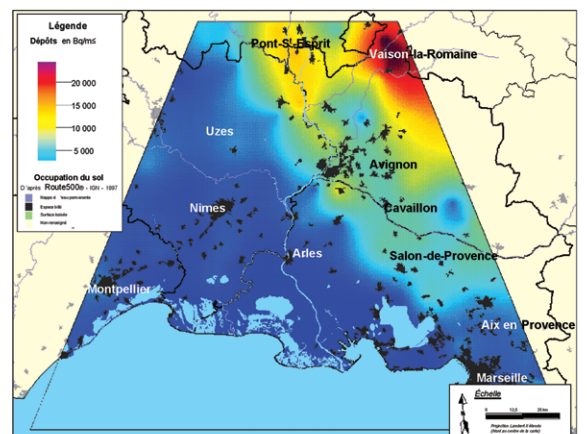


# IRSN

INSTITUT  
DE RADIOPROTECTION  
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

## PROJET CAROL

Camargue Rhône Languedoc  
Rapport final



DIRECTION DE L'ENVIRONNEMENT ET DE L'INTERVENTION  
Service d'étude et de surveillance de la radioactivité  
dans l'environnement

## Iconographie IRSN



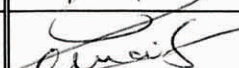
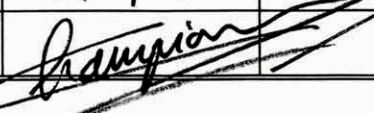

- Page de garde :
  - La Vallée du Rhône en aval de Marcoule
  - Répartition du  $^{137}\text{Cs}$  dans les sols de la zone d'étude
- 4<sup>ème</sup> de couverture :
  - Vignobles du Comtat Venaissin
  - Stocks et flux de plutonium et d'américium
  - Carottage de sédiments dans le delta immergé du Rhône avec les moyens de l'IFREMER
  - Stocks de  $^{137}\text{Cs}$  dans le delta immergé du Rhône

Demandeur	
Référence de la demande	
Numéro de la fiche programme	

**Projet CAROL**  
**(Camargue Rhône Languedoc)**  
**Rapport final**

**Laboratoire d'Etudes Radioécologiques en milieux Continental et Marin**

**Rapport DEI/SESURE n° 04-22**

	Réservé à l'unité		Visas pour diffusion		
	Auteur(s)	Vérificateur *	Chef du SESURE	Directeur de la DEI	Directeur Général de l'IRSN
Noms	C. DUFFA, P.RENAUD	C. MERCAT	N. LEMAITRE	D. CHAMPION	J. REPUSSARD
Dates	27/08/04	30/08/04	10/10/04	19/10/04	
Signatures					

\* rapport sous assurance de la qualité

---

---

## RESUME

Le projet CAROL (Camargue-Rhône-Languedoc) a été initié au Laboratoire d'Etudes Radioécologiques en milieux Continental et Marin (LERCM) en 1998. Il avait pour objectif d'étudier la répartition des radionucléides artificiels dans la basse vallée du Rhône, puis d'identifier et de quantifier les principaux flux ou transferts qui ont prévalu à cette répartition aujourd'hui observée.

Comme l'ensemble du territoire français métropolitain, la basse vallée du Rhône a reçu entre 1945 et 1980 les retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires et les retombées de l'accident de Tchernobyl en mai 1986. Par ailleurs, cette zone se situe à l'aval de toutes les installations nucléaires rhodaniennes : usines d'enrichissement de l'uranium, de fabrication et de retraitement du combustible, ainsi que cinq Centres Nucléaires de Production Electrique, dont certains sont implantés depuis trois voire quatre décennies. De part le nombre et la variété de ces installations, le Rhône constitue en outre la voie principale d'apport de radionucléides provenant de l'industrie nucléaire vers le Golfe du Lion. Cette région a donc été choisie pour son caractère exemplaire afin de mener une étude globale, à l'échelle d'un bassin versant, sur ce qu'il est advenu des radionucléides apportés à l'environnement de manière chronique ou ponctuelle, dans les trois milieux : terrestre, fluvial et marin.

Au terme des six années du projet (1998-2003), les origines des radionucléides mesurés dans chacun de ces milieux ont été identifiées et leurs contributions estimées. Les hétérogénéités dans leur répartition spatiale ont été identifiées et expliquées. Les principaux stocks et flux ont été quantifiés, notamment les flux d'interface entre les différents milieux. Il est ainsi possible de connaître la contribution de la rémanence des essais atmosphériques dans les activités apportées aux sols durant 40 ans d'irrigation ou lors d'inondations, en prenant en compte leur dépôt sur le bassin versant, le lessivage des sols, leur spéciation dans le fleuve, les conditions hydrauliques des crues ou les pratiques d'irrigation. Il en est de même de la contribution des rejets des installations nucléaires dans les 13 TBq de  $^{137}\text{Cs}$  contenus en 2001 dans le delta immergé du Rhône.

18 publications et 23 présentations en congrès ont été produites dans le cadre du projet CAROL, ainsi que plusieurs rapports. Une thèse sur les actinides y a été entièrement consacrée, et deux thèses sur le milieu marin y ont contribué.

Bien que l'objectif initial du projet ait été globalement atteint, certaines études n'ont pu complètement aboutir. C'est le cas de l'évaluation des stocks de radionucléides présents dans les sédiments du Rhône et de leur devenir, dont l'étude se poursuit notamment dans le cadre d'une thèse. C'est également le cas de la quantification des flux lors des épisodes de crues dont l'étude se poursuit dans le cadre d'un nouveau projet dédié aux flux événementiels. Enfin, c'est le cas du bilan complet des stocks de plutonium dans le delta immergé, en raison des contraintes liées à la métrologie des émetteurs alpha, et du devenir général des stocks pro-deltaïques qui fera l'objet d'une thèse à partir de l'automne 2004.

Au-delà de cet objectif, les études de recherche appliquée effectuées dans le cadre du projet CAROL ont permis de répondre à de nombreuses questions exprimées au cours du développement du projet par les pouvoirs publics, des associations, et la société civile de manière générale.

Par exemple, l'étude de l'origine du  $^{137}\text{Cs}$  présent dans les sols de la vallée du Rhône a conduit à quantifier la relation entre les dépôts consécutifs à l'accident de Tchernobyl et les pluies de la première semaine de mai 1986 (période durant laquelle les masses d'air contaminées ont survolé la France). Cette étude a servi de base à l'élaboration d'une cartographie des dépôts de  $^{137}\text{Cs}$ , dans un premier temps dans l'est du pays, puis sur la France entière. C'est la superposition de cette carte avec celle des retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires qui nous permet aujourd'hui de répondre à la question très médiatisée des activités de  $^{137}\text{Cs}$  dans certaines régions de France. Une autre application de ces recherches a été la réponse à une saisine de la préfecture de Corse concernant les retombées de l'accident de Tchernobyl sur l'île. Des campagnes d'échantillonnages et de mesures ont été effectuées par

l'IPSN en 2001 avec comme objectif de vérifier les estimations de dépôts faites sur la base de la relation « pluie-dépôt » établie dans le Bas-Rhône, de reconstituer la contamination de la chaîne alimentaire en 1986 à partir des mesures faites à l'époque par l'OPRI et l'IPSN, et de connaître les niveaux actuels de contamination des aliments. Cette étude a fait l'objet de publications scientifiques et d'une présentation publique organisée par la préfecture à Ajaccio en janvier 2002. De plus, cette étude a été complétée par une estimation des conséquences dosimétriques des retombées de l'accident de Tchernobyl en Corse.

Ces travaux ont également permis de répondre aux préoccupations d'associations, de catégories socioprofessionnelles ou d'élus interpellés par des déclarations ou publications d'associations écologistes. L'étude de l'influence des retombées de l'accident de Tchernobyl sur les vins des Côtes du Rhône illustre ce souci des collaborateurs du projet de répondre aux sollicitations extérieures, et de communiquer le résultat de leurs travaux à la fois dans le milieu scientifique et au public concerné. Il en est de même des études sur le plutonium au voisinage de Marcoule et dans les sols inondés de Camargue dont les résultats ont été présentés dans des réunions publiques, organisées notamment par la Commission Locale d'Information (CLI) du Gard.

Enfin il faut noter qu'en décembre 2003, dernier mois du projet CAROL, la CLI du Gard et l'Autorité de Sûreté Nucléaire ont saisi l'IRSN sur les conséquences radiologiques des inondations exceptionnelles en Camargue. C'est donc très opportunément que les compétences acquises dans le cadre du projet CAROL et les réflexions sur la continuité des travaux liés aux crues et autres évènements extrêmes, sont maintenant utilisées pour répondre à cette demande d'expertise.

---

---

#### **MOTS-CLES**

Bas-Rhône, Mercantour, Corse, actinides, césium, Marcoule, Tchernobyl.

## Ont contribué à ce projet :

---

Coordination :

**Philippe RENAUD, Sabine CHARMASSON**

---

Milieu terrestre :

**Céline DUFFA, Philippe RENAUD, Laurent POURCELOT, Jean-Michel METIVIER<sup>1</sup>**

---

Milieu aquatique continental :

**Frédérique EYROLLE, Sabine CHARMASSON, Céline DUFFA**

---

Milieu marin :

**Sabine CHARMASSON, Mireille ARNAUD, Bruno LANSARD**

---

Métérologie :

**Evelyne BARKER<sup>2</sup>, Rodolfo GURRIARAN<sup>2</sup>, Michèle AGARANDE<sup>2</sup>, Marcel MORELLO<sup>3</sup>**

---

Traitement des échantillons :

**Jacques MARQUET, Gilles SALAUN, Yves DIMEGLIO**

---

<sup>1</sup> SECRE/LME

<sup>2</sup> STEME/LMRE

<sup>3</sup> SECRE/LRE

Les coordonnateurs remercient **Nathalie LEMAITRE, Dominique CALMET, Didier LOUVAT** et **Henri MAUBERT** qui ont soutenu le projet au niveau du Service (SERNAT puis SESURE) et du Laboratoire (LERCM), et ont favorisé la valorisation des résultats. Merci aussi à **Yvette BAUDIN-JAULENT** dont la contribution sur les aspects documentaires et d'assurance qualité a été très précieuse.

## SOMMAIRE

1. INTRODUCTION .....	6
2. DEMARCHE SUIVIE .....	7
3. REPARTITION DES ACTINIDES .....	8
3.1. Origines.....	8
3.2. Répartition dans la basse vallée du Rhône.....	9
3.2.1. Dans le milieu terrestre .....	9
3.2.1.1. Répartition spatiale .....	9
3.2.1.2. Distribution dans l'écosystème .....	13
3.2.2. Dans le Rhône .....	14
3.2.3. Dans le Golfe du Lion.....	17
3.3. Bilan des stocks et des flux.....	19
4. LE CESIUM ET AUTRES EMETTEURS GAMMA ARTIFICIELS .....	20
4.1. Origines.....	20
4.2. Répartition dans la basse vallée du Rhône.....	21
4.2.1. Dans le milieu terrestre .....	21
4.2.1.1. Répartition spatiale .....	21
4.2.1.2. Distribution dans l'écosystème .....	23
4.2.2. Dans le Rhône .....	25
4.2.3. Dans le Golfe du Lion.....	27
4.3. Zones remarquables .....	30
4.3.1. Le Mercantour .....	30
4.3.2. La Corse.....	32
4.4. Bilan des stocks et des flux.....	33
5. CONCLUSION.....	34
6. LISTE DES PUBLICATIONS, RAPPORTS ET COMMUNICATIONS SCIENTIFIQUES EFFECTUEES DANS LE CADRE DU PROJET CAROL .....	36
7. REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....	39
8. LISTE DES FIGURES .....	41
9. LISTE DES TABLEAUX .....	42

## 1. INTRODUCTION

Le projet CAROL (Camargue-Rhône-Languedoc) a été initié au Laboratoire d'Etudes Radioécologiques en milieux Continental et Marin (LERCM) en 1998. Il avait pour objectif d'étudier la répartition des radionucléides artificiels dans la basse vallée du Rhône, puis d'identifier et de quantifier les principaux flux ou transferts qui ont prévalu à cette répartition aujourd'hui observée.

Comme l'ensemble du territoire français métropolitain, la basse vallée du Rhône a reçu, entre 1945 et 1980, les retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires et les retombées de l'accident de Tchernobyl en mai 1986. Par ailleurs, cette zone se situe à l'aval de toutes les installations nucléaires rhodaniennes : usines d'enrichissement de l'uranium, de fabrication et de retraitement du combustible, ainsi que cinq Centres Nucléaires de Production Electrique, dont certains sont implantés depuis trois voire quatre décennies (Figure 1). De part le nombre et la variété de ces installations, le Rhône constitue en outre la voie principale d'apport de radionucléides provenant de l'industrie nucléaire vers le Golfe du Lion. Cette région a donc été choisie pour son caractère exemplaire afin de mener une étude globale, à l'échelle d'un bassin versant, sur ce qu'il est advenu des radionucléides apportés à l'environnement de manière chronique ou ponctuelle, dans les trois milieux : terrestre, fluvial et marin.

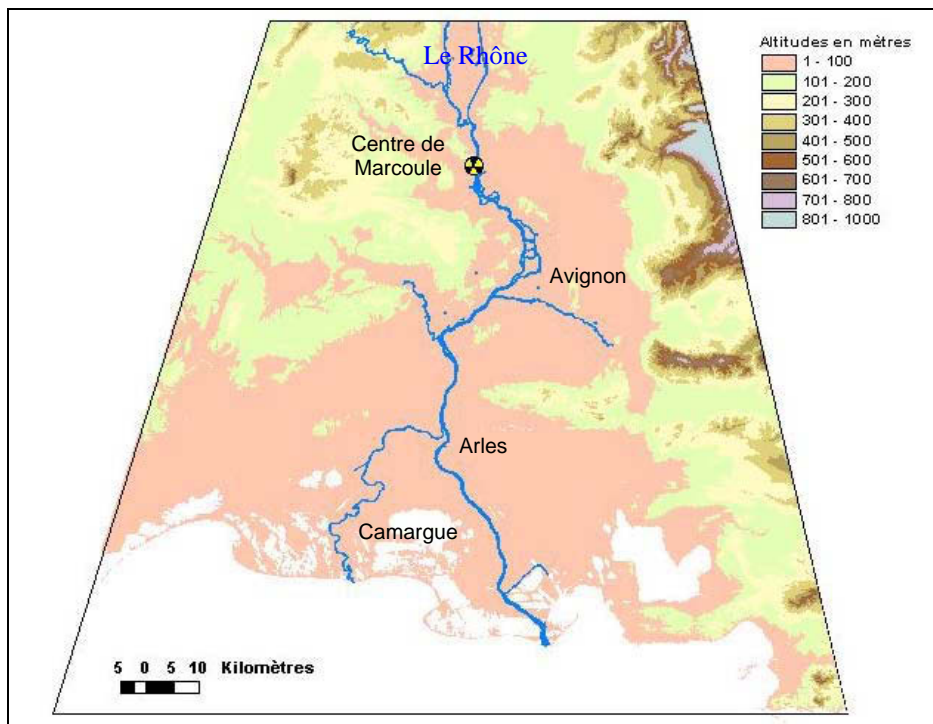


Figure 1 : Zone d'étude CAROL : la basse vallée du Rhône

Afin de démarrer le projet sur la base de connaissances et de données existantes, le choix des radionucléides étudiés a été porté sur les actinides (isotopes émetteurs alpha du Pu et de l'Am), et sur le césium 137. Les résultats acquis, et les questions qui se sont alors posées concernant les contaminations en  $^{137}\text{Cs}$  dans le sud-est de la France, ont conduit les acteurs de ce projet à ne plus limiter l'étude à la zone initialement définie, mais à mener des investigations parallèles sur des zones particulières telles le Mercantour et la Corse.

Ce rapport fait la synthèse de la démarche suivie, des principaux résultats obtenus, et des enseignements acquis lors de ce projet qui a impliqué plusieurs ingénieurs et techniciens du LERCM durant 6 ans (1998-2003). Afin de maintenir ce rapport à une taille raisonnable, les résultats y sont peu détaillés, mais la liste des publications et rapports effectués dans le cadre du projet permettra au lecteur intéressé de s'y référer.



## 2. DEMARCHE SUIVIE

Les travaux menés dans le cadre du projet CAROL sont des expertises et des études de recherche appliquée développées à partir de données environnementales et notamment d'activités de radionucléides mesurées dans des échantillons de différentes matrices (sols, végétaux, sédiments, eaux, matières en suspension...).

Ces études partent le plus souvent d'un constat établi à partir de données déjà acquises dans d'autres cadres ou encore d'une question posée par la société civile.

A partir d'une première analyse des données existantes, un modèle conceptuel permet la définition d'une stratégie d'échantillonnage pour l'acquisition de nouvelles données susceptibles de répondre à la problématique.

A l'échelle d'un grand ensemble géographique, cette acquisition n'est souvent faite que sur un compartiment de l'environnement, une « zone atelier » (aire ou bief) ou une période déterminée. Au cours du projet CAROL, plusieurs « zones ateliers » d'étendues variables ont ainsi été ouvertes : Rhône en Arles en période de crues, zones inondées de Camargue, région de Vaison-la-Romaine, zone influencée par les rejets atmosphériques de Marcoule, zone atelier du col de la Lombarde (2000 m<sup>2</sup>), Corse.

Les conditions d'extrapolation géographique ou temporelle de cette observation sont alors déterminées par le croisement des activités mesurées avec d'autres paramètres physico-chimiques du milieu ou d'évènements qui ont conduit à la situation observée. Ainsi, les activités de <sup>137</sup>Cs des sols de la basse vallée du Rhône ont été reliées aux hauteurs de pluies cumulées la première semaine de mai 1986 (retombées de l'accident de Tchernobyl), celles des « taches du Mercantour » aux phénomènes neigeux de dépôt et de fonte, les activités mesurées dans le Rhône ont été reliées au débit et à la charge de matières en suspension.

Les rapports d'activités isotopiques sont fréquemment utilisés pour tracer l'origine, les contributions des apports ou le devenir des radionucléides mesurés, à l'instar des méthodes développées en géochimie.

Pour interpréter les résultats de mesures, tester les modèles empiriques qui en sont dérivés ou quantifier certains flux, des calculs sont effectués au moyen notamment de modèles radioécologiques génériques couramment utilisés à l'IRSN tels que FOCON, ASTRAL ou COTRAM.

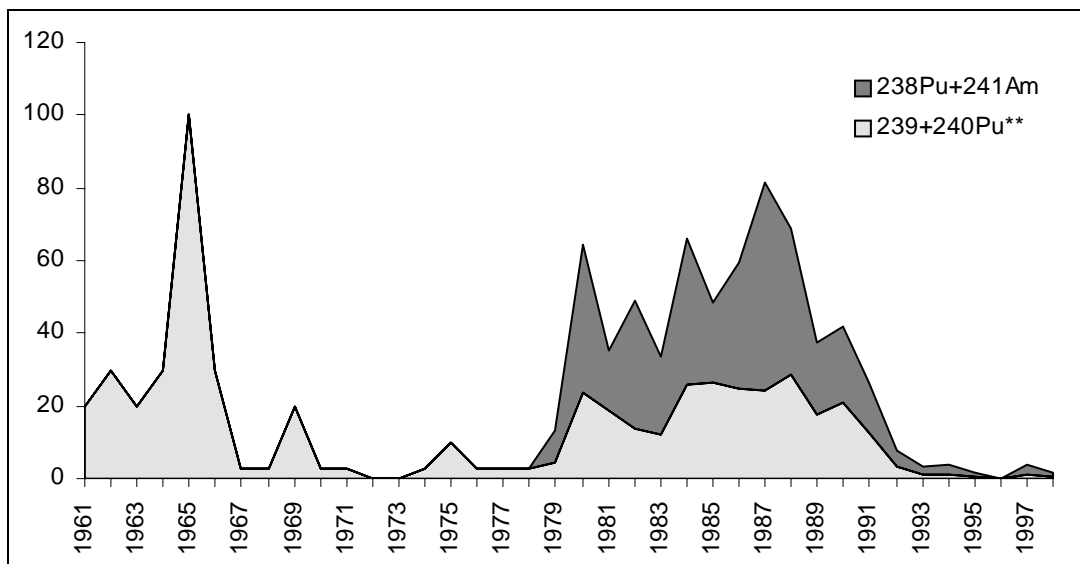
L'aboutissement de ces études est l'établissement de bilans des stocks et des flux de radionucléides à l'échelle du bassin versant, notamment par le biais de représentations cartographiques ou schématiques compartimentales, la compréhension et dans certains cas la quantification des mécanismes ou processus qui les sous-tendent, la détermination de valeurs de référence des activités présentes dans l'environnement ou de paramètres radioécologiques usuels.

### 3. REPARTITION DES ACTINIDES

#### 3.1. Origines

Les radionucléides  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  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 (UNSCEAR, 1982). Ces isotopes transuraniens émetteurs alpha de longue période ( $^{238}\text{Pu}$  : 87,7 ans,  $^{239}\text{Pu}$  : 24 100 ans,  $^{240}\text{Pu}$  : 6563 ans et  $^{241}\text{Am}$  : 432,7 ans) sont mesurables à l'état d'ultra-traces dans les échantillons prélevés dans l'environnement français, avec un rapport d'activités  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  de 0,03, traçant leur origine (Tableau I).

