

Constat radiologique *Vallée du Rhône*. Rapport final relatif au milieu terrestre

PRP-ENV/SESURE/2012-06

Pôle radioprotection, environnement, déchets et
crise

Service d'étude et de surveillance de la radioactivité dans
l'environnement

Demandeur	PMLT				
N° action/processus de rattachement	R3.1.2.				
<p>Constat radiologique Vallée du Rhône. Rapport final relatif au milieu terrestre</p> <p>S. Roussel-Debet</p> <p>Laboratoire d'études radioécologiques en milieux continental et marin</p> <p>Rapport Pôle radioprotection, environnement, déchets et crise</p> <p>Service d'étude et de surveillance de la radioactivité dans l'environnement PRP-ENV/SESURE/2012-06</p>					
	Réservé à l'unité		Visas pour diffusion		
	Auteur(s)	Vérificateur	Chef du SESURE	Directeur de l'environnement	Directeur Général de l'IRSN *
Noms	S. Roussel-Debet	Ph. Renaud	G. MANIFICAT	J-C. GARIEL	J. REPUSSARD
Dates	06/06/2012	06/06/2012	06/06/12	13/06/2012	18/06/2012
Signatures					

DIFFUSION : Libre Interne Limitée

*si nécessaire

LISTE DES PARTICIPANTS

Nom	Organisme
Déclinaison locale de la stratégie, recherche de lieux d'échantillonnage, prélèvements : L. Saey	IRSN/PRP-ENV-SESURE-LERCM
Prélèvements et traitements d'échantillons : D. Mourier, G. Salaun	
Métrologie : Laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans l'environnement	IRSN/PRP-ENV-STEME-LMRE

RESUME

Le constat radiologique Vallée du Rhône a débuté en 2009. L'objectif est d'établir un référentiel actualisé des niveaux de radioactivité dans l'environnement, notamment dans les productions agricoles caractéristiques du territoire concerné, i.e., les communes limitrophes du Rhône, de l'amont de Creys-Malville jusqu'en Camargue. Ce rapport présente les résultats des mesures réalisées en milieu terrestre. Le plan de prélèvement en milieu terrestre comporte des échantillons des productions agricoles dominantes et d'indicateurs spécifiques des niveaux de radioactivité environnementaux (exemple du tritium dont on recherche l'incorporation dans les feuilles d'arbres). Outre le secteur proche de Marcoule qui n'avait pas été investigué récemment, les prélèvements sont répartis de façon à ce qu'au moins un type de produit soit prélevé sur chacune des zones potentiellement influencées par les installations en activité ou en démantèlement (Tricastin, Cruas, Saint-Alban, Bugey, Creys-Malville) et sur chacune des zones non influencées réparties le long de la vallée, entre les sites. Les principaux radionucléides présents dans l'environnement ou figurant dans les rejets des installations nucléaires sont recherchés : les échantillons font ainsi l'objet de spectrométries gamma à bas bruit de fond (^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{60}Co , $^{110\text{m}}\text{Ag}$...), de spectrométries alpha pour quelques échantillons (^{241}Am , $^{239+240}\text{Pu}$) et de la mesure du ^{90}Sr pour les produits laitiers ; le tritium et le carbone 14 sont mesurés dans les feuilles d'arbres.

Les données acquises viennent confirmer les concentrations attendues. Elles montrent, pour le tritium, un niveau ambiant de l'ordre du bruit de fond, ou très légèrement supérieur, tout au long de la Vallée, et une influence nette des rejets de Marcoule, s'étendant jusqu'à une dizaine de km au nord et au sud du site ; dans le cas du carbone 14, l'influence des installations n'est pas ou peu décelable dans les prélèvements faits, à l'exception des environs de Marcoule où les concentrations sont localement faiblement supérieures au bruit de fond. Outre les radionucléides d'origine naturelle, le ^{137}Cs et le ^{90}Sr sont mesurés dans des gammes de valeurs généralement proches des limites de détection. Ces radionucléides sont liés à la rémanence des retombées anciennes : celles des essais atmosphériques d'armes nucléaires (années 1960 à 1980) et celles de l'accident de Tchernobyl (1986). Il est à noter que du ^{134}Cs lié aux retombées de l'accident de Fukushima a été mesuré à un niveau extrêmement faible dans un échantillon de viande. Comme partout en France, ce bref épisode ne modifie d'ores et déjà plus les niveaux de référence qui sont présentés dans ce constat et qui ne présentent, par ailleurs, aucun risque sanitaire.

MOTS-CLES

Surveillance - Vallée du Rhône - milieu terrestre - denrées - radionucléides.

SOMMAIRE

1 INTRODUCTION	9
2 PRELEVEMENTS ET MESURES	11
2.1 RAPPEL DE LA STRATEGIE GENERALE DE PRELEVEMENTS ET D'ANALYSES EN MILIEU TERRESTRE	11
2.2 LOCALISATION DES PRELEVEMENTS	12
2.3 PRELEVEMENTS DE DENREES	13
2.4 ÉCHANTILLONS DESTINES A MESURER LE TRITIUM (³H) ET LE CARBONE 14 (¹⁴C)	15
2.4.1 ENSEMBLE DE LA VALLEE	15
2.4.2 VOISINAGE DE MARCOULE	16
2.5 PRELEVEMENTS PARTICULIERS	17
2.5.1 SABLES DES PLAGES DE CAMARGUE	17
2.5.2 REMANENCE DES EMETTEURS ALPHA AU VOISINAGE DU SITE DE MARCOULE	17
2.5.3 SOL DE CAMARGUE	17
3 RESULTATS CONCERNANT LE TRITIUM ET LE CARBONE 14	18
3.1 TRITIUM	18
3.1.1 RAPPEL DES CARACTERISTIQUES DU TRITIUM.	18
3.1.2 RESULTATS DE MESURE DES ECHANTILLONS PRELEVES EN 2010 LE LONG DU LINEAIRE RHODANIEN	20
3.1.3 VOISINAGE DE MARCOULE (PRELEVEMENTS DE 2009, 2010 ET 2011)	22
3.2 CARBONE 14	27
3.2.1 RAPPEL DES PRINCIPALES PROPRIETES DU CARBONE 14	27
3.2.2 DISTRIBUTION DU CARBONE 14 LE LONG DU LINEAIRE RHODANIEN	29
3.2.3 RESULTATS DE MESURES DU CARBONE 14 AUTOUR DE MARCOULE	30
3.2.4 CONCLUSION SUR LE CARBONE 14	32
3.3 RESULTATS DE MESURE DE TRITIUM ET DE CARBONE 14 DES ECHANTILLONS DE VIANDE DE SANGLIER	33
4 RESULTATS DES MESURES DE PRODUITS AGRICOLES PAR SPECTROMETRIE GAMMA	34
4.1 RADIONUCLEIDES NATURELS	35
4.1.1 POTASSIUM 40	35
4.1.2 PLOMB 210, BERYLLIUM 7 ET SODIUM 22	37

4.1.3	THORIUM 234 ET ACTINIUM 228 _____	37
4.2	RADIONUCLEIDES ARTIFICIELS RECHERCHES EN SPECTROMETRIE GAMMA _____	39
4.2.1	CESIUM 134 _____	39
4.2.2	CESIUM 137 _____	39
4.2.3	RECAPITULATIF SUR LES RADIONUCLEIDES MESURES EN SPECTROMETRIE γ DANS LES DENREES _____	50
5	RESULTATS D'ANALYSE DU STRONTIUM 90 DANS LES PRODUITS LAITIERS _____	51
6	RESULTATS DE PRELEVEMENTS OU D'ANALYSES PARTICULIERS _____	52
6.1	ÉTUDE PARTICULIERE DES SOLS ET DES BIO-INDICATEURS AU VOISINAGE DE MARCOULE. ____	52
6.1.1	ÉCHANTILLONS DE SOLS _____	52
6.1.2	ÉCHANTILLONS DE VEGETAUX _____	53
6.1.3	CONCLUSION SUR LES MESURES DES SOLS ET BIO-INDICATEURS PRELEVES A PROXIMITE DE MARCOULE _____	53
6.2	SABLES DES PLAGES DE CAMARGUE _____	54
6.3	SOL DE RIZIERE _____	54
6.4	APERÇU DES MESURES SPECIFIQUES REALISEES APRES L'ACCIDENT DE FUKUSHIMA ET CONSEQUENCES DE CET ACCIDENT EN VALLEE DU RHONE _____	55
7	CONCLUSION _____	56
8	ANNEXES _____	58
8.1	ANNEXE 1. CALENDRIER GENERAL DU DEROULEMENT DU CONSTAT VALLEE DU RHONE. ____	58
8.2	ANNEXE 2. APERÇU SUCCINCT DES METHODES D'ANALYSES _____	59
8.3	ANNEXE 3. RADIONUCLEIDES HABITUELLEMENT RECHERCHES EN SPECTROMETRIE GAMMA. _____	60
9	REFERENCES _____	61

TABLEAUX

Tableau 1. Synthèse des prélèvements de denrées réalisés. _____	14
Tableau 2. Plan de prélèvements et d'analyses : mesures du tritium et du carbone 14 autour de Marcoule. _____	16
Tableau 3. Plan de prélèvements et d'analyses : sols et bio-indicateurs prélevés dans les environs de Marcoule. _____	17
Tableau 4. Résultats de mesure du tritium libre (HTO) et organiquement lié (TOL) dans les échantillons de feuilles de peuplier prélevés en 2010 le long du linéaire rhodanien. _____	21
Tableau 5. Résultats des mesures du tritium autour de Marcoule. _____	23
Tableau 6. Résultats de l'estimation du tritium total _____	26
Tableau 7. Résultats des mesures de carbone 14 dans des feuilles de peuplier prélevées en juillet 2010 le long du Rhône. _____	30
Tableau 8. Activité spécifique et activité massique du ¹⁴ C des échantillons prélevés autour de Marcoule. _____	31
Tableau 9. Résultats des mesures de tritium et de carbone 14 dans les échantillons de viande de sanglier. _____	33
Tableau 10. Limites de détection observées en spectrométrie gamma pour les échantillons de denrées de la présente étude et relatives aux isotopes dont tout ou partie des résultats sont inférieurs à LD. _____	34
Tableau 11. Résultats de mesure du potassium 40 dans la présente étude et comparaison avec les valeurs habituellement mesurées. _____	35
Tableau 12. Résultats des mesures significatives en ²²⁸ Ac _____	38
Tableau 13. Résultats de mesure du ¹³⁷ Cs dans les produits agricoles et denrées. _____	43
Tableau 14. Résultats d'analyse du ⁹⁰ Sr dans les produits laitiers. _____	51

FIGURES

Figure 1. Localisation schématique et types de prélèvements réalisés en milieu terrestre dans le cadre du constat Vallée du Rhône. _____	13
Figure 2. Localisation des points de prélèvement de feuilles d'arbres le long de la vallée du Rhône. _____	15
Figure 3. Schéma des principaux transferts du tritium dans le système sol-plante-atmosphère-eaux. _____	19
Figure 4. Schéma des résultats de mesure du tritium libre (HTO) et organiquement lié (TOL) mesuré dans les échantillons de feuilles de peuplier prélevés en 2010 le long du linéaire rhodanien. _____	20
Figure 5. Résultats de mesure du tritium organiquement lié sur des zones situées hors de toute influence de rejets tritiés (Bretagne), prélèvements effectués en 2008 et 2009. _____	21
Figure 6. Schéma indiquant les résultats des mesures du tritium organiquement lié (TOL) autour de Marcoule. _____	22
Figure 7. Présentation des résultats de mesure du tritium organiquement lié en fonction de la distance au site, tous secteurs confondus et comparaison avec les données acquises sur des feuilles de chêne en 1992. _____	24
Figure 8. Résultats des mesures du tritium dans les végétaux autour de Marcoule. Données acquises par le CEA et publiées sur le site du RNM. _____	26
Figure 9. Schéma simplifié du cycle du carbone en milieu terrestre (Roussel-Debet, 2007). _____	28

Figure 10. Évolution de l'activité spécifique du carbone 14 dans la biosphère terrestre en France hors de l'influence d'installations nucléaires (Roussel-Debet, 2007 - mise à jour : juillet 2011).	29
Figure 11. Schéma des résultats de mesure de l'activité spécifique du carbone 14 mesuré dans les échantillons de feuilles de peuplier prélevés en 2010 le long du linéaire rhodanien.	29
Figure 12. Schéma indiquant les résultats de mesure du ^{14}C réalisées sur des feuilles de peupliers autour de Marcoule.	30
Figure 13. Résultats des mesures du carbone 14 dans les fruits autour de Marcoule. Données acquises par le CEA et publiées sur le site du RNM.	32
Figure 14. Localisation des prélèvements de sanglier.	33
Figure 15 : Schémas de désintégration radioactive des chaînes U-Th (selon Le Roux, 2007, d'après Bourdon et al., 2003).	38
Figure 16. Carte des activités théoriques de ^{137}Cs dans les sols en 2006 résultant des retombées des tirs atmosphériques d'armes nucléaires et de l'accident de Tchernobyl.	40
Figure 17. Localisation des prélèvements et indication du résultat (significatif ou non) de la mesure du ^{137}Cs .	41
Figure 18. Comparaison des valeurs du ^{137}Cs d'échantillons de fruits de la vallée du Rhône et de ceux prélevés ailleurs, en zone non influencée.	45
Figure 19. Comparaison des valeurs du ^{137}Cs d'échantillons de légumes de la vallée du Rhône et de ceux prélevés ailleurs, en zone non influencée.	46
Figure 20. Comparaison des valeurs du ^{137}Cs d'échantillons de plantes aromatiques de la vallée du Rhône et de ceux prélevés ailleurs, en zone non influencée.	46
Figure 21. Comparaison des valeurs du ^{137}Cs d'échantillons de vins de la vallée du Rhône et de ceux prélevés ailleurs, en zone non influencée.	47
Figure 22. Comparaison des valeurs du ^{137}Cs d'échantillons de miel de la vallée du Rhône et de ceux prélevés ailleurs, en zone non influencée.	47
Figure 23. Comparaison des valeurs du ^{137}Cs d'échantillons de viandes et de gibier de la vallée du Rhône et de ceux prélevés ailleurs, en zone non influencée.	48
Figure 24. Comparaison des valeurs du ^{137}Cs d'échantillons de lait et de fromage de la vallée du Rhône et de ceux prélevés ailleurs, en zone non influencée.	49
Figure 25. Gammes de valeurs du ^{137}Cs mesurées au dessus des LD dans les échantillons de produits agricoles.	50
Figure 26. Résultats des mesures du ^{90}Sr dans les produits laitiers, sur des échantillons prélevés en vallée du Rhône et sur les stations OPERA situées hors de toute influence d'installations nucléaires.	51
Figure 27. Comparaison des concentrations en radionucléides naturels de sables prélevés en 2009 et en 2005.	54

1 Introduction

Ce rapport présente et commente les résultats obtenus en milieu terrestre dans le cadre du constat radiologique régional « Vallée du Rhône ».

La réalisation de constats radiologiques régionaux a pour objectif d'établir, sur un territoire étendu comportant plusieurs sites d'installations nucléaires, un référentiel actualisé des niveaux de radioactivité dans certains compartiments de l'environnement, en particulier les denrées. Les parties prenantes locales sont associées au déroulement de ces études grâce à des réunions d'information et d'échanges de points de vue où sont conviés notamment des représentants des Commissions locales d'information (CLI).

Chaque constat comporte l'examen des résultats obtenus lors d'études radioécologiques antérieures ou réalisées parallèlement dans un autre cadre. Ces connaissances sont complétées ou actualisées par un nombre limité de prélèvements d'échantillons et d'analyses. Les prélèvements se composent d'échantillons de diverses natures :

- des productions agricoles dominantes ; la sélection des denrées caractéristiques du territoire est réalisée à une échelle régionale en présélectionnant tout d'abord les catégories de productions statistiquement les plus importantes en valeur économique et en quantités, puis elle est détaillée par production selon les spécificités locales, au niveau des départements et des communes. Enfin, les contacts locaux et les premières campagnes de terrain permettent d'ajuster ces données théoriques, parfois obsolètes, à la réalité du terrain ;
- des échantillons de référence, systématiquement prélevés dans le cadre de la surveillance environnementale exercée par l'IRSN, qui permettent une inter-comparaison plus aisée entre différentes régions françaises (salades ou laits par exemple) ;
- des produits végétaux ou animaux caractéristiques des écosystèmes naturels : champignons, gibiers... ;
- des indicateurs spécifiques de certains radionucléides ; par exemple, pour le carbone 14 et le tritium, des échantillons de feuilles d'arbres permettent de connaître l'activité des produits végétaux et animaux terrestres ; les transuraniens (plutonium, américium...) sont recherchés en priorité dans les sols ou dans certains bio-indicateurs (bryophytes...), étant donné leur niveau d'activité très bas et leur faible propension à être transférés dans les végétaux et les animaux.

Le constat radioécologique « Vallée du Rhône », a été engagé en 2009. L'étendue spatiale du territoire considéré englobe les communes situées de part et d'autre du fleuve, de l'amont de Creys-Malville, jusqu'en Camargue. Sur ce territoire sont considérées, en tant que sources potentielles de radionucléides, les grandes installations nucléaires situées directement sur la zone d'étude : les 4 CNPE en activité, le réacteur de Creys-Malville (en démantèlement), les autres installations du complexe de Tricastin-Pierrelatte et celles de Marcoule.

Le calendrier général de déroulement du constat « Vallée du Rhône » est détaillé en annexe 1. La méthodologie, définie en 2009 (Roussel-Debet et Antonelli, 2010) a donné lieu à une stratégie d'échantillonnage et de mesures en milieu terrestre et en milieu aquatique, ces deux milieux étant traités différemment et de façon décalée dans le temps. De mai à décembre 2009, les premiers prélèvements en milieu terrestre ont été réalisés, majoritairement sur la partie sud du territoire. En 2010 et 2011 ont été recueillis la majorité des échantillons du milieu terrestre. Les traitements et mesurages ont été faits durant cette période et jusqu'en fin 2011.

Les résultats obtenus fin 2010, pour les échantillons prélevés en milieu terrestre sur la partie sud de la vallée ont fait l'objet de commentaires détaillés dans un rapport d'avancement (Roussel-Debet et Saey, 2011) ; dans la présente étude ils sont présentés de façon beaucoup plus brève que précédemment, en y adjoignant les résultats des mesures qui n'étaient pas encore disponibles ; ils sont complétés par les résultats obtenus sur le reste de la vallée.

Parallèlement, la stratégie en milieu aquatique a été affinée (Saey et Roussel-Debet, 2011) et la majorité des prélèvements relatifs à ce milieu ont été réalisés en 2011, les résultats étant attendus en 2012. Le milieu aquatique fera l'objet d'un rapport de synthèse fin 2012.

2 Prélèvements et mesures

2.1 Rappel de la stratégie générale de prélèvements et d'analyses en milieu terrestre

La stratégie de prélèvements et d'analyses¹ a été établie afin de répondre à différentes questions.

Il s'agit en premier lieu de vérifier que la concentration en radionucléides des principales productions agricoles du territoire est en accord avec les niveaux attendus, en fonction des connaissances acquises dans l'environnement français, à savoir une très faible rémanence des retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires en ³H, ¹⁴C, ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs et actinides (isotopes du plutonium et ²⁴¹Am) et des retombées de l'accident de Tchernobyl (¹³⁷Cs) (Renaud et Gurriaran, 2009).

La plupart des sites de la vallée du Rhône ayant fait l'objet de bilans radioécologiques récents (suivis annuels et bilans décennaux autour de sites d'EdF, « point zéro » récent autour du site du site du Tricastin), le plan d'échantillonnage a privilégié des zones de production éloignées des sites et qui sont, de ce fait, rarement étudiées ainsi que des denrées qui habituellement ne sont pas prélevées lors de ces études. Toutefois, des échantillons de référence, de la salade et du lait notamment, ont également été prélevés. Ces échantillons, qui font l'objet de mesures régulières dans le cadre de ces bilans et aussi dans celui de la surveillance de routine effectuée par les exploitants nucléaires d'une part et par l'IRSN d'autre part, permettent en effet d'effectuer des inter-comparaisons temporelles et spatiales.

La méthode de choix des productions agricoles et leur pré-localisation ont été détaillées dans le rapport méthodologique (Roussel-Debet et Antonelli, 2010). À ces prélèvements s'ajoutent, selon leur disponibilité, des échantillons de gibier ou de champignons, dont on sait qu'ils présentent des concentrations en ¹³⁷Cs relativement plus élevées que celles des denrées d'origine agricole.

Par ailleurs, le tritium et le carbone 14 (d'origine naturelle et anthropique) sont étudiés par l'intermédiaire de mesures de feuilles d'arbres à feuillage caduc qui, compte-tenu du comportement particulier de ces radionucléides (Roussel-Debet 2007 ; 2008), reflètent leurs concentrations dans tous les compartiments biologiques de l'environnement terrestre, notamment les denrées. En effet, étant donné l'équilibre qui s'établit pour l'un et l'autre de ces isotopes en milieu terrestre respectivement avec l'hydrogène et le carbone stable, les résultats de leur mesure dans un végétal, connus à la variabilité naturelle près, sont applicables, en première approche, à l'ensemble des compartiments biologiques échantillonnés à la même période (e.g., Roussel-Debet et al., 2006 ; Roussel-Debet, 2007 et 2008). Ces échantillons, au nombre de 10, sont répartis le long de la vallée.

