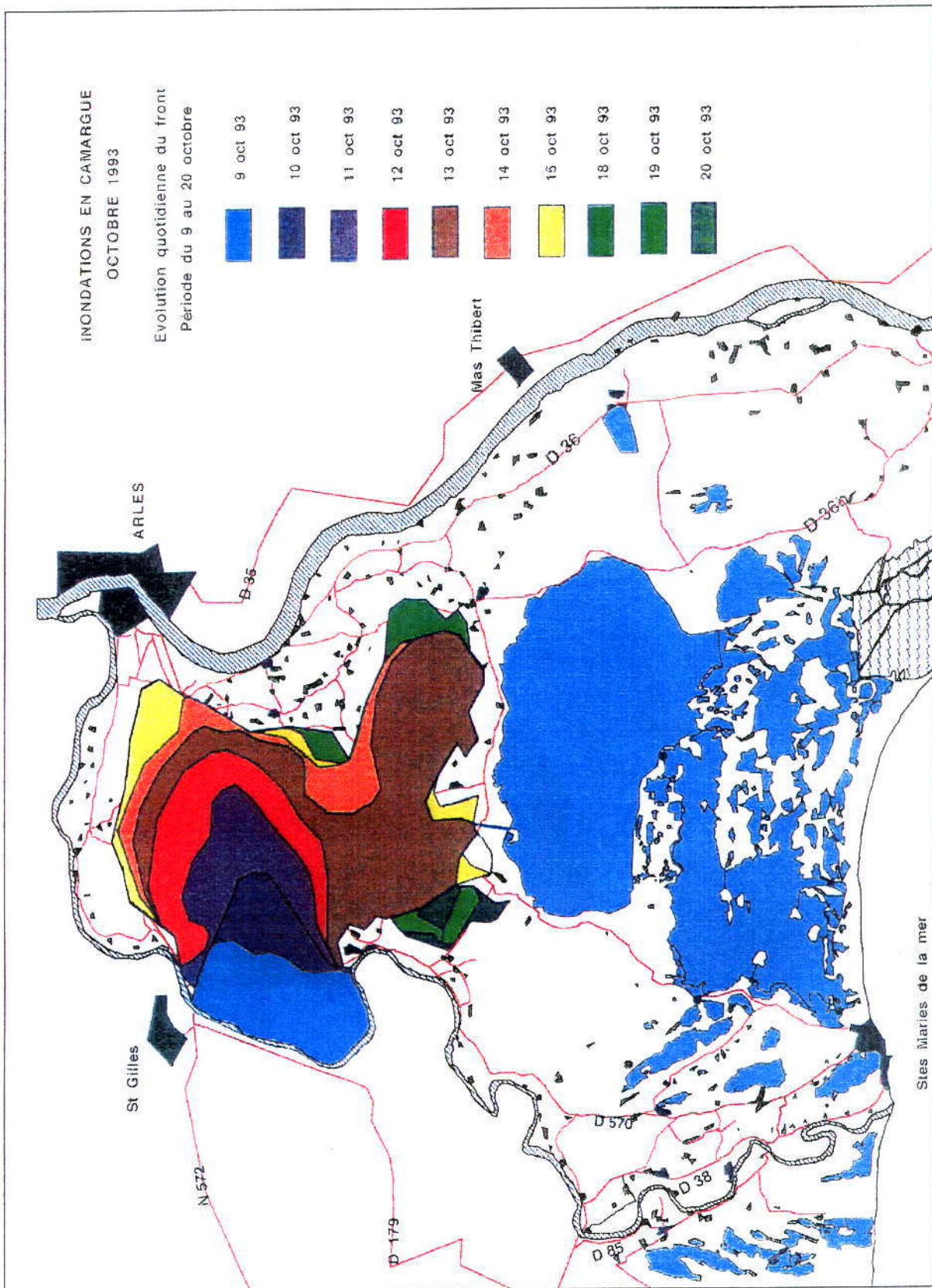
ANNEXE 15

Espèces constituant l'échantillon de végétation de sous-bois

Nom vernaculaire	Genre Espèce -	Famille
Ciste cotonneux	Cistus albidus	Cistacées
Chênes kermès	Quercus coccifera	Fagacées
Buis semper virens	Buxus sempervirens	Buxacées
Gallet gratteron	Galium Aparine	Rubiacées
Asperge sauvage	Asparagus acutifolius	Liliacées
Arbousier	Arbutus unedo	Ericacées
Cade	Juniperus oxycedrus	Cupressacées
Ronce arbrisseau	Rubus fruticosus	Rosacées
Troène vulgaire	Ligustum vulgare	Oléinées
Viorne tin	Viburnum tinus	Capufoliacées
Prunier épineux	Prunus spinosa	Rosacées
Salicaire à longue tige	Lythrum junceum	Lythracées

ANNEXE 6

6a : Carte éditée par le Parc Naturel Régional de Camargue



ANNEXE 6

6b : Carte éditée par le Parc Naturel Régional de Camargue