Dans la basse vallée du Rhône, le centre de Marcoule effectue des rejets de radionucléides émetteurs alpha (parmi lesquels figurent  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$ ) dans le Rhône et dans une moindre mesure dans l'atmosphère. Ces rejets, dans un premier temps dus aux activités de fabrication de plutonium de qualité militaire sur ce site, ont été ensuite essentiellement liés aux activités de retraitement des combustibles usés de la filière UNGG effectuées par l'usine UP1 jusqu'en 1997. La Figure 2 présente l'évolution des rejets liquides d'actinides effectués par le centre de Marcoule dans le Rhône (données communiquées par COGEMA-Marcoule).



\*\*Avant 1979, une seule valeur annuelle est fournie, incluant les isotopes  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  et  $^{242+244}\text{Cm}$ .

**Figure 2 : Rejets liquides de transuraniens effectués par le centre de Marcoule au Rhône entre 1961 et 1998 (GBq).**

Les rapports d'activités  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  permettent comme précédemment de caractériser cette origine du plutonium (Tableau I).

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

Retombées globales	Rejets de Marcoule Filière électrogène	Rejets de Marcoule Filière plutonigène
0,03	0,3	0,05

## 3.2. Répartition dans la basse vallée du Rhône

### 3.2.1. Dans le milieu terrestre

En s'appuyant à la fois sur les connaissances déjà acquises sur les origines et les niveaux d'activités en  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{239+240}\text{Pu}$  présents dans l'environnement de la basse vallée du Rhône et sur les données de la littérature, l'objectif de cette étude est de dresser un bilan de la distribution spatiale et compartimentale du plutonium dans cette région. L'état de la répartition actuelle est le résultat des apports et des flux de radionucléides sur la période 1945-1998. Il peut être appréhendé par l'exploitation des mesures d'activités réalisées sur des échantillons de l'environnement par spectrométrie alpha ou par le calcul de ces flux. Les résultats produits lors de cette étude ont été obtenus en couplant ces deux approches [1].

#### 3.2.1.1. Répartition spatiale

Plutonium et américium ont fait l'objet de plusieurs études sur leur comportement dans l'environnement, mettant en évidence de très faibles capacités à être dissous et transférés vers les matrices végétales (Hanson, 1975 ; Hakonson et al, 1981 ; Bunzl et al., 1994). Les sols constituent dès lors leurs principaux réservoirs dans l'environnement terrestre (Little et al., 1980).

L'analyse des résultats de mesures acquis entre 1993 et 1995 (Descamps 1994, 1995) montre que le plutonium et l'américium sont omniprésents et que leurs activités sont relativement homogènes dans les sols cultivés du Bas-Rhône, à l'exception des environs immédiats du centre de Marcoule et de certaines zones de Camargue.

De manière générale, ces activités sont attribuables aux retombées atmosphériques globales ( $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu} = 0,03$ ) et représentent  $1,4 \pm 0,1 \text{ Bq.m}^{-2}$  de  $^{238}\text{Pu}$ ,  $47 \pm 3 \text{ Bq.m}^{-2}$  de  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $19 \pm 1 \text{ Bq.m}^{-2}$  de  $^{241}\text{Am}$ .

Ces résultats sont tout à fait cohérents avec les valeurs reportées dans la littérature pour différents pays d'Europe occidentale. Ainsi, certains auteurs se sont intéressés à la répartition du plutonium dans les sols à l'échelle d'un pays, et ont mis en évidence une corrélation importante des activités déposées dues aux émissions globales avec les hauteurs de précipitations moyennes annuelles (Mitchell et al., 1990 ; Hölgye et Fildas, 1995). Sur la basse vallée du Rhône (Figure 1), les précipitations moyennes annuelles sont relativement homogènes, comprises entre 600 et 800 mm.

Par ailleurs, plusieurs études existantes (Bunzl et Kracke, 1988, Hölgye et Fildas, 1995), montrent que, du fait des phénomènes d'interception foliaire, les dépôts de plutonium sur les sols boisés ont été 30% supérieurs à ceux qui ont eu lieu sur des sols nus. Sur les 11 000 km<sup>2</sup> de la zone d'étude, environ 29% (données extraites de la base Corin LandCover®) correspondent à des zones de forêts ou garrigues.

A partir de l'ensemble de ces éléments, un inventaire global du stock de chacun des ces radionucléides dans les sols de la basse vallée du Rhône a été établi (Tableau II). Le stock total d'actinides attribuable aux retombées atmosphériques globales est ainsi estimé à environ 770 GBq.

**Tableau II : Stocks de  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  dans les sols de la basse vallée du Rhône (en GBq)**

	$^{238}\text{Pu}$	$^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$
Sols boisés	$5,5 \pm 0,3$	$188 \pm 13$	$77 \pm 5$
Sols cultivés ou autres	$10,3 \pm 0,7$	$346 \pm 25$	$142 \pm 10$
Total	$15,8 \pm 1$	$534 \pm 38$	$219 \pm 15$

Les résultats de mesures existant sur la zone étudiée dans ce projet montrent que, localement, les niveaux d'activités des sols peuvent être significativement plus élevés (Figure 3). C'est notamment le cas sur les communes de Codolet et Chusclan, situées aux environs immédiats du centre de Marcoule, et sur une zone particulière au nord-ouest de la Camargue, où sont situés les lieux-dits Figarès et Albaron, inondée suite aux crues du Rhône en 1993 et 1994 [2].

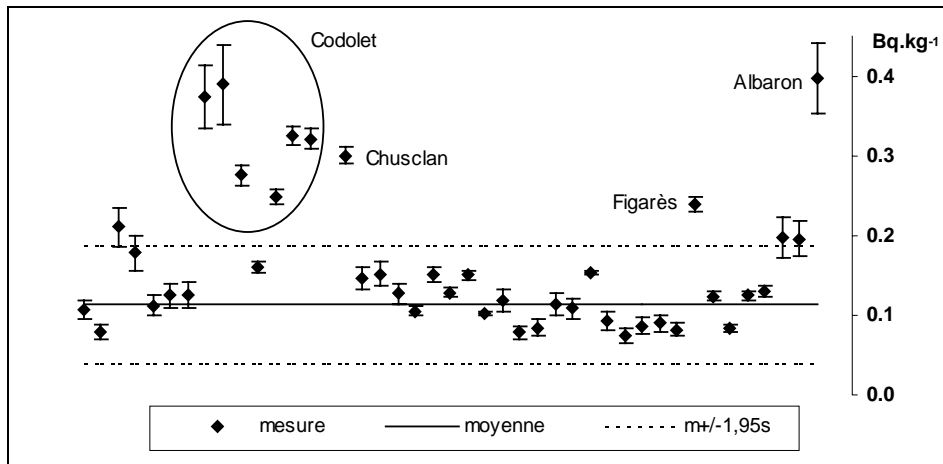


Figure 3 : Activités massiques en  $^{239+240}\text{Pu}$  mesurées dans les sols cultivés de la basse vallée du Rhône ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ )

Ce constat a permis de définir de nouvelles campagnes de prélèvements d'échantillons de sols destinés à caractériser plus précisément les activités en actinides sur ces zones et de déterminer leur origine .

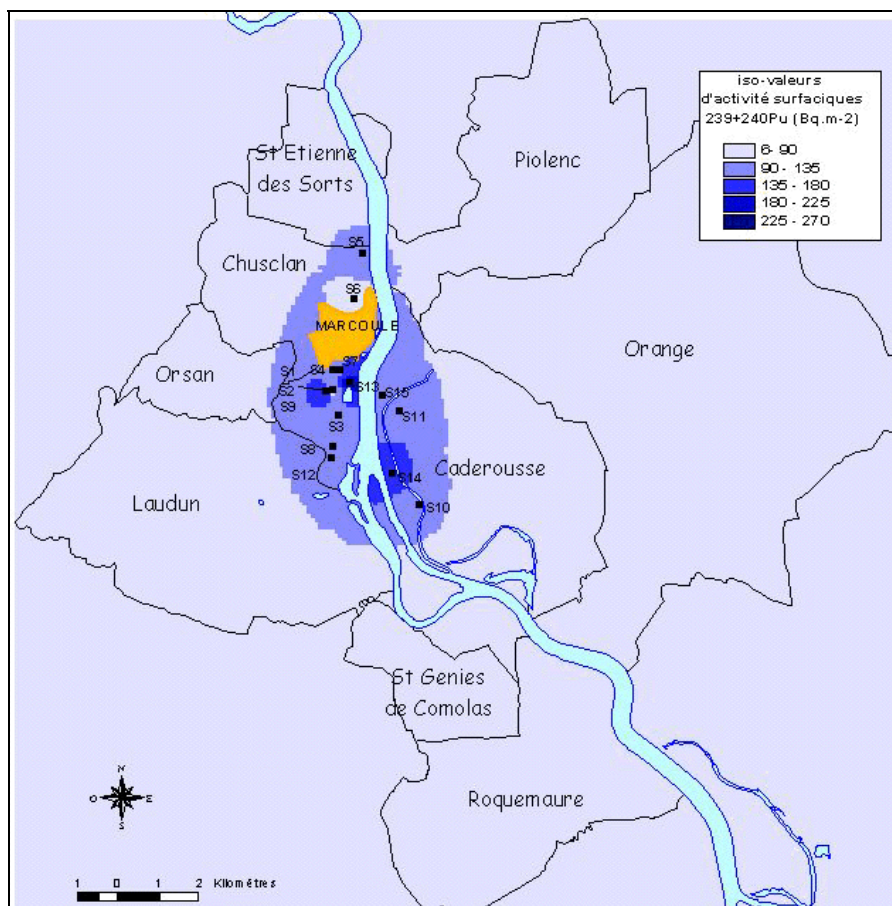


Figure 4 : Répartition du  $^{239+240}\text{Pu}$  dans les sols autour du site de Marcoule

A partir des activités mesurées dans les échantillons de sols prélevés en 1999 à proximité de l'installation de Marcoule, une zone de 25 km<sup>2</sup> sur laquelle les activités surfaciques en actinides sont significativement supérieures à celles des autres sols a été délimitée. Ces activités supplémentaires témoignent d'un enrichissement évalué à 0,1 GBq de <sup>238</sup>Pu, 2,1 GBq de <sup>239+240</sup>Pu (Figure 4) et 0,6 GBq d' <sup>241</sup>Am sur cette zone, dont le rapport <sup>238</sup>Pu/<sup>239+240</sup>Pu de 0,05 est caractéristique du plutonium de qualité militaire, produit sur le site au début des années 1960.

Afin de confirmer l'origine atmosphérique de ces apports anciens, deux campagnes de mesures ont été conduites en 1999 et 2000 sur des échantillons de bryophytes terrestres. Les résultats, qui mettent en évidence les faibles apports atmosphériques de Pu et Am issus de l'installation nucléaire au cours des 10 dernières années, et caractérisés par un rapport d'activité de 0,3, ont permis de délimiter la zone d'influence des rejets atmosphériques chroniques [3]. L'extension de cette zone d'influence est tout à fait comparable à l'étendue de la zone sur laquelle des enrichissements en actinides ont été constatés.

Un dépôt cumulé de 2,8 GBq de Pu et Am en champ proche (moins de 10 km du point d'émission) consécutif à des rejets chroniques ne peut représenter plus de 10% des activités totales rejetées pour ce site où la prépondérance des temps secs est avérée. Cette analyse indique que les activités de Pu et Am rejetées dans l'air par le centre de Marcoule et ayant conduit à ces dépôts représenteraient plus de 28 GBq [4] [5].

Plusieurs échantillons de sols analysés lors de cette même étude ont également permis d'attribuer aux apports par les sédiments du Rhône, lors des inondations survenues en 1993 et 1994, les enrichissements en Pu et Am mesurés en Camargue. En effet, en 1993 et 1994, après la rupture des digues de protection contre le Rhône, deux inondations se sont produites au nord-ouest de la Camargue (Figure 5), 60 km en aval du centre de Marcoule, responsables de l'introduction d'environ 400 000 tonnes de sédiments véhiculés par le fleuve et déposés de manière hétérogène sur les 20 000 ha inondés. Les apports de <sup>238</sup>Pu, <sup>239+240</sup>Pu et <sup>241</sup>Am sont estimés respectivement à 15 MBq, 90 MBq et 83 MBq, déposés de façon très hétérogène, principalement aux environs des brèches de digues. Les mesures réalisées en 2000 au droit d'une des brèches principales (brèche de Lauricet) attestent à la fois de cette hétérogénéité des dépôts, et de la contribution importante des transuraniens issus de Marcoule à ces enrichissements en Pu et Am qui se caractérisent par des rapports d'activité <sup>238</sup>Pu/<sup>239+240</sup>Pu compris entre 0,05 et 0,15 (Figure 5). L'utilisation des rapports d'activités isotopiques comme traceurs de l'origine des activités mesurées a également permis une reconstitution des épaisseurs de sédiments déposées [7].

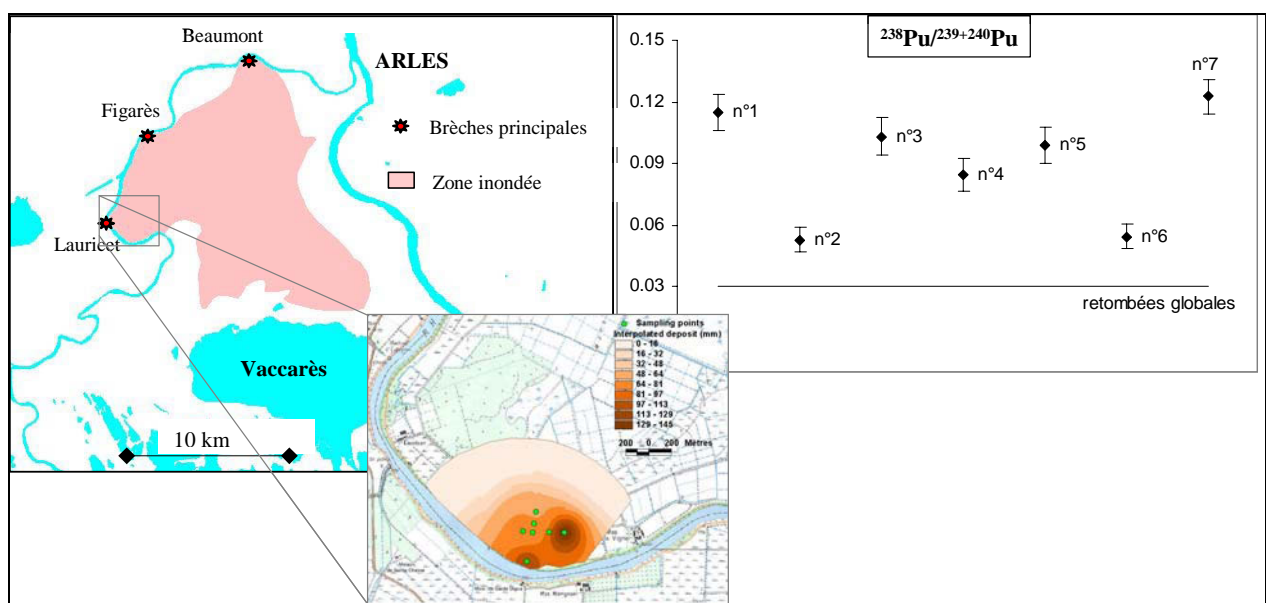


Figure 5 : Surfaces inondées en 1993-1994 et rapports d'activités <sup>238</sup>Pu/<sup>239+240</sup>Pu mesurées dans les échantillons de sols prélevés face à la brèche de Lauricet

Ce phénomène d'apports indirects vers le milieu terrestre d'une contamination véhiculée par le Rhône pose aussi le problème des apports liés à l'irrigation. Les principaux prélèvements dans le Rhône pour l'irrigation sont effectués d'une part par la société BRL (Bas Rhône Languedoc), qui distribue en moyenne  $105 \times 10^6 \text{ m}^3$  annuellement aux régions agricoles de l'ouest de la basse vallée du Rhône (canal allant de Fourques à Montpellier), et d'autre part par les riziculteurs de Camargue qui utilisent chaque année près de  $28\,000 \text{ m}^3$  d'eau pour chaque hectare de rizière cultivée. Actuellement, les surfaces rizicoles de Camargue occupent quelques  $15\,000 \text{ ha}$ , mais cette superficie a énormément fluctué au cours des 40 dernières années. A ces apports d'eau du Rhône vers les sols irrigués sont associés des dépôts de plutonium et d'américium, non mis en évidence de manière significative par l'analyse des activités totales mesurées dans les échantillons de sols. Toutefois, les rapports d'activités  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  caractérisant ces sols, légèrement supérieurs à la valeur de 0,03 témoignent de faibles apports probables d'actinides rejetés dans le Rhône par le centre de Marcoule. Les activités totales exportées du Rhône pour l'irrigation entre 1961 et 1998 ont été calculées en s'appuyant sur les valeurs de débits annuels du Rhône au niveau du Centre de Marcoule et sur les volumes d'eau pompés annuellement pour l'irrigation :

$$F_{i,irr} = \sum_{1961}^{1998} \left( \frac{\varphi_{i,BV} + \varphi_{i,Marcoule}}{Q_l} \times V_{irr} \right) \quad \text{Équation 1}$$

où  $F_{i,irr}$ : Flux total de l'isotope  $i$  exporté pour l'irrigation (Bq),

$V_{irr}$ : Volume moyen annuel pompé pour l'irrigation ( $\text{m}^3$ ).

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

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

$Q_l$ : Débit liquide annuel moyen du Rhône au niveau de Marcoule ( $\text{m}^3\cdot\text{an}^{-1}$ ).

L'équation 1 a été appliquée directement pour estimer les activités apportées aux sols de rizières, soit 0,5, 3 et 2 GBq pour  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  respectivement. On estime par ailleurs que sur les  $28\,000 \text{ m}^3$  d'eau apportés annuellement sur chaque hectare de rizière, près de  $10\,000 \text{ m}^3$  sont exportés directement vers le réseau de drainage gravitairement ou par l'intermédiaire de pompes de refoulement. Une estimation moyenne de  $18\,000 \text{ m}^3 \text{ ha}^{-1}$  nets d'eau restant au niveau des rizières conduit aux évaluations des activités totales déposées sur un sol où l'on aurait cultivé le riz entre 1978 et 1998 :  $0,8 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$  de  $^{238}\text{Pu}$ ,  $3,1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$  de  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $2,6 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$  de  $^{241}\text{Am}$ . Le mélange de ces apports de Pu par irrigation avec les activités en Pu rémanentes des retombées globales conduit à une faible augmentation du rapport d'activité  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ , dont la valeur calculée est de 0,045.

Sur la période 1961-1998, la déviation annuelle de 105 millions de mètres cubes d'eau du Rhône vers le canal BRL est associée à des flux totaux de  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  respectivement égaux à 0,19, 1,0 et 0,77 GBq (application de l'Equation 1). L'eau ainsi déviée transite par un canal d'amenée de 12 km de long avant d'être disponible pour le réseau d'irrigation proprement dit. Ce canal sert de milieu de décantation des eaux pompées et permet de limiter les apports gênants de matières particulaires. Pour estimer les apports de Pu et Am aux sols irrigués par ce réseau, il est nécessaire de quantifier la rétention de radionucléides liée au piégeage d'une partie des matières en suspension présentes dans l'eau. Une étude antérieure à celle-ci (Eyrolle et Charmasson, 2001) a permis de montrer que 85% du plutonium présent dans des échantillons d'eau du Rhône prélevés à Arles est associé aux matières solides en suspension. D'après les données recueillies dans la littérature, ce pourcentage serait d'environ 67% pour l'américium. Par ailleurs, la compagnie qui exploite ce canal indique que seulement 15% des matières solides pompées au Rhône sont présentes à la sortie du canal d'amenée. Les flux de  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  à la sortie du canal d'amenée, et donc répartis sur les sols irrigués sont évalués respectivement à 0,05 et 0,28 et 0,33 GBq. Les apports totaux sur les sols dépendent de nombreux facteurs, dont par exemple le type de culture, le nombre

de jours et le mode d'irrigation, la filtration éventuelle de l'eau. En se plaçant dans le cas pénalisant d'un sol irrigué depuis 30 ans sans filtration préalable, les dépôts de  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  seraient de 0,3, 1,0 et 1,6 Bq.m<sup>-2</sup>. Ces apports théoriques restent faibles vis à vis des activités rémanentes des retombées globales, ce qui explique pourquoi on ne décèle pas d'activités significativement supérieures aux valeurs moyennes lors des mesures réalisées sur ces sols. [6].

Ce premier volet du travail réalisé sur les actinides a permis d'établir un inventaire et un bilan global de leur répartition spatiale actuelle dans les sols, et d'expliquer cet état par les flux qui se sont opérés depuis près de 50 ans.

### 3.2.1.2. Distribution dans l'écosystème

Parallèlement à ce travail, un second volet de l'étude des actinides dans le cadre du projet CAROL a permis de caractériser et de quantifier la distribution des radionucléides entre les différents compartiments du milieu terrestre. L'analyse des données contextuelles et environnementales locales montrent que ces estimations doivent essentiellement porter sur le milieu agricole et sur le milieu forestier, qui représentent respectivement 34% et 29% de la surface étudiée (Figure 6). Pour ces deux types de milieux, mesures et calculs ont été menés afin de dresser le bilan de la répartition de plutonium et de l'américium entre le sol et les compartiments végétaux.