Il s'agit aussi de compléter ou d'actualiser les données existantes lorsqu'elles sont jugées insuffisantes ou obsolètes. Contrairement au site du Tricastin et aux sites des CNPE de EdF, le site de Marcoule n'a pas fait l'objet d'un bilan radioécologique récent. Toutefois, les données acquises dans le cadre de la surveillance de routine effectuée par le CEA et par l'IRSN, montrent que le marquage de l'environnement en tritium provenant des installations de ce site, déjà constaté lors d'études plus anciennes (e.g. Descamps et al., 1995 ; 1997), perdure

¹ Les méthodes d'analyses sont succinctement décrites en annexe 2.

aujourd'hui. Les environs du site de Marcoule sont à ce titre examinés, en ce qui concerne le tritium, avec une densité d'échantillonnage plus élevée que dans les autres parties du territoire étudié. Des feuilles d'arbres sont prélevées à cet effet ; une partie de ces échantillons est aussi destinée à mesurer le carbone 14.

Le marquage en plutonium et en américium d'une dizaine de communes riveraines de Marcoule et de certaines rizières de Camargue inondées lors des crues de 1993-1994 avait fait l'objet d'une thèse à la fin des années 90 (Duffa, 2001), puis d'une étude consécutive aux crues de fin 2003 (Eyrolle, 2004 ; Duffa et Renaud, 2004) ; des analyses spécifiques sont dédiées à la vérification de la situation radiologique actuelle de ces zones.

Enfin, toujours dans l'objectif de disposer d'un état radiologique de référence réactualisé, les sables noirs des plages de Camargue, riches en radioéléments naturels, qui avaient fait l'objet d'investigations en 2005 (Pourcelot et Renaud, 2006) sont également réexaminés dans le cadre de ce constat régional.

2.2 Localisation des prélèvements

La localisation des prélèvements en milieu terrestre distingue les zones dites « non influencées » (ZNI), qui se trouvent idéalement au-delà de 20 km de toute installation, des zones « potentiellement influencées » (ZI), situées à moins de 5 km – voire plus près – des installations. Cette discrimination a essentiellement pour but de fournir un cadre théorique permettant de distribuer les lieux de prélèvement de façon homogène, au regard de la position des sites nucléaires.

Dans la vallée du Rhône, cette répartition fait apparaître 12 secteurs, de l'amont vers l'aval :

- ZI : Creys-Malville (CRM), Bugey (BUG), St Alban (ALB), Cruas (CRU), Tricastin (TRI), Marcoule (MAR) ;
- ZNI : Amont de Creys, entre Bugey et St Alban (BUG-ALB), entre St Alban et Romans (ALB-ROM), entre Romans et Cruas (ROM-CRU)², entre Cruas et Tricastin (CRU-TRI) et aval éloigné de Marcoule (Aval Marcoule).

La proximité des sites de Cruas, du Tricastin et de Marcoule fait que l'on se trouve forcément à une distance inférieure ou voisine de 20 km de chacun de ces sites dans l'axe de la vallée. La zone limite située entre Cruas et Tricastin et le plus loin possible de chacun des CNPE peut néanmoins être considérée comme ZNI, d'autant que l'on sait que le marquage des CNPE en milieu terrestre est quasi-inexistant. Dans le cas du secteur Tricastin-Marcoule, la proximité des 2 sites, les rejets importants de Marcoule en tritium et l'orientation des vents dominants dans l'axe de la vallée font que le territoire situé entre Tricastin et Marcoule ne peut pas être considéré a priori comme ZNI, pour ce qui concerne les concentrations du tritium dans l'environnement terrestre.

La figure 1 présente de façon schématique la localisation et le type de prélèvements dont le détail est indiqué dans les paragraphes qui suivent.

² Deux zones sont discriminées pour tenir compte de la confluence Rhône-Isère. Les rejets liquides des sites de Grenoble et de Romans/Isère seront pris en compte en analysant des échantillons prélevés en amont et en aval de cette confluence. Cette discrimination, évidemment sans objet pour le milieu terrestre, sert aussi à mieux répartir géographiquement les prélèvements.

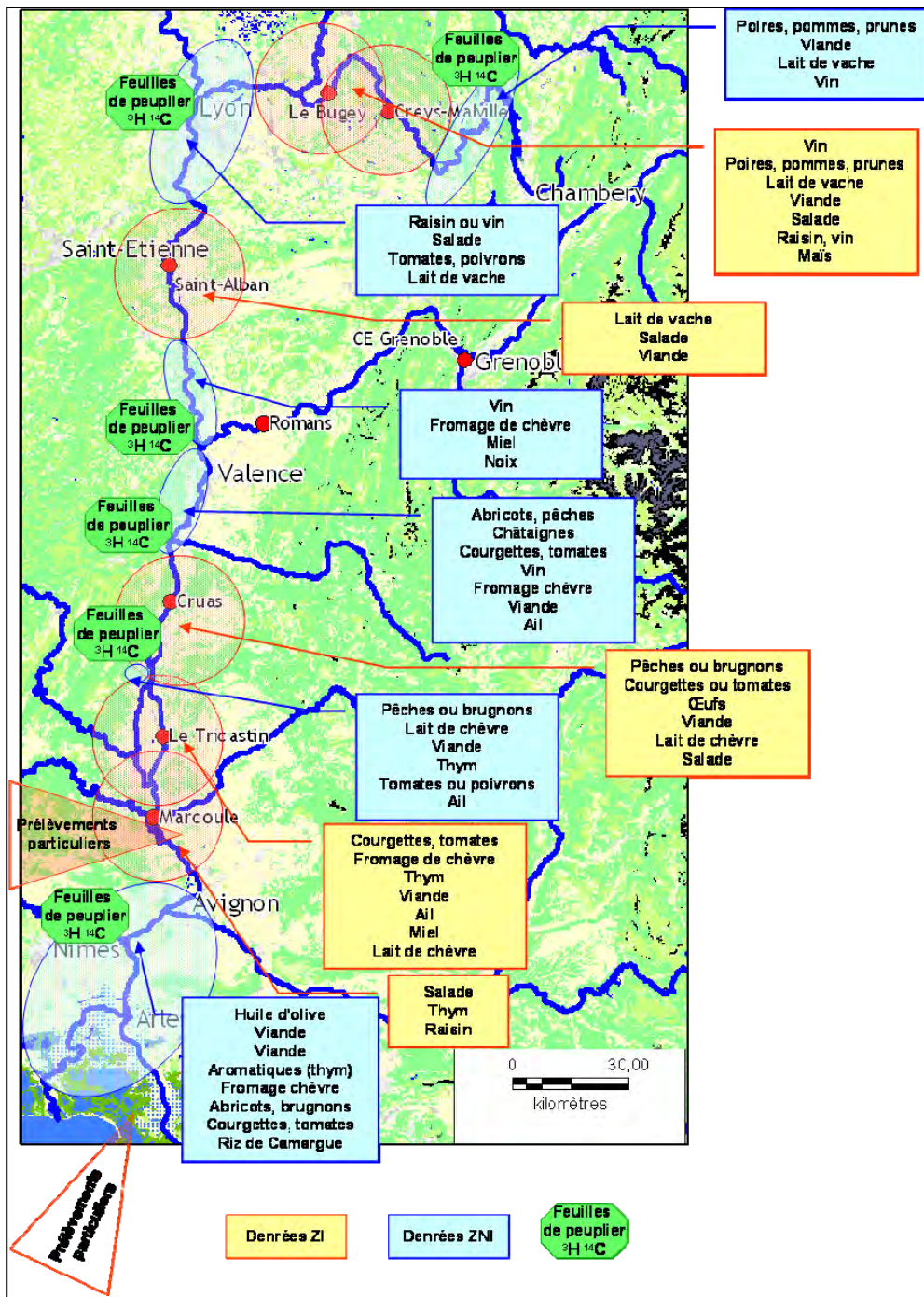


Figure 1. Localisation schématique et types de prélèvements réalisés en milieu terrestre dans le cadre du constat Vallée du Rhône.

2.3 Prélèvements de denrées

Le plan préliminaire décrit dans le rapport méthodologique (Roussel-Debet et Antonelli, 2010) prévoyait l'échantillonnage d'environ une cinquantaine de denrées, réparties approximativement pour moitié entre ZI et ZNI, sur lesquelles étaient prévues des mesures par spectrométrie gamma à bas bruit de fond et, pour les produits laitiers, des mesures du ^{90}Sr . Les communes sur lesquelles étaient supposées se trouver les productions recherchées avaient été répertoriées en utilisant les statistiques agricoles communales AGRESTE 2000, dont on sait qu'elles ne peuvent donner qu'une vision grossière des productions réellement et actuellement présentes sur le territoire. Les communes présélectionnées se trouvaient dans les limites spatiales qui avaient été assignées initialement à l'étude (communes limitrophes du fleuve). À partir de cette trame, une recherche plus détaillée a

été faite en utilisant les statistiques agricoles annuelles ainsi que les données de l'Institut national de l'origine et de la qualité (INAO) afin de mieux connaître les produits « remarquables » par zone géographique. Cette étape a mis en évidence certaines productions non répertoriées dans l'étude préliminaire, par exemple, l'élevage de volaille (viandes et production d'œufs) est très représenté dans le couloir rhodanien entre St-Alban et Marcoule. Le croisement de ces deux sources de données a permis de cibler les communes à prospecter. Ensuite, des contacts locaux ont permis d'orienter les recherches pour trouver les productions recherchées dans les zones souhaitées. Parallèlement, une synthèse des prélèvements prévus dans le cadre d'autres études concomitantes a été faite pour optimiser les campagnes de prélèvement et pour éviter les doublons avec des études en cours.

Le tableau 1 donne la liste des prélèvements réalisés qui représentent une soixantaine d'échantillons.

Tableau 1. Synthèse des prélèvements de denrées réalisés.

ZI/ZNI	Zone (cf. figure 1)	Échantillons	
ZNI	Amont CRM	Raisin Pommes	Lait de vache Viande
ZI	CRM	Lait de vache* Raisin*	Vin* Viande
ZI	BUG	Viande Raisin* Vin	Lait de vache* Maïs* Salade*
ZNI	BUG-ALB	Salade Cerises Tomates	Viande Lait de vache
ZI	ALB	Lait de vache* Salade* Viande de Bœuf	
ZNI	ALB - ROM	Vin Fromage chèvre Miel	Abricots Noix
ZNI	ROM-CRU	Abricots Pêches Pommes	Châtaignes Vin Fromage chèvre Tomates
ZI	CRU	Aubergines Pêches Œufs	Ail Lait de chèvre* Salade*
ZNI	CRU-TRI	Lait de chèvre Thym Pêches	Courgettes
ZI	TRI	Courgettes* Salade Romarin Blé* Sanglier	Fromage chèvre Thym Œuf Viande - Poulet Miel
ZI	MAR	Thym Raisin Miel	Salade Sanglier
ZNI ¹	Aval MAR	Huile d'olive Viande Taureau Viande Agneau de Sisteron Thym Fromage chèvre	Abricots Salade Pêches Poivrons Riz de Camargue

Le symbole * signifie que le prélèvement est fait dans le cadre d'autres études

¹ Cette zone est dite « non influencée » uniquement au regard de la distance au site.

2.4 Échantillons destinés à mesurer le tritium (^3H) et le carbone 14 (^{14}C)

L'hydrogène (H) et le carbone (C) sont deux constituants majeurs de la matière vivante. Leurs isotopes radioactifs respectifs, le tritium (^3H) et le carbone 14 (^{14}C), se comportent chimiquement comme l'isotope stable de chaque élément et suivent deux cycles majeurs dans la biosphère et la géosphère : le cycle de l'eau pour le tritium et le cycle du carbone pour le ^{14}C . En milieu terrestre, les végétaux, et notamment les feuilles d'arbres, permettent d'évaluer le niveau de concentration du carbone 14 et, dans une moindre mesure, du tritium dans l'environnement terrestre. Ainsi, des feuilles de peuplier ont été prélevées pour analyses du carbone 14 et du tritium.

Indépendamment de ces prélèvements, il nous a été possible d'obtenir 2 échantillons de viande de sanglier, provenant des environs de Tricastin et de Marcoule (via la CLI de Marcoule-Gard) qui ont fait l'objet d'analyses du carbone 14 et du tritium lié.

2.4.1 Ensemble de la vallée

Pour appréhender la contamination éventuelle en ces deux radionucléides sur l'ensemble de la vallée, des échantillons de feuilles de peuplier ont été prélevés en 7 points répartis le long de la vallée du Rhône, surtout dans des zones ZNI sur lesquelles aucune mesure n'était disponible (cf. figure 2).



Figure 2. Localisation des points de prélèvement de feuilles d'arbres le long de la vallée du Rhône.

Liste des stations (numéro repère), de l'amont vers l'aval :

- Rochefort (50)
- Miribel (49)
- St Pierre de Bœuf (48)
- Silon -Sarras (47)
- Charmes sur Rhône (46)
- Châteauneuf-du-Rhône (45)
- Pont-Saint-Esprit (43)
- Marcoule 1 (40)
- Saint-Laurent-des-Arbres (38)
- Châteaurenard (213)

2.4.2 Voisinage de Marcoule

Le plan de prélèvement particulier, conçu pour la mesure du tritium et du carbone 14, au voisinage de Marcoule, est résumé au tableau 2. En 2009, 14 échantillons ont été prélevés dans un rayon de 5 km autour du site ; en 2010, trois prélèvements ont été réalisés, l'un sur l'arbre situé au sud et le plus proche du site déjà échantillonné en 2009 (« Marcoule 1 »), les deux autres au delà de la zone explorée précédemment, à Pont St Esprit (≈ 13 km au nord) et St Laurent des arbres (≈ 9 km au sud), afin de délimiter l'extension longitudinale de la zone influencée par les rejets du site. Enfin, en 2011, ces trois points et sept autres choisis parmi les arbres déjà échantillonnés en 2009 ont fait l'objet de nouveaux prélèvements et mesures.

Par ailleurs, il nous a été possible d'échantillonner du bois de cep de vigne, sur une parcelle de Codolet, où une vigne était en cours d'arrachage ; cet échantillon, dont l'ancienneté, non connue précisément, est estimée à 20 - 30 ans, est utile pour estimer grossièrement s'il y a eu ou non accumulation du tritium organiquement lié dans le bois.

Les premiers résultats obtenus avaient montré le peu de pertinence de la mesure du tritium libre HTO dans un environnement soumis à des niveaux fluctuants de contamination ; aussi, seul le tritium organiquement lié, TOL a été mesuré sur les échantillons de 2011.

Tableau 2. Plan de prélèvements et d'analyses : mesures du tritium et du carbone 14 autour de Marcoule.

(Feuilles de peupliers, sauf mention contraire*)

Station	Distance (≈ km)	Orientation par rapport au site	Prélèvements : juillet 2009		Prélèvements : juin 2010		Prélèvements : juillet 2011	
			Tritium HTO + TOL	¹⁴ C	Tritium HTO + TOL	¹⁴ C	Tritium TOL	¹⁴ C
L'Ardoise	5,0	S	1				1	1
Laudun	4,9	SW	1					
La Dent de Signac	2,5	SW	1					
Les Gazières	2,5	S-SW	1				1	1
Marcoule 1	0,2	S	1	1	1	1	1	1
Marcoule 2	0,9	W	1	1			1	1
Dent de Marcoule 1	2,8	N	1				1	1
Dent de Marcoule 2	2,1	N-NE	1					
Belvédère	0,8	N-NE	1	1			1	1
Chusclan	1,9	NW	1					
Station de rejet clôture Sud	1,1	NE	1	1				
Les Cabanes - Caderousse Nord	4,7	S-SE	1					
Le Panier - Caderousse Nord	2,5	S-SE	1				1	1
Ouest d'Orange	2,9	E	1					
St Laurent des arbres	8,9	S			1	1	1	1
Pont St Esprit	13,5	N-NW			1	1	1	1
Codolet (cep de vigne*)	1,5	S			1 (TOL seul)	1		

2.5 Prélèvements particuliers

2.5.1 Sables des plages de Camargue

Des échantillons de sables noirs provenant des plages de Camargue (Beauduc, Saintes-Maries-de-la-Mer) qui avaient une concentration relativement élevée en radioéléments naturels et qui avaient été étudiés en 2003 (Pourcelot et Vassas, 2005) ont été à nouveau prélevés en 2009 et analysés en spectrométrie gamma.

2.5.2 Rémanence des émetteurs alpha au voisinage du site de Marcoule

Des mesures de radionucléides (^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am et isotopes du plutonium) avaient été réalisées en 2000 à proximité de Marcoule, sur des mousses terrestres, du thym, du raisin, de la salade et des sols dans le cadre d'une thèse (Duffa, 2003). De nouveaux prélèvements (tableau 3) ont été faits aux endroits où avaient été observées les activités les plus élevées en plutonium et américium, afin de voir leur évolution.

Tableau 3. Plan de prélèvements et d'analyses : sols et bio-indicateurs prélevés dans les environs de Marcoule.

Station	Échantillon	Spectrométrie gamma	Spectrométrie alpha	Strontium 90
Cimetière de Codolet	Sol cultivé Raisin	3	3	3
	Mousses terrestres	1	1	1
Grange Chabert - Codolet sud -	Sol cultivé Raisin	3	3	3
	Sol non cultivé Thym	5	5	5
	Mousses terrestres	1	1	1
Codolet	Salade	1	1	1
Les Granges Arnaud - Codolet	Sol non cultivé Thym	2	2	2
Le Panier - Caderousse Nord	Sol non cultivé forestier	2	2	2
Barrage de Caderousse	Sol non cultivé	1	1	1

2.5.3 Sol de Camargue

Des échantillons de sol de rizière ont été prélevés au niveau de la Brèche de Lauricet, à l'un des endroits où les rizières avaient été soumises à de fortes inondations en 2003 et où l'on pouvait détecter l'influence des dépôts de sédiments marqués par les rejets anciens de Marcoule suite à leur remise en suspension et à leur transport vers l'aval durant cet épisode de crue (Eyrolle et al., 2004). Ces échantillons ont été mesurés par spectrométrie gamma et alpha.

3 Résultats concernant le tritium et le carbone 14

3.1 Tritium

3.1.1 Rappel des caractéristiques du tritium.

Le tritium est l'isotope radioactif, de nombre de masse 3, de l'hydrogène. C'est un émetteur bêta, de période 12,2 ans. Son origine, dans l'environnement non influencé par un rejet, est naturelle (production cosmique) et pour une faible part artificielle (rémanence des retombées des tirs d'essais atmosphériques et très localement rejets d'installations). Sa caractéristique fondamentale, déterminant son comportement, est son extrême propension à s'échanger plus ou moins rapidement avec l'hydrogène stable, en particulier lorsqu'il se trouve sous ses formes dites *labiles*, et notamment sous forme d'eau liquide ou vapeur.

Le tritium peut se trouver sous deux formes dans les organismes végétaux ou animaux :

- tritium dit *libre* sous forme d'eau tritiée, HTO qui est défini comme étant le tritium de la fraction extraite du végétal par dessiccation (en général, lyophilisation) ; le résultat de sa mesure s'exprime en Bq/L d'eau de dessiccation ; la proportion de cette eau (dite « eau libre », variant de 0,05 à 0,95) dans l'échantillon frais (non séché) dépend très fortement du type d'échantillon, plus ou moins riche en eau et matière sèche ;
- tritium dit *organiquement lié* (TOL), constitué du tritium de la matière sèche³. Il se mesure à partir de l'eau issue de la combustion (incinération) de la matière sèche de l'échantillon ; le résultat de sa mesure s'exprime en Bq/L d'eau de combustion ; la proportion⁴ de cette eau dans la matière sèche varie peu (environ 0,5 à 0,7 L/kg de matière sèche). Une fraction, estimée à 10 à 20 % du TOL, est échangeable plus ou moins rapidement (quelques heures à plusieurs mois) avec le tritium ambiant.

Le tritium total (Bq/kg frais) peut être calculé à partir de ces deux grandeurs⁵.

Dans la suite de ce chapitre, en l'absence d'autre précision, les résultats relatifs au tritium organiquement lié (TOL) et au tritium libre (HTO) sont affectés de l'unité Bq/L, étant entendu que TOL s'exprime en becquerels par litre d'eau de combustion et HTO en becquerels par litre d'eau de dessiccation.

De façon générale, le tritium suit le cycle de l'eau et il s'incorpore à l'eau tissulaire ainsi qu'à la matière organique de tous les organismes vivants (e.g., Jean-Baptiste et al., 2011 ; Baglan et al., 2011 ; Boyer et al., 2009 ; Roussel-Debet, 2008). La figure 3 schématise ce comportement pour ce qui concerne le transfert aux végétaux terrestres : à partir de l'atmosphère, le tritium peut s'échanger avec les parties aériennes des végétaux, être rejeté par la respiration végétale, tandis que la photosynthèse lui permet d'être incorporé à la matière organique durant les phases de croissance du végétal. Il peut être dilué par l'eau du sol prélevée par les racines. Au niveau de l'écosystème, d'autres processus peuvent faire fluctuer ses concentrations, par exemple, la contamination secondaire des cours d'eaux avoisinants comme cela a été constaté en Val de Loire (Marang et al.,

³ La matière sèche est assimilée à la matière organique, en négligeant une fraction faible (quelques pourcents) de minéraux.

⁴ La valeur exacte de la proportion d'eau extraite par combustion de la matière sèche (L d'eau de combustion par kg de poids sec) est mesurée pour chaque échantillon .

⁵ La concentration en tritium total (Bq/kg frais) est évaluée par : $[TOLs] \times [PS/PF] + [HTO] \times (1 - [PS/PF])$

[TOLs] Tritium organiquement lié, exprimé ici par rapport au poids sec (Bq/kg sec)

[HTO] Tritium libre (Bq/L)

[PS/PF] Rapport : poids sec/poids frais (kg sec/kg frais).

2011) et autour de Valduc (Guétat et al., 2011), évaporation depuis les plans d'eau, transformations via le cycle des matières organiques et de l'eau au sein du sol...

Ces phénomènes se produisent avec des cinétiques et des intensités très variables, ce qui influe sur leur résultante en termes d'appauvrissement ou d'enrichissement en tritium dans un compartiment de l'environnement par rapport à un autre.