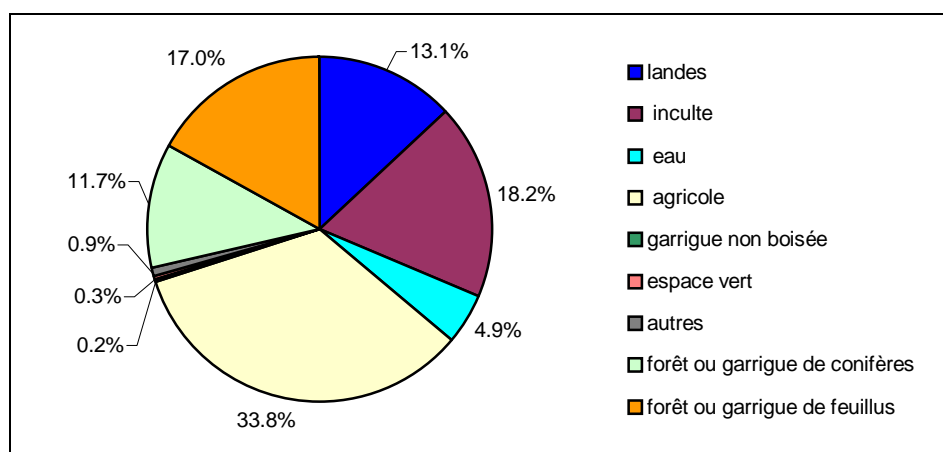


Figure 6 : Occupation des sols sur la zone d'étude (données Corin LandCover®)

Les activités en plutonium et américium mesurées dans les matrices végétales sont extrêmement faibles, à la limite de ce qui est actuellement mesurable [8]. Toutefois, en collectant des quantités suffisantes d'échantillon, plusieurs résultats de mesures ont été obtenus. En couplant ces résultats avec les données sur les productions agricoles dans la basse vallée du Rhône, les exportations d'activités liées aux récoltes annuelles ont été estimées. Celles-ci peuvent être estimées actuellement à  $727 \times 10^3 \text{ Bq.an}^{-1}$  de Pu et Am, essentiellement dues aux productions de fruits et de vin (Tableau III). 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 très difficiles à estimer de façon globale dans l'état actuel des connaissances.



**Tableau III: Productions moyennes annuelles et activités exportées annuellement par les récoltes**

Nature	Productions (tonnes de produit frais)	<sup>238</sup> Pu	<sup>239+240</sup> Pu	<sup>241</sup> Am
		(Bq)	(Bq)	(Bq)
Fruits	323000	0,8.10 <sup>3</sup>	26.10 <sup>3</sup>	177.10 <sup>3</sup>
Légumes	289000	1,1.10 <sup>3</sup>	35.10 <sup>3</sup>	56.10 <sup>3</sup>
Vin	167000	1,0.10 <sup>3</sup>	33.10 <sup>3</sup>	224.10 <sup>3</sup>
Céréales	139000	0,6.10 <sup>3</sup>	18.10 <sup>3</sup>	11.10 <sup>3</sup>
Fourrages	102000	2,6.10 <sup>3</sup>	88.10 <sup>3</sup>	53.10 <sup>3</sup>
<b>Total</b>	-	<b>6,1.10<sup>3</sup></b>	<b>200.10<sup>3</sup></b>	<b>521.10<sup>3</sup></b>

De la même manière, la distribution moyenne des activités au sein du milieu forestier a été évaluée. Dans le sol, les résultats de mesures montrent une diminution exponentielle de l'activité avec la profondeur qui suit la même logique 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 faibles, que l'on estime comprises entre 0,1 et 0,8 cm.an<sup>-1</sup>.

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 moyennes (Tableau IV). On aboutit ainsi à un total d'environ 50 MBq de Pu et Am actuellement contenus dans les compartiments végétaux, soit moins de 0,02% de l'activité totale présente dans ces écosystèmes forestiers.

**Tableau IV : Activités de Pu et Am stockées dans les compartiments végétaux naturels de la basse vallée du Rhône**

Matrice végétale	Biomasse (*10 <sup>6</sup> kg frais)	<sup>241</sup> Am (10 <sup>6</sup> Bq)	<sup>239+240</sup> Pu (10 <sup>6</sup> Bq)	<sup>238</sup> Pu (10 <sup>6</sup> Bq)
Litière	96	1,7	4,9	0,16
Végétation de sous-bois	920	1,2	2,2	0,05
Bois de pin	1170	0,3	0,5	0,011
Bois de chêne	1600	12,3	25,6	0,99

### 3.2.2. Dans le Rhône

Le plutonium transféré dans le Bas-Rhône a deux origines possibles : les apports dus à l'érosion des sols du bassin versant du Rhône, couvrant plus de 98 000 km<sup>2</sup> marqués par les retombées globales, et les rejets effectués par le centre de Marcoule. Noël (1996) a présenté une estimation des apports en Pu du bassin versant du Rhône, basée sur l'emploi d'un modèle empirique. Sur la période 1945-1998, on estime ainsi que 92 ± 28 GBq de <sup>239+240</sup>Pu, 3 ± 1 GBq de <sup>238</sup>Pu et 12 ± 4 GBq de <sup>241</sup>Am ont été apportés au Rhône par érosion de son bassin versant (Figure 7). Les rejets de l'installation de Marcoule sont estimés à partir des données communiquées par l'exploitant COGEMA (Figure 2). La composition isotopique du Pu dans les rejets antérieurs à 1979 n'étant pas fournie, on suppose un rapport <sup>238</sup>Pu/<sup>239+240</sup>Pu de 0,05, caractéristique d'un plutonium à usage militaire, jusqu'en 1965. Après 1965, les activités de retraitement civil débutant à Marcoule, on suppose que ce rapport a augmenté, jusqu'à atteindre en 1979 la valeur de 0,3. On estime de là les rejets annuels effectués par les



installations de Marcoule depuis 1960, soit  $441 \pm 72$  GBq de  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $92 \pm 5$  GBq de  $^{238}\text{Pu}$  et  $386 \pm 64$  GBq de  $^{241}\text{Am}$  (Figure 7).

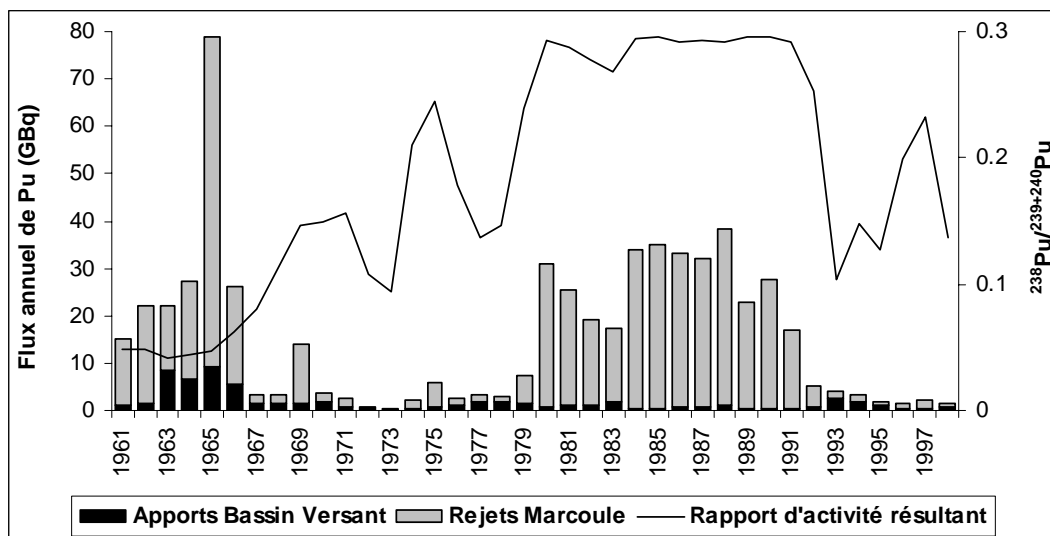


Figure 7 : Activités de Pu 238, 239 et 240 apportées annuellement au Bas-Rhône entre 1961 et 1998, et rapport d'activités  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  caractérisant le mélange théorique résultant.

En milieu aquatique continental, le plutonium présente une grande affinité avec les particules et tout particulièrement avec les composés organiques et les hydroxydes de fer. Dans les eaux du Rhône, il est principalement transféré en phase particulaire et sous forme réduite. En phase dissoute ( $< 0,45 \mu\text{m}$ ), 60% des isotopes du plutonium sont associés à des supports colloïdaux [9] [10] [11] [12].

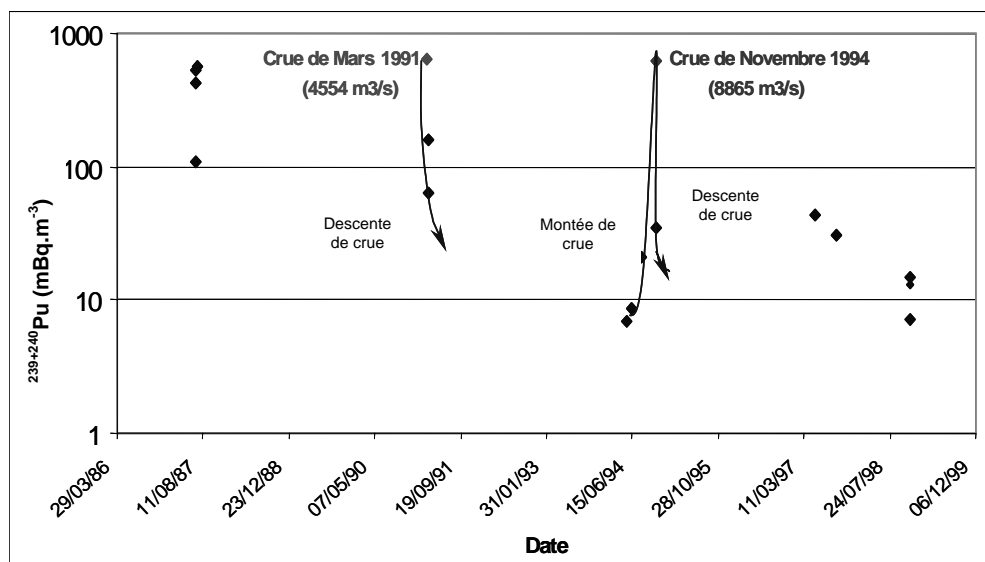


Figure 8 : Activités en  $^{239+240}\text{Pu}$  en phase particulaire en mBq.m<sup>-3</sup> mesurées dans les eaux du Rhône au niveau de la ville d'Arles.

Les activités en  $^{239+240}\text{Pu}$  mesurées dans les eaux du Rhône au niveau de la ville d'Arles sont reportées sur la figure 8. Entre 1987 et 1998, les activités mesurées ont diminué d'un facteur 50, soit un facteur analogue à celui enregistré pour les rejets du complexe de Marcoule sur la même période. Les résultats soulignent également que les crues du Rhône sont à l'origine d'une augmentation des concentrations en  $^{239+240}\text{Pu}$  dans les eaux. Une relation

empirique donnant les concentrations en  $^{239+240}\text{Pu}$  en phase particulaire en fonction du débit liquide (Q en  $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ) et du rejet liquide de Marcoule (M en  $\text{MBq} \cdot \text{an}^{-1}$ ) a été obtenue :

$$C = 0,006 M e^{0,0004 Q} \quad \text{Équation 2}$$

L'augmentation de la radioactivité en période de crue est liée à un apport de matières solides marquées provenant soit du drainage du bassin versant soit de la mobilisation de stocks sédimentaires fluviaux [13] [14] [15]. L'examen du rapport d'activités  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  en fonction du régime hydraulique du fleuve permet d'estimer la contribution de ces deux sources (Figure 9). Les rapports d'activités  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  mesurés varient de  $0,37 \pm 0,12$  à  $0,17 \pm 0,05$  pour des débits variant de 1000 à 9000  $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  respectivement, et sont d'une façon générale supérieurs aux rapports d'activités théoriques. Ces résultats témoignent de l'action d'une source secondaire marquée par les rejets de Marcoule dont la contribution est fonction du régime hydraulique du fleuve. Cette source secondaire est attribuée à la remise en suspension de stocks sédimentaires accumulés dans le lit du Rhône en aval du site de Marcoule en période d'étiage ou dans les zones de calme hydrodynamique du fleuve.

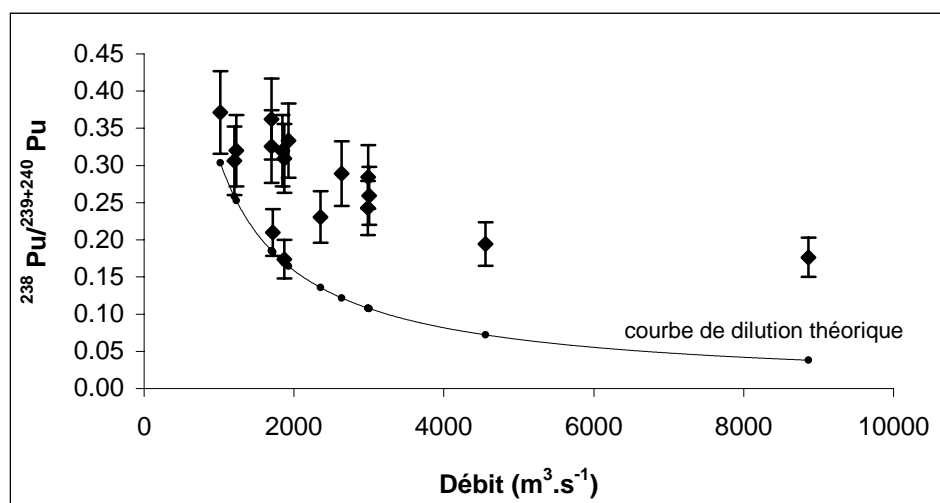


Figure 9 : Rapports d'activités  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  mesurés dans les eaux du Rhône à Arles en fonction du régime hydraulique du fleuve (Equation de la courbe de dilution théorique :  $A = 232 Q^{-0,96}$ ).

L'ensemble des résultats obtenus a permis de dresser un bilan des contributions des différents termes sources impliqués sur le bassin versant rhodanien en fonction du régime hydraulique du fleuve (Figure 10). Pour des débits du Rhône de l'ordre de grandeur du débit moyen annuel ( $1700 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ) et inférieurs, le terme source prépondérant de radioactivité en isotopes du plutonium dans les eaux du Rhône est constitué par les rejets liquides du site de Marcoule. En période de crue du Rhône, le drainage du bassin versant et la remise en suspension des stocks sédimentaires fluviaux représentent les termes sources majeurs. La source sédimentaire contribue jusqu'à 30 % de la radioactivité exportée en période de crue pour les isotopes du plutonium [16] [17] [18]. Un bilan global permet, en utilisant ce modèle, d'estimer qu'en 1998, près de 290 GBq de  $^{238}, ^{239}, ^{240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  se sont accumulés dans les sédiments du Bas-Rhône.

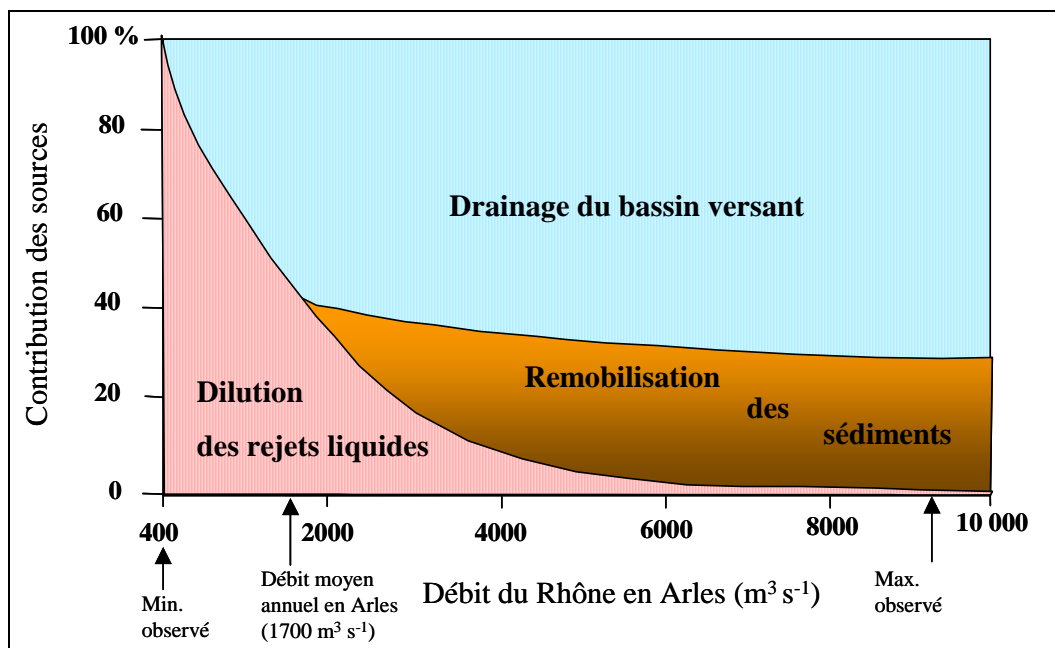


Figure 10 : Représentation schématique des apports en isotopes du plutonium dans les eaux du Rhône en aval des rejets de Marcoule en fonction du régime hydraulique.

### 3.2.3. Dans le Golfe du Lion

Les résultats obtenus sur les milieux terrestre et fluvial permettent d'estimer que, entre 1945 et 1998, environ 730 GBq de  $^{238}$ ,  $^{239}$ ,  $^{240}$ Pu et  $^{241}$ Am ont été exportés par le Rhône à la Méditerranée [19] [20]. La confrontation des eaux douces du Rhône et des eaux marines du golfe du Lion génère des processus physico-chimiques complexes qui entraînent une sédimentation massive des particules apportées par le fleuve (formation du prodelta) et par conséquent des radionucléides qui y sont associés. Il en résulte une forte accumulation des radionucléides dans les sédiments du prodelta et du plateau continental du Golfe du Lion. C'est pourquoi ce compartiment sédimentaire a fait l'objet d'une attention particulière dans le cadre du projet CAROL.

Plusieurs mesures de  $^{239,240}$ Pu et  $^{238}$ Pu ont été réalisées sur des échantillons de sédiments de surface (0-1cm) prélevés durant la campagne REMORA 1 (mars 2001) à proximité immédiate de l'embouchure du Grand Rhône [21]. La figure 11 présente une cartographie des activités en Pu et des rapports d'activités dans cette couche superficielle de sédiments, obtenue par interpolation des résultats de mesures. Contrairement à ce que l'on aurait pu attendre, les concentrations les plus élevées en  $^{239+240}$ Pu ne sont pas trouvées près de l'embouchure. En fait, ce résultat rend compte d'une diminution importante de la contamination des sédiments superficiels de cette zone caractérisée par des taux de sédimentation importants. En 2001, l'effet de l'arrêt des opérations de retraitement et donc de la diminution des rejets se fait principalement sentir à l'embouchure, où l'on observe une dilution nette du signal. Cependant, les mesures de  $^{238}$ Pu montrent que les valeurs les plus élevées sont trouvées au niveau de deux des trois stations très proches de l'embouchure. La répartition des rapports d'activités  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  atteste bien du marquage des sédiments proches de l'embouchure par les rejets de Marcoule puisque les rapports y sont voisins de 0,3 alors que les sédiments les plus marqués en  $^{239+240}$ Pu présentent un rapport se rapprochant de la valeur caractérisant les retombées globales, à savoir 0,03. L'aire d'influence des rejets rhodaniens est bien identifiée par des rapports supérieurs à 0,1 avec une forme à mettre en relation avec la courantologie de la zone caractérisée par une dérive générale des masses d'eau vers l'ouest.

Le travail d'inventaire du Pu dans cette zone prodeltaïque ne peut se faire qu'après une étude portant sur des profils verticaux. La complexité et le coût des mesures alpha de Pu rendent

cette investigation difficile. Cependant, des premiers résultats ont été obtenus récemment [22], et l'étude sur ce sujet est actuellement poursuivie.