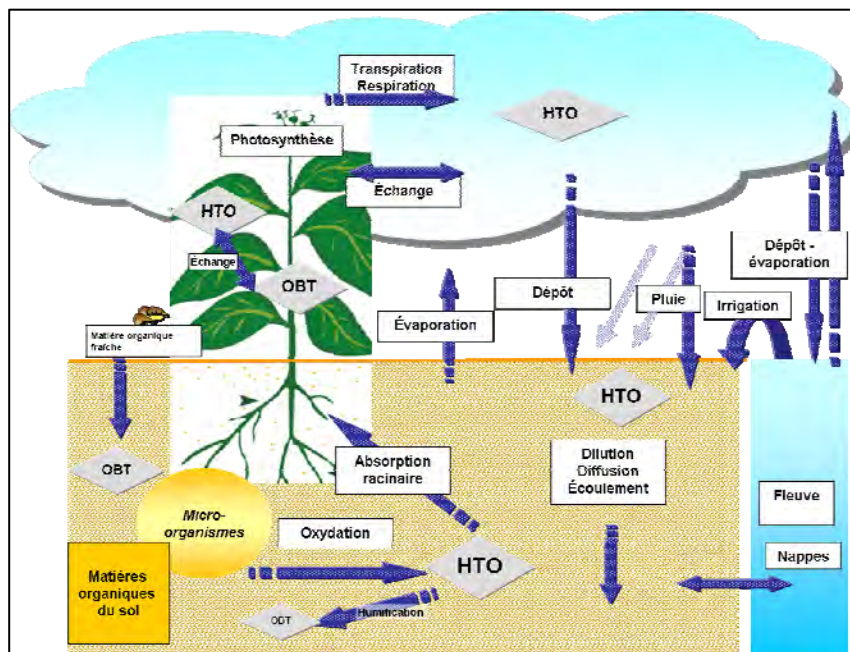


Figure 3. Schéma des principaux transferts du tritium dans le système sol-plante-atmosphère-eaux. Pour simplifier ce schéma, les voies de transfert relatives à l'hydrogène tritié, HT, ne sont pas mentionnées.

Par ailleurs, l'extrême labilité du tritium peut biaiser les résultats de sa mesure, particulièrement pour ce qui concerne le tritium libre HTO. En effet, les échanges du tritium avec l'hydrogène de la vapeur d'eau de l'air, entre le moment du prélèvement et celui de la mesure sont inéluctables⁶. Ainsi, le tritium libre de l'échantillon végétal représente, dans le meilleur des cas, les conditions de concentration du tritium atmosphérique durant les heures qui ont précédé ce prélèvement (Boyer et al., 2009). Le tritium organiquement lié rend mieux compte de l'intégration successive des niveaux de tritium ambiant durant le temps pendant lequel la matière organique s'est formée, sans toutefois que l'on puisse prétendre à une parfaite restitution de la concentration *in situ* de l'échantillon.

Lorsque le niveau moyen de tritium ambiant fluctue peu, les deux formes, tritium libre et tritium organiquement lié sont à l'équilibre et présentent des valeurs moyennes proches et relativement peu variables dans les matrices environnementales. Lorsque des contaminations discrètes (discontinues) se succèdent, l'examen du tritium organiquement lié est davantage représentatif de l'état de contamination de l'environnement (actuel ou rémanent) dans les échantillons biologiques et permet aussi de comparer les échantillons issus de différents sites.

⁶ Les échantillons récoltés sont placés dans des sacs plastiques hermétiques, en glacière puis congelés à leur arrivée au laboratoire ; ils sont lyophilisés plusieurs jours ou semaines après récolte et la lyophilisation dure une quarantaine d'heures. Seule une lyophilisation *in situ* immédiate et de durée très courte pourrait éviter des échanges entre le tritium des végétaux et celui de l'air ambiant.

En milieu terrestre, hors de l'influence d'une installation nucléaire, les concentrations du tritium organiquement lié sont du même ordre de grandeur ou très légèrement supérieures aux limites de détection, variant de 0,9 à 3 Bq/L pour tous les échantillons biologiques, indépendamment de leur nature. Les valeurs relatives au tritium libre sont du même ordre de grandeur, en moyenne 1,5 Bq/L et la concentration totale en tritium des végétaux et des denrées d'origine agricole se situe actuellement en moyenne entre 0,5 et 3 Bq/kg frais (Roussel-Debet, 2008). La faible variabilité des concentrations en tritium naturel et hérité des retombées anciennes, permet de déceler de façon assez sensible une augmentation de ce bruit de fond. Ainsi, les mesures réalisées sur des feuilles annuelles d'arbres, représentatives de l'ambiance tritiée qui a prévalu durant leur période de croissance (quelques mois) permettent de mettre en évidence, si c'est le cas, un environnement marqué par des rejets.

3.1.2 Résultats de mesure des échantillons prélevés en 2010 le long du linéaire rhodanien

La figure 4 représente la succession des résultats de mesure du tritium libre et lié le long du Rhône ; ces résultats sont détaillés au tableau 4.

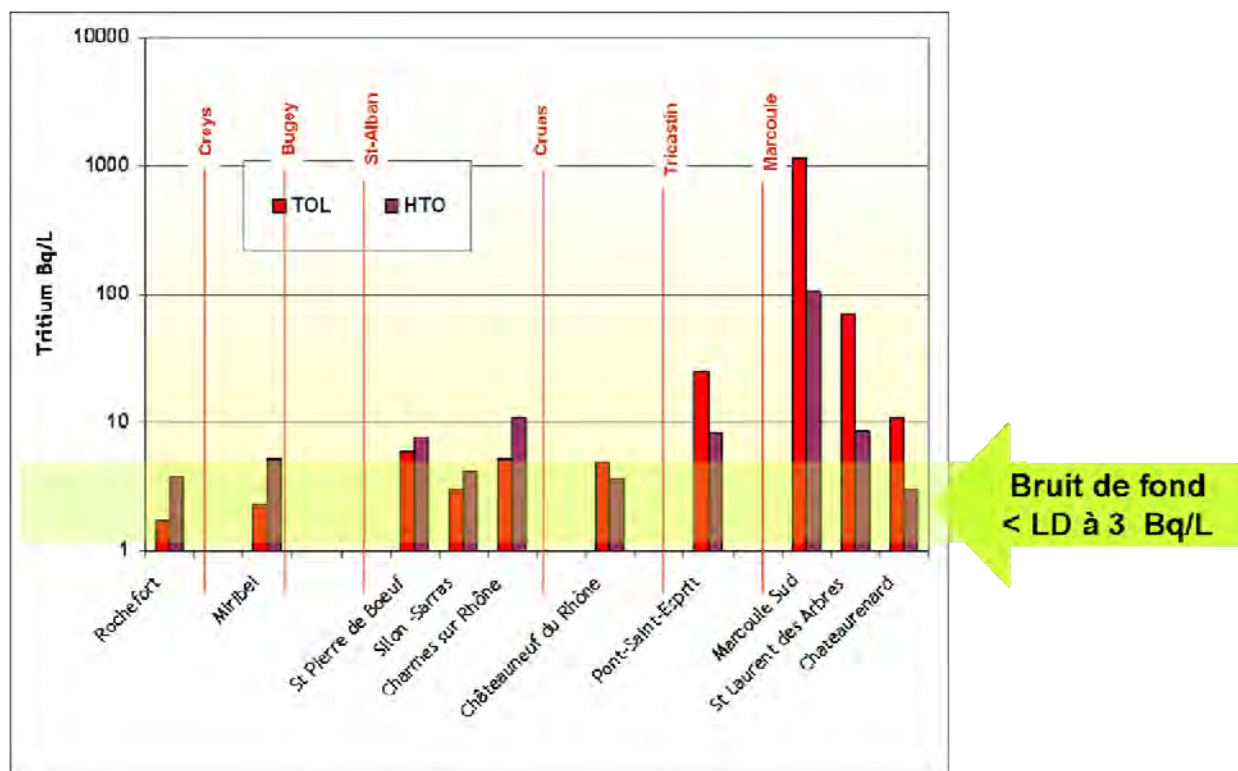


Figure 4. Schéma des résultats de mesure du tritium libre (HTO) et organiquement lié (TOL) mesuré dans les échantillons de feuilles de peuplier prélevés en 2010 le long du linéaire rhodanien.

L'axe des abscisses représente la succession des points de mesure et positionne les installations (traits verticaux) sans que soit respectée l'échelle des distances, impossible à reporter de façon lisible sur cette figure.

Tableau 4. Résultats de mesure du tritium libre (HTO) et organiquement lié (TOL) dans les échantillons de feuilles de peuplier prélevés en 2010 le long du linéaire rhodanien.

Les résultats qui seront examinés en détail dans le paragraphe suivant (proximité du site de Marcoule) sont en italiques.

Installations nucléaires	Date de prélèvement	Station	Tritium organiquement lié TOL (Bq/L)	Tritium libre HTO (Bq/L)	TOL/HTO	Tritium total calculé (Bq/kg frais)
	22/06/2010	Rochefort	1,73 ± 0,09	3,8 ± 0,8	0,5	2,9
Creys-Malville ⇨						
	21/06/2010	Miribel	2,31 ± 0,12	5,2 ± 0,8	0,4	3,9
Bugey ⇨						
	09/06/2010	St Pierre de Bœuf (ZI)	5,87 ± 0,3	7,7 ± 0,9	0,8	6,0
	09/06/2010	Silon-Sarras	2,98 ± 0,15	4,2 ± 0,7	0,7	3,3
	09/06/2010	Charmes sur Rhône	5,25 ± 0,27	10,9 ± 0,9	0,5	8,2
Cruas ⇨						
	08/06/2010	Châteauneuf-du-Rhône (ZI)	4,88 ± 0,25	3,7 ± 0,7	1,3	3,4
Pierrelatte ⇨						
	08/06/2010	<i>Pont-Saint-Esprit (ZI)</i>	<i>25,3 ± 2,0</i>	<i>8,5 ± 0,8</i>	<i>3,0</i>	<i>10,14</i>
Marcoule ⇨						
	08/06/2010	<i>Marcoule 1(ZI)</i>	<i>1136 ± 31</i>	<i>105,6 ± 3,8</i>	<i>10,8</i>	<i>285,6</i>
	08/06/2010	<i>St-Laurent-des-Arbres (ZI)</i>	<i>68,6 ± 3,0</i>	<i>8,6 ± 0,8</i>	<i>8,0</i>	<i>18,2</i>
	14/06/2010	Châteaurenard	11,1 ± 0,6	3,0 ± 0,6	3,7	4,3

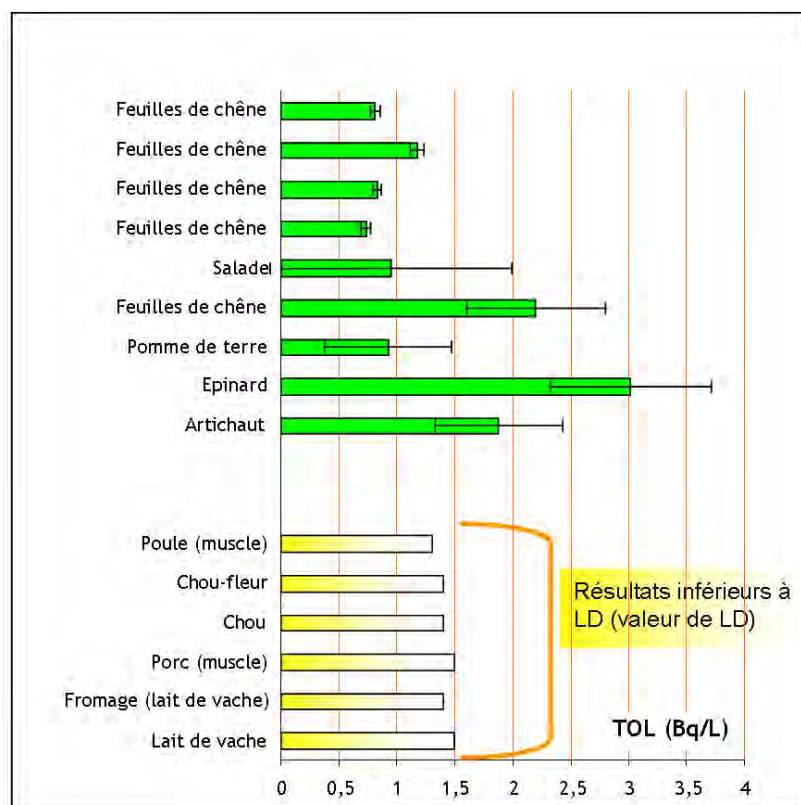


Figure 5. Résultats de mesure du tritium organiquement lié sur des zones situées hors de toute influence de rejets tritiés (Bretagne), prélèvements effectués en 2008 et 2009.

Cette figure est une illustration des valeurs de la concentration « bruit de fond » du tritium en milieu terrestre permettant une mise en perspective des données « vallée du Rhône ».

Les stations de prélèvement sont les suivantes :

- Forêt de Paimpont
- Forêt de Quénécan
- Forêt du Mesnil
- La Guerche-de-Bretagne
- Plouéan
- Pont de Buis
- Quimper
- Roscoff

De l'amont du Rhône jusqu'au défilé de Donzère, les concentrations du tritium TOL ($1,7 \pm 0,1$ à $5,3 \pm 0,3$ Bq/L) et HTO ($3,8 \pm 0,8$ à $10,9 \pm 0,9$ Bq/L) témoignent de très légers excès de tritium, avec des valeurs qui sont au niveau du bruit de fond naturel ou le dépassent à peine : à titre de comparaison, la figure 5 montre quelles ont été les valeurs du TOL mesurées dans le cadre du programme OPERA-terrestre⁷ sur divers échantillons prélevés en 2008 et 2009 hors de l'influence de toute installation nucléaire. Plus au Sud, i.e., sur les échantillons dont nous disposons, à partir de Pont-St-Esprit, se manifeste l'influence des rejets de Marcoule, et ce jusqu'à une trentaine de km vers le sud (cf. paragraphe suivant).

Par ailleurs, les résultats obtenus montrent que le tritium libre varie de façon erratique.

L'influence des rejets atmosphériques des CNPE est discrète voire insignifiante et n'est pas homogène. On note ainsi que le point de prélèvement où les concentrations sont les plus fortes (Charmes sur Rhône, respectivement $5,3 \pm 0,3$ Bq/L en TOL et $10,9 \pm 0,9$ en HTO) se situe à une trentaine de km au nord de Cruas et à une soixantaine de km au sud de St-Alban, alors que, le prélèvement de St-Pierre-de-bœuf, situé en ZI près de Saint Alban (≈ 2 km S-SE) présente des valeurs similaires : $5,9 \pm 0,3$ Bq/L en TOL et $7,7 \pm 0,9$ en HTO.

Au final, la concentration totale en tritium des feuillages prélevés le long du Rhône, en excluant le point « Marcoule 1 » qui sera examiné dans le paragraphe suivant, s'échelonne entre quelques Bq/kg frais et une vingtaine de Bq/kg frais, ce qui signe un niveau légèrement plus élevé que le bruit de fond hors zone nucléarisée.

3.1.3 Voisinage de Marcoule (prélèvements de 2009, 2010 et 2011)

La figure 6 et le tableau 5 reportent les résultats de mesure du tritium obtenus sur des échantillons de feuilles de peupliers prélevées au voisinage de Marcoule, en 2009, 2010 et 2011.

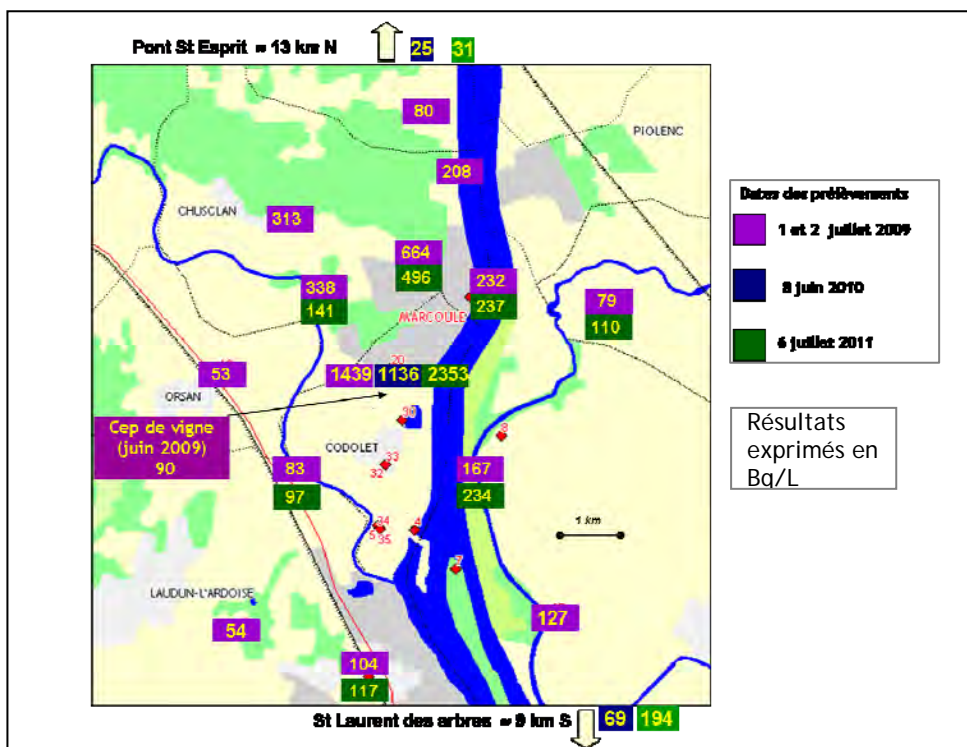


Figure 6. Schéma indiquant les résultats des mesures du tritium organiquement lié (TOL) autour de Marcoule.

⁷ OPERA-terrestre : observatoire comportant des stations pérennes ou non, situées dans des zones très éloignées des sites électronucléaires et considérées comme hors influence des rejets actuels des installations. Des prélèvements et analyses d'échantillons y sont réalisés périodiquement afin de disposer d'un ensemble de données représentatives du bruit de fond naturel et artificiel rémanent, permettant des comparaisons avec les données acquises sous influence des rejets.

Tableau 5. Résultats des mesures du tritium autour de Marcoule.

Feuilles de peupliers, sauf mention contraire (*).

En italiques, sont reportés les résultats déjà mentionnés dans le tableau précédent.

Station	Date de prélèvement	TOL Bq/L	HTO Bq/L
L'Ardoise	01/07/2009	104,0 ± 5,0	21,8 ± 1,1
	06/07/2011	116,7 ± 4,8	non mesuré
Laudun	01/07/2009	54,1 ± 2,7	5,1 ± 0,7
La Dent de Signac	01/07/2009	53,4 ± 2,7	6,9 ± 0,8
Les Gazières	01/07/2009	83,2 ± 4,2	13,6 ± 1
	06/07/2011	96,8 ± 4,1	non mesuré
Marcoule 1	01/07/2009	1439 ± 72	205,2 ± 16,6
	08/06/2010	1136 ± 31	105,6 ± 3,8
	06/07/2011	2353 ± 79	non mesuré
Marcoule 2	01/07/2009	338 ± 17	30,4 ± 1,4
	06/07/2011	141 ± 6	non mesuré
Dent de Marcoule 1	02/07/2009	79,7 ± 4	42 ± 1,7
	06/07/2011	110 ± 5	non mesuré
Dent de Marcoule 2	02/07/2009	208 ± 11	283,4 ± 7,7
Belvédère	02/07/2009	664 ± 34	332,7 ± 8,9
	06/07/2011	496 ± 19	non mesuré
Chusclan	02/07/2009	313 ± 16	232,1 ± 6,5
Station de rejet - clôture Sud	02/07/2009	232 ± 12	112,9 ± 3,4
	06/07/2011	237 ± 9	non mesuré
Les Cabanes - Caderousse Nord	02/07/2009	127 ± 7	55,2 ± 2
Le Panier	02/07/2009	167 ± 9	93,3 ± 3,1
	06/07/2011	234 ± 9	non mesuré
Ouest d'Orange	02/07/2009	78,5 ± 3,9	56,3 ± 2,1
Pont St Esprit	08/06/2010	25,3 ± 2,0	8,5 ± 0,8
	06/07/2011	31,2 ± 1,6	non mesuré
Saint Laurent des arbre	08/06/2010	68,6 ± 3,1	8,6 ± 0,8
	06/07/2011	194 ± 8	non mesuré
Codolet (cep de vigne*)	04/06/2010	90,3 ± 3,6	non mesuré

3.1.3.1 Tritium organiquement lié

Les concentrations en tritium organiquement lié (TOL) des feuilles de peupliers vont de 25 ± 2 Bq/L (en 2009) et 31,2 ± 1,6 Bq/L (en 2011) à Pont-St-Esprit (point le plus éloigné au nord du site) jusqu'à 2353 ± 79 Bq/L en 2011 (1440 ± 72 Bq/L en 2009, 1136 ± 31 Bq/L en 2010) pour le point situé à proximité immédiate et au sud du site.

Les concentrations mesurées à proximité du site, dans un rayon de 5 km, reflètent relativement bien l'allure de la rose des vents, avec une contamination plus élevée dans l'axe de la vallée que sur les secteurs est et ouest, et qui décroît très rapidement avec la distance au site. Elles sont également en bon accord avec celles qui avaient été mesurées en 1992 par Descamps et al. (1995), compte tenu des niveaux de rejets respectifs dans les années 90 et 2010 (deux fois moindres). La figure 7, qui représente le tritium organiquement lié en fonction de la distance (indépendamment du secteur angulaire des prélèvements, ce qui est, bien sûr, une façon approchée de représenter les résultats) permet de constater que cette diminution est grossièrement cohérente avec les modèles de dispersion atmosphériques classiques (dans lesquels la concentration varie en fonction inverse de la distance). Sur l'axe est - ouest, à la latitude de la clôture sud du site, les concentrations du TOL sont nettement plus faibles.