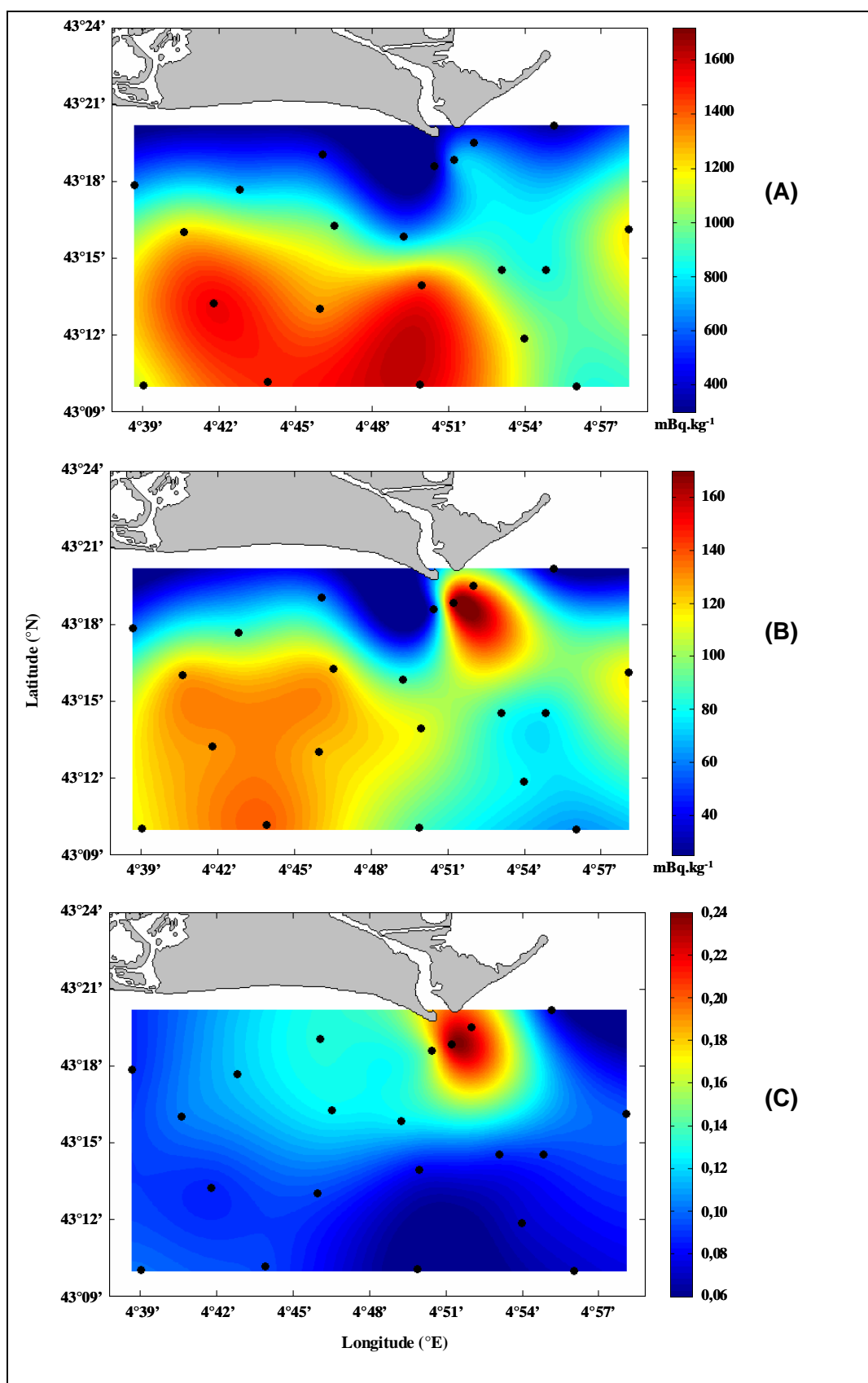


Figure 11 : Concentrations (mBq.kg<sup>-1</sup> sec) en <sup>239+240</sup>Pu (A) et <sup>238</sup>Pu (B), et rapports d'activités <sup>238</sup>Pu/<sup>239+240</sup>Pu (C) dans les sédiments de surface (0-1cm) au large de l'embouchure du Grand Rhône en 2001

### 3.3. Bilan des stocks et des flux

L'ensemble des résultats obtenus sur la distribution des actinides dans les milieux terrestre, fluvial et marin de la basse vallée du Rhône est synthétisé sous la forme d'un schéma global des stocks et les flux de  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  cumulés sur la période 1945-1998 (Figure 12) [23] [24] [25].

Le Rhône constitue la zone où se sont faits les plus importants transferts d'actinides. Il a reçu et redistribué plus de 1000 GBq d'isotopes alpha du Pu et de l'Am depuis 1945. Près de 90% de ces apports au Rhône sont dus aux rejets effectués par les installations de Marcoule, les 10% restants étant attribuables aux apports du bassin versant. N'ayant établi une estimation des activités encore piégées dans le Rhône que pour les isotopes du plutonium, on fait ici l'hypothèse que c'est la même proportion d'américium qui se trouve également dans ce compartiment. On estime ainsi que près de 30% de l'activité totale en Pu et Am apportée au Bas-Rhône n'a toujours pas transité à la Méditerranée en 1998.

Les activités exportées par les récoltes ont été établies à l'échelle annuelle, à partir de données récentes. Ce flux d'activité peut être extrapolé aux années postérieures à 1983, puisque les apports atmosphériques d'actinides liés aux retombées globales sont devenus dès lors négligeables. Cependant, les niveaux d'activités des produits végétaux avant cette date étaient différents, puisque les phénomènes de dépôts directs étaient alors prépondérants en matière de voie de contamination. De plus, les estimations faites pour les années les plus récentes sont basées sur les recensements agricoles effectués en 1999. Ces données ne sont pas utilisables pour les années 1945-1983.

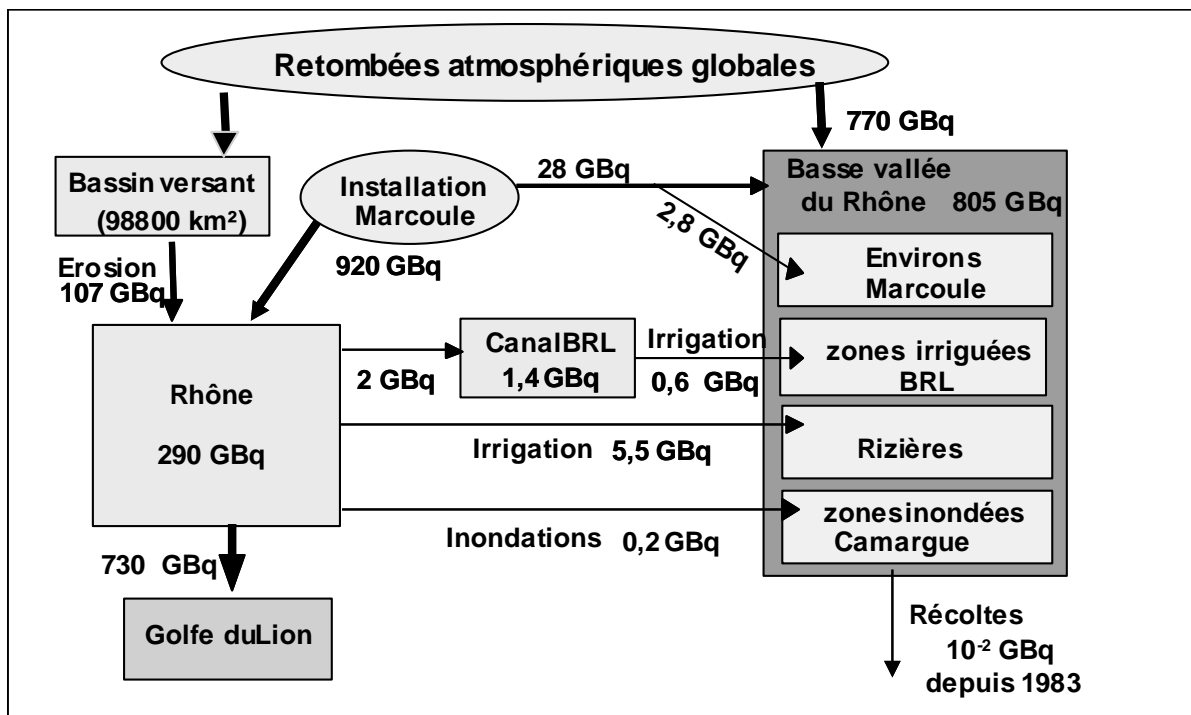


Figure 12 : Bilan de stocks et des flux de Plutonium 238, 239, 240 et d'Américium 241 intégrés sur la période 1945-1998.

## 4. LE CESIUM ET AUTRES EMETTEURS GAMMA ARTIFICIELS

### 4.1. Origines

Le  $^{137}\text{Cs}$  ( $T_{1/2}=30,2$  ans) est l'un des seuls radionucléides artificiels émetteurs gamma encore mesurable dans les échantillons de l'environnement non soumis à des rejets d'installations nucléaires en France. Son omniprésence est la conséquence de deux épisodes de dépôts atmosphériques : les retombées des tirs d'armes nucléaires pratiqués entre 1945 et 1980 et les retombées de l'accident de Tchernobyl en 1986.

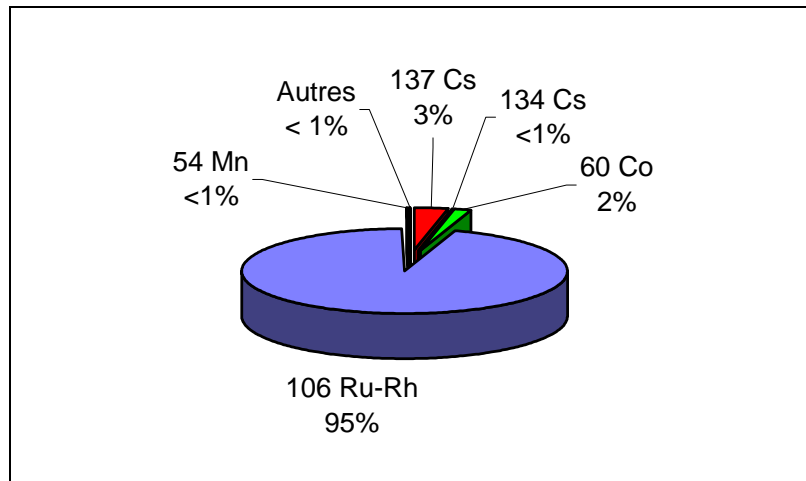


Figure 13 : Composition isotopique moyenne des rejets de Marcoule pour les émetteurs bêta/gamma hormis  $^3\text{H}$ ,  $^{125}\text{Sb}$  et  $^{90}\text{SrY}$  sur l'année 1998.

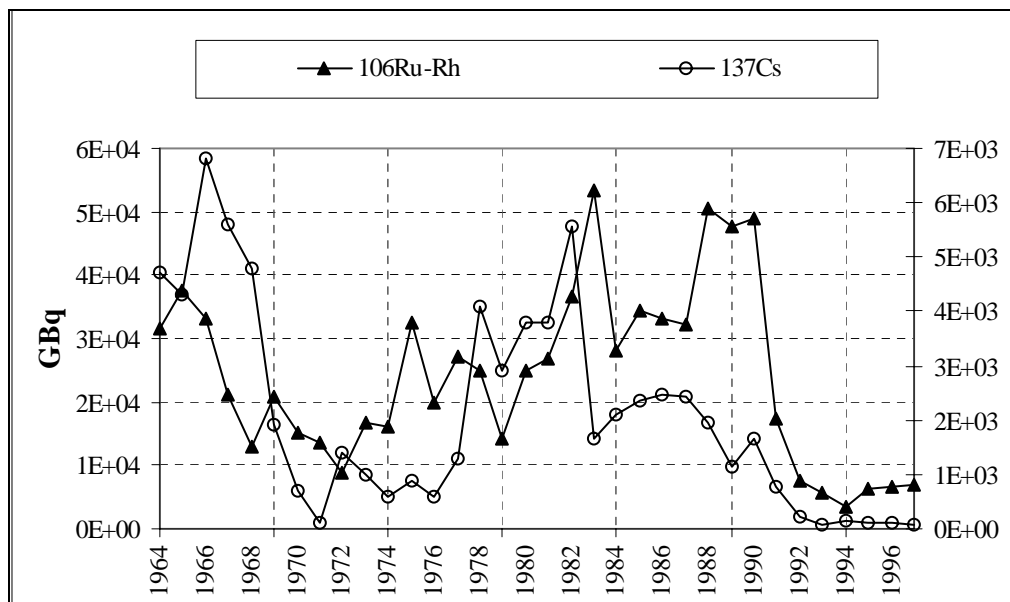


Figure 14 : Activités de  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{106}\text{RuRh}$  rejetées par le Centre de Marcoule entre 1964 et 1997.

Plusieurs installations nucléaires sont implantées dans la vallée du Rhône, et sont sources de rejets de radionucléides émetteurs gamma. Les rejets effectués par le centre de Marcoule sont largement prépondérants en terme d'activités [26]. Dans la basse vallée du Rhône, ils peuvent être considérés comme la principale origine industrielle de  $^{137}\text{Cs}$ . D'autres radionucléides émetteurs gamma ont été rejetés par le centre de Marcoule en quantité significative dans le Rhône. C'est notamment le cas du  $^{106}\text{RuRh}$ , qui représente 74% des activités des radionucléides émetteurs bêta et gamma (hors tritium) rejetés sous forme liquide dans le fleuve

entre 1964 et 1997, du  $^{134}\text{Cs}$ , du  $^{60}\text{Co}$  et du  $^{125}\text{Sb}$  (Figure 13). La figure 14 présente l'évolution des rejets de  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{106}\text{RuRh}$  entre 1964 et 1997. Comme pour les actinides, on note deux périodes où les activités rejetées ont été plus importantes : avant 1970, puis entre 1983 et 1990. La mise en place d'une nouvelle station de traitement des effluents liquides en 1991 a conduit à une réduction importante de ces rejets. En regard des rejets effectués dans l'environnement par voie liquide, les rejets atmosphériques de ces radionucléides ont été très faibles.

## 4.2. Répartition dans la basse vallée du Rhône

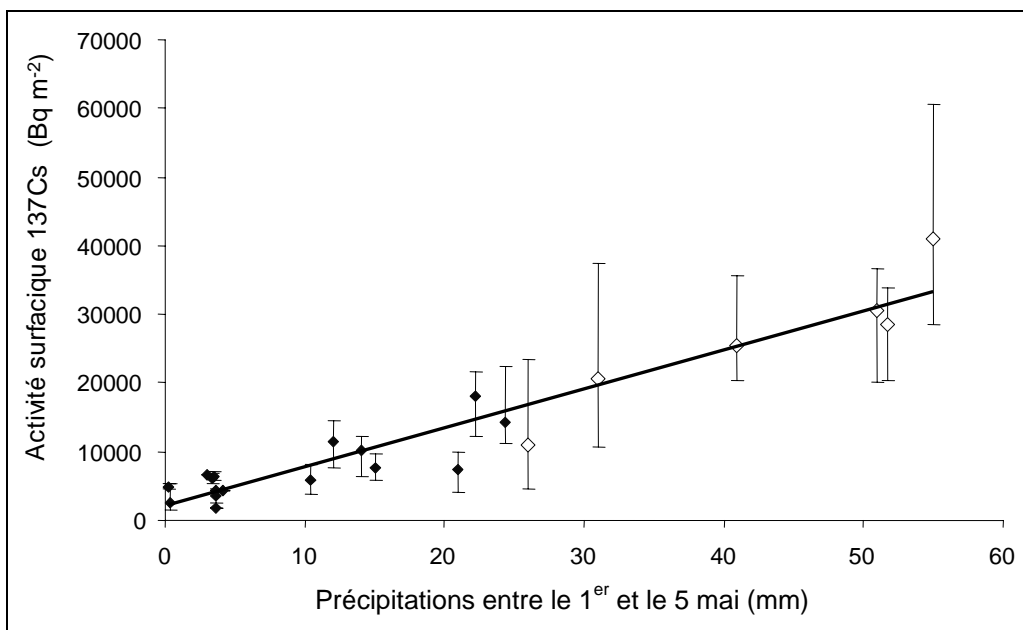
### 4.2.1. Dans le milieu terrestre

#### 4.2.1.1. Répartition spatiale

De la même manière que les dépôts de Pu, les dépôts globaux de  $^{137}\text{Cs}$  consécutifs aux essais atmosphériques ont été relativement homogènes sur la basse vallée du Rhône. En appliquant la relation établie par Mitchell (1990), on peut estimer que, en 1998, les activités rémanentes de ces apports étaient comprises entre 1500 et 2300  $\text{Bq.m}^{-2}$  sur la zone étudiée ici.

Les retombées de Cs liées à l'accident de Tchernobyl, qui se sont produites entre le 1<sup>er</sup> et le 5 mai 1986, ont été, quant à elles, beaucoup plus hétérogènes. Les activités mesurées dans les sols de la basse vallée du Rhône en 1999 et 2000, comprises entre 1500 et 40 000  $\text{Bq.m}^{-2}$ , rendent compte de cette hétérogénéité, et mettent en évidence la contribution importante de ce second épisode d'apport atmosphérique. Dans le cadre de ce projet, l'estimation de la répartition spatiale actuelle du  $^{137}\text{Cs}$  dans le milieu terrestre s'est faite par la reconstitution de ces dépôts atmosphériques. Celle-ci repose sur une approche empirique de la proportionnalité existant entre les précipitations et le dépôt de radionucléides [27]. Cette relation sous-entend un lien entre l'activité de l'air et celle de la pluie. Le rapport de ces deux grandeurs traduit le chargement des gouttes d'eau en aérosols radioactifs, d'une part par emprisonnement lors de la formation des gouttes d'eau dans le nuage et d'autre part par entraînement lors de leur chute. Plusieurs mois à plusieurs années après les retombées, le sol peut constituer un témoin du dépôt. En effet, de nombreux travaux démontrent que l'activité des sols est proportionnelle à la quantité de précipitation (Bunzl et Kracke, 1988, Holgye et Filgas, 1995; Mitchell et al., 1990; Cigna et al., 1987; Isaksson et al., 2000 ; McAulay et Moran, 1991). Ceci suppose que les sols échantillonnés présentent de bonnes propriétés de rétention du  $^{137}\text{Cs}$ , essentiellement déterminées par le taux d'argile, et que l'érosion des surfaces échantillonnées est négligeable.

Une relation empirique a donc été établie à partir des 137 résultats des mesures effectuées en 1999-2000 dans des sols de la basse Vallée du Rhône, dont les teneurs en argiles sont de l'ordre de 20 à 40 %, et à des emplacements où les précipitations entre le 1<sup>er</sup> et le 5 mai ont pu différer d'un facteur supérieur à 40 (de un à deux mm en Camargue, à plus de 40 mm dans la région de Vaison-la-Romaine, d'après les données Météo France) [28] [29]. Cette relation rend compte d'une très bonne corrélation entre les activités mesurées en  $^{137}\text{Cs}$  et les précipitations (Figure 15). Les plus faibles activités des sols (1500 à 4000  $\text{Bq.m}^{-2}$ ) sont mesurées sur les sites où les précipitations sont voisines de 3 mm. Pour des précipitations plus importantes (10 à 25 mm), les activités des sols sont comprises entre 5000 et 18 000  $\text{Bq.m}^{-2}$ . Les plus fortes activités (20 000 à 40 000  $\text{Bq.m}^{-2}$ ) sont mesurées sur les sites où les précipitations dépassent 30 mm (région de Vaison-la-Romaine). Les écarts entre les activités minimales et les activités maximales mesurées en chaque emplacement témoignent de fortes variabilités de la contamination des sols par le  $^{137}\text{Cs}$ . Cette variabilité, d'autant plus marquée que l'activité des sols est importante, trouve sans doute son origine dans les processus initiaux de dépôt qui incluent la variabilité des quantités de pluie (orages très localisés), le ruissellement sur le sol ou la redistribution des particules de sol.



**Figure 15 : Activité surfacique des sols en  $^{137}\text{Cs}$  (activité ramenée à mai 1986) en fonction de la quantité de précipitations entre le 1<sup>er</sup> et le 5 mai 1986, dans la Basse Vallée du Rhône**

La relation tirée de ces observations correspond à l'équation de la droite de régression portée sur la Figure 15 :

$$D_T(^{137}\text{Cs}) = (560 \times P_T) + 1984 \quad \text{Équation 3}$$

Avec  $D_T(^{137}\text{Cs})$  : Dépôts de  $^{137}\text{Cs}$  suite à l'accident dû à l'accident de Tchernobyl ( $\text{Bq.m}^{-2}$ ) ;

$P_T$  : Précipitations entre le 1<sup>er</sup> et le 5 mai 1986 (mm)

L'ordonnée à l'origine ( $1984 \text{ Bq.m}^{-2}$ ) correspond à la somme de l'activité rémanente des retombées globales de tirs et du dépôt sec de Tchernobyl.

La pente de la relation ( $560 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{mm}^{-1}$ ) et la prise en compte de la gamme des activités de l'air mesurée dans le sud-est de la France en mai 1986 ( $^{137}\text{Cs} = 0,65 \text{ à } 0,75 \text{ Bq.m}^{-3}$ ) permettent d'estimer le coefficient de lessivage de l'air par l'eau de pluie, soit  $7,5 \times 10^5$  à  $8,6 \times 10^5$  ( $\text{Bq.m}^{-3}$  d'eau de pluie par  $\text{Bq.m}^{-3}$  d'air). Ce résultat est cohérent avec celui obtenu sur la région parisienne, soit de  $7,5 \times 10^5$  d'après Thomas et Martin (1985). De plus, ce coefficient de lessivage déduit de la modélisation empirique des dépôts sur la zone CAROL est comparable à celui qui a été utilisé sur la Grande-Bretagne (Clarke et Smith, 1988) et sur l'Irlande (McAulay et Moran, 1991).

A partir de la relation obtenue, la carte des activités en  $^{137}\text{Cs}$  dans la basse vallée du Rhône a été reconstituée (Figure 16). On estime de là qu'environ 1/10<sup>ème</sup> de l'activité stockée dans la zone CAROL est concentré sur moins de 2% de cette zone, dans la région de Vaison-la-Romaine. En effet, si on exclut la région de Vaison-la-Romaine, on considère une superficie d'environ  $10\,780 \text{ km}^2$  où les activités surfaciques moyennes sont de  $3\,200 \text{ Bq.m}^{-2}$  en 2000. Le stock de  $^{137}\text{Cs}$  sur cette portion de la zone CAROL est alors estimé à 35 TBq. Sur la partie la plus touchée par les dépôts de  $^{137}\text{Cs}$  issu de l'accident de Tchernobyl, le Comtat Venaissin, les activités moyennes sont d'environ  $18\,000 \text{ Bq.m}^{-2}$  sur une surface de  $220 \text{ km}^2$ , ce qui donne un stock égal à 4 TBq sur cette zone particulière.



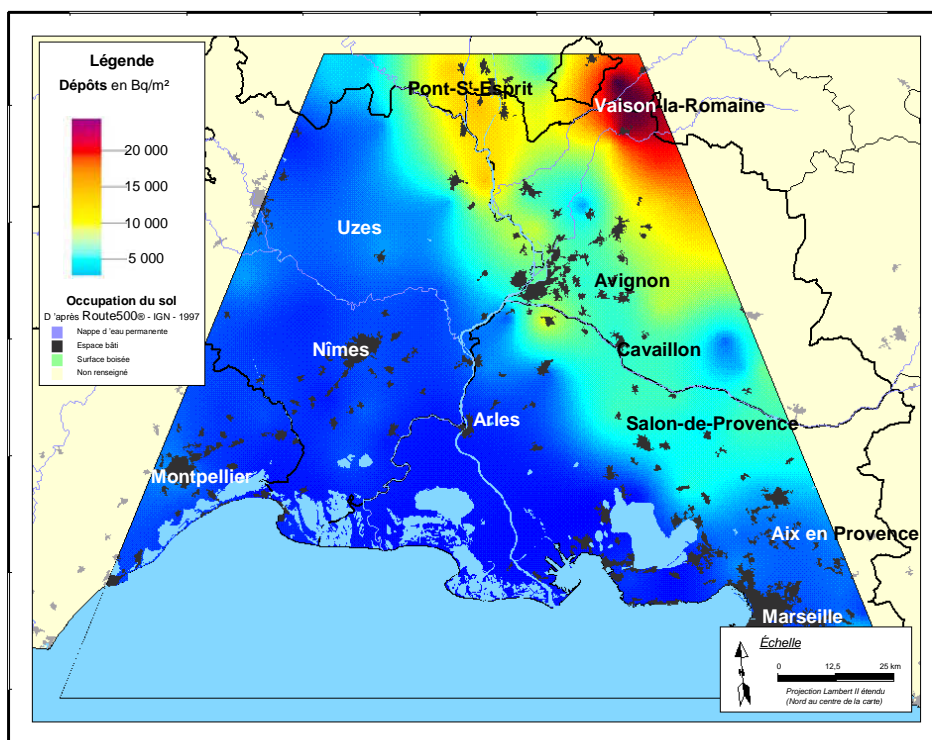


Figure 16 : Répartition spatiale des activités de  $^{137}\text{Cs}$  dans les sols sur la zone CAROL en 2000

#### 4.2.1.2. Distribution dans l'écosystème

Comme pour les actinides (cf. § 2.2.1.2), la distribution des activités de  $^{137}\text{Cs}$  dans les différents compartiments des milieux agricole et forestier de la basse vallée du Rhône, et les exportations liées aux récoltes ont été étudiées. Cependant, la méthode employée ici diffère de ce qui a été fait pour les actinides, répartis de façon homogène sur la zone étudiée. L'hétérogénéité des activités surfaciques en  $^{137}\text{Cs}$  doit être prise en compte, en traitant indépendamment la région de Vaison-la-Romaine.

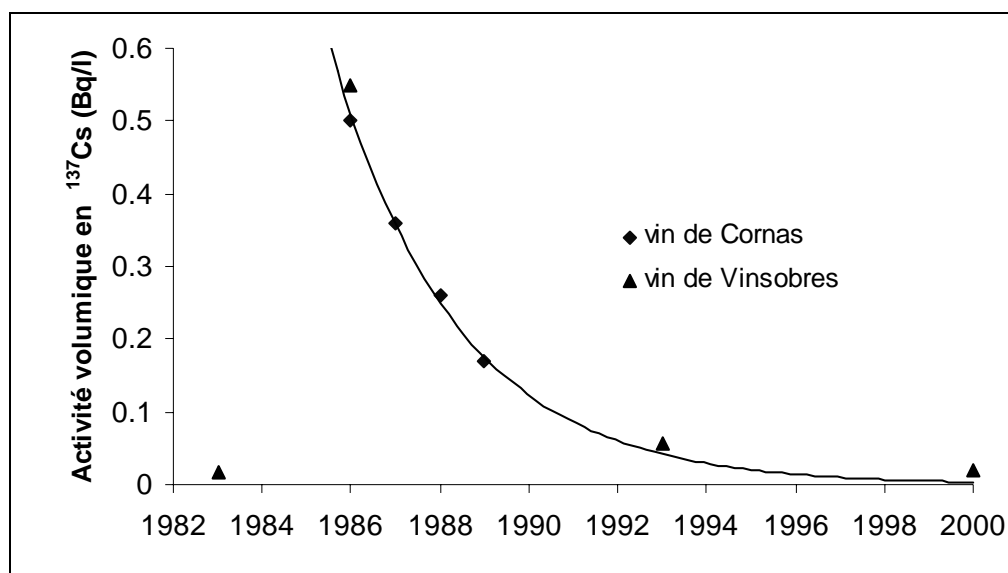
Sur les 10 780 km<sup>2</sup>, où les activités moyennes sont de 3 200 Bq.m<sup>-2</sup>, toutes les mesures de  $^{137}\text{Cs}$  dans les végétaux cultivés acquis par l'IPSN après 1992 dans le cadre d'OPERA-terrestre à Châteaurenard (IPSN, 2002) et lors de études radioécologiques autour du site de Marcoule (IRSN, 1995, 1996, 1997) ont été synthétisées. On dispose ainsi de résultats significatifs exploitables pour les légumes-feuilles (n=22), le vin (n=5) et les herbes de pâturage (n=39) assimilées ici à des fourrages. En cas d'absence de résultats de mesures, ou de résultats systématiquement inférieurs aux seuils de détection (cas des fruits, des légumes-fruits et des céréales), les activités moyennes ont été estimées par calcul, en utilisant les facteurs de transferts préconisés dans la littérature (AIEA, 1994 et Carini, 2001). De là, en croisant ces données avec les valeurs de productions agricoles annuelles, des estimations des activités exportées par les récoltes ont été obtenues (Tableau V). On évalue ainsi à 161 MBq l'activité exportée en 2000 par les récoltes.

**Tableau V: Productions moyennes annuelles (tonnes de produit frais) et activités exportées annuellement par les récoltes en 2000 (Bq)**

Nature	Productions	<sup>137</sup> Cs
Fruits	323 000	2,1x10 <sup>6</sup>
Légumes	289 000	17,1x10 <sup>6</sup>
Vin	167 000	3,3x10 <sup>6</sup>
Céréales	139 000	6,7x10 <sup>6</sup>
Fourrages	102 000	132 x10 <sup>6</sup>
<b>Total</b>	-	<b>161 x10<sup>6</sup></b>

Sur le Comtat Venaissin (zone de 220 km<sup>2</sup>), les activités agricoles concernent essentiellement la viticulture. Sur cette zone, seul ce type de culture a donc été étudié. Plusieurs mesures ont été réalisées sur des échantillons de vin provenant des vignobles de Cornas et de Vinsobres, où les activités des sols sont supérieures à 20 000 Bq.m<sup>-2</sup>. L'évolution des activités du vin dans cette région a pu être reconstituée (Figure 17). Sur ces zones les plus touchées par les dépôts radioactifs, l'activité en <sup>137</sup>Cs du vin produit en 1986 n'a pas atteint 1 Bq.l<sup>-1</sup>. Cela est dû à la date des dépôts qui sont intervenus début mai 1986, alors que les vignes développaient à peine leurs premières feuilles. Depuis 1986, l'activité en <sup>137</sup>Cs du vin a fortement décru jusqu'à revenir en 2000 à un niveau proche de celui d'avant l'accident : quelques milli-Becquerels par litre. Le césium ajouté aux sols, dans des proportions pourtant importantes, se trouve essentiellement dans les 20 premiers centimètres et est peu disponible pour les racines de la vigne [30] [31].

Les activités mesurées en 2000 sont donc du même ordre de grandeur que les activités mesurées dans le reste de la zone CAROL (en moyenne 0,02 Bq.l<sup>-1</sup>), le flux d'activité lié à la production de vin n'est donc pas supérieur à celui qui est donné dans le Tableau V.



**Figure 17 : Évolutions des activités en <sup>137</sup>Cs des vins de Cornas et Vinsobres de 1983 à 2000.**

En ce qui concerne le milieu forestier, des mesures ont été réalisées sur des échantillons de sol, litière, végétation de sous-bois et bois de chêne. Les résultats obtenus montrent que 65% du <sup>137</sup>Cs est contenu dans les 5 premiers centimètres de sol, 85% dans 10 cm. A partir des résultats de mesures d'activités en <sup>137</sup>Cs dans les matrices végétales, une estimation de la distribution des activités entre ces différents compartiments a été établie (Tableau VI). La contamination présente dans la végétation est essentiellement stockée dans le bois de chêne. Cependant, 99,8% du stock <sup>137</sup>Cs dans le milieu forestier est piégé dans les sols. Bien que la

part de  $^{137}\text{Cs}$  transférée vers la biomasse reste très faible, elle est plus de 10 fois supérieure à celle des actinides. Cette constatation résulte à la fois d'une différence de biodisponibilité de ces radionucléides et des dépôts plus récents de  $^{137}\text{Cs}$ .

**Tableau VI : Distribution des activités en  $^{137}\text{Cs}$  dans la végétation de forêt**

	Activité $^{137}\text{Cs}$ en Bq.m <sup>2</sup>	Biomasse (.10 <sup>6</sup> kg frais)	Stocks de $^{137}\text{Cs}$ .10 <sup>9</sup> Bq
Litière	12,4 ± 0,9	96	14 ± 1
Végétation de sous-bois	1,0 ± 0,1	920	1,0 ± 0,1
Bois de chêne	38,0 ± 2,5	1600	22 ± 2

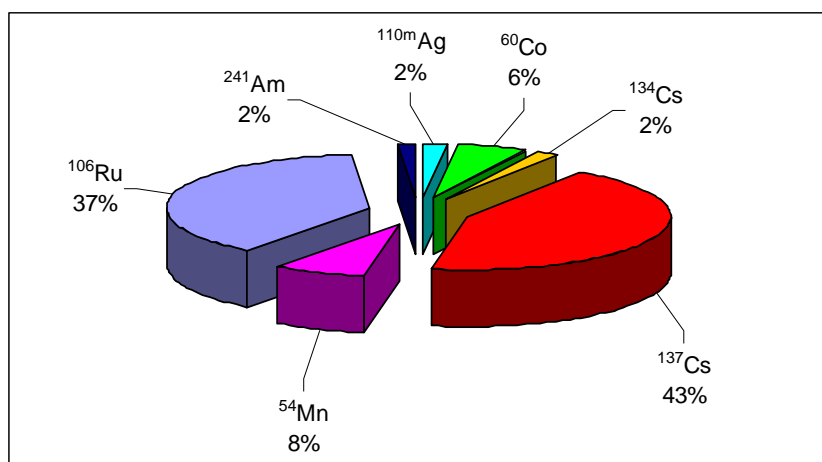
#### 4.2.2. Dans le Rhône

Différents radionucléides émetteurs gamma ont été mesurés dans les eaux du Bas-Rhône depuis 1983. L'analyse des résultats obtenus sur la période 1983-1999 a permis de mettre en évidence les radionucléides dont les activités sont les plus souvent mesurées significativement : il s'agit, par ordre décroissant d'occurrence, de  $^{106}\text{RuRh}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{54}\text{Mn}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{58}\text{Co}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{144}\text{Ce}$  [24]. De plus, ces données ont apporté des informations importantes quant aux flux de radionucléides vers la Méditerranée. On estime ainsi que 77 % et 56 % des rejets de  $^{125}\text{Sb}$  et  $^{106}\text{Ru}$  du Centre de Marcoule transitent à Arles sous forme dissoute. Pour le Cs, cette part ne s'élève qu'à 20%. Ces résultats sont la conséquence de différents comportements physico-chimiques des éléments, et en particulier des capacités d'adsorption sur les matières en suspension. On en déduit donc que le césium se trouve principalement sous la phase particulaire.

Sur la période allant de septembre 1996 à mars 1999, alors que les rejets de Marcoule sont moins importants, les seuls radionucléides artificiels émetteurs gamma détectés en phase dissoute dans les eaux du Rhône au niveau de la ville d'Arles sont là encore les  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{106}\text{RuRh}$ . Dans la phase particulaire, les fréquences de détection des radionucléides mesurés sont reportées dans le tableau VII. Leur composition est présentée en figure 18. Celle-ci ne reflète pas la composition moyenne des rejets de Marcoule. Ces résultats soulignent le fractionnement sélectif des éléments en fonction de leur affinité avec les matières solides [32]. Les éléments rejetés en très faibles proportions par l'installation nucléaire, comme le  $^{54}\text{Mn}$  ou l' $^{110\text{m}}\text{Ag}$ , sont piégés et concentrés dans des matières en suspension. Sur cette période récente, l'apport de  $^{137}\text{Cs}$  par lessivage des sols du bassin versant contribue de façon non négligeable au marquage des matières en suspension. On estime que, à partir de 1998, suite à l'arrêt des activités de retraitement de combustibles usés à Marcoule, la part de Cs transitant à Arles issue du drainage du bassin versant du Rhône est équivalente à celle issue des rejets de Marcoule.

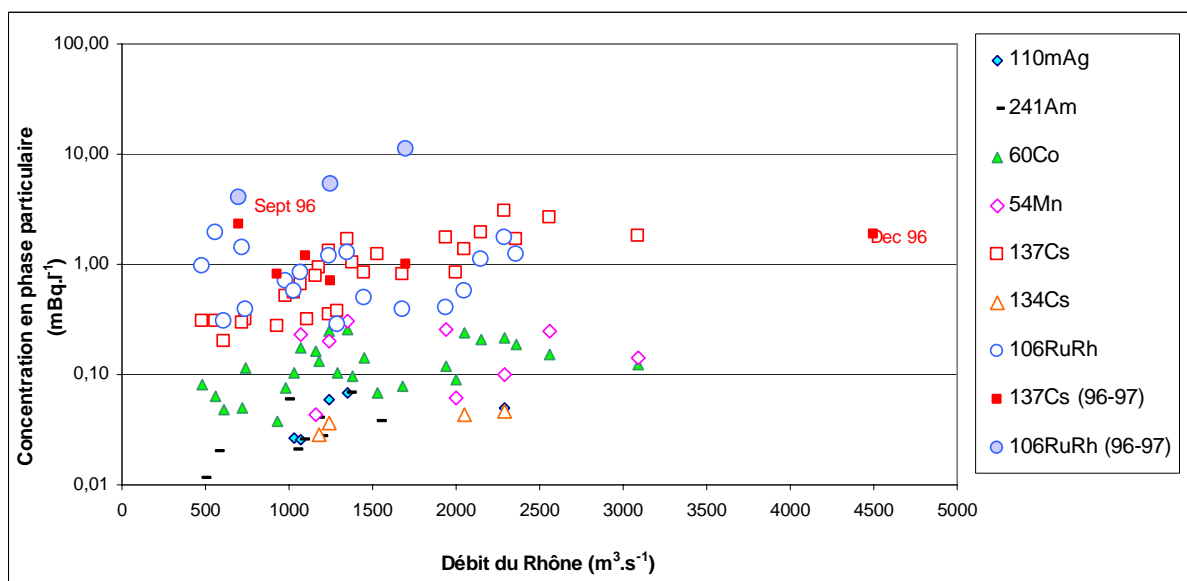
**Tableau VII : Fréquence d'apparition des radionucléides artificiels en phase particulaire détectés par spectrométrie gamma dans les 34 échantillonnages d'eau du Rhône effectués de septembre 1996 à mars 1999.**

	$^{241}\text{Am}$	$^{110\text{m}}\text{Ag}$	$^{60}\text{Co}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{106}\text{RuRh}$	$^{54}\text{Mn}$
Nb > LD	9	5	27	4	34	23	9



**Figure 18 : Composition moyenne des matières en suspension en radionucléides émetteurs gamma détectés dans les eaux du Rhône (Arles) en 1998**

De façon analogue aux isotopes du plutonium, sur la période de janvier 1998 à mars 1999, les activités en radionucléides mesurées par spectrométrie gamma dans la phase particulaire augmentent avec l'accroissement du débit du fleuve, à l'exception du ruthénium (Figure 19). Ces résultats soulignent la contribution du terme source secondaire généré par la remobilisation des supports sédimentaires. Ce terme source est mineur pour le  $^{106}\text{RuRh}$  principalement transféré en phase dissoute.

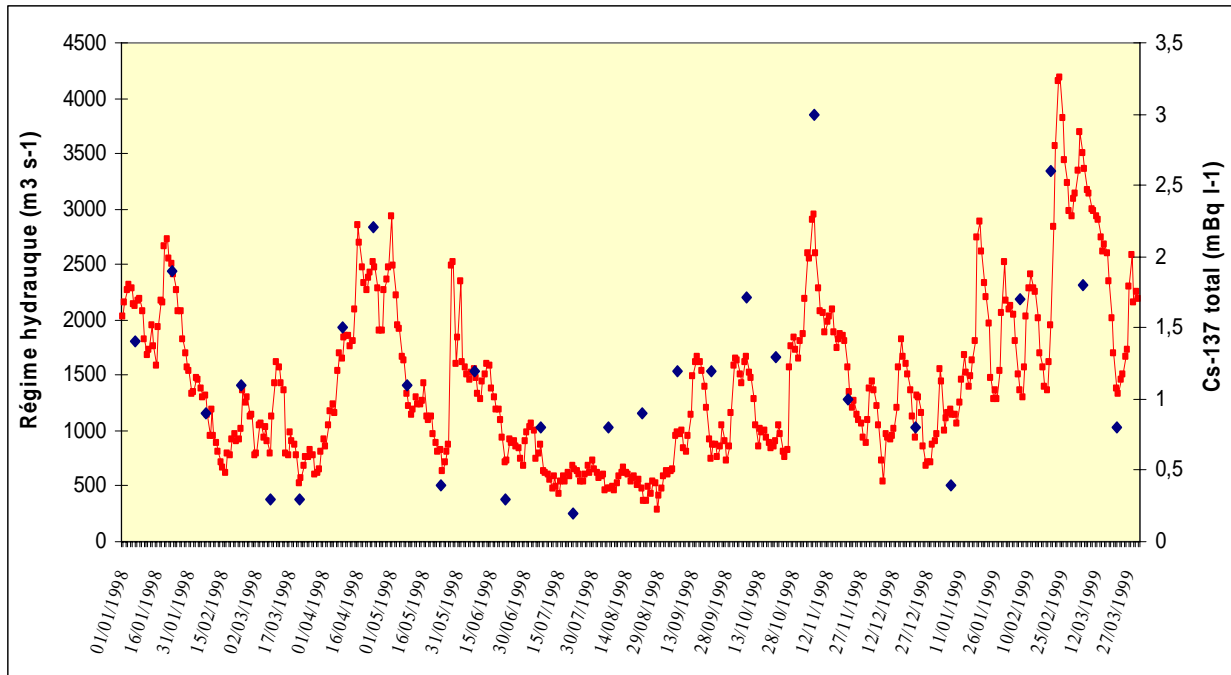


**Figure 19 : Activités des radionucléides émetteurs gamma dans la phase particulaire en mBq.l<sup>-1</sup> dans les eaux du Rhône à Arles.**

La dynamique sédimentaire du Rhône joue par conséquent un rôle fondamental dans les processus d'exportation de la majeure partie des radionucléides mesurés par spectrométrie gamma et pour les isotopes du plutonium, à l'exception de  $^{125}\text{Sb}$  et  $^{106}\text{RuRh}$ . Dans le cas exemplaire du césium, cette évolution a ainsi été suivie mensuellement entre janvier 1998 et mars 1999, mettant en évidence la corrélation existante entre le débit du fleuve et les activités volumiques dans l'eau véhiculée (Figure 20). Sur cette période du 1<sup>er</sup> janvier 1998 au 30 mars 1999, 50,5 GBq de  $^{137}\text{Cs}$  ont transité au niveau de la ville d'Arles. Durant cette même période, l'installation de Marcoule a rejeté 39,4 GBq de  $^{137}\text{Cs}$  et le drainage du bassin versant a introduit 92,5 GBq. Même en considérant les exports liés aux pompages pour l'irrigation ou au

détournement de 10% du fleuve vers le Petit Rhône, le bilan montre qu'une partie importante de ces apports est restée piégée en amont d'Arles.

L'exploitation de ces résultats montre que pour des débits du fleuve inférieurs à  $2000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  le système sédimentaire fluvial agit comme terme puits alors qu'il se comporte comme terme source pour des débits supérieurs. Cette valeur de « débit seuil », est du même ordre de grandeur que celle déterminée à partir de l'étude des isotopes du plutonium.