En ce qui concerne l'extension de la zone influencée, les échantillons prélevés à St-Laurent des Arbres à une dizaine de kilomètres au sud du site, témoignent d'une influence sensible des rejets de Marcoule, avec des valeurs de TOL égales à 69 ± 3 Bq/L (en 2010) et de 194 ± 8 (en 2011). Cette influence se fait sentir jusqu'à Châteaurenard (environ 30 km au sud), dont l'échantillon présente une valeur d'un ordre de grandeur supérieur au bruit de fond ($11,1 \pm 0,6$ Bq/L en 2010).

Vers le nord, l'influence directe de Marcoule est perceptible jusqu'à plus de 14 km : avec une trentaine de Bq/L à Pont-St-Esprit (prélèvements 2010 et 2011), la contamination environnementale est faible mais avérée, par rapport à un bruit de fond de l'ordre du Bq/L. Pour ces prélèvements la question de l'influence du site de Pierrelatte-Tricastin (situé à environ 5 km au N-NE) peut néanmoins se poser ; une autre étude réalisée en 2009 (Claval, 2010) fait état des résultats suivants : $12,2 \pm 0,7$ Bq/L dans des abricots (pulpe) à Mondragon, puis en remontant vers le nord, donc en se rapprochant du site de Pierrelatte-Tricastin, des concentrations plus faibles, de l'ordre de 5 Bq/L dans les végétaux et enfin, un peu plus au nord et donc au sud immédiat du site de Pierrelatte-Tricastin, une valeur de 12 ± 2 Bq/L (feuilles de chêne). Ces résultats montrent que les prélèvements situés à la latitude de Pont-St-Esprit et Mondragon sont en grande partie influencés par Marcoule (puisque, vers le nord, les concentrations diminuent puis ré-augmentent ensuite). Ceci est d'ailleurs cohérent avec l'importance relative des rejets atmosphériques de Marcoule (de l'ordre de 320 TBq/an en 2009) et des CNPE (environ 2 TBq/an pour Tricastin).

Ainsi, dans le cas particulier du site de Marcoule, l'importance des rejets et le fait que les vents dominants soient concentrés sur des secteurs étroits (N-S et secondairement S-N), la zone influencée (ZI) par le tritium atmosphérique déborde largement le périmètre de quelques km, considéré habituellement. Pour mémoire, l'étude de Descamps et al. (1995) montrait que l'extension sud de cette zone allait jusqu'en Arles.

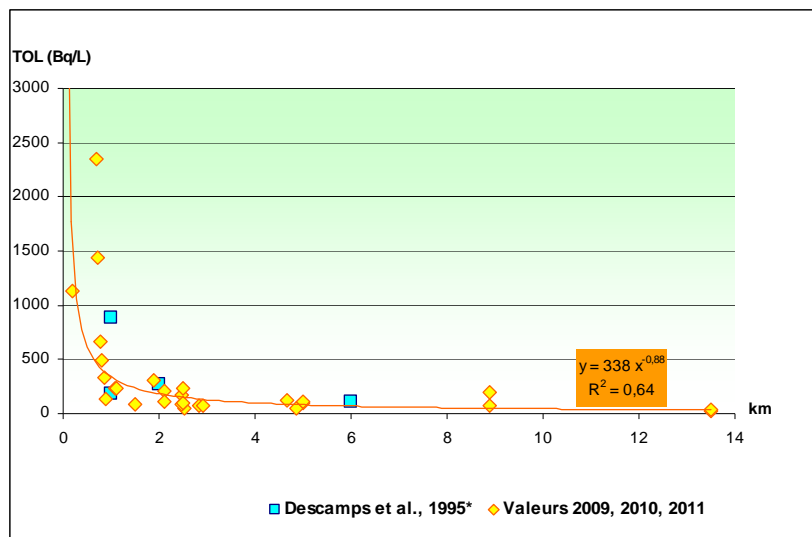


Figure 7. Présentation des résultats de mesure du tritium organiquement lié en fonction de la distance au site, tous secteurs confondus et comparaison avec les données acquises sur des feuilles de chêne en 1992.

Le signe * signifie que les résultats de 1992 (Descamps et al., 1995) sont corrigés pour prendre en compte le rapport des rejets atmosphériques de tritium sur la période de végétation, en 1992 et en 2009-2010.

En termes d'évolution temporelle, les résultats obtenus pour le point de prélèvement où sont observées les concentrations maximales (Marcoule 1, au sud immédiat du site) sont de 1439 ± 72 Bq/L en 2009, diminuent légèrement en 2010 (1136 ± 1 Bq/L) puis augmentent jusqu'à 2353 ± 79 Bq/L en 2011. Les rejets atmosphériques de tritium ont diminué entre les deux années 2009 et 2010 en raison de l'arrêt des réacteurs *Célestins* en fin 2009. Cette diminution s'est répercutée sur les activités en tritium organiquement lié des feuilles. Depuis, il est possible que les opérations de démantèlement de ces installations aient donné lieu à des rejets temporairement plus élevés

qui se sont traduits par une augmentation importante des activités des feuillages de 2011. Par ailleurs, les échantillons 2009 et 2011 ont été prélevés début juillet, alors que ceux de 2010 l'ont été début juin. Par rapport à la croissance des feuilles qui est maximale durant cette période, le simple fait qu'un prélèvement ait été plus précoce est susceptible de modifier la teneur en TOL, en raison d'une moindre formation de matière organique, si des rejets importants ont eu lieu en juillet.

En ce qui concerne les autres échantillons mesurés en 2009 et 2011, l'augmentation constatée en 2011 par rapport à 2009 n'est pas homogène : elle varie dans la plupart des cas entre un facteur 1,1 et un facteur 1,9 ; en revanche, les 2 stations situées au nord-ouest du site : Belvédère et Marcoule 2, présentent des valeurs plus faibles (rapport des concentrations 2011 / 2009 de 0,7 et 0,4 respectivement).

Enfin, dans le cas particulier de l'échantillon de cep de vigne de Codolet prélevé à environ 1 km au sud du site en 2009, et dont l'activité TOL est de $90,3 \pm 3,6$ Bq/L, le fait que cet échantillon⁸, issu d'un cep en place depuis plusieurs dizaines d'années, ne présente pas une concentration en TOL supérieure à celles des échantillons de feuillages annuels situés à proximité tend à montrer qu'il n'y a pas de bioaccumulation du tritium dans le bois.

3.1.3.2 Tritium libre

Les valeurs de tritium libre (HTO) obtenues sur les échantillons de 2009 vont de $5,1 \pm 0,7$ Bq/L à 5 km au sud-ouest du site à $332,7 \pm 8,9$ Bq/L à moins d'un km au nord-nord-est. Les échantillons prélevés sur l'arbre situé au sud immédiat du site, le plus contaminé en TOL, présentent en 2009 et 2010 des valeurs en HTO respectivement de $132,4 \pm 10,7$ Bq/L et $70,4 \pm 2,5$ Bq/L. Les échantillons (2010) prélevés à plus grande distance au nord et au sud du site ont des concentrations similaires en HTO : $5,6 \pm 0,5$ et $5,7 \pm 0,5$ Bq/L.

Comme dans le cas des échantillons situés le long du linéaire rhodanien, les valeurs des rapports TOL/HTO, qui s'échelonnent entre 0,7 et 11,1 Bq/L de façon irrégulière, ne montrent aucune tendance discernable.

La mesure du tritium libre des végétaux terrestres présente donc peu d'intérêt, en particulier sur des territoires directement impactés par des rejets. De ce fait, les échantillons complémentaires prélevés en 2011 (non prévus initialement) n'ont pas fait l'objet de détermination du tritium libre.

3.1.3.3 Tritium total

Le tritium total, exprimé en Bq/kg frais de feuillage, est estimé (tableau 6) à partir des deux formes TOL et HTO en prenant en compte dans cette évaluation :

- d'une part la valeur réellement mesurée du tritium libre, dont nous avons souligné la mauvaise représentativité (valeurs non mesurées en 2011) ;
- d'autre part une concentration de tritium libre supposée à l'équilibre avec celle du tritium lié, soit $HTO = TOL$ (Bq/L), permettant une estimation en l'absence de valeurs mesurées du HTO.

Les valeurs maximales du tritium total correspondent naturellement aux deux échantillons situés à proximité immédiate du site, au sud (Marcoule 1 : jusqu'à 1742 Bq/kg frais) et au nord (Belvédère : 560 Bq/kg frais). En excluant ces points, les moyennes respectives des valeurs du tritium total s'échelonnent entre 142 Bq/kg frais (HTO mesuré) et 90 Bq/kg frais ($HTO = TOL$) ; ces estimations sont comparables aux résultats de mesure du tritium total dans des végétaux terrestres acquis par le CEA sur des échantillons prélevés de 2009 à 2011 et publiés sur le

⁸ L'échantillon a été constitué en découpant, puis broyant finement une « tranche » entière, comprenant donc le bois de toutes les années de croissance du cep.

site du réseau national de mesure⁹ : les valeurs mesurées dans les fruits varient de 5 à 110 Bq/kg frais, celles des herbes de 1 à 990 Bq/kg frais (figure 8).

Tableau 6. Résultats de l'estimation du tritium total
(Feuilles de peupliers, sauf mention contraire*)

Date de prélèvement	Station	Tritium total calculé (Bq/kg frais)	
		avec la valeur de HTO (Bq/L) mesurée	avec HTO (Bq/L) pris égal à TOL (Bq/L)
01/07/2009	L'Ardoise	35	86
01/07/2009	Laudun	14	45
01/07/2009	La Dent de Signac	18	41
01/07/2009	Les Gazières	25	68
01/07/2009	Marcoule 1	421	1217
01/07/2009	Marcoule 2	90	276
02/07/2009	Dent de Marcoule 1	43	69
02/07/2009	Dent de Marcoule 2	228	178
02/07/2009	Belvédère	343	560
02/07/2009	Chusclan	212	262
02/07/2009	Station de rejet - clôture Sud	116	194
02/07/2009	Les Cabanes - Caderousse Nord	59	105
02/07/2009	Le Panier - Caderousse Nord	93	141
02/07/2009	Ouest d'Orange	51	66
08/06/2010	Saint Laurent des arbres	18	57
08/06/2010	Marcoule 1	286	972
08/06/2010	Pont St Esprit	10	21
04/06/2010	Codolet (cep de vigne*)	nm*	50
06/07/2011	Le Panier - Caderousse Nord	nm	189
06/07/2011	Saint Laurent des arbres	nm	156
06/07/2011	L'Ardoise	nm	96
06/07/2011	Les Gazières	nm	80
06/07/2011	Pont St Esprit	nm	25
06/07/2011	Dent de Marcoule 2	nm	85
06/07/2011	Belvédère	nm	410
06/07/2011	Marcoule 1	nm	1762
06/07/2011	Marcoule 2	nm	113
06/07/2011	Station de rejet - clôture Sud	nm	186

* nm : HTO non mesuré

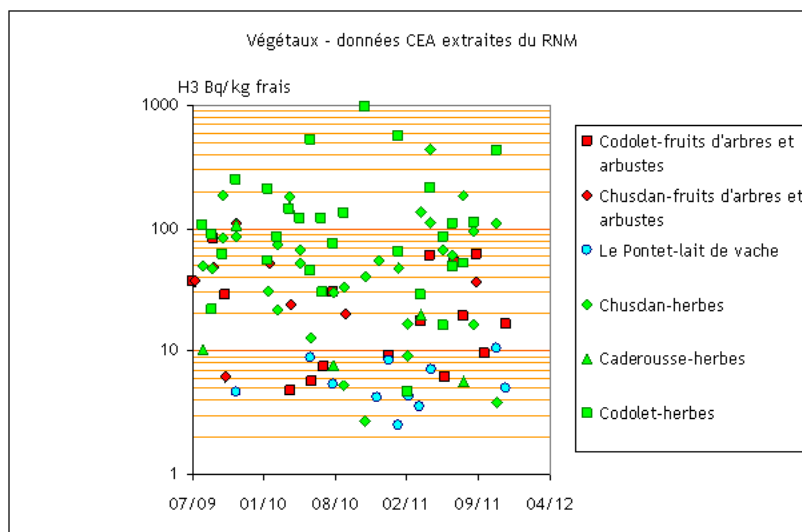


Figure 8. Résultats des mesures de tritium dans les végétaux autour de Marcoule. Données acquises par le CEA et publiées sur le site du RNM.

(tritium total extrait par oxydizer® et mesuré par scintillation liquide).

⁹ RNM : www.mesure-radioactivite.fr/

Il est à noter que ces niveaux ne présentent pas de risque sanitaire significatif : pour indiquer un ordre de grandeur, avec des hypothèses très majorantes, la consommation annuelle de 600 kg de nourriture dont la concentration serait de 100 Bq/kg de tritium, aboutirait à une dose efficace inférieure à 3 μ Sv, soit moins de 0,3 % de la limite de 1 mSv/an pour les personnes du public.

3.1.3.4 Conclusions concernant le tritium autour de Marcoule

Les données acquises lors des prélèvements de 2009, 2010 et 2011 viennent confirmer les concentrations du tritium « attendues » aux alentours de Marcoule et sont cohérentes avec les connaissances disponibles, notamment celles obtenues il y a une vingtaine d'années. On retiendra plus particulièrement les points suivants :

- le niveau moyen de tritium total des végétaux aux alentours (< 5 km) du site est de quelques dizaines à quelques centaines de becquerels par kilogramme frais, sans incidence significative en termes de dose ;
- les feuilles de l'arbre situé au sud immédiat du site présentent les valeurs maximales (tritium lié TOL : 1439 ± 72 Bq/L en 2009, 1136 ± 31 Bq/L en 2010 et 2353 ± 79 en 2011) ;
- l'extension de la zone d'influence de Marcoule est supérieure à la dizaine de kilomètres et rejoint au nord du site celle bien moins importante (spatialement et en niveau de tritium) de Tricastin ; cette influence se fait également sentir au sud jusqu'à une trentaine de km au moins ;
- dans le cas d'un environnement marqué par des rejets atmosphériques fluctuants, la pertinence de la mesure du tritium libre dans les végétaux s'avère très limitée et les résultats afférents sont pratiquement impossibles à interpréter, alors que la mesure du tritium organiquement lié reste un « marqueur » pertinent de la répartition spatiale de la contamination ;
- pour ce qui concerne la surveillance du site, et compte tenu des niveaux d'activités très supérieurs au bruit de fond des échantillons prélevés à proximité, les mesures du tritium total sont suffisantes.

Dans le prolongement des résultats obtenus dans cette étude, il serait intéressant de continuer à échantillonner des feuilles de la zone très proche du site, afin d'observer l'évolution temporelle de la contamination environnementale.

3.2 Carbone 14

3.2.1 Rappel des principales propriétés du carbone 14

Le carbone est constitué de 2 isotopes stables : le carbone 12 (98,9 %) et le carbone 13 (1,1 %) et d'une quantité infime (en masse) de carbone 14, son principal radio-isotope, émetteur bêta, de période radioactive 5734 ans. Dans l'environnement, le ^{14}C peut se trouver sous forme de carbone inorganique (dioxyde de carbone CO_2 , carbonates...) ou de matières organiques et il suit le cycle du carbone stable. Les végétaux incorporent par photosynthèse le ^{14}C présent dans le gaz carbonique de l'air, les animaux incorporent le ^{14}C par ingestion de la matière organique. Le carbone devient ainsi partie intégrante de tous les organismes vivants (figure 9).

Il est d'usage d'exprimer la concentration du ^{14}C en *activité spécifique* égale au rapport isotopique $^{14}\text{C}/\text{C}$, en becquerels de ^{14}C par kilogramme de carbone total (Bq/kg C). Cette grandeur est quasi-identique pour les

différentes composantes de l'environnement terrestre (depuis le CO₂ de l'air jusqu'aux denrées, à l'exception des matières organiques des sols), à une échelle de temps de l'ordre de l'année,. Elle peut présenter une variabilité naturelle qui est fonction notamment de la variation des teneurs en CO₂ de l'air¹⁰ et de la production cosmogénique de ¹⁴C (Roussel-Debet, 2007) mais elle ne dépend pas du type d'échantillon en un lieu et à une date donnée. D'autre part, et contrairement au tritium, le carbone stable ou radioactif, se trouve sous forme de matière organique et n'est pas labile : une fois incorporé dans un organisme, il y reste tant que l'organisme est vivant. En conséquence, l'activité spécifique est un indicateur robuste du niveau de ¹⁴C environnemental et permet une inter-comparaison directe de divers échantillons. Ainsi, peut-on considérer que la mesure de l'activité spécifique d'un seul type d'échantillon, par exemple, des feuilles d'arbre à feuillage caduc¹¹, représente correctement le niveau moyen de concentration du carbone 14 en milieu terrestre, pour une année donnée. L'obtention des activités massiques (Bq/kg frais) de différentes autres composantes (exception faite des sols), nécessite de multiplier l'activité spécifique mesurée par les teneurs en carbone de ces produits (kg C/kg frais).

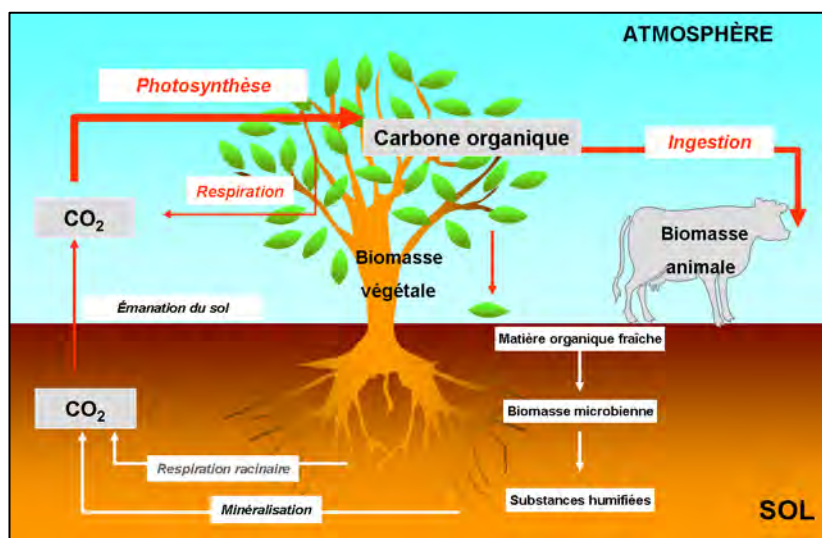


Figure 9. Schéma simplifié du cycle du carbone en milieu terrestre (Roussel-Debet, 2007).

Le bruit de fond du carbone 14 est bien connu dans les matrices environnementales terrestres : hors de l'influence d'une installation nucléaire, l'activité spécifique du ¹⁴C décroît lentement (de l'ordre de 0,5 à 1 % par an) vers la valeur du bruit de fond naturel dit « pré-industriel » (226 Bq/kg C, en 1950) depuis l'arrêt des essais nucléaires atmosphériques (figure 10). Elle se situe au voisinage de 237 ± 3 Bq/kg C en 2009 et 234 ± 2 Bq/kg C en 2010.

¹⁰ L'émission du CO₂ provenant de combustibles fossiles (pétrole, charbon, gaz), par exemple en milieu urbain, tend à diminuer l'activité spécifique du ¹⁴C, car ces combustibles sont suffisamment anciens pour que le ¹⁴C y ait disparu par décroissance radioactive ; par ailleurs, la teneur en CO₂ de l'air est fluctuante en fonction de la présence ou de l'absence de sources d'émission (chauffage par combustion, circulation routière...).

¹¹ Arbres renouvelant leurs feuilles chaque année, ce qui permet de considérer que la matière organique des feuilles prélevées représentent l'activité spécifique du milieu ambiant qui a prévalu durant la période de leur formation. En revanche, les parties ligneuses, le système racinaire pérenne, et, dans une moindre mesure, les feuilles persistantes, conservent la « signature » des contaminations passées et peuvent témoigner de leur rémanence.

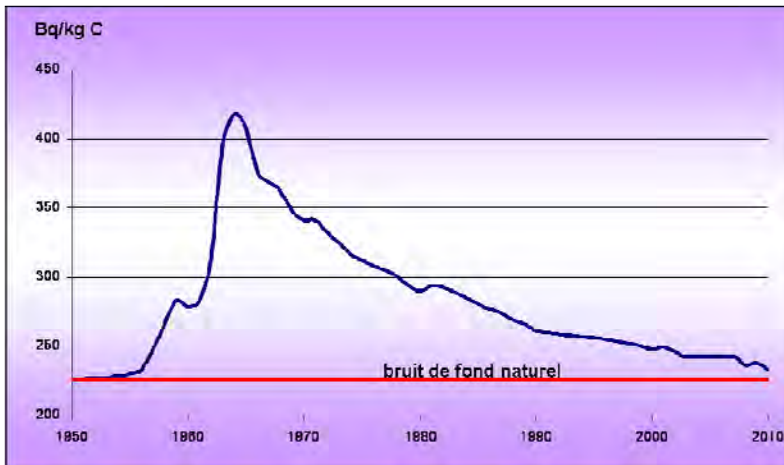


Figure 10. Évolution de l'activité spécifique du carbone 14 dans la biosphère terrestre en France hors de l'influence d'installations nucléaires (Roussel-Debet, 2007 - mise à jour : juillet 2011).

Cette courbe rassemble diverses mesures publiées dans la bibliographie (CO₂ de l'air, cernes de bois d'arbre...) ainsi que des mesures acquises par l'IRSN depuis 1994 (feuillages, denrées animales et végétales).

3.2.2 Distribution du carbone 14 le long du linéaire rhodanien

La figure 11 représente la succession des résultats de mesure du ¹⁴C dans les feuilles de peuplier prélevées le long du Rhône en 2010 ; ces résultats sont détaillés au tableau 7. On constate que les résultats des mesures se situent au voisinage de la valeur du bruit de fond : $231 \pm 1,3$ Bq/kg C à $237 \pm 1,3$ Bq/kg C avec un léger enrichissement à proximité de Marcoule ($247 \pm 1,3$ Bq/kg C). La zone située autour de Marcoule fait l'objet d'un examen plus détaillé dans le paragraphe suivant. En termes d'activités massiques, les valeurs se situent entre une trentaine et une cinquantaine de becquerels par kilogramme frais, cette gamme de variation étant très liée à l'état d'hydratation ou de sécheresse des feuilles (cf. tableau 7).