**Figure 20 : Evolution temporelle des concentrations totales (dissous + particulaire) en  $^{137}\text{Cs}$  (points bleus) et des débits à Arles (courbe rouge) de janvier 1998 à mars 1999.**

#### 4.2.3. Dans le Golfe du Lion

Une première évaluation des quantités de  $^{137}\text{Cs}$  déposées au niveau de la région proche de l'embouchure du Grand Rhône a été réalisée sur la base de prélèvements effectués en 1990 et 1991, avant la mise en œuvre de la nouvelle station de traitement des effluents liquides de Marcoule en 1991 et de la baisse des rejets de radionucléides associée. La quantité de  $^{137}\text{Cs}$  présente sur une zone de  $480 \text{ km}^2$  à l'embouchure du Grand Rhône s'élevait alors à  $19,5 \text{ TBq}$ , environ 45% de cet inventaire se trouvant confinés dans la zone prodeltaïque proprement dite ( $30 \text{ km}^2$ ). L'étude de la contribution à ce stock des trois types de sources de  $^{137}\text{Cs}$  dans cette région, à savoir les retombées directes des essais et de l'accident de Tchernobyl, les retombées indirectes dues au lessivage du bassin versant marqué par ces mêmes retombées et les effluents des installations nucléaires a montré que plus de 50% étaient à attribuer aux rejets liquides des installations nucléaires implantées sur le système rhodanien.

L'arrêt des opérations de retraitement du cycle du combustible à Marcoule en 1997 a conduit à la réalisation d'un nouvel inventaire. En effet, les rejets de cette installation ont constitué, jusqu'à cette date, la majeure partie des radionucléides artificiels introduits dans le système rhodanien par l'industrie nucléaire voire même en Méditerranée. Cet arrêt constitue donc un signal fort, rendant primordial de suivre la réponse environnementale à cette nouvelle situation. A ce titre, les sédiments du fleuve et du delta sous-marin du Rhône étaient particulièrement importants à étudier puisqu'ils constituent un important réservoir de radionucléides qui s'est construit au cours du temps. Ces sédiments peuvent maintenant agir non plus comme des puits mais comme des sources de radionucléides pour l'environnement marin. Afin d'étudier cette

réponse, la campagne REMORA 1 (mars 2001) a permis l'échantillonnage au niveau des 12 stations étudiées lors des campagnes conduites en 1990 et 1991 (Figure 21).

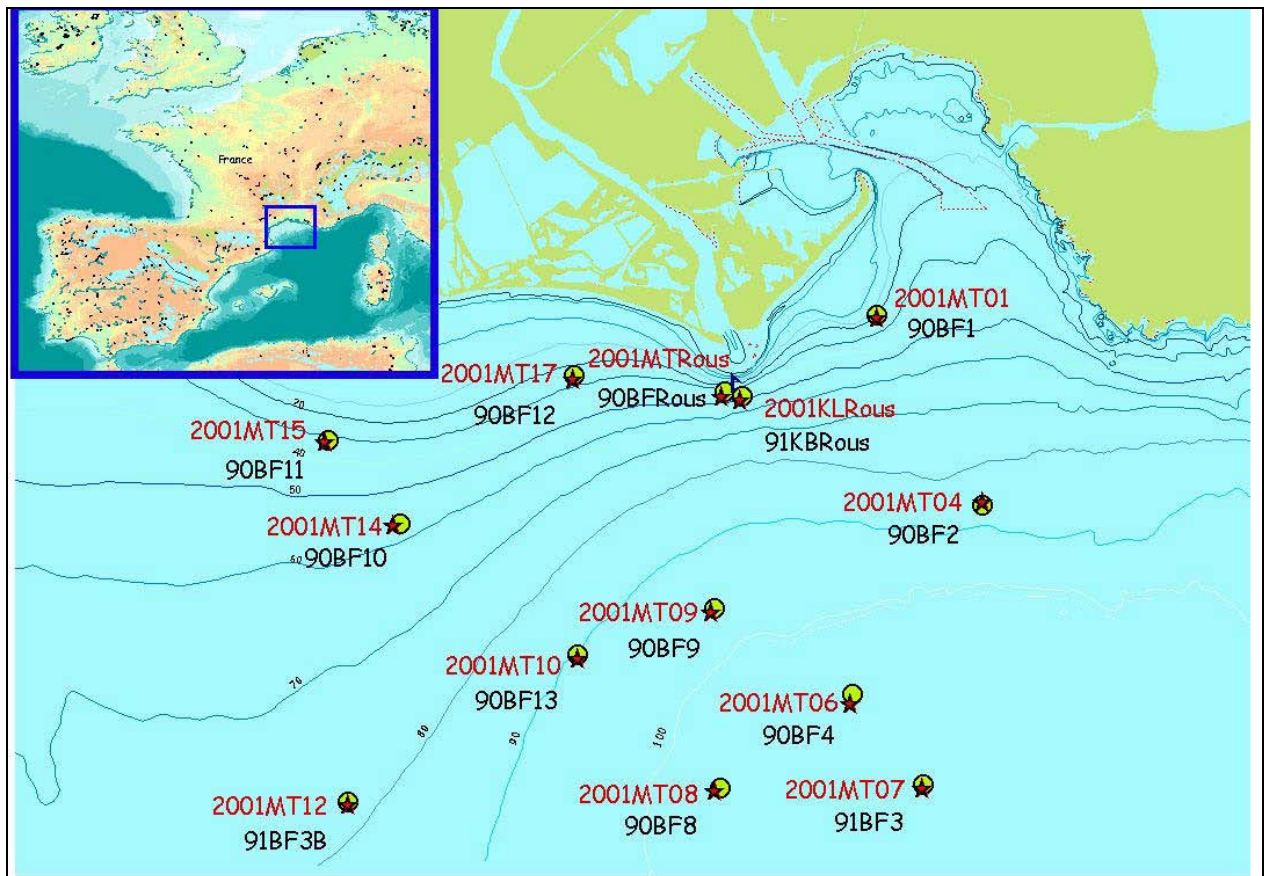


Figure 21 : Localisation des stations échantillonnées lors des campagnes de 1990-1991 et 2001 à l'embouchure du Grand Rhône.

Des carottages effectués aux différents points de prélèvement ont permis d'obtenir des profils verticaux des activités massiques en  $^{137}\text{Cs}$  dans les sédiments (Figure 22). Les résultats montrent une diminution marquée des concentrations dans les sédiments superficiels, excepté à la station de Roustan, située au droit de l'embouchure du Rhône. Les activités massiques mesurées en 2001 varient de moins de  $0,3 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  à  $41 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  alors qu'en 1990-1991 elles étaient de  $0,6$  à  $80 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  si l'on ne tient pas compte des résultats obtenus à la station de Roustan. A cette dernière, la gamme des valeurs mesurées est de  $11$  à  $175 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  alors qu'elle était de  $43$  à  $610 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  en 1991 [33] [34] [35].

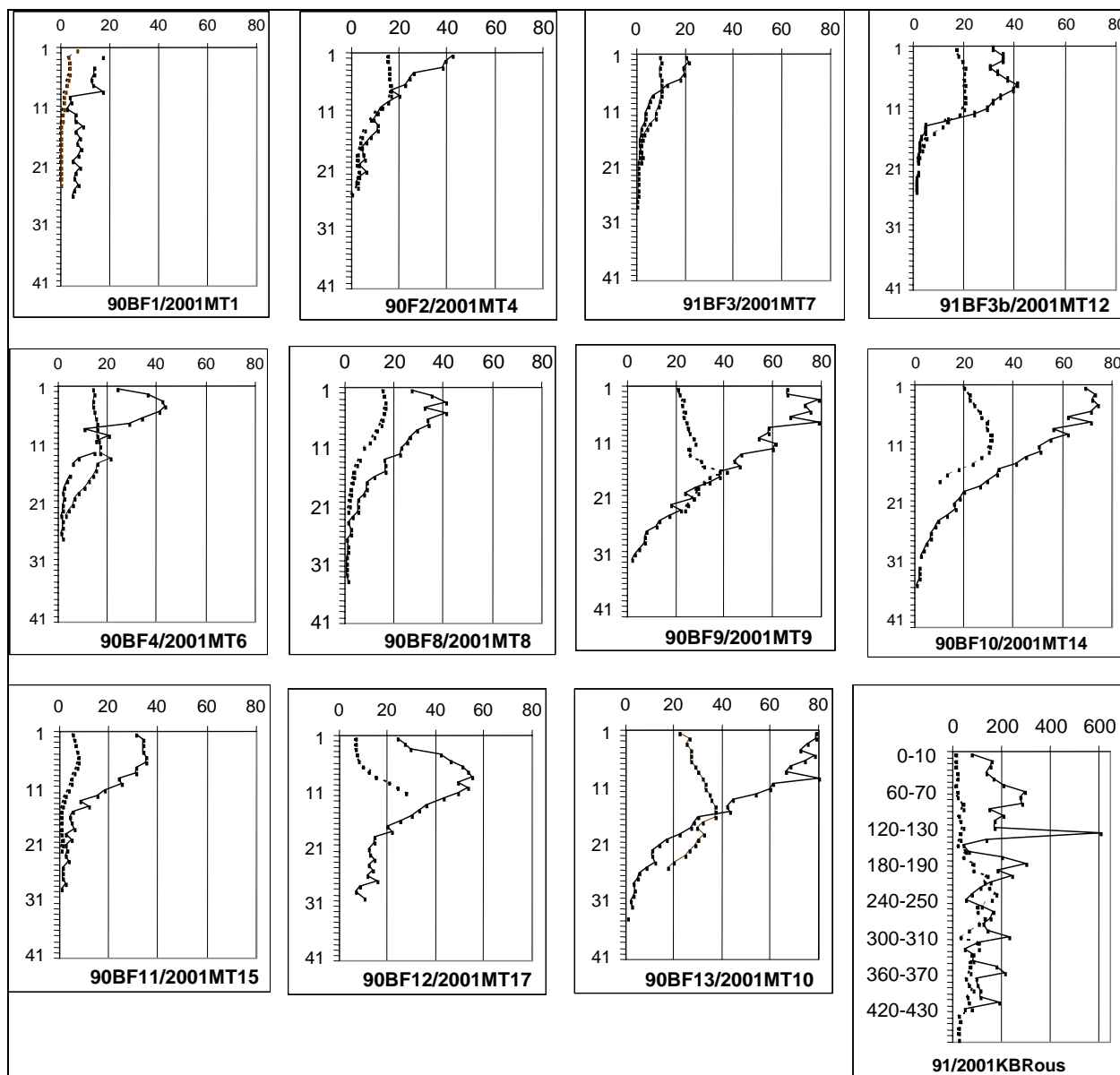


Figure 22 : Profils verticaux en  $^{137}\text{Cs}$  ( $\text{Bq kg}^{-1}$  poids sec) dans 12 carottes prélevées en 1990-1991 et 2001 au large de l'embouchure du Grand Rhône (échelle verticale en cm)

Cette diminution des activités massiques des sédiments, attribuée à la baisse importante des rejets effectués par le Centre de Marcoule, se traduit par une diminution du stock total de  $^{137}\text{Cs}$  dans cette zone. Celui-ci est évalué par interpolation numérique à 13,2 TBq en 2001 (Figure 23) [36]. Cette valeur est à rapprocher de l'évaluation faite sur cette même zone pour 1990-1991 à savoir environ 19,5 TBq (soit 15,5 TBq en 2001 si l'on tient compte de la décroissance du radionucléide).



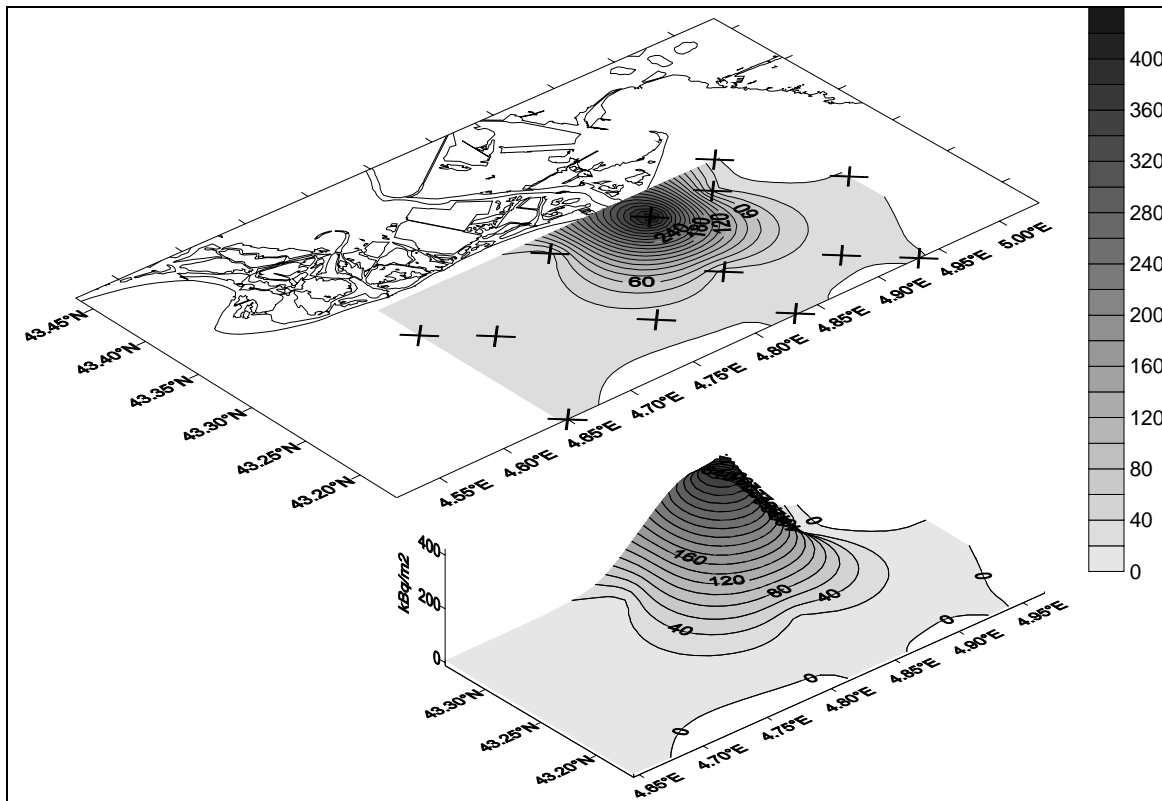


Figure 23 : Cartographie de la répartition du stock de  $^{137}\text{Cs}$  dans les sédiments au droit de l'embouchure du grand Rhône.

### 4.3. Zones remarquables

Les travaux menés sur la basse vallée du Rhône ont permis de mettre en évidence l'importance de la contribution des retombées de l'accident de Tchernobyl à la contamination actuelle en  $^{137}\text{Cs}$  du milieu terrestre. L'obtention d'une loi empirique permettant de reconstituer ces dépôts (cf. 3.2.1.1) a conduit à l'identification de plusieurs zones où ces apports ont été particulièrement importants en comparaison du reste du territoire. C'est pourquoi des études parallèles ont été notamment menées dans le Mercantour et en Corse, avec les mêmes problématiques et objectifs que le travail portant sur la basse vallée du Rhône, à savoir la caractérisation et la compréhension de la répartition des radionucléides dans l'environnement.

#### 4.3.1. Le Mercantour

Dans le Massif du Mercantour, la répartition de la radioactivité est caractérisée par une très forte hétérogénéité due à la présence de points de concentration. Il s'agit de surface de quelques mètres carrés où l'activité surfacique en  $^{137}\text{Cs}$  du sol dépasse  $100\,000\text{ Bq m}^{-2}$  (Figure 24). Ces points de concentration, qui résultent de l'accumulation de la contamination, ont suscité de nombreuses questions de la part des autorités et des gestionnaires (Direction Générale de la Santé, Ministère de l'Environnement, Département des Alpes-Maritimes, Parc National du Mercantour).



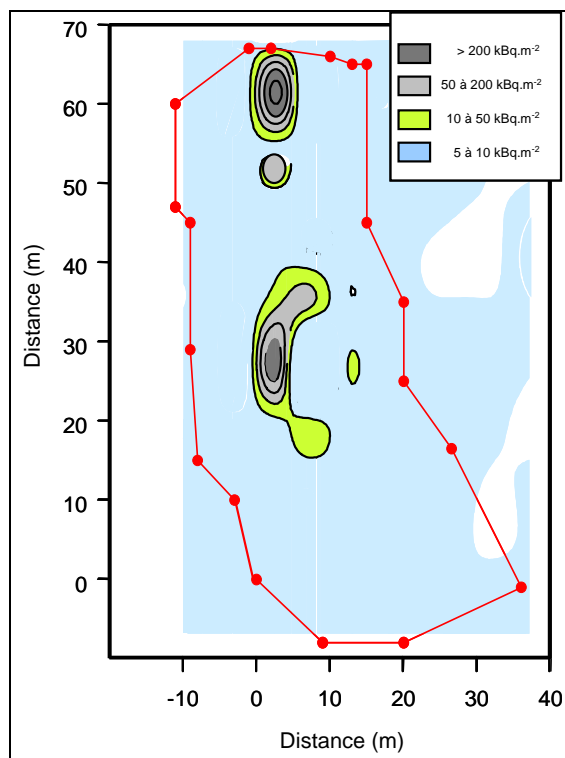


Figure 24 : Répartition de la contamination en <sup>137</sup>Cs des sols de la zone atelier de la Lombarde (2125 m<sup>2</sup>)

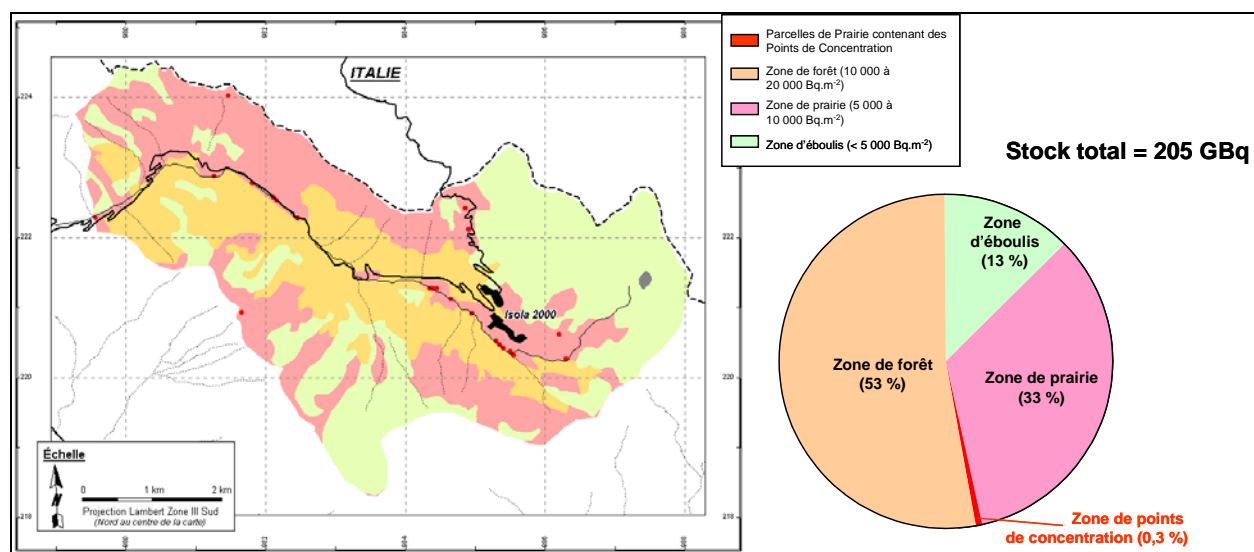


Figure 25 : Cartographie de la contamination des sols du bassin versant du Chastillon (27 km<sup>2</sup>)

Pour répondre à ces questions, des expérimentations de terrain ont été menées sur une zone atelier « Mercantour » (Col de la Lombarde, Isola 2000). Ainsi, l'étude de la répartition du <sup>7</sup>Be (période = 53,3 jours) et du <sup>210</sup>Pb (période = 22,5 ans) d'origine atmosphérique dans les différents compartiments de la prairie (sol, litière, herbe et neige) montre que ces traceurs sont fortement concentrés dans les congères avant d'être transférés à l'herbe et à la litière, qui concentrent fortement le <sup>137</sup>Cs [37] [38] [39] [40] [41]. Cette observation est confortée par la mise en évidence d'excès de plomb, d'antimoine et d'autres métaux, sans doute d'origine anthropique, dans les litières les plus fortement enrichies [42] [43]. Ces données suggèrent que les chutes de neiges sur le Massif du Mercantour qui accompagnèrent le passage des masses d'air contaminées par le <sup>137</sup>Cs rejeté lors de l'accident de Tchernobyl, la formation de congères

et le ruissellement lors de la fonte de la neige sont à l'origine de la formation des points de concentration du césium. Ce phénomène de reconcentration des dépôts s'est également produit pour les actinides issus des retombées globales. Ainsi, ces points d'accumulation, généralement localisés dans les ruptures de pentes ou dans les cuvettes, sont associés aux zones de formation des congères. A l'échelle de la zone atelier, le bilan montre que les points de concentration, bien qu'occupant une faible surface (de l'ordre de 6%), concentrent près de la moitié du  $^{137}\text{Cs}$ .

Par extrapolation à l'échelle du bassin versant, un modèle cartographique de la contamination d'un bassin versant d'altitude a été élaboré en prenant en compte des critères géomorphologiques (zones de ruptures de pentes), ainsi que des critères d'occupation des sols (zones de prairie, zones de forêt et zones d'éboulis). Ainsi, bien que présentant des niveaux d'activités plus de 30 fois supérieurs aux valeurs mesurées dans les sols environnants, les points de concentration représentent moins de 1 % de la totalité du stock de  $^{137}\text{Cs}$  pour le bassin versant cartographié (27 km<sup>2</sup>) (Figure 25) [44] [45].