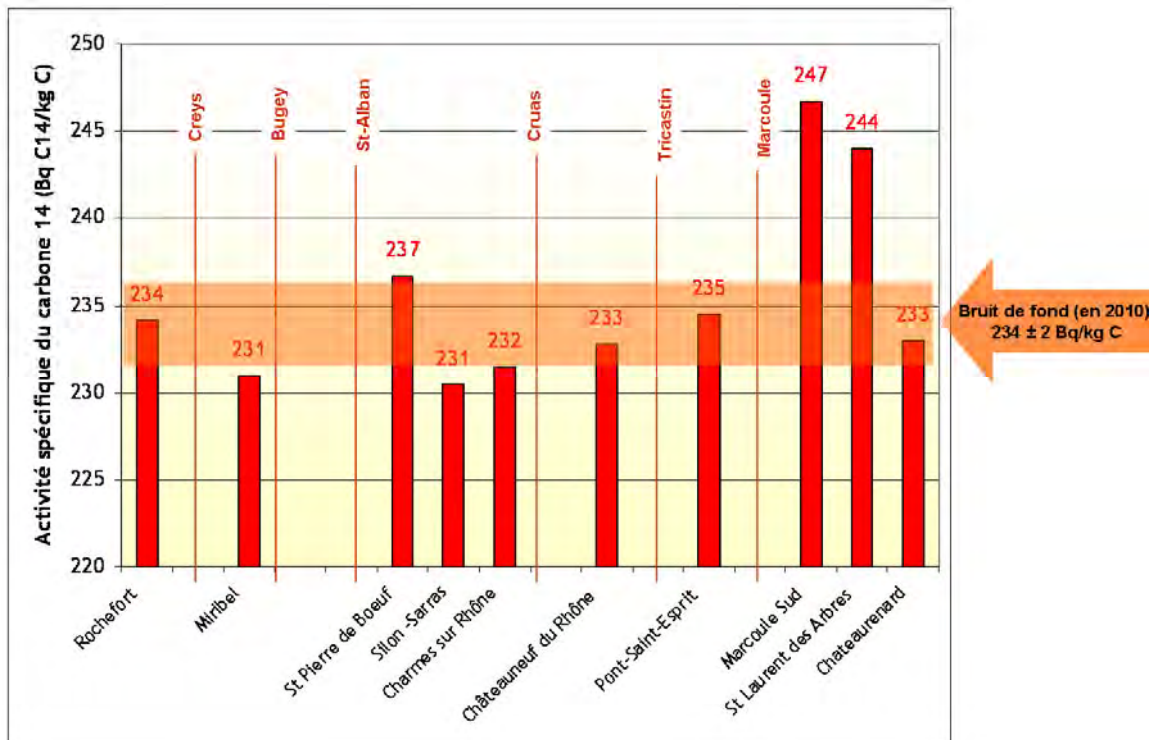


Figure 11. Schéma des résultats de mesure de l'activité spécifique du carbone 14 mesuré dans les échantillons de feuilles de peuplier prélevés en 2010 le long du linéaire rhodanien.

L'axe des abscisses représente la succession des points de mesure et positionne les installations (traits verticaux) sans que soit respectée l'échelle des distances, impossible à reporter de façon lisible sur cette figure.

Tableau 7. Résultats des mesures de carbone 14 dans des feuilles de peuplier prélevées en juillet 2010 le long du Rhône.

Installations nucléaires	Date de prélèvement	Station (de l'amont vers l'aval)	Bq/kg C	Bq/kg frais
	22/06/2010	Rochefort	234 ± 1,3	32,5*
Creys-Malville ⇨				
	21/06/2010	Miribel	231 ± 1,3	35,5
Bugey ⇨ St Alban ⇨				
	09/06/2010	St Pierre de Bœuf (ZI)	237 ± 1,0	38,9
	09/06/2010	Silon (Sarras)	231 ± 1,0	35,6
	09/06/2010	Charmes sur Rhône	232 ± 1,0	35,4
Cruas ⇨				
	08/06/2010	Châteauneuf-du-Rhône (ZI)	233 ± 1,3	31,5
Pierrelatte-Tricastin ⇨				
	08/06/2010	Pont-Saint-Esprit (ZI)	235 ± 1,3	36,9
Marcoule ⇨				
	08/06/2010	Marcoule 1 (ZI)	247 ± 1,3	35,6
	08/06/2010	Saint-Laurent-des-Arbres (ZI)	244 ± 1,3	38,1
	14/06/2010	Châteaurenard	233 ± 1,3	46,5**

* la valeur exprimée en Bq/kg frais est faible en raison de l'état d'humectation des feuilles constituant l'échantillon ;

** la valeur exprimée en Bq/kg frais est élevée en raison de l'état de sécheresse des feuilles constituant l'échantillon.

3.2.3 Résultats de mesures du carbone 14 autour de Marcoule

La figure 12 et le tableau 8 présentent les résultats des mesures du carbone 14 obtenues sur des prélèvements de 2009, 2010 et 2011, à proximité du site de Marcoule.

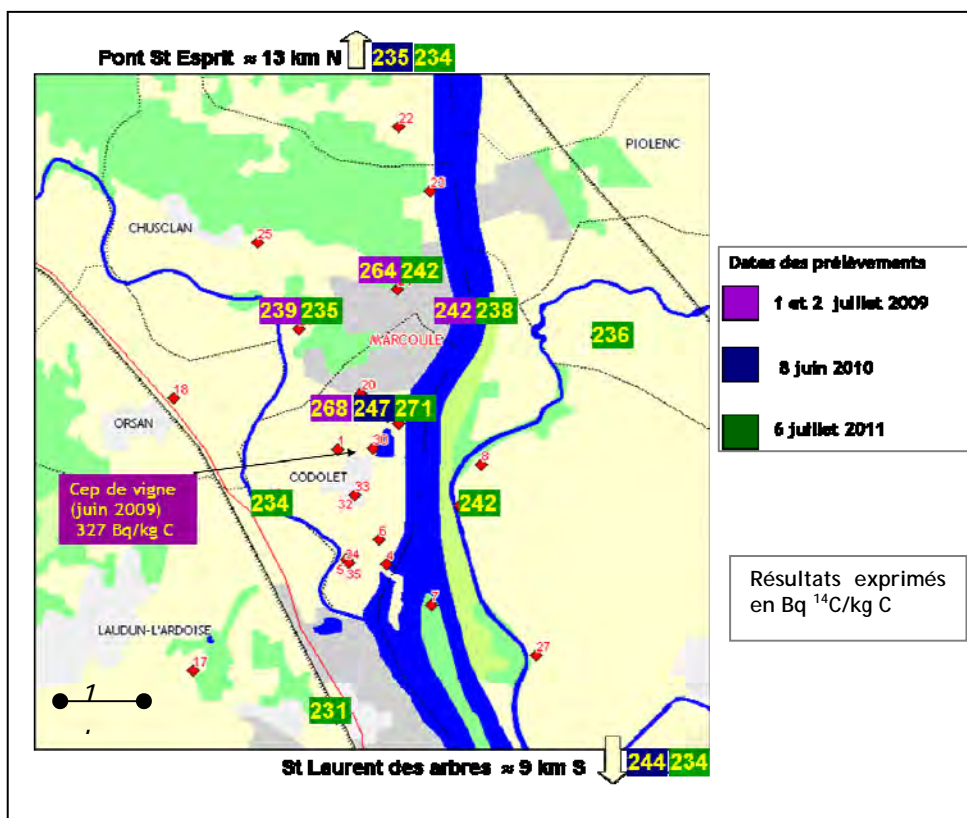


Figure 12. Schéma indiquant les résultats de mesure du ¹⁴C réalisées sur des feuilles de peupliers autour de Marcoule.

En 2009, on constate un enrichissement au sud ($268 \pm 1,7$ Bq/kg C) et au nord du site ($264 \pm 1,7$ Bq/kg C) par rapport au bruit de fond du ^{14}C ($\cong 237$ Bq/kg C) ; en revanche il n'y a pas de différence significative entre les valeurs mesurées dans les prélèvements situés à l'ouest ou à l'est du site et le bruit de fond. Ces résultats sont cohérents avec la rose des vents du site et témoignent des rejets de carbone 14 durant l'année du prélèvement. En effet, les échantillons prélevés sont des feuilles annuelles, il ne peut donc pas s'agir de rémanence¹².

Les données acquises en 2009 autour du site de Pierrelatte-Tricastin sur divers végétaux annuels (Claval, 2010) sont du même ordre de grandeur : on relève une activité spécifique¹³ de 269 ± 17 Bq/kg C au sud immédiat de ce site et une valeur plus faible, de l'ordre du bruit de fond, à quelques km au sud du site (donc à une dizaine de km au nord de Marcoule) ; ceci tend à montrer que, contrairement au cas du tritium, l'influence vers le nord des rejets de Marcoule en carbone 14 reste limitée au voisinage du site (quelques km).

Tableau 8. Activité spécifique et activité massique du ^{14}C des échantillons prélevés autour de Marcoule.

	Date de prélèvement	Station	Bq/kg C
Feuilles de peupliers	01/07/2009	Marcoule 1	$268 \pm 1,7$
		Marcoule 2	$239 \pm 1,3$
		Belvédère	$264 \pm 1,7$
		Station de rejet	$242 \pm 1,3$
	08/06/2010	Saint Laurent des Arbres	$244 \pm 1,3$
		Marcoule 1	$247 \pm 1,3$
		Pont St Esprit	$235 \pm 1,3$
	06/07/2011	Le Panier	$243 \pm 1,7$
		Saint Laurent des arbres	$234 \pm 1,7$
		L'Ardoise	$231 \pm 1,7$
		Les Gazières	$233 \pm 2,0$
		Pont St Esprit	$234 \pm 1,7$
		Dent de Marcoule	$236 \pm 2,0$
Belvédère de Marcoule		$242 \pm 1,7$	
Marcoule 2		$235 \pm 1,7$	
Marcoule 1		$271 \pm 2,0$	
Station de rejet	$237 \pm 1,7$		
Cep de vigne	04/06/2010	Codolet	$327 \pm 2,0$

En 2010, le carbone 14 mesuré dans le prélèvement situé au sud immédiat de Marcoule ($247 \pm 1,3$ Bq/kg C) est nettement plus faible qu'en 2009 ; les valeurs obtenues à Pont-St-Esprit et à St-Laurent-des-Arbres sont respectivement de $235 \pm 1,3$ et $244 \pm 1,3$ Bq/kg C. Par rapport au bruit de fond (234 Bq/kg C en 2010), on constate donc un léger renforcement de l'activité spécifique du carbone 14 au sud du site, qui reste encore sensible à une dizaine de km. Vers le nord, à cette distance, les valeurs mesurées sont égales au bruit de fond.

Le cep de vigne a une concentration en carbone 14 de 327 ± 2 Bq/kg de C, notablement plus élevée que le bruit de fond ; l'échantillon mesuré reproduit la moyenne des activités spécifiques du ^{14}C du CO_2 de l'air qui ont prévalu

¹² L'essentiel de la matière organique, et donc du carbone 14, des feuilles provient de la photosynthèse de l'année de récolte, néanmoins, en toute rigueur, on ne peut pas exclure une redistribution (faible) des molécules organiques synthétisées antérieurement et stockées dans les parties pérennes, tronc, branches et système racinaire, vers les feuilles annuelles.

¹³ La différence entre les incertitudes sur les valeurs émanant de chacune des études tient au fait que dans l'étude Tricastin-Pierrelatte le ^{14}C est mesuré par AMS (spectrométrie de masse) et par la méthode « synthèse de benzène » dans le présent constat. Il est vraisemblable que les incertitudes sont surestimées dans le premier cas et inversement sous-estimées dans le second cas (Gurriaran, communication personnelle).

durant toute la durée de croissance du bois. Ces activités étaient plus élevées dans le passé parce que, d'une part, en 1980, le bruit de fond atteignait 300 Bq/kg C et, d'autre part, les rejets étaient vraisemblablement plus élevés qu'en 2010.

En 2011, les niveaux de ^{14}C sont en diminution de quelques Bq/kg C, à l'exception de l'échantillon le plus proche au sud du site qui présente une valeur de $271 \pm 2,0$ Bq/kg C. Comme précédemment, les échantillons les plus proches du site et répartis selon un axe S-N présentent les valeurs (relativement) les plus élevées ; en 2011, en revanche, les prélèvements les plus éloignés (Pont St Esprit et St Laurent des arbres) ne dénotent quasiment plus d'augmentation significativement supérieure au bruit de fond.

Pour comparer les valeurs obtenues dans la présente étude à celles reportées pour les fruits (en Bq/kg frais) par le CEA sur le site du RNM (figure 13), les activités spécifiques minimales et maximales mesurées dans les feuilles d'arbre sont multipliées par une teneur¹⁴ en carbone de 62 g/kg frais. La gamme de concentrations ainsi estimée va de 14 à 16 Bq/kg frais, ce qui est comparable à la moyenne des mesures faites par le CEA, soit 14 Bq/kg frais. On notera la plus grande dispersion de ces dernières valeurs (3 à 39 Bq/kg frais), en fonction des types de fruits (donc de leur teneur en carbone) et vraisemblablement des différences de méthodes de mesure entre la présente étude et les mesures du CEA.

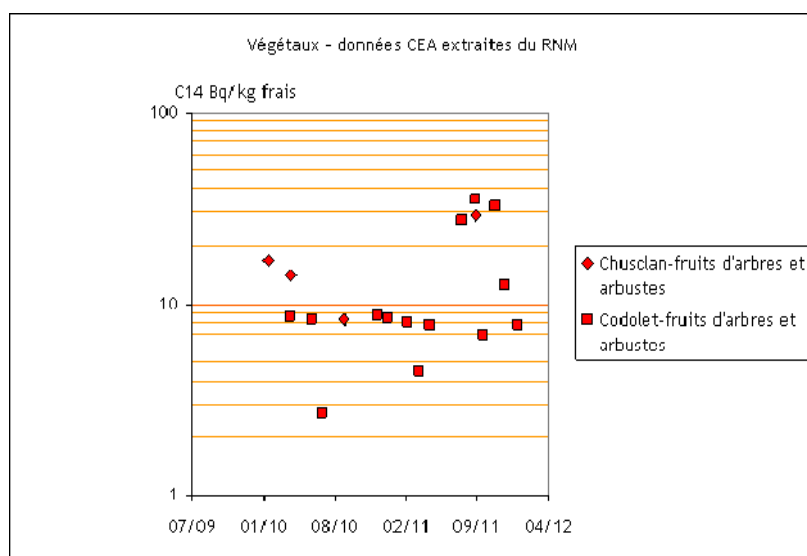


Figure 13. Résultats des mesures du carbone 14 dans les fruits autour de Marcoule. Données acquises par le CEA et publiées sur le site du RNM.

3.2.4 Conclusion sur le carbone 14

Les activités spécifiques du carbone 14 mesuré dans les feuilles annuelles de peuplier le long du Rhône se situent au niveau du bruit de fond (qui est à plus de 95% d'origine naturelle), à l'exception du voisinage très proche du site de Marcoule ; dans ce dernier cas, l'accroissement est minime (au maximum une dizaine de pourcents) et tend, comme pour l'ensemble des mesures d'activité spécifique du carbone 14 dans la biosphère terrestre, à diminuer au fil du temps.

¹⁴ Valeur moyenne géométrique proposée par défaut dans le TRS 472 de l'AIEA (2010) .

3.3 Résultats de mesure de tritium et de carbone 14 des échantillons de viande de sanglier

Les échantillons, obtenus grâce à la collaboration de chasseurs, ont été mesurés pour le tritium TOL et pour le carbone 14 (tableau 9 et figure 14). Une estimation du tritium total en Bq/kg frais est faite en considérant l'hypothèse que le tritium lié et libre sont en équilibre.

Tableau 9. Résultats des mesures de tritium et de carbone 14 dans les échantillons de viande de sanglier.

Date de prélèvement	Station (l'emprise de la zone de vie, et donc d'alimentation des animaux est de plusieurs hectares)	TOL Bq/L	Bq/kg frais estimé (avec HTO = TOL)	Bq ¹⁴ C/kg C	Bq ¹⁴ C /kg frais
19/02/2011	Bollène, Champclavel (environ 3 km du site de Pierrelate Tricastin - bordure du canal)	7,6 ± 0,7	8,0	240 ± 1,6	47,2
26/08/2009	Saint-Pons-la-Calm (environ 11 km ouest Marcoule)	2,9 ± 0,2	2,7	237 ± 1,7	29,6

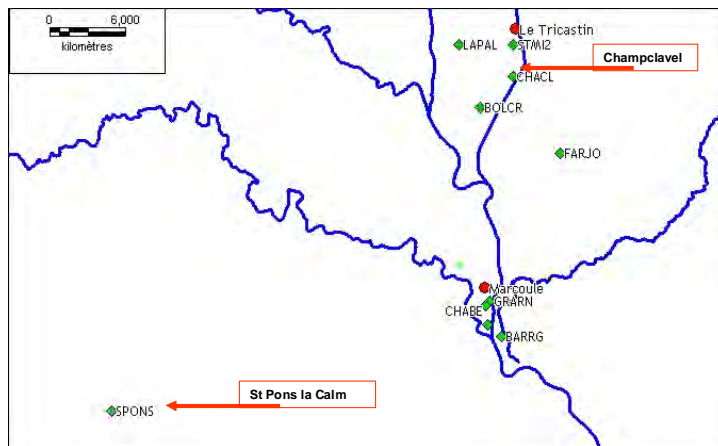


Figure 14. Localisation des prélèvements de sanglier.

Le sanglier abattu au lieu-dit Champclavel était confiné entre le canal et la clôture du centre de Pierrelate - Tricastin, en zone plus ou moins influencée par les rejets de ce site ; en revanche, le sanglier provenant de la commune de Saint-Pons se trouvait hors des vents dominants et suffisamment loin de Marcoule pour pouvoir être considéré comme vivant en zone non influencée. La concentration du tritium lié est significativement supérieure au bruit de fond ($7,6 \pm 0,7$ Bq/L) dans le premier cas et de l'ordre du bruit de fond dans le second cas ($2,9 \pm 0,2$ Bq/L) ; en ce qui concerne le carbone 14, la différence est plus discrète, mais va néanmoins dans le même sens : $240 \pm 1,6$ Bq/kg C à Champclavel, valeur légèrement plus élevée que le bruit de fond (234 ± 2 Bq/kg C en 2010) et $237 \pm 1,7$ Bq/kg C à Saint Pons, valeur égale au bruit de fond (237 ± 3 Bq/kg C en 2009). Ainsi, la viande de sanglier reflète les différences locales de position par rapport aux sites concernés. Ces niveaux d'activité ne présentent pas de risque sanitaire significatif, avec une dose efficace pour l'adulte inférieure à $0,1 \mu\text{Sv}$ par kg de viande ingérée.

4 Résultats des mesures de produits agricoles par spectrométrie gamma

La liste des radionucléides recherchés habituellement en spectrométrie gamma est reportée en annexe 3.

Les fourchettes de valeurs des limites de détection qui ont été obtenues lors des mesures en spectrométrie gamma et le pourcentage de résultats inférieurs à ces limites sont indiquées dans le tableau 10.

Dans la suite du chapitre, nous appelons « valeurs significatives » les résultats de mesure supérieurs aux limites de détection, notées « LD ».

Tableau 10. Limites de détection observées en spectrométrie gamma pour les échantillons de denrées de la présente étude et relatives aux isotopes dont tout ou partie des résultats sont inférieurs à LD.

Isotope	Pourcentage de résultats inférieurs à LD (%)	Limites de détection LD (Bq/kg frais)		
		Moyenne ** (sauf échantillons particuliers)	Minimum	Maximum ** (sauf échantillons particuliers)
Ag110m	100	0,024	0,006	0,093
Am241	100	0,024	0,003	0,090
Co57	100	0,007	0,002	0,021
Co58	100	0,264	0,007	0,330
Co60	100	0,036	0,007	0,110
Cs134	99	0,026	0,004	0,055
Cs137	39	0,038	0,004	0,250
Eu154	100	0,026	0,003	0,053
Mn54	100	0,040	0,005	0,036
Sb124	100	0,057	0,006	0,426
Sb125	100	0,070	0,011	0,110
Rh106	100	0,174	0,045	0,531
Ac228*	82	0,095	0,020	0,170
Be7*	59	0,180	0,04	0,350
Na22*	98	0,059	0,011	0,050
Pb210*	60	0,286	0,059	0,473
Th234*	2	0,170	0,031	0,404

* Isotopes d'origine naturelle.

** Sur des échantillons particuliers, ayant une forte teneur en matière sèche i.e., aromatiques, noix, châtaignes, miel..., la LD, exprimée en Bq/kg frais, est plus élevée atteignant 5 à 10 fois la LD maximale mentionnée dans cette colonne.

4.1 Radionucléides naturels

4.1.1 Potassium 40

Le potassium 40, toujours mesuré très au dessus des limites de détection quel que soit l'échantillon, est cité pour mémoire car le résultat de sa mesure est surtout utile pour détecter une erreur éventuelle dans la chaîne de traitement-mesure des échantillons. Nous indiquons les valeurs moyennes du ⁴⁰K mesurées dans les échantillons de la présente étude qui se situent dans la gamme des valeurs habituellement observées (tableau 11).

Tableau 11. Résultats de mesure du potassium 40 dans la présente étude et comparaison avec les valeurs habituellement mesurées.

Type d'échantillon	Présente étude						Autres études
	Date de prélèvement	Station	Échantillon	Site voisin*	Bq/kg frais	Moyenne Bq/kg frais	Moyenne (2005-2011) Bq/kg frais
Plantes aromatiques	23/06/2010	Bordure Nord	Romarin	TRI	264 ± 26	326	210
	21/04/2009	Grange Chabert	Thym	MAR	414 ± 45		
	21/04/2009	Les Granges Arnaud	Thym	MAR	472 ± 48		
	01/04/2010	Parc de Roquecouille	Thym	ZNI	224 ± 28		
	08/06/2010	Châteauneuf-du-Rhône	Thym	CRU	256 ± 27		
Céréales	23/06/2010	Bordure Nord	Blé	TRI	156 ± 15	123	160 (blé)
	06/10/2009	Brèche de Lauricet	Riz	MAR	90 ± 9		
Fruits	14/06/2010	Mas de San Rémo	Abricotier	ZNI	66 ± 8	60	75
	28/06/2010	Étoile-sur-Rhône	Abricotier	ZNI	76 ± 8		
	29/06/2010	Arras-sur-Rhône	Abricotier	ZNI	63 ± 6		
	27/06/2010	Charly	Cerisier	ZNI	63 ± 6		
	28/06/2010	Étoile-sur-Rhône	Pêcher	ZNI	57 ± 6		
	28/06/2010	Viviers	Pêcher	CRU	59 ± 6		
	22/06/2011	Cruas, Souliol	Pêcher	CRU	55 ± 6		
	01/08/2011	Montfavet	Pêcher	ZNI	53 ± 6		
	01/10/2009	Saint Laurent du Pape	Pommier	ZNI	41 ± 4		
	11/10/2010	Chevrier	Pommier	ZNI	39 ± 4		
	26/08/2009	Codolet	Vigne	MAR	69 ± 8		
	08/09/2010	Montagnieu	Vigne	BUG	53 ± 6		
	08/09/2010	Vaux-en-Bugey	Vigne	BUG	76 ± 8		
	26/08/2009	Grange Chabert	Vigne	MAR	64 ± 6		
07/09/2010	Andert et Condon	Vigne	CRM	62 ± 7			
Fruits secs	05/11/2010	Jaunac	Châtaigne	ZNI	179 ± 18	163	-
	01/10/2008	Polienas	Noyer	ZNI	147 ± 15		

.../...

Type d'échantillon	Présente étude						Autres études
	Date de prélèvement	Station	Échantillon	Site voisin*	Bq/kg frais	Moyenne Bq/kg frais	Moyenne (2005-2011) Bq/kg frais
Légumes	01/07/2010	Sauzet	Ail	CRU	170 ± 17	90	100
	12/10/2010	Cruas	Aubergine	CRU	77 ± 8		
	29/06/2010	Viviers	Courgette	CRU	50 ± 5		
	05/07/2010	La Croisière - Bollène	Courgette	TRI	106 ± 11		
	28/07/2009	Codolet	Salade	MAR	103 ± 10		
	14/06/2010	Mas de San Rémo	Salade	ZNI	137 ± 13		
	05/07/2010	La Croisière - Bollène	Salade	TRI	84 ± 8		
	14/06/2010	Mas de San Rémo	Poivron	ZNI	58 ± 6		
	28/06/2010	Communay	Salade	ZNI	78 ± 9		
	13/09/2010	Grigny	Tomate	ZNI	65 ± 7		
21/09/2010	Valence	Tomate	ZNI	64 ± 7			
laits	19/04/2010	Châteauneuf-du-Rhône	Lait de chèvre	CRU	63 ± 6	50	50
	18/04/2011	Les Farjons	Lait de chèvre	TRI	66 ± 7		
	14/04/2010	Ferme Quincieu	Lait de vache	CRM	46 ± 5		
	15/04/2010	Hameau de Velay	Lait de vache	ALB	38 ± 4		
	21/09/2010	Dardilly	Lait de vache	ZNI	45 ± 5		
	11/10/2010	Seysssel	Lait de vache	ZNI	42 ± 5		
Fromage de chèvre	08/04/2010	Toulaud	From. chèvre	ZNI	70 ± 8	78	40
	21/04/2010	Les Farjons	From. chèvre	TRI	117 ± 12		
	28/06/2010	Saint-Uze	From. chèvre	ZNI	46 ± 5		
Vins	15/09/2008	Toulaud	Vin blanc	ZNI	22 ± 2	23	45
	08/09/2010	Montagnieu	Vin blanc	BUG	12 ± 1		
	08/09/2010	Vaux-en-Bugey	Vin blanc	BUG	22 ± 2		
	15/09/2009	Arras-sur-Rhône	Vin rouge	ZNI	31 ± 3		
	30/08/2011	Andert et Condon	Vin rouge	CRM	26 ± 3		
Miel	15/06/2009	Vion	Miel	ZNI	6 ± 1	-	-
	29/09/2010	La Croisière - Bollène	Miel	TRI	22 ± 3		
	11/10/2010	Barrage - Caderousse	Miel	MAR	7 ± 1		
Viandes	15/01/2010	Le Poulet	Boeuf	CRM	107 ± 11	87	100
	21/04/2010	Droisy	Boeuf	ZNI	91 ± 10		
	26/05/2010	Lapalud	Poule	TRI	41 ± 5		
	02/09/2010	Dardilly	Boeuf	ZNI	101 ± 11		
	17/09/2010	St Maurice de Gourdans	Boeuf	BUG	99 ± 10		
	21/09/2010	Savasse	Poule	CRU	40 ± 5		
	26/11/2010	Le Cast, Maillane	Taureau	MAR	102 ± 10		
	18/12/2010	Col des Sagnes	Mouton	ZNI	88 ± 9		
	18/04/2011	Monstereux Milieu	Boeuf	ZNI	96 ± 10		
	26/08/2009	Saint-Pons-la-Calm	Sanglier	MAR	102 ± 10		
	19/02/2011	Bollène, Champclavel	Sanglier	TRI	85 ± 10		

* Site voisin : CRM = Creys-Malville ; BUG = Bugey ; ALB = St Alban ; CRU = Cruas ; TRI = Tricastin-Pierrelatte ; MAR = Marcoule ; mention ZNI = le prélèvement est situé en zone non influencée.

4.1.2 Plomb 210, béryllium 7 et sodium 22

Trois radionucléides naturels provenant de dépôts atmosphériques¹⁵ peuvent être détectés sporadiquement : le plomb 210, le béryllium 7 et le sodium 22.

Le ²¹⁰Pb (chaîne de ²³⁸U), naturellement très fluctuant, est mesuré au dessus des limites de détection dans 60 % des échantillons. Les LD varient de 0,06 à 0,5 Bq/kg frais. Dans les productions agricoles, l'activité massique est de $0,06 \pm 0,02$ à $1,73 \pm 0,23$ Bq/kg frais. L'activité massique est nettement plus élevée dans les plantes aromatiques (romarin et thym), variant de $12,9 \pm 1,3$ à $92,0 \pm 8,5$ Bq/kg frais. Ces valeurs élevées traduisent la présence de poussières de sol sur ces végétaux pérennes, qui de plus ont une proportion forte de matière sèche, ce qui entraîne des valeurs fortes lorsque les concentrations sont relatives au poids frais.

Le ⁷Be est mesuré aléatoirement au dessus de la limite de détection, du fait notamment de sa courte période. Dans plus de la moitié des échantillons, il se trouve inférieur aux limites de détection qui s'échelonnent de 0,04 à 0,4 Bq/kg frais, en excluant les produits à forte teneur en matière sèche pour lesquels la LD varie de 1 Bq/kg frais (miel) à 91 Bq/kg frais (moyenne 0,35). Dans les échantillons où l'activité du ⁷Be est significative, elle varie entre $0,20 \pm 0,04$ Bq/kg frais (salade) à $10,8 \pm 1,2$ Bq/kg frais dans le riz ; comme précédemment les aromatiques présentent des valeurs fortes : $17 \pm 1,6$ à 336 ± 45 Bq/kg frais.

Le ²²Na n'est mesuré au dessus de la limite de détection que dans deux échantillons de viande de sanglier $0,09 \pm 0,04$ et $0,08 \pm 0,01$ Bq/kg frais, à un niveau proche des limites de détection, dont la moyenne est de 0,06 Bq/kg frais.

4.1.3 Thorium 234 et actinium 228

Ces radionucléides font partie des descendants de deux des trois familles de radioéléments naturels, uranium 238 et thorium 232 qui proviennent de l'écorce terrestre.

Le thorium 234 (²³⁴Th) est à l'équilibre¹⁶ avec l'uranium 238 (²³⁸U) et l'actinium 228 (²²⁸Ac) est à l'équilibre avec le thorium 232 (²³²Th), cf. figure 15. La mesure par spectrométrie gamma de ces éléments permet de mieux connaître le bruit de fond naturel en ²³⁸U et ²³²Th, normalement sujet à une grande variabilité géographique.

En ce qui concerne les denrées, le thorium 234 est presque toujours inférieur aux limites de détection qui varient de 0,03 à 0,4 Bq/kg frais ; seuls deux échantillons (salade de Codolet en ZI et thym de Châteaurenard en ZNI) présentent des valeurs significatives : $0,84 \pm 0,22$ et $0,32 \pm 0,20$ Bq/kg frais.

La plupart (82 %) des résultats relatifs à l'actinium 228 sont également inférieurs aux limites de détection : 0,01 à 0,17 Bq/kg frais. Néanmoins il est mesuré dans quelques échantillons en ZNI comme à proximité des sites nucléaires (tableau 12). On peut remarquer les valeurs élevées des résultats obtenus sur les aromates, liées comme dans les cas précédents à la forte teneur en matière sèche de ces végétaux et probablement aussi à la présence de poussières de sol.

L'ensemble de ces résultats ne présente aucune anomalie.

¹⁵ Le plomb 210 présent dans l'atmosphère provient du radon émané du sol, qui est d'origine tellurique et provient de la chaîne de l'uranium ²³⁸U.

¹⁶ « Équilibre » signifie ici, d'activité massique sensiblement égale.

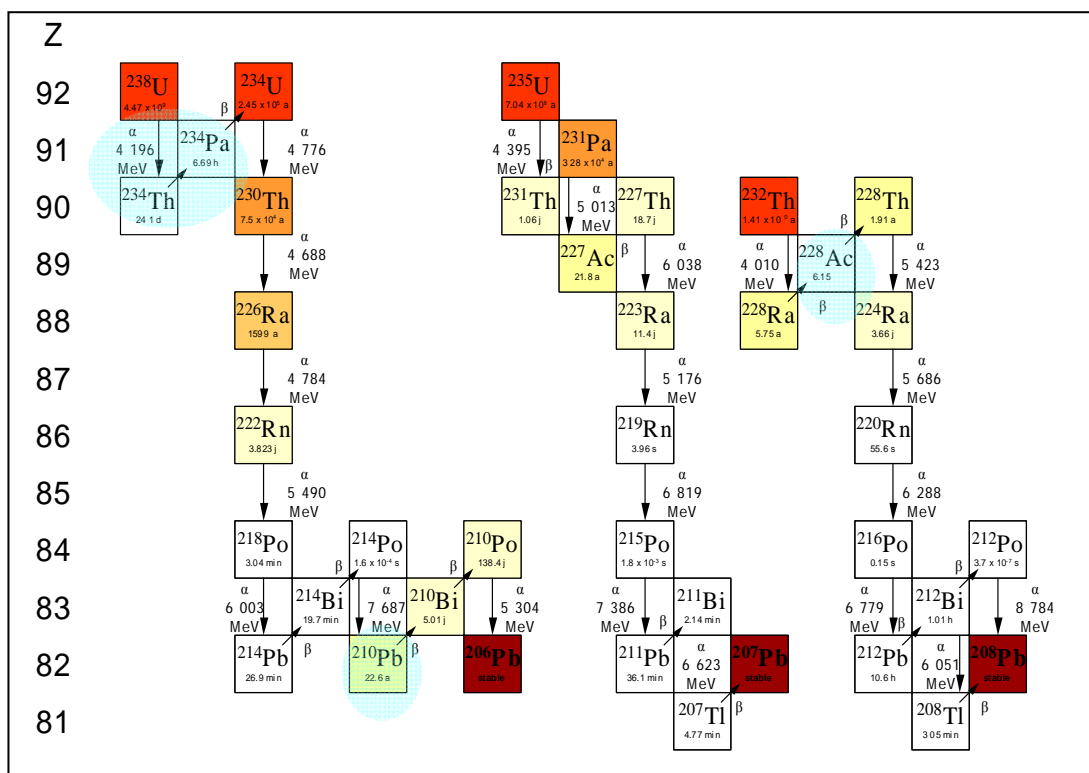


Figure 15 : Schémas de désintégration radioactive des chaînes U-Th (selon Le Roux, 2007, d'après Bourdon et al., 2003). L'échelle de couleur plus ou moins foncée (blanc à marron) traduit une plus ou moins longue période radioactive. Les têtes de séries sont figurées en rouge et les isotopes détectés habituellement en spectrométrie gamma sont figurés en trame bleu. Z est le numéro atomique.

Tableau 12. Résultats des mesures significatives en ^{228}Ac

Date de prélèvement,	Station	Espèce	Site voisin*	Bq/kg frais
28/06/2010	Communay	Salade	ZNI	0,05 ± 0,02
26/05/2010	Lapalud	Poule	TRI	0,11 ± 0,02
23/06/2010	Nord de la clôture du site STMI	Blé	TRI	0,24 ± 0,06
21/09/2010	Savasse	Poule	CRU	0,35 ± 0,06
23/06/2010	Nord de la clôture du site STMI	Romarin	TRI	0,61 ± 0,13
28/07/2009	Codolet	Salade	MAR	0,88 ± 0,16
01/04/2010	Parc de Roquecoquille	Thym	ZNI	1,52 ± 0,24
08/06/2010	Châteauneuf-du-Rhône	Thym	CRU	2,17 ± 0,31
21/04/2009	Les Granges Arnaud - Codolet	Thym	MAR	3,15 ± 0,48
21/04/2009	Grange Chabert - Codolet	Thym	MAR	4,14 ± 0,65

* ZNI : zone non influencée ; TRI : Tricastin-Pierrelatte ; CRU : Cruas ; MAR : Marcoule.

4.2 Radionucléides artificiels recherchés en spectrométrie gamma

Le seul radionucléide artificiel, mesuré en spectrométrie gamma au dessus des limites de détection est le ^{137}Cs rémanent provenant des retombées de l'accident de Tchernobyl et des essais atmosphériques d'armes nucléaires, à l'exception d'une valeur, faible mais significative, en ^{134}Cs dans un échantillon de viande, imputable aux dépôts sur l'herbe pâturée des retombées de l'accident de Fukushima. Les autres radionucléides artificiels recherchés en spectrométrie gamma, $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{241}Am ¹⁷, ^{57}Co , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{154}Eu , ^{54}Mn , ^{124}Sb , ^{125}Sb et ^{106}Rh , présentent des résultats inférieurs aux limites de détection. En effet, les rejets des installations sont trop faibles pour marquer de manière détectable l'environnement terrestre.

4.2.1 Césium 134

Plus de 99 % des échantillons présentent des valeurs inférieures à la limite de détection en ^{134}Cs (0,04 à 0,06 Bq/kg frais). Un seul échantillon de viande de bœuf prélevé le 18/04/2011 à Montseroux-Milieu (15 km à l'est de Saint-Alban, en ZNI) présente une concentration mesurable en ^{134}Cs : $0,0212 \pm 0,0065$ Bq/kg frais, comme d'autres échantillons de viande prélevés ailleurs, à la même période. Cette présence de ^{134}Cs en très faible concentration est imputable aux retombées de Fukushima sur les herbages et fait partie des très rares valeurs de ^{134}Cs qui ont pu être mesurées temporairement, en milieu terrestre, en France, après cet accident (cf. § 6.4).

4.2.2 Césium 137

4.2.2.1 Origine et variabilité du ^{137}Cs sur le territoire.

Les niveaux actuels de ^{137}Cs dans l'environnement sont dépendants de l'activité initialement déposée sur les sols. Les dépôts théoriques de ^{137}Cs liés aux retombées des essais militaires atmosphériques et de l'accident de Tchernobyl ont été reconstitués à grande échelle (e. g., Renaud et al., 2007 ; Renaud et al., 2004 ; Roussel-Debet et al., 2007), cf. figure 16.

La vallée du Rhône a été inégalement impactée par l'accident de Tchernobyl : les dépôts totaux y sont estimés en moyenne entre 5 000 et 10 000 Bq/m² (valeurs ramenées à 2010). Cette variabilité initiale des dépôts peut encore se traduire par des différences de niveau de contamination des différentes composantes de l'environnement. Par ailleurs, les retombées de l'accident de Fukushima (mars 2011) ont donné lieu, en France, à des dépôts de ^{137}Cs extrêmement faibles, et dont les conséquences sur les niveaux mesurés ne sont pas discernables de celles qui prévalaient auparavant.

¹⁷ L'américium 241 ne peut être mesuré en spectrométrie gamma que s'il est présent en relativement fortes concentrations, ce pourquoi son mesurage s'effectue, le cas échéant, par d'autres méthodes (spectrométrie alpha, spectrométrie de masse...).

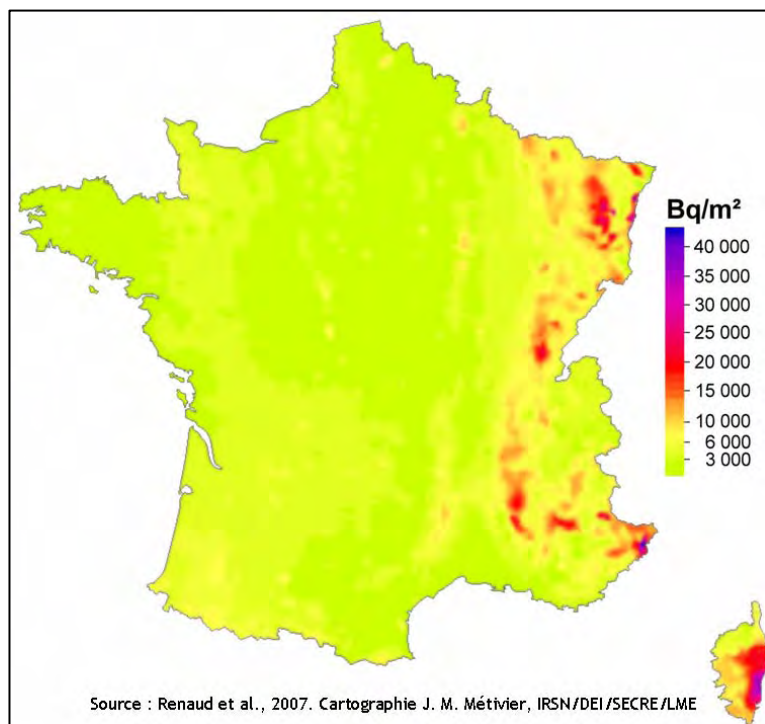
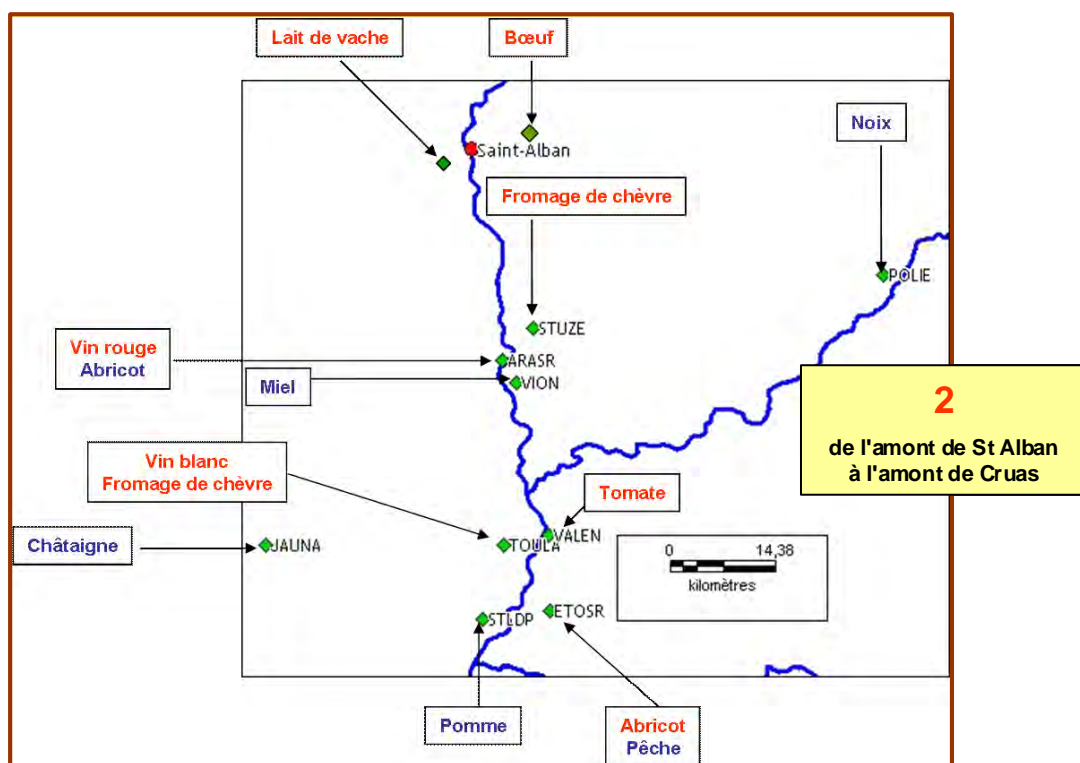
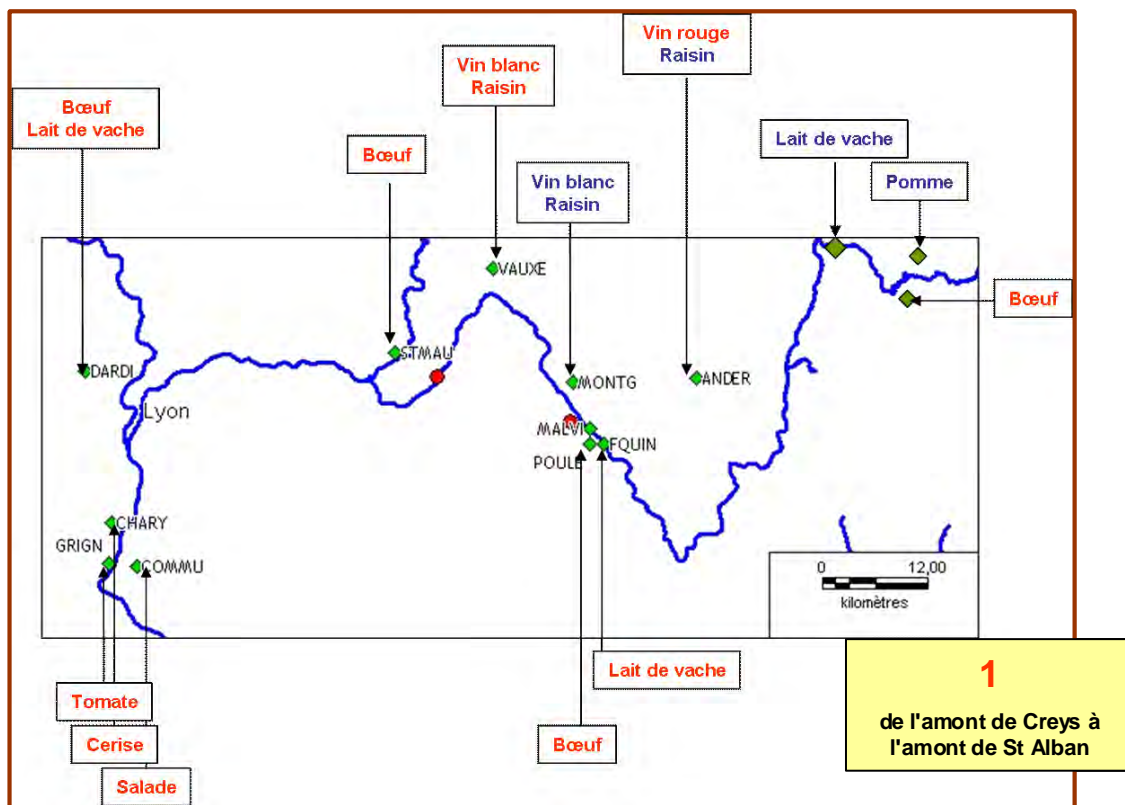