Les mesures d'activité en  $^{137}\text{Cs}$  de différents produits de la chaîne alimentaire alpine prélevés sur la zone atelier de la Lombarde (champignons, baies, gibiers, lait, fromage) permettent d'évaluer l'impact des points de concentration [45]. L'activité des champignons et des baies est très variable (273 à 1165 et 5 à 140 Bq.kg<sup>-1</sup> frais, respectivement). Ces niveaux d'activité ne sont pas directement imputables aux enrichissements mis en évidence dans les sols, mais on ne peut exclure de réaliser une cueillette d'activité plus élevée si la proportion de champignons ou de baies provenant des zones les plus contaminées est importante. Les activités mesurées dans les muscles de gibiers (cerfs, chamois, mouflons et sangliers) sont faibles (quelques Bq.kg<sup>-1</sup> frais) en regard de la contamination du milieu. Les activités mesurées dans le lait (1,3 à 6,2 Bq.l<sup>-1</sup>), parmi les plus élevées de France, s'expliquent par la forte activité moyenne de l'herbe (50 Bq.kg<sup>-1</sup>). L'influence de l'ingestion d'herbe provenant des points de concentration (dont l'activité atteint 800 Bq.kg<sup>-1</sup>) sur l'activité du lait du troupeau est faible, mais pourrait expliquer en partie la variabilité des activités mesurées dans le lait.

#### **4.3.2. La Corse**

Les deux départements corses sont, de tous les départements de l'est de la France, ceux qui ont reçu les plus fortes précipitations (jusqu'à 145 mm sur la côte orientale) durant la première semaine de mai 1986, et donc ceux où les retombées de l'accident de Tchernobyl ont été les plus importantes. L'utilisation de corrélation pluie/dépôts (Equation 3) permet d'obtenir une carte théorique de la répartition spatiale de la contamination en Corse (Figure 26). La carte obtenue met en évidence trois zones géographiques distinctes : la zone A (nord de l'île), où les dépôts de  $^{137}\text{Cs}$  ont été inférieurs à 10 000 Bq.m<sup>-2</sup> ; la zone B (ouest de l'île), où les dépôts de  $^{137}\text{Cs}$  étaient compris entre 10 000 et 17 000 Bq.m<sup>-2</sup> ; la zone C (est et intérieur de l'île), où les dépôts de  $^{137}\text{Cs}$  ont pu dépasser 34 000 Bq.m<sup>-2</sup> [46].

Très peu de résultats de mesures avaient été acquis sur des sols corses immédiatement après l'accident. De là, une campagne d'échantillonnage a été entreprise en 2001 à la demande de la Direction Générale de la Santé. Le prélèvement d'échantillons de sols en 108 emplacements différents et leur analyse par spectrométrie gamma a permis de dresser le bilan actuel des niveaux et de la répartition des activités [47]. Les résultats obtenus montrent que la rémanence des dépôts de césium, c'est-à-dire le pourcentage du césium initialement déposé encore présent dans le sol, est faible, de l'ordre de 20 à 50 %, et très hétérogène en Corse. Les paramètres pédo-géochimiques des sols corses induisent une faible rétention du césium et entraînent une migration du stock initial de césium déposé vers l'aval des bassins versants et in fine vers le milieu marin.

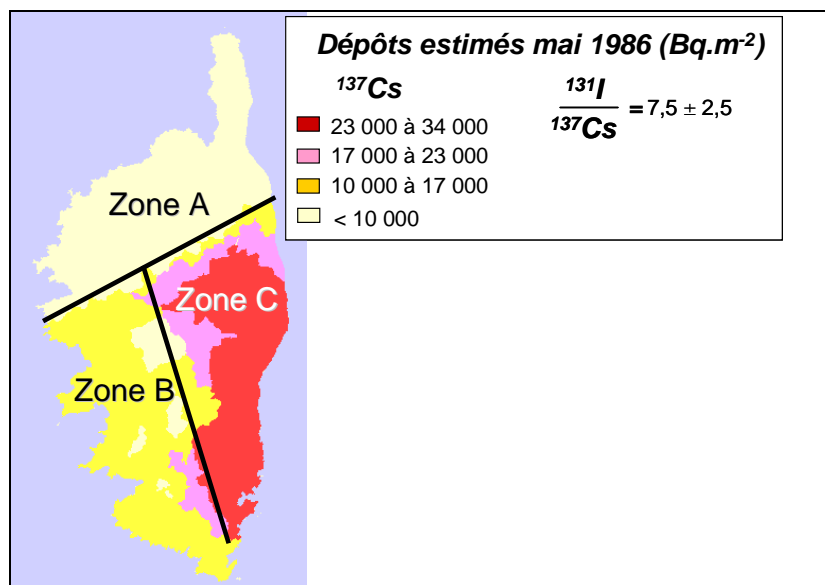


Figure 26 : Cartographie des dépôts estimés en Corse, consécutifs à l'accident de Tchernobyl

#### 4.4. Bilan des stocks et des flux

La figure 27 reprend de manière schématique les principaux résultats en termes de répartition spatiale et de stocks de  $^{137}\text{Cs}$  obtenus lors de cette étude. On estime que, dans la basse vallée du Rhône, près de 52 TBq de  $^{137}\text{Cs}$  sont présents en 2000 (35 + 13 + 4). Cette activité n'est pas répartie de manière uniforme sur la zone. Le prodelta du Rhône constitue une zone d'accumulation des radionucléides. Là, les activités surfaciques des sédiments peuvent dépasser de plus d'un facteur 10 les activités présentes dans les sols. Ces activités supérieures à 100 000 Bq.m<sup>-2</sup> sont du même ordre de grandeur que les activités mesurées dans certaines zones dites « de concentration » du Mercantour.

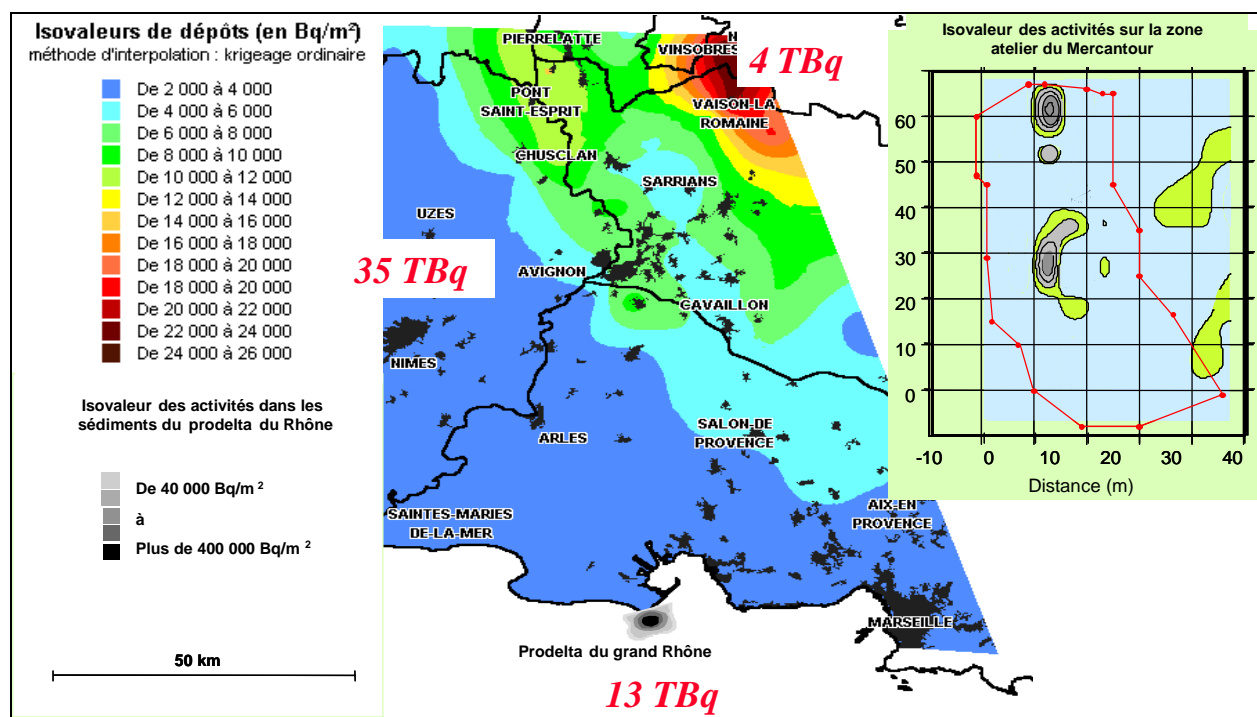


Figure 27 : Bilan de la répartition spatiale et des stocks de  $^{137}\text{Cs}$  dans la basse vallée du Rhône en 2000.

## 5. CONCLUSION

L'IRSN est régulièrement sollicité pour des expertises radioécologiques variées, sur des sujets de questionnement du public relayés par les médias, les associations ou les collectivités, ou en soutien des autorités pour le respect des règles relatives à la protection du public et de l'environnement.

Dans certains cas, les travaux scientifiques destinés à répondre à une question peuvent s'étaler sur plusieurs mois, voire des années. Pour réduire ce délai et en prévision des futurs thèmes d'expertise, l'IRSN engage des programmes de recherches susceptibles de répondre directement à certaines questions, ou permettant d'acquérir des données ou de développer des méthodes d'études qui faciliteront les expertises à venir.

Le projet CAROL (CAmargue RhOne Languedoc) est un des programmes scientifiques de l'IRSN destiné à anticiper les besoins futurs d'expertises dans le domaine radioécologique par l'acquisition de connaissances susceptibles de les satisfaire. Il illustre ainsi ce lien étroit entre la recherche et l'expertise en radioécologie qui s'alimentent mutuellement.

Son objectif initial était de déterminer l'origine des radionucléides présents en quantités mesurables dans la basse vallée du Rhône, de prévoir leur devenir à moyen et long terme par l'étude de leurs stocks et de leurs flux. Ce projet a couvert tous les milieux : atmosphérique, terrestre, aquatique continental et marin. Les origines des radionucléides mesurés dans chacun de ces milieux ont été identifiées et leur contributions estimées, qu'il s'agisse de la rémanence des retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires, de l'accident de Tchernobyl ou des rejets des installations nucléaires rhodaniennes. Les hétérogénéités dans leur répartition spatiales ont été identifiées et expliquées. Les principaux stocks et flux ont été quantifiés, notamment les flux d'interface entre les différents milieux. Il est ainsi possible de connaître la contribution de la rémanence des essais atmosphériques dans les activités apportées aux sols durant 40 ans d'irrigation ou lors d'inondations, en prenant en compte leur dépôt sur le bassin versant, le lessivage des sols, leur spéciation dans le fleuve, les conditions hydrauliques de crues ou les pratiques d'irrigation. Il en est de même de la contribution des rejets des installations nucléaires dans les 20 TBq de  $^{137}\text{Cs}$  contenus dans le delta immergé du Rhône.

18 publications et 23 présentations en congrès ont été produites dans le cadre du projet CAROL, ainsi que plusieurs rapports. Une thèse sur les actinides y a été entièrement consacrée, et deux thèses sur le milieu marin y ont contribué.

Bien que l'objectif initial du projet ait été globalement atteint, certaines études n'ont pu complètement aboutir. C'est le cas de l'évaluation des stocks de radionucléides présents dans les sédiments du Rhône et de leur devenir, dont l'étude se prolonge notamment dans le cadre d'une thèse. C'est également le cas de la quantification des flux lors des épisodes de crues étudiés dans un nouveau projet dédié aux flux événementiels. Enfin, c'est le cas du bilan complet des stocks de plutonium dans le delta immergé, en raison des contraintes liées à la métrologie des émetteurs alpha, et du devenir général des stocks prodeltaïques qui fera l'objet d'une thèse à partir de l'automne 2004.

Au-delà de cet objectif, les recherches appliquées effectuées dans le cadre du projet CAROL ont permis de répondre à de nombreuses questions exprimées au cours du développement du projet par les pouvoirs publics, des associations, et la société civile de manière générale.

Par exemple, l'étude de l'origine du  $^{137}\text{Cs}$  présent dans les sols de la vallée du Rhône a conduit à quantifier la relation entre les dépôts consécutifs à l'accident de Tchernobyl et les pluies de la première semaine de mai 1986 (période durant laquelle les masses d'air contaminées ont survolé la France). Cette étude a abouti d'abord à une cartographie des dépôts de  $^{137}\text{Cs}$  dans l'est du pays, puis à une cartographie de la France entière. C'est la superposition de cette carte avec celle des retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires qui nous permet aujourd'hui de répondre à la question très médiatisée des activités de  $^{137}\text{Cs}$  dans certaines régions de France. Une autre application de ces recherches a été la réponse à une saisine de la préfecture de Corse concernant les retombées de l'accident de Tchernobyl sur l'île. Des

campagnes d'échantillonnages et de mesures ont été effectuées par l'IPSN en 2001 avec comme objectif de vérifier les estimations de dépôts faites sur la base de la relation « pluie-dépôt » établie dans le Bas-Rhône, de reconstituer la contamination de la chaîne alimentaire en 1986 à partir des mesures faites à l'époque par l'OPRI et l'IPSN, et de connaître les niveaux actuels de contamination des aliments. Cette étude a fait l'objet de publications scientifiques et d'une présentation publique organisée par la préfecture à Ajaccio en janvier 2002. De plus, cette étude a été complétée par une estimation des conséquences dosimétriques des retombées de l'accident de Tchernobyl en Corse [48].

Ces travaux ont également permis de répondre aux préoccupations d'associations, de catégories socio-professionnelles ou d'élus interpellés par des déclarations ou publications d'associations écologistes. L'étude de l'influence des retombées de l'accident de Tchernobyl sur les vins des Côtes du Rhône illustre ce souci des collaborateurs du projet de répondre aux sollicitations extérieures, et de communiquer le résultat de leurs travaux à la fois dans le milieu scientifique et auprès du public concerné. Il en est de même des études sur le plutonium au voisinage de Marcoule et dans les sols inondés de Camargue dont les résultats ont été présentés dans des réunions publiques, organisées notamment par la Commission Locale d'Information (CLI) du Gard.

Autre illustration allant dans le même sens, en décembre 2003, dernier mois du projet CAROL, la CLI du Gard et l'Autorité de Sûreté Nucléaire ont saisi l'IRSN sur les conséquences radiologiques des inondations exceptionnelles en Camargue. C'est donc très opportunément que les compétences acquises dans le cadre du projet CAROL et les réflexions sur la continuité des travaux liés aux crues et autres événements extrêmes, sont maintenant utilisés pour répondre à cette demande d'expertise.

## 6. LISTE DES PUBLICATIONS, RAPPORTS ET COMMUNICATIONS SCIENTIFIQUES EFFECTUEES DANS LE CADRE DU PROJET CAROL

- [1] Duffa, C., 2001. Répartition du Plutonium et de l'Américium dans l'environnement terrestre de la basse vallée du Rhône. Thèse. CEA-R-5977, ISSN 0429-3460 (178 pp).
- [2] Duffa, C., Renaud, Ph., et Calmet, D., 2001.  $^{238}\text{Pu}$  and  $^{239+240}\text{Pu}$  activities in lower Rhone valley cultivated soils. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - Earth and Planetary Sciences*, 332, 275-281.
- [3] Duffa C. et Fréchou C., 2003, Evidence of long-lived I and Pu isotopes enrichment in vegetation samples around the Marcoule Nuclear Reprocessing Plant (France), *Applied Geochemistry*, 18, 1867-1873.
- [4] Renaud P., Duffa C., Descamps B. et Louvat D., 2000, Répartition de  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$  dans l'environnement de l'installation du Centre de Marcoule, Rapport IPSN/DPRE/SERNAT/2000-02.
- [5] Renaud Ph., Duffa C. et Louvat D., 2001, Le plutonium dans l'environnement – Etudes radioécologiques menées dans la basse vallée du Rhône, *Contrôle* n°138, Autorité de Sureté Nucléaire.
- [6] Duffa C., Renaud Ph., Descamps B., Morello M., 1999, Activity and origin of plutonium and americium measured in lower Rhone valley soils (France), 25 reunion anual Sociedad Nuclear Espanola, Granada , 17-19 novembre 1999, abstracts 3-11 : 33.
- [7] Duffa C., Renaud Ph., Louvat D., 2000, Tracing of the plutonium contamination over inundated areas of Camargue (France), Goldschmidt Conference, Oxford, 03-08 Septembre 2000, Proceedings, Vol 5 (2), 363.
- [8] Duffa, C., Renaud, Ph., et Goutelard F., 2002, Activities and transferts in rice samples from Camargue, France, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 252 (2), 247-248.
- [9] Eyrolle F., Goutelard F. et Calmet D., 1999, Pu-239+240 and Pu-238 distribution among dissolved, colloidal and particulate phases in the Rhone River waters (France), Proceedings of an International Symposium on Marine Pollution held in Monaco, 5-9 October 1998, IAEA, Juillet 1999, 466-467.
- [10] Eyrolle F. Arnaud M., Delfanti R., Morgigni M, Papucci C. and Salvi S., 1999,  $\gamma$  emitting radionuclide reactivity within the Rhone River mouth waters (North Western Mediterranean Sea), Proceedings of the 4<sup>th</sup> International Conference on Environmental Radioactivity in the Arctic, Edinburgh, Scotland, 20-23 septembre 1999, 57-59.
- [11] Eyrolle F. and Charmasson S., 2001, Distribution of organic carbon, selected stable elements and artificial radionuclides among dissolved, colloidal and particulate phases in the Rhône River (France): Preliminary results, *Journal of Environmental Radioactivity*, 55, 145-155.
- [12] Eyrolle F. and Charmasson S., 2004, Importance of colloids in the transport within the dissolved phase (<450nm) of artificial radionuclides from the Rhône River towards the Gulf of Lions (Mediterranean Sea), *Journal of Environmental Radioactivity*, 72 (3), 273-286.
- [13] El Ganaoui O., Boyer P., Eyrolle F., Amielh M. and Anselmet F., 2001, Modélisation de l'influence de la dynamique sédimentaire sur les transferts des polluants radioactifs dans les cours d'eau, 4<sup>ème</sup> congrès du GRUTTEE, 22-23 Novembre 2001, Limoges, France.
- [14] El Ganaoui O., Boyer P. et Eyrolle F., 2002, Modeling and parameterization of a radioecological water quality model integrating sedimentary dynamics model with several classes of sediments : model presentation and application to the Bas Rhone Languedoc Channel in the low Rhone region, 9th International Symposium on the interaction between sediments and waters, Banff Springs Hotel, Canada, May 5-10.

- [15] El Ganaoui, O., Boyer, P., Eyrolle, F., Anselmet, F., Amielh, M., Morello M., 2002, Importance of particle classes for radionuclide transfers in rivers: Application to an irrigation canal, Society of Environmental Toxicology and Chemistry, SETAC Europe 12th Annual Meeting, Vienna, Austria, 12-16 May 2002.
- [16] Eyrolle F., Arnaud M. and Duffa C., 2001; Plutonium fluxes from the Rhône River to the Mediterranean Sea, Proceedings of an International congress on the radioecology-ecotoxicology of continental and estuarine environments (ECORAD), 3-7 September 2001, Aix en Provence, France, O4/2 (90).
- [17] Eyrolle F. et Duffa C., 2002 a, Flux annuels de  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{238}\text{Pu}$  du Rhône à la mer Méditerranée de 1945 à nos jours et stocks continentaux actuels, Rapport IRSN/DPRE/SERNAT/2002-32.
- [18] Eyrolle F. et Duffa C., 2002, Sedimentary beds as a delayed source of  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  and  $^{239+240}\text{Pu}$  for the Rhône River freshwaters, 9th International Symposium on the interaction between sediments and waters, Banff Springs Hotel, Canada, May 5-10.
- [19] Eyrolle F, Duffa C. et Charmasson S., 2002, Inputs of plutonium isotopes from the Rhône River to the Gulf of Lion (North Western Mediterranean Sea) over the 1945-1998 period – mass balances, fluxes and predictive trend, proceedings of the International Conference on Radioactivity in the Environment, 1-5 September 2002 in Monaco, 577-581.
- [20] Eyrolle F., Arnaud M., Duffa C. and Renaud Ph., 2002; Plutonium fluxes from the Rhône River to the Mediterranean Sea, Radioprotection-Colloques, 37, C1, 87-92.
- [21] Lansard B., Charmasson S., Eyrolle F., Arnaud M. et Grenz C., 2003, Plutonium isotope remobilisation from natural sediments (Gulf of Lions, Northwestern Mediterranean Sea): Estimate from flume experiments, Plutonium Future – The Science Conference, Albuquerque, New Mexico USA, July 6-10 2003.
- [22] Lansard B., 2004, Etude des processus régulant la remobilisation et la translocation des radionucléides artificiels présents dans les sédiments marins à l'embouchure du Rhône, Thèse de l'Université Aix-Marseille II.
- [23] Duffa C., Renaud Ph., 2001, An assessment of plutonium and americium distribution in the lower Rhone valley environment (France), Proceedings Volume II of an International congress on the radioecology-ecotoxicology of continental and estuarine environments (ECORAD), 3-7 September 2001, Aix en Provence, P7T / 8 (123). Radioprotection – Colloques, Volume 37.
- [24] Eyrolle F., Charmasson S. et Louvat D., 2004, Plutonium isotopes in the lower reaches of the river Rhône over the period 1945-2000 : Fluxes toward the Mediterranean Sea and sedimentary inventories, Journal of Environmental Radioactivity, Special Issue, 74, 127-138.
- [25] Duffa C., Renaud P., 2005,  $^{238}\text{Pu}$  and  $^{239+240}\text{Pu}$  inventory and distribution through the lower Rhone valley terrestrial environment (Southern France), Science of the Total Environment, à paraître.
- [26] Charmasson S., 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, Rapport CEA-R-5826, ISSN 0429-3460.
- [27] Renaud Ph., Pourcelot L., Métivier J-M and Morello M., 2003,  $^{137}\text{Cs}$  deposits and behaviour over eastern France after the Chernobyl accident, *the Sciences of the Total Environment*, 309, p. 257-264.
- [28] Renaud Ph., Métivier J M, Castellier E., Pourcelot L et Louvat D, 2003, Cartographie des dépôts de  $^{137}\text{Cs}$  en mai 1986 sur l'ensemble du territoire français métropolitain, *Radioprotection*, vol 39 n°1 p23-38.