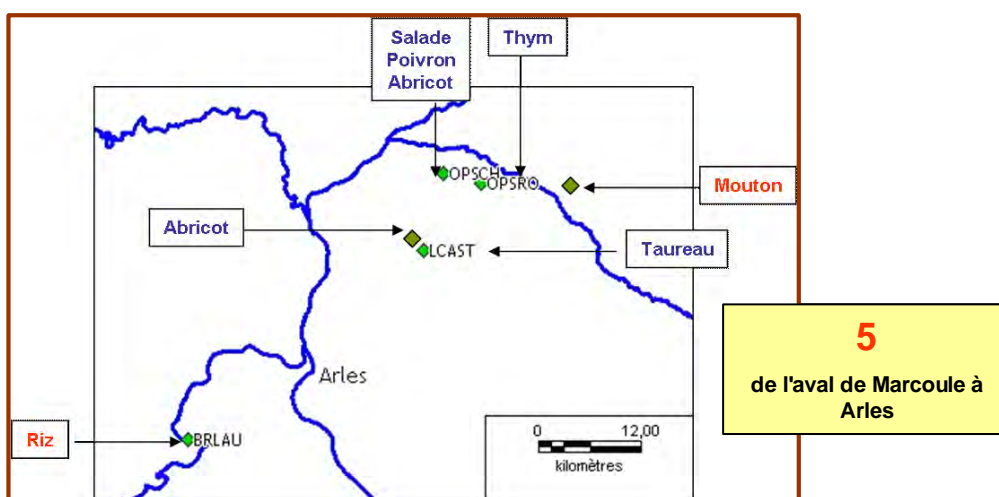
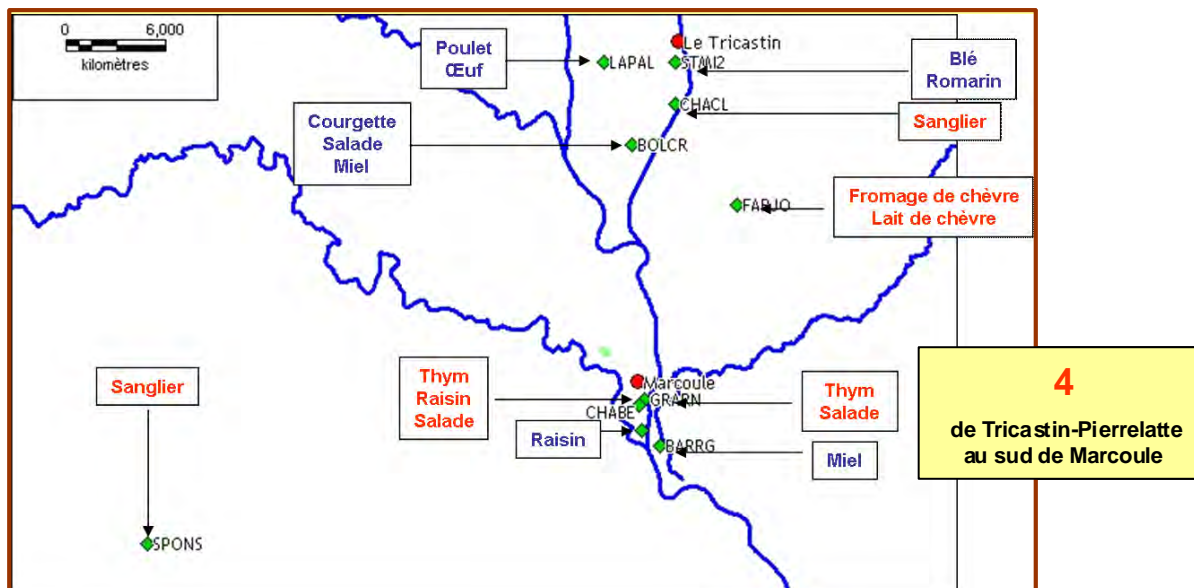
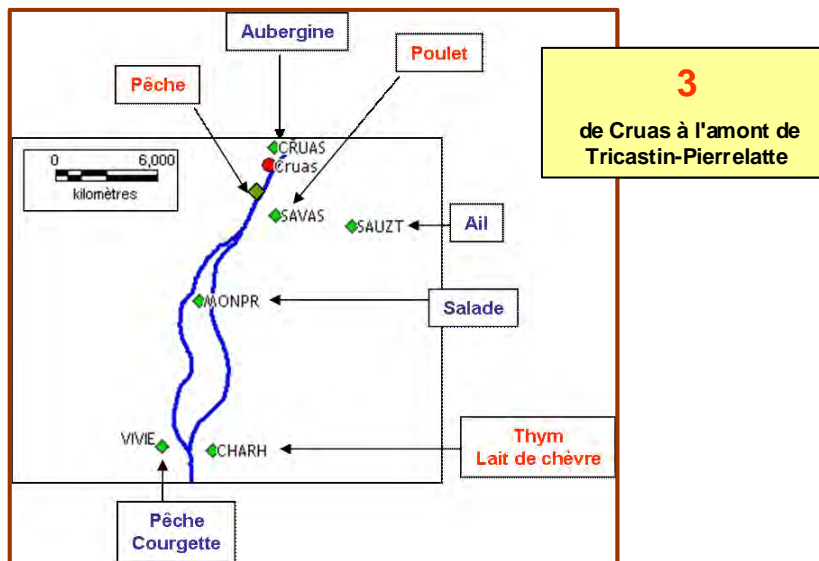
Figure 16. Carte des activités théoriques de ^{137}Cs dans les sols en 2006 résultant des retombées des tirs atmosphériques d'armes nucléaires et de l'accident de Tchernobyl.

Le ^{137}Cs est mesuré au dessus des limites de détection dans 61 % des échantillons (tableau 13 et figure 17). À l'exception du ^{134}Cs de l'échantillon de viande mentionné dans le paragraphe précédent, c'est en milieu terrestre, dans le cadre de cette étude, le seul radionucléide artificiel mesuré en spectrométrie gamma au dessus des limites de détection. Il n'y a aucune corrélation entre les localisations respectives des échantillons en zones influencées ou non et la répartition des résultats entre les valeurs détectées au dessus des limites de détection et celles inférieures à LD ; par rapport à la totalité des mesures, le pourcentage de mesures significatives est similaire en ZNI (29 %) et en ZI (32 %). Par ailleurs, si l'on excepte les valeurs relativement fortes, mais non anormales, des 2 échantillons de thym prélevés à Codolet (valeurs proches de 1 Bq/kg frais et rapport de poids frais/sec de 1,1) et de l'échantillon de sanglier de St Pons-la Calm en ZNI ($3,2 \pm 0,3$ Bq/kg frais), les résultats ZI et ZNI sont globalement équivalents, toutes matrices confondues. Les moyennes respectives des autres échantillons sont de 0,11 Bq/kg frais en ZNI et de 0,08 Bq/kg frais en ZI sans différence significative dans la distribution des valeurs entre ces deux zones.



Légende : en rouge : le ^{137}Cs a été mesuré au dessus de LD ; en bleu : le ^{137}Cs est < LD.

Figure 17. Localisation des prélèvements et indication du résultat (significatif ou non) de la mesure du ^{137}Cs .



Légende : en rouge : le ^{137}Cs a été mesuré au dessus de LD ; en bleu : le ^{137}Cs est < LD.

(...suite de la figure 17).

Tableau 13. Résultats de mesure du ¹³⁷Cs dans les produits agricoles et denrées.

Date de prélèvement	Station	Échantillon	Site*	Bq/kg frais ou Bq/L
15/09/2008	Toulaud	Vin blanc	ZNI	0,032 ± 0,004
15/09/2009	Arras-sur-Rhône	Vin rouge	ZNI	0,031 ± 0,004
08/09/2010	Vaux-en-Bugey	Vin blanc	BUG	0,007 ± 0,003
08/09/2010	Montagnieu	Vin blanc	BUG	< 0,004
30/08/2011	Andert et Condon	Vin rouge	CRM	0,014 ± 0,004
21/04/2009	Les Granges Arnaud - Codolet	Thym	MAR	0,958 ± 0,109
21/04/2009	Grange Chabert - Codelet sud	Thym	MAR	1,145 ± 0,136
01/04/2010	Parc de Roquecoquille	Thym	ZNI	0,488 ± 0,056
08/06/2010	Châteauneuf-du-Rhône	Thym	CRU	0,423 ± 0,054
23/06/2010	Bordure Nord de la clôture du site	Romarin	TRI	< 0,042
06/10/2009	Brèche de Lauricet	Riz	MAR	0,031 ± 0,017
23/06/2010	Bordure Nord de la clôture du site	Blé	TRI	< 0,023
15/01/2010	Le Poulet, Creys et Pusignieu	Bœuf	CRM	0,082 ± 0,011
21/04/2010	Droisy	Bœuf	ZNI	0,019 ± 0,006
02/09/2010	Dardilly	Bœuf	ZNI	0,102 ± 0,013
17/09/2010	St Maurice de Gourdans	Bœuf	BUG	0,019 ± 0,006
26/11/2010	Le Cast, Maillane	Taureau	MAR	< 0,075
18/12/2010	Col des Sagnes	Mouton	ZNI	0,067 ± 0,011
18/04/2011	Monsteroux Milieu	Bœuf	ZNI	0,115 ± 0,039
01/10/2008	Polienas	Noix	ZNI	< 0,091
05/11/2010	Jaunac	Châtaigne	ZNI	0,842 ± 0,089
01/10/2009	Saint Laurent du Pape	Pomme	ZNI	< 0,016
14/06/2010	Chemin du Mas de San Rémo	Abricot	ZNI	< 0,010
14/06/2010	Chemin du Mas de San Rémo	Abricot	ZNI	< 0,010
27/06/2010	Charly	Cerise	ZNI	< 0,025
28/06/2010	Étoile-sur-Rhône	Abricot	ZNI	0,014 ± 0,006
28/06/2010	Étoile-sur-Rhône	Pêche	ZNI	< 0,012
28/06/2010	Viviers	Pêche	CRU	< 0,012
29/06/2010	Arras-sur-Rhône	Abricot	ZNI	< 0,050
11/10/2010	Chevrier	Pomme	ZNI	< 0,008
22/06/2011	Cruas, Souliol	Pêche	CRU	0,008 ± 0,004
01/08/2011	Montfavet	Pêche	ZNI	< 0,016
07/09/2010	Andert et Condon	Raisin	CRM	< 0,013
08/09/2010	Vaux-en-Bugey	Raisin	BUG	0,012± 0,005
08/09/2010	Montagnieu	Raisin	BUG	< 0,025
26/08/2009	Grange Chabert - Codelet sud	Raisin	MAR	0,016± 0,005
26/08/2009	Cimetière de Codolet	Raisin	MAR	< 0,016
26/08/2009	Saint-Pons-la-Calm	Sanglier	ZNI	3,231 ± 0,301
19/02/2011	Bollène, Champclavel	Sanglier	TRI	0,037 ± 0,005
28/07/2009	Codolet	Salade	MAR	0,378 ± 0,047
14/06/2010	Châteaurenard	Salade	ZNI	0,011 ± 0,004
28/06/2010	Communay	Salade	ZNI	0,010 ± 0,004
05/07/2010	La Croisière - Bollène	Salade	TRI	< 0,029

Date de prélèvement	Station	Échantillon	Site*	Bq/kg frais ou Bq/L
14/06/2010	Châteaurenard	Poivron	ZNI	0,004 ± 0,002
29/06/2010	Viviers	Courgette	CRU	< 0,009
01/07/2010	Sauzet	Ail	CRU	< 0,029
05/07/2010	La Croisière - Bollène	Courgette	TRI	< 0,014
13/09/2010	Grigny	Tomate	ZNI	0,013 ± 0,004
21/09/2010	Valence	Tomate	ZNI	0,050 ± 0,007
12/10/2010	Cruas	Aubergine	CRU	< 0,012
14/04/2010	Ferme Quincieu	Lait de vache	CRM	0,008 ± 0,003
15/04/2010	Hameau de Velay	Lait de vache	ALB	0,071 ± 0,011
21/09/2010	Dardilly	Lait de vache	ZNI	0,028 ± 0,005
11/10/2010	Seyssel	Lait de vache	ZNI	0,010 ± 0,003
19/04/2010	Châteauneuf-du-Rhône	Lait de chèvre	CRU	0,013 ± 0,004
18/04/2011	Les Farjons	Lait de chèvre	TRI	0,034 ± 0,006
08/04/2010	Toulaud	Fromage de chèvre	ZNI	0,068 ± 0,011
21/04/2010	Les Farjons	Fromage de chèvre	TRI	0,136 ± 0,021
28/06/2010	Saint-Uze	Fromage de chèvre	ZNI	0,067 ± 0,012
26/05/2010	Lapalud	Poule œuf	TRI	< 0,008
21/09/2010	Savasse	Poulet	CRU	0,009 ± 0,005
15/06/2009	Vion	Miel	ZNI	< 0,080
29/09/2010	La Croisière - Bollène	Miel	TRI	< 0,110
11/10/2010	Barrage de Caderousse	Miel	MAR	< 0,250

* Site voisin : CRM = Creys-Malville ; BUG = Bugey ; ALB = St Alban ; CRU = Cruas ; TRI = Tricastin-Pierrelatte ; MAR = Marcoule ; mention ZNI = le prélèvement est situé en zone non influencée.

4.2.2.2 Comparaison des résultats de mesure du ¹³⁷Cs dans les denrées de la vallée du Rhône avec d'autres données

Pour examiner les valeurs du ¹³⁷Cs obtenues dans la présente étude, nous disposons des données acquises dans le cadre de l'Observatoire permanent de la radioactivité dans l'environnement (OPERA) de l'IRSN, dont les stations sont, par définition, situées hors de l'influence de toute installation nucléaire, ainsi que de résultats acquis lors d'études particulières sur des zones non influencées.

Remarque : pour alléger la lecture, les résultats de mesure qui sont présentés ci-après ne sont pas affectés de leurs incertitudes respectives (10 à 15 % en général et jusqu'à 50 % pour les valeurs les plus proches des LD) ; celles-ci figurent dans le tableau 13.

Fruits de vergers et raisins

Une attention particulière a été portée aux fruits de vergers qui, d'une part, sont habituellement peu échantillonnés et, d'autre part, représentent une production importante en vallée du Rhône. Sur 18 échantillons prélevés, seuls 5 présentent des concentrations en ^{137}Cs supérieures à LD. La concentration maximale est mesurée dans les châtaignes, en ZNI : 0,8 Bq/kg frais. Outre le fait qu'il s'agit d'un fruit peu riche en eau (rapport de poids frais/sec = 1,8), ceci traduit une rémanence en ^{137}Cs de la zone de prélèvement (collines boisées). En revanche la concentration dans les noix (ZNI) est < LD. En ce qui concerne les autres fruits (abricots, cerises, pêches, pommes, raisins), seuls quatre d'entre eux présentent des valeurs très légèrement supérieures aux LD : du raisin à proximité de Marcoule 0,016 Bq/kg frais, des abricots à Étoile/Rhône en ZNI (0,014 Bq/kg frais, du raisin près du Bugey (0,012 Bq/kg frais) et des pêches à proximité de Cruas (0,008 Bq/kg frais). D'autres échantillons, prélevés en ZI près de ces mêmes sites (raisin à proximité de Marcoule, de Creys-Malville et de Bugey, pêches près de Cruas), présentent des valeurs de ^{137}Cs < LD (LD variant entre 0,01 et 0,03). Les valeurs significatives ne témoignent d'aucun marquage qui serait imputable à des rejets d'installations, comme le montre également la figure 18 où sont représentés à titre de comparaison des données acquises sur des fruits (abricots, poires, cerises, pommes, raisin) prélevés dans des zones hors de toute installation (OPERA et autres études particulières).

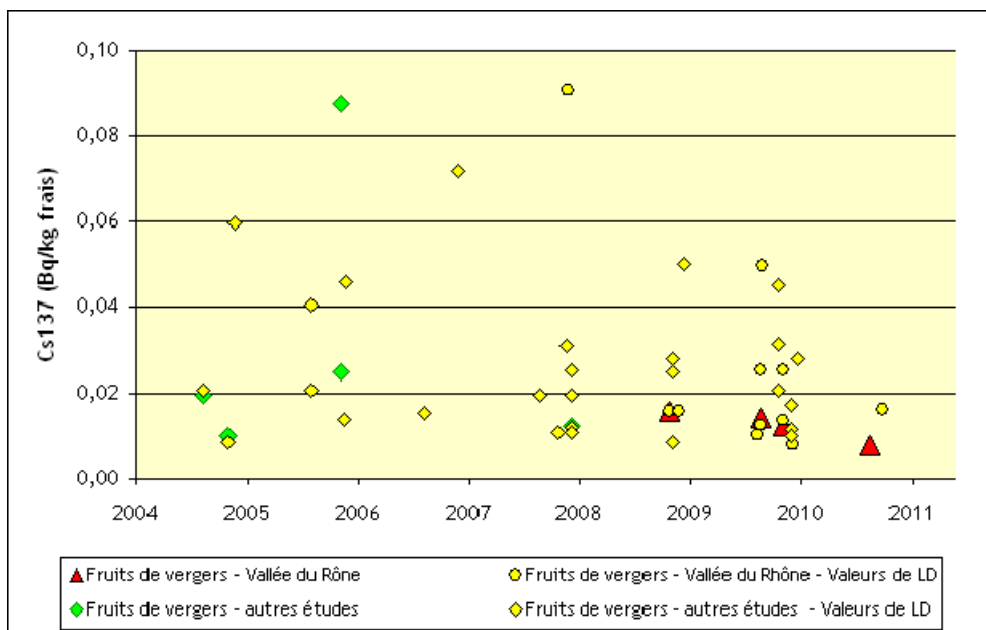


Figure 18. Comparaison des valeurs du ^{137}Cs d'échantillons de fruits de la vallée du Rhône et de ceux prélevés ailleurs, en zone non influencée.

Légumes

La moitié des échantillons de légume présentent des valeurs inférieures à LD, notamment des productions spécifiques (courgettes, ail, aubergine) et ceci à proximité des sites de Cruas et Tricastin. Les valeurs mesurées sont du même ordre que les LD et vont de 0,004 Bq/kg frais (poivron, en ZNI, à Châteaurenard) à 0,05 Bq/kg frais (tomate, en ZNI, à Valence) et se situent dans la gamme de ce qui est habituellement mesuré hors de toute influence de rejets (figure 19). La salade prélevée à proximité de Marcoule en 2009 présente des valeurs plus fortes (0,38 Bq/kg frais) témoin d'une rémanence plus élevée déjà constatée dans cette zone (cf. § 6.1 concernant les sols aux alentours de Marcoule).