- [29] Renaud Ph., Métivier J. M., Pourcelot L. and Morello M. (2001) - Atmospheric Processes leading to the variability of  $^{137}\text{Cs}$  Chernobyl fallout in France, Fifteen Years after the Chernobyl Accident. Lessons Learned, 18-20 Avril 2001, Kyiv, Ukraine.
- [30] Renaud Ph., Colle C., Guriarran R., Marquet J., 2001, Projet CAROL. Influence des retombées de l'accident de Tchernobyl sur l'activité en  $^{137}\text{Cs}$  du vin des côtes du Rhône. Rapport DPRE /SERNAT /2001-24.
- [31] Renaud Ph., Colle C., Louvat D., Barker E. (2003). Influence de l'accident de Tchernobyl sur l'activité en  $^{137}\text{Cs}$  du vin des côtes du Rhône. Radioprotection Vol. 38 N°1 : 51-59.
- [32] Eyrolle F., 2001, Exportation des radionucléides par voie fluviale – Dynamique et bilan sur le bassin rhodanien, Rapport IPSN/DPRE/SERNAT 2001-26.
- [33] Charmasson S., Radakovitch O., Arnaud M., Bouisset P., Pruchon A.-S., 1998: Long-core profiles of  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in sediment near the Rhône mouth (Northwestern Mediterranean Sea). *Estuaries*, 21, 3, 367-378.
- [34] Radakovitch O., Charmasson S., Arnaud M., Bouisset P., 1999.  $^{210}\text{Pb}$  and caesium accumulation in the Rhône delta sediments. *Estuarine, Coastal and Shelf Sciences*, 48, 77-92.
- [35] Radakovitch O., Mirallès J., Aloisi J.C., Charmasson S., Arnaud M., 2003: Recent sedimentation rates on the Gulf of Lions continental margin. Poster EGS/AGU meeting, Nice 6-11 Avril 2003.
- [36] Charmasson S., 2003,  $^{137}\text{Cs}$  inventory in sediment near the Rhône mouth: role played by different sources, *Oceanologica Acta*, 26, 435-441.
- [37] Pourcelot L., Louvat D., Gauthier-Lafaye F. and Stille P., 2003, Formation of radioactivity enriched soils in mountain areas, *Journal of Environmental Radioactivity*, 68, p. 215-233.
- [38] Pourcelot L., Bouisset P., Calmet D. and Louvat D. (2000) - Spatio temporels variability of cesium fallout in one high altitude catchment basin, Goldschmidt 2000, september 3<sup>rd</sup>-8<sup>th</sup> 2000, Oxford UK, Journal of Conference Abstracts vol 5, p. 815.
- [39] Pourcelot L., Bouisset P. and Louvat D. (2001) - Concentration processes of radionuclides fallout in high altitude area, ECORAD 2001, September 3-7<sup>th</sup>, Aix en Provence, France
- [40] Pourcelot L., Louvat D., Gauthier-Lafaye F., Del Nero M. and Stille P. (2001) - Radionuclides as tracers of atmospheric fallout enrichment processes in mountain soils, European Union of Geosciences XI, Strasbourg, France.
- [41] Pourcelot L., Murith Ch., Froidevaux P, Del Nero M., Gauthier-Lafaye F. and Stille P. (2002) Concentration and migration processes of airborne actinides and fission products in alpine soils, Proceeding from the international conference on radioactivity in the environment, 1-5 september 2002, Monaco.
- [42] Aubert D., Stille P., Gauthier-Lafaye F., Pourcelot L., Probst A. and Del Nero M., 2001, Characterization and migration of atmospheric REE in soil profiles European Union of Geosciences XI, Strasbourg, France.
- [43] Froideval A., Del Nero M., Gauthier-Lafaye F., Pourcelot L. and Stille P. (2001) - Characterization of Cs sorption mechanisms onto an organic soil, 8<sup>th</sup> International Conference on Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere MIGRATION '01, Bregenz, Austria, September 16-21, 2001
- [44] Métivier J-M et Pourcelot L., 2002, Modélisation spatiale des activités surfaciques de  $^{137}\text{Cs}$  d'une zone de montagne, *Géomatique*, 18, p. 26-30.
- [45] Métivier J.M and Pourcelot L. (2002) - Modelling spatial variability of  $^{137}\text{Cs}$  deposits in a mountain area, Envirosoft 2002, Bergen, Norgen.



- [46] Pourcelot L., Renaud Ph., Louvat D., Gurriaran R., Richon P., 2003, Influence des points de concentration en césium-137 sur la contamination d'une chaîne alimentaire de type alpin et doses associées, *Environnement Risques et Santé*, 2, p. 112-120.
- [47] Pourcelot L. et Renaud Ph., 2002, Etude des retombées de l'accident de Tchernobyl en Corse – Estimation des dépôts de 1986 et état actuel de la contamination des sols, Rapport IRSN 2002 21, 34 p.
- [48] Renaud Ph., Robeau D., Pourcelot L. and Vidal M., 2002, Thyroid dose reconstruction based on modelling and measurement results for children living in Corsica island shortly after the Chernobyl accident, Proceeding from the international conference on radioactivity in the environment, 1-5 september 2002, Monaco.

## 7. RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- AIEA, 1994, Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in temperate environments, Technical Report series n°364.
- Bunzl K. et Kracke W., 1988, cumulative deposition of  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  from global fallout in soils from forests, grassland and arable lands in Bavaria (FGR), *Journal of Environmental Radioactivity*, 8, p.1-14.
- Bunzl K., Förster H., Kracke W., Schimmack W., 1994, Residence times of fallout  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the upper horizons of an undisturbed grassland soil, *Journal of Environmental Radioactivity* 22 : 11-27.
- Carini F., 2001, Radionuclide transfer from soil to fruit, *Journal of Environmental Radioactivity*, 52, 237-279.
- 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.
- Clark M.J and Smith F.B., 1988, Wet and dry deposition of Chernobyl releases. *Nature*; 332: 245-249.
- Descamps B., Lumia G. Etude Radioécologique de l'environnement terrestre du site de Marcoule, année 1994. Rapport IPSN/DPEI/SERE 96-019
- Descamps B. Etude Radioécologique de l'environnement terrestre du site de Marcoule, année 1995. Rapport IPSN/DPRE/SERE 97-002
- Descamps B., Lumia G. Etude Radioécologique de l'environnement terrestre du site de Marcoule, année 1994. Rapport IPSN/DPEI/SERE 96-019
- Descamps B. Etude Radioécologique de l'environnement terrestre du site de Marcoule, année 1995. Rapport IPSN/DPRE/SERE 97-002
- Hakonson T. E., Watters R. L., Hanson W. C., 1981, The transport of plutonium in terrestrial ecosystems, *Health Physics* 40: 63-69.
- Hanson W. C., 1975, Ecological considerations of the behaviour of plutonium in the environment, *Health Physics* 28: 529-537.
- Hölgge Z, Filgas R., 1995, Inventory of  $^{238}\text{Pu}$  and  $^{239+240}\text{Pu}$  in the soil of Czekoslovakia in 1990, *Journal of Environmental Radioactivity*, 27, p.181-189.
- IRSN, 1995, Etude radioécologique de l'environnement terrestre du site de Marcoule -Année 1993-, IPSN/DPEI/SERE 95/028.
- IRSN, 1996, Etude radioécologique de l'environnement terrestre du site de Marcoule -Année 1994-, Rapport IPSN/DPRE/SERE 96/019.

- IRSN, 1997, Etude radioécologique de l'environnement terrestre du site de Marcoule -Année 1995-, Rapport IPSN/DPRE/SERE 97/002.
- IRSN, 2002, Bilan des resultants obtenus par spectrométrie gamma sur le échgantillons terrestres de l'Observatoire Permanent de la Radioactivité (réseau OPERA). Région centre et sud-est de la France de 1993 à 2000. Rapport IRSN/DPRE/SERNAT 02-04.
- Isaksson M, Erlandsson B, Linderson M., 2000, Calculations of the deposition of  $^{137}\text{Cs}$  from nuclear bomb tests and from the Chernobyl accident over the province of Skane in the southern part of Sweden based on precipitation. *Journal of Environmental Radioactivity*; 49: 97-112.
- 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.
- Martin, J.M. & Thomas, A.J., 1990, Origins, concentrations and distributions of artificial radionuclides discharged by the Rhône River to the Mediterranean Sea. *Journal of Environmental Radioactivity*, 11, 105-139.
- McAulay IR et Moran D., 1991, Relationships between deposition of Chernobyl originating caesium and ruthenium radionuclides and rainfall in Ireland. *Analyst*, 117: 455-459.
- 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* ; 138, p 241-256.
- 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<sup>ème</sup> cycle, Paris XII.
- UNSCEAR, 1982, Rayonnements ionisants : sources et effets biologiques, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, New York, United Nations.

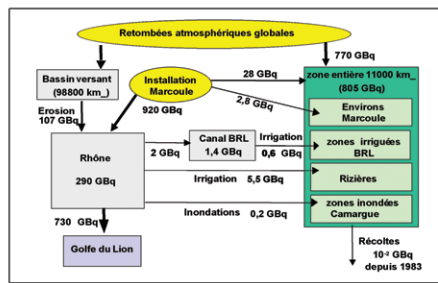
## 8. LISTE DES FIGURES

Figure 1 : Zone d'étude CAROL : la basse vallée du Rhône .....	6
Figure 2 : Rejets liquides de transuraniens effectués par le centre de Marcoule au Rhône entre 1961 et 1998 (GBq). .....	8
Figure 3 : Activités massiques en $^{239+240}\text{Pu}$ mesurées dans les sols cultivés de la basse vallée du Rhône ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ).....	10
Figure 4 : Répartition du $^{239+240}\text{Pu}$ dans les sols autour du site de Marcoule .....	10
Figure 5 : Surfaces inondées en 1993-1994 et rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ mesurées dans les échantillons de sols prélevés face à la brèche de Lauricet .....	11
Figure 6 : Occupation des sols sur la zone d'étude (données Corin LandCover <sup>®</sup> ) .....	13
Figure 7 : Activités de Pu 238, 239 et 240 apportées annuellement au Bas-Rhône entre 1961 et 1998, et rapport d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ caractérisant le mélange théorique résultant. ...	15
Figure 8 : Activités en $^{239+240}\text{Pu}$ en phase particulaire en $\text{mBq.m}^{-3}$ mesurées dans les eaux du Rhône au niveau de la ville d'Arles.....	15
Figure 9 : Rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ mesurés dans les eaux du Rhône à Arles en fonction du régime hydraulique du fleuve (Equation de la courbe de dilution théorique : $A = 232 Q^{-0,96}$ ).....	16
Figure 10 : Représentation schématique des apports en isotopes du plutonium dans les eaux du Rhône en aval des rejets de Marcoule en fonction du régime hydraulique. ....	17
Figure 11 : Concentrations ( $\text{mBq.kg}^{-1} \text{ sec}$ ) en $^{239+240}\text{Pu}$ (A) et $^{238}\text{Pu}$ (B), et rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ (C) dans les sédiments de surface (0-1cm) au large de l'embouchure du Grand Rhône en 2001 .....	18
Figure 12 : Bilan de stocks et des flux de Plutonium 238, 239, 240 et d'Américium 241 intégrés sur la période 1945-1998.....	19
Figure 13 : Composition isotopique moyenne des rejets de Marcoule pour les émetteurs bêta/gamma hormis $^3\text{H}$ , $^{125}\text{Sb}$ et $^{90}\text{SrY}$ sur l'année 1998.....	20
Figure 14 : Activités de $^{137}\text{Cs}$ et $^{106}\text{RuRh}$ rejetées par le Centre de Marcoule entre 1964 et 1997. ....	20
Figure 15 : Activité surfacique des sols en $^{137}\text{Cs}$ (activité ramenée à mai 1986) en fonction de la quantité de précipitations entre le 3 et le 4 mai 1986, dans la Basse Vallée du Rhône .....	22
Figure 16 : Répartition spatiale des activités de $^{137}\text{Cs}$ dans les sols sur la zone CAROL en 2000 .....	23
Figure 17 : Évolutions des activités en $^{137}\text{Cs}$ des vins de Cornas et Vinsobres de 1983 à 2000. ....	24
Figure 18 : Composition moyenne des matières en suspension en radionucléides émetteurs gamma détectés dans les eaux du Rhône (Arles) en 1998.....	26
Figure 19 : Activités des radionucléides émetteurs gamma dans la phase particulaire en $\text{mBq.l}^{-1}$ dans les eaux du Rhône à Arles.....	26
Figure 20 : Evolution temporelle des concentrations totales (dissous + particulaire) en $^{137}\text{Cs}$ (points bleus) et des débits à Arles (courbe rouge) de janvier 1998 à mars 1999.....	27
Figure 21 : Localisation des stations échantillonnées lors des campagnes de 1990-1991 et 2001 à l'embouchure du Grand Rhône.....	28
Figure 22 : Profils verticaux en $^{137}\text{Cs}$ ( $\text{Bq kg}^{-1}$ poids sec) dans 12 carottes prélevées en 1990-1991 et 2001 au large de l'embouchure du Grand Rhône (échelle verticale en cm)..	29

Figure 23 : Cartographie de la répartition du stock de $^{137}\text{Cs}$ dans les sédiments au droit de l'embouchure du grand Rhône. ....	30
Figure 24 : Répartition de la contamination en $^{137}\text{Cs}$ des sols de la zone atelier de la Lombarde (2125 m <sup>2</sup> ) .....	31
Figure 25 : Cartographie de la contamination des sols du bassin versant du Chastillon (27 km <sup>2</sup> ) .....	31
Figure 26 : Cartographie des dépôts estimés en Corse, consécutifs à l'accident de Tchernobyl .....	33
Figure 27 : Bilan de la répartition spatiale et des stocks de $^{137}\text{Cs}$ dans la basse vallée du Rhône en 2000.....	33

## 9. LISTE DES TABLEAUX

Tableau I : Rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ caractéristiques de chaque source .....	8
Tableau II : Stocks de $^{239+240}\text{Pu}$ , $^{238}\text{Pu}$ et $^{241}\text{Am}$ dans les sols de la basse vallée du Rhône (en GBq) .....	9
Tableau III: Productions moyennes annuelles et activités exportées annuellement par les récoltes .....	14
Tableau IV : Activités de Pu et Am stockées dans les compartiments végétaux naturels de la basse vallée du Rhône .....	14
Tableau V: Productions moyennes annuelles (tonnes de produit frais) et activités exportées annuellement par les récoltes en 2000 (Bq) .....	24
Tableau VI : Distribution des activités en $^{137}\text{Cs}$ dans le végétation de forêt.....	25
Tableau VII : Fréquence d'apparition des radionucléides artificiels en phase particulaire détectés par spectrométrie gamma dans les 34 échantillonnages d'eau du Rhône effectués de septembre 1996 à mars 1999.....	25



Le projet CAROL (Camargue-Rhône-Languedoc) a été initié au Laboratoire d'Etudes Radioécologiques en milieux Continental et Marin (LERCM) en 1998. Il avait pour objectif d'étudier la répartition des radionucléides artificiels dans la basse vallée du Rhône, puis d'identifier et de quantifier les principaux flux ou transferts qui ont prévalu à cette répartition aujourd'hui observée.

Comme l'ensemble du territoire français métropolitain, la basse vallée du Rhône a reçu entre 1945 et 1980 les retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires et les retombées de l'accident de Tchernobyl en mai 1986. Par ailleurs, cette zone se situe à l'aval de toutes les installations nucléaires rhodaniennes : usines d'enrichissement de l'uranium, de fabrication et de retraitement du combustible, ainsi que cinq Centres Nucléaires de Production Electrique, dont certains sont implantés depuis trois voire quatre décennies. De part le nombre et la variété de ces installations, le Rhône constitue en outre la voie principale d'apport de radionucléides provenant de l'industrie nucléaire vers le Golfe du Lion. Cette région a donc été choisie pour son caractère exemplaire afin de mener une étude globale, à l'échelle d'un bassin versant, sur ce qu'il est advenu des radionucléides apportés à l'environnement de manière chronique ou ponctuelle, dans les trois milieux : terrestre, fluvial et marin.

Au terme des six années du projet (1998-2003), les origines des radionucléides mesurés dans chacun de ces milieux ont été identifiées et leurs contributions estimées. Les hétérogénéités dans leur répartition spatiale ont été identifiées et expliquées. Les principaux stocks et flux ont été quantifiés, notamment les flux d'interface entre les différents milieux. Il est ainsi possible de connaître la contribution de la rémanence des essais atmosphériques dans les activités apportées aux sols durant 40 ans d'irrigation ou lors d'inondations, en prenant en compte leur dépôt sur le bassin versant, le lessivage des sols, leur spéciation dans le fleuve, les conditions hydrauliques des crues ou les pratiques d'irrigation. Il en est de même de la contribution des rejets des installations nucléaires dans les 13 TBq de <sup>137</sup>Cs contenus en 2001 dans le delta immergé du Rhône.

18 publications et 23 présentations en congrès ont été produites dans le cadre du projet CAROL, ainsi que plusieurs rapports. Une thèse sur les actinides y a été entièrement consacrée, et deux thèses sur le milieu marin y ont contribué.

Bien que l'objectif initial du projet ait été globalement atteint, certaines études n'ont pu complètement aboutir. C'est le cas de l'évaluation des stocks de radionucléides présents dans les sédiments du Rhône et de leur devenir, dont l'étude se poursuit notamment dans le cadre d'une thèse. C'est également le cas de la quantification des flux lors des épisodes de crues dont l'étude se poursuit dans le cadre d'un nouveau projet dédié aux flux événementiels. Enfin, c'est le cas du bilan complet des stocks de plutonium dans le delta immergé, en raison des contraintes liées à la métrologie des émetteurs alpha, et du devenir général des stocks pro-deltaïques qui fera l'objet d'une thèse à partir de l'automne 2004.

Au-delà de cet objectif, les études de recherche appliquée effectuées dans le cadre du projet CAROL ont permis de répondre à de nombreuses questions exprimées au cours du développement du projet par les pouvoirs publics, des associations, et la société civile de manière générale.

Par exemple, l'étude de l'origine du <sup>137</sup>Cs présent dans les sols de la vallée du Rhône a conduit à quantifier la relation entre les dépôts consécutifs à l'accident de Tchernobyl et les pluies de la première semaine de mai 1986 (période durant laquelle les masses d'air contaminées ont survolé la France). Cette étude a servi de base à l'élaboration d'une cartographie des dépôts de <sup>137</sup>Cs, dans un premier temps dans l'est du pays, puis sur la France entière. C'est la superposition de cette carte avec celle des retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires qui nous permet aujourd'hui de répondre à la question très médiatisée des activités de <sup>137</sup>Cs dans certaines régions de France. Une autre application de ces recherches a été la réponse à une saisine de la préfecture de Corse concernant les retombées de l'accident de Tchernobyl sur l'île. Des campagnes d'échantillonnages et de mesures ont été effectuées par l'IPSN en 2001 avec comme objectif de vérifier les estimations de dépôts faites sur la base de la relation « pluie-dépôt » établie dans le Bas-Rhône, de reconstituer la contamination de la chaîne alimentaire en 1986 à partir des mesures faites à l'époque par l'OPRI et l'IPSN, et de connaître les niveaux actuels de contamination des aliments. Cette étude a fait l'objet de publications scientifiques et d'une présentation publique organisée par la préfecture à Ajaccio en janvier 2002. De plus, cette étude a été complétée par une estimation des conséquences dosimétriques des retombées de l'accident de Tchernobyl en Corse.

Ces travaux ont également permis de répondre aux préoccupations d'associations, de catégories socioprofessionnelles ou d'élus interpellés par des déclarations ou publications d'associations écologistes. L'étude de l'influence des retombées de l'accident de Tchernobyl sur les vins des Côtes du Rhône illustre ce souci des collaborateurs du projet de répondre aux sollicitations extérieures, et de communiquer le résultat de leurs travaux à la fois dans le milieu scientifique et au public concerné. Il en est de même des études sur le plutonium au voisinage de Marcoule et dans les sols inondés de Camargue dont les résultats ont été présentés dans des réunions publiques, organisées notamment par la Commission Locale d'Information (CLI) du Gard.

Enfin il faut noter qu'en décembre 2003, dernier mois du projet CAROL, la CLI du Gard et l'Autorité de Sûreté Nucléaire ont saisi l'IRSN sur les conséquences radiologiques des inondations exceptionnelles en Camargue. C'est donc très opportunément que les compétences acquises dans le cadre du projet CAROL et les réflexions sur la continuité des travaux liés aux crues et autres événements extrêmes, sont maintenant utilisées pour répondre à cette demande d'expertise.