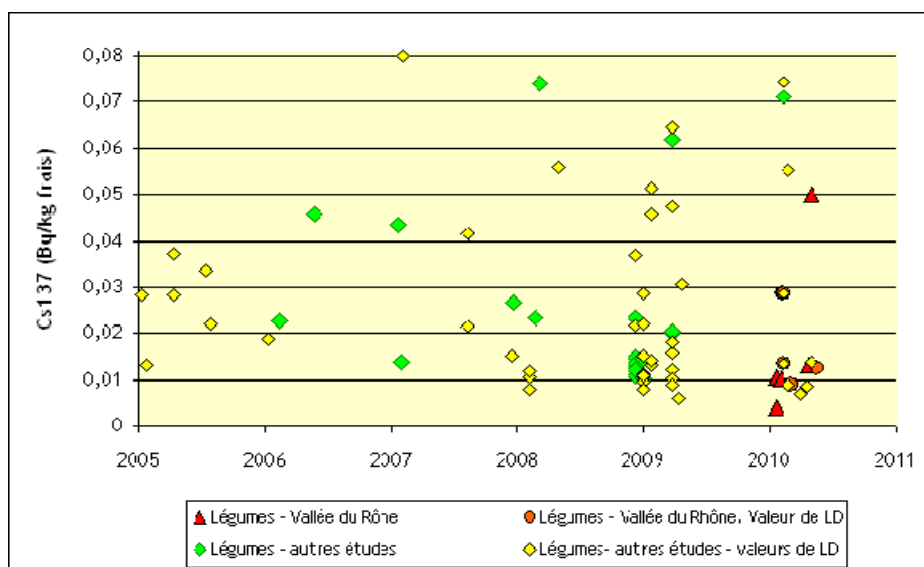


Figure 19. Comparaison des valeurs du ¹³⁷Cs d'échantillons de légumes de la vallée du Rhône et de ceux prélevés ailleurs, en zone non influencée.

Plantes aromatiques

Les valeurs obtenues dans le thym et le romarin s'échelonnent entre < LD (romarin prélevé en ZI près de Tricastin-Pierrelatte) et jusqu'à 1 Bq/kg frais pour les deux échantillons de thym prélevés au voisinage de Marcoule. L'activité du ¹³⁷Cs dans les deux échantillons prélevés respectivement à Châteauneuf du Rhône (ZNI) et à proximité de Cruas (ZI) est du même ordre de grandeur que les valeurs obtenues régulièrement à Châteaurenard (station de l'observatoire OPERA), soit environ 0,3 à 0,5 Bq/kg frais.

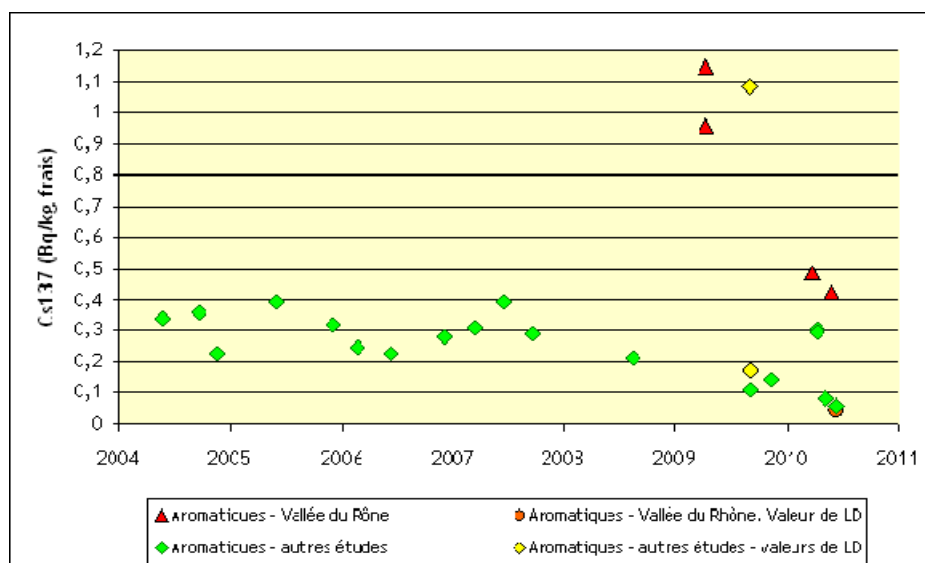


Figure 20. Comparaison des valeurs du ¹³⁷Cs d'échantillons de plantes aromatiques de la vallée du Rhône et de ceux prélevés ailleurs, en zone non influencée.

Vins

Trois des quatre échantillons de vins prélevés présentent des activités en ^{137}Cs proches des LD : de 0,014 (ZI Creys Malville) à 0,032 Bq/L (ZNI, Arras/Rhône). Elles sont de l'ordre de celles qui ont été acquises en ZNI, en Val de Loire. La comparaison avec les données acquises par ailleurs (peu de valeurs ont été acquises récemment dans d'autres études, en ZNI) est représentée figure 21.

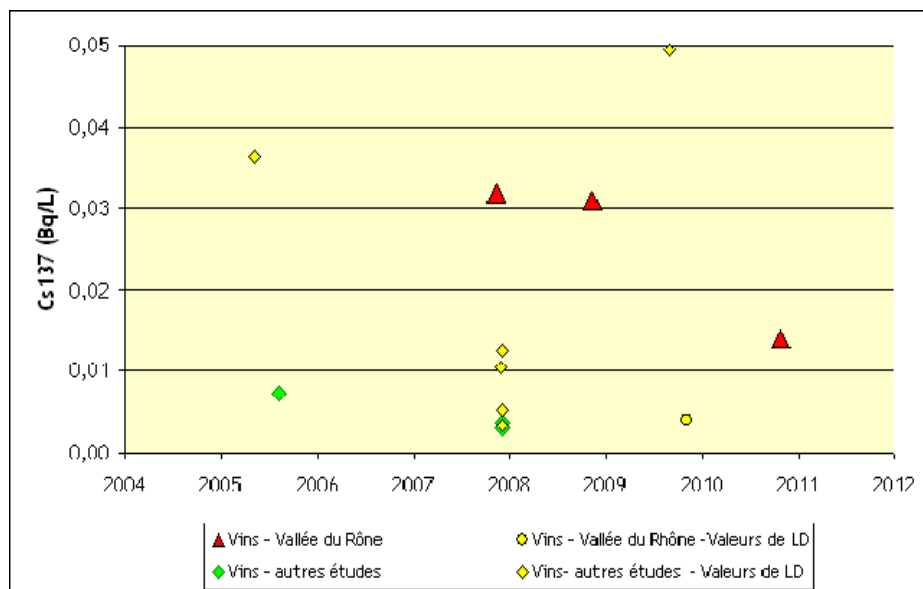


Figure 21. Comparaison des valeurs du ^{137}Cs d'échantillons de vins de la vallée du Rhône et de ceux prélevés ailleurs, en zone non influencée.

Miel

Trois échantillons ont été prélevés, deux en ZI (Marcoule et Tricastin-Pierrelatte) et un en ZNI. Ils présentent tous des valeurs inférieures à LD ; par comparaison, du miel de bruyère prélevé dans le Massif Central atteignait 0,6 Bq/kg frais en 2002 et 2010 (cf. figure 22).

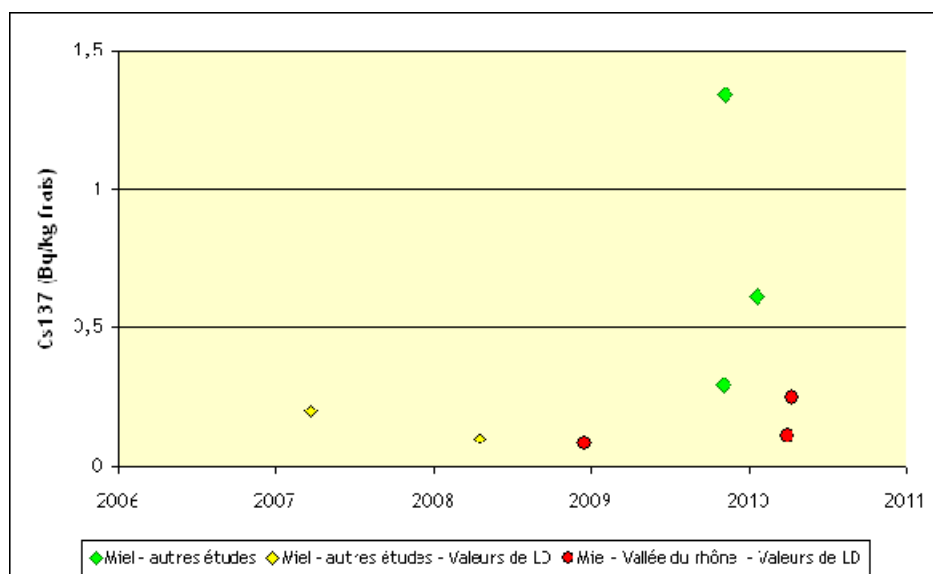


Figure 22. Comparaison des valeurs du ^{137}Cs d'échantillons de miel de la vallée du Rhône et de ceux prélevés ailleurs, en zone non influencée.

Céréales

Deux céréales ont été prélevées : du blé à proximité du site de Tricastin ($< \text{LD}$) et du riz de Camargue : 0,03 Bq/kg frais, valeur comparable à ce qui avait été mesuré à Albaron (Camargue) dans les années 1994 - 1995 (Descamps et al., 1997).

Viandes (muscles)

Le césium ingéré parvient plus particulièrement aux muscles. Tous les échantillons de viande de bœuf présentent des valeurs supérieures aux limites de détection, variant entre 0,02 et 0,12 Bq/kg frais en ZNI et 0,08 et 0,02 en ZI (cf. tableau 13). L'activité en ^{137}Cs de la viande de taureau est < LD et celle du mouton (en ZNI) est à un niveau proche (0,07 Bq/kg frais). Les activités de la volaille et des œufs sont inférieures ou de l'ordre de grandeur des LD. Tous ces résultats sont dans la gamme des données acquises par ailleurs (Bretagne, Val de Loire, Jura, Corse, Massif Central...), cf. figure 23. La viande de sanglier présente des valeurs différentes selon l'échantillon : 0,04 Bq/kg frais pour le sanglier vivant à proximité immédiate du centre de Tricastin (en plaine) et 3,2 Bq/kg frais pour celui provenant des coteaux à plus de 10 km à l'ouest de Marcoule (ZNI), zone boisée probablement davantage impactée par les retombées atmosphériques anciennes. Ces valeurs sont également cohérentes avec celles disponibles en Bretagne (autour de 1 Bq/kg frais) dans le Jura (4,8 Bq/kg frais) ou dans les Vosges, zone de forte rémanence des dépôts anciens (79 Bq/kg frais en 2008).

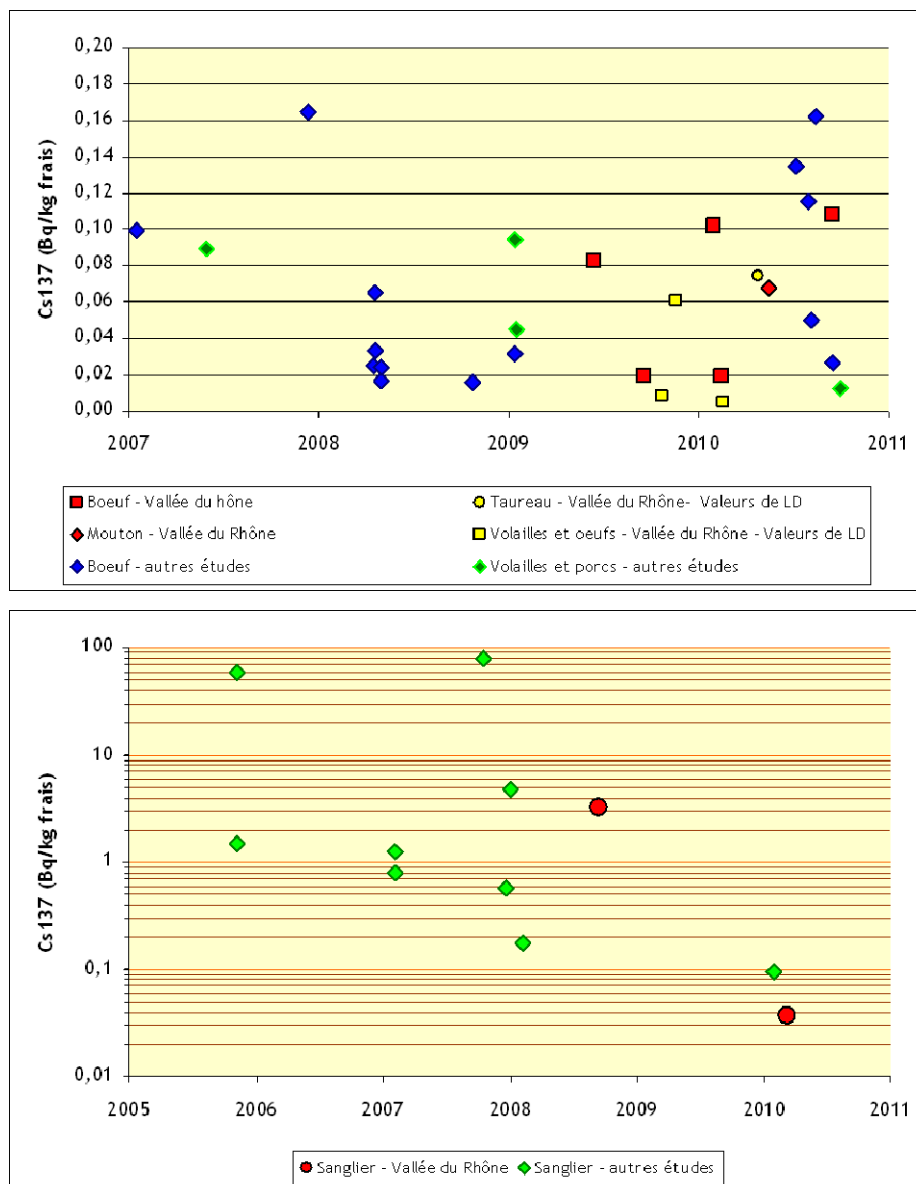


Figure 23. Comparaison des valeurs de ^{137}Cs d'échantillons de viandes et de gibier de la vallée du Rhône et de ceux prélevés ailleurs, en zone non influencée.

Lait et fromage de chèvre, lait de vache

Les deux échantillons de lait de chèvre (Tricastin et Cruas) présentent respectivement des valeurs de 0,034 Bq/L et 0,013 Bq/L, dans la gamme de ce qui est observé habituellement dans la cadre d'OPERA. Il en est de même du fromage de chèvre (0,07 à 0,13 Bq/kg frais) prélevé en ZI et en ZNI. Quatre échantillons de lait de vache ont été prélevés, deux en ZI (Creys-Malville et St-Alban) et deux en ZNI. Les valeurs varient de 0,008 à 0,07 Bq/L en ZI et de 0,010 à 0,028 Bq/L en ZNI, dans la gamme des données acquises par ailleurs (figure 24).

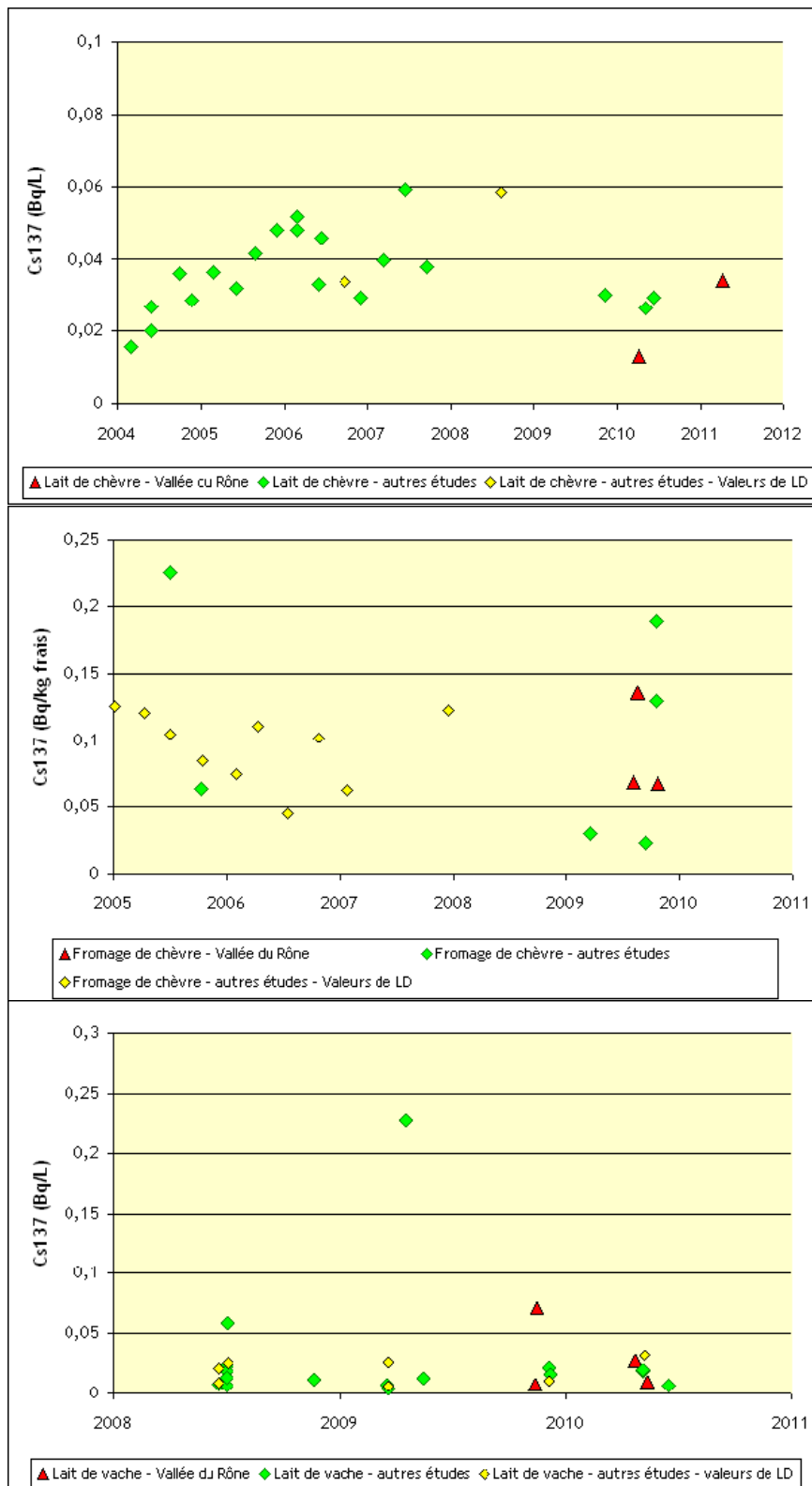


Figure 24. Comparaison des valeurs du ¹³⁷Cs d'échantillons de lait et de fromage de la vallée du Rhône et de ceux prélevés ailleurs, en zone non influencée.

4.2.3 Récapitulatif sur les radionucléides mesurés en spectrométrie γ dans les denrées

En ce qui concerne les radionucléides d'origine naturelle, on détecte dans tous les échantillons le potassium 40, et sporadiquement, le plomb 210, le béryllium 7 et le sodium 22. Les radionucléides descendants de l'uranium 238 (^{243}Th) et du thorium 232 (^{228}Ac) sont rarement mesurés dans les matrices biologiques. Les résultats obtenus sont conformes aux valeurs observées en métropole.

En ce qui concerne les radionucléides d'origine artificielle, le ^{137}Cs est quasiment¹⁸ le seul radionucléide artificiel mesuré au dessus des limites de détection en spectrométrie gamma, et ce pour 60 % des prélèvements.

Le ^{137}Cs dans les compartiments terrestres de la vallée du Rhône résulte des dépôts anciens des retombées des tirs atmosphériques d'armes nucléaires et de l'accident de Tchernobyl, qui ont été relativement hétérogènes sur ce territoire. Les activités du ^{137}Cs dans les produits de la chasse et de la cueillette, habituellement plus contaminés que les denrées d'origine agricole (viande de sanglier : 0,03 à 3,7 Bq/kg frais ; plantes aromatiques : 0,4 à 1,1 Bq/kg frais) témoignent de cette hétérogénéité.

Dans les productions agricoles, le ^{137}Cs varie entre 0,001 et 0,1 Bq/kg frais (figure 25).

Aucune anomalie par rapport aux valeurs attendues ou déjà connues n'a été mise en évidence par ces mesures, et il n'y a en milieu terrestre aucune différence entre les zones potentiellement influencées et les zones non influencées.

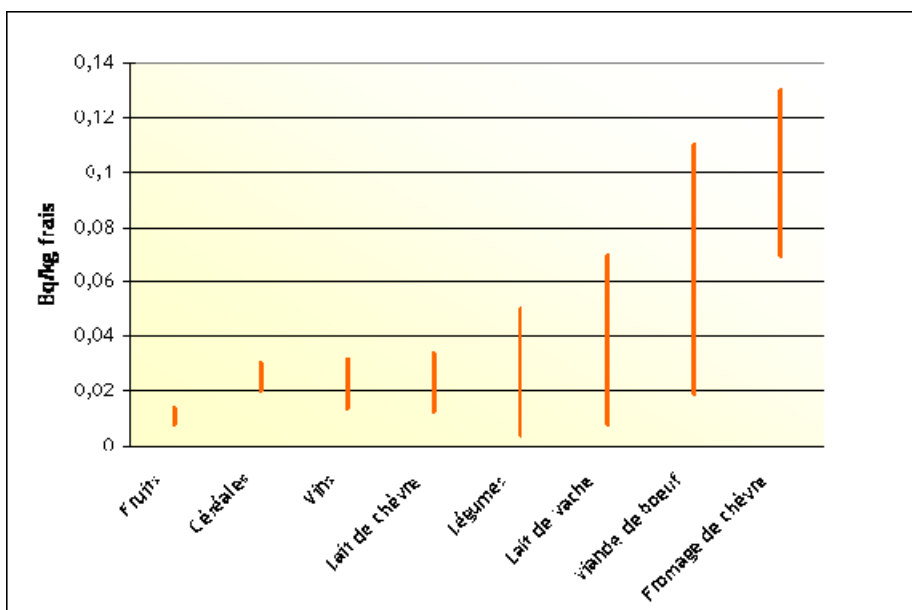


Figure 25. Gammes de valeurs du ^{137}Cs mesurées au dessus des LD dans les échantillons de produits agricoles.

¹⁸ À l'exception d'un échantillon de viande dans lequel le ^{134}Cs issu des retombées de l'accident de Fukushima, se trouve légèrement au dessus des LD.

5 Résultats d'analyse du strontium 90 dans les produits laitiers

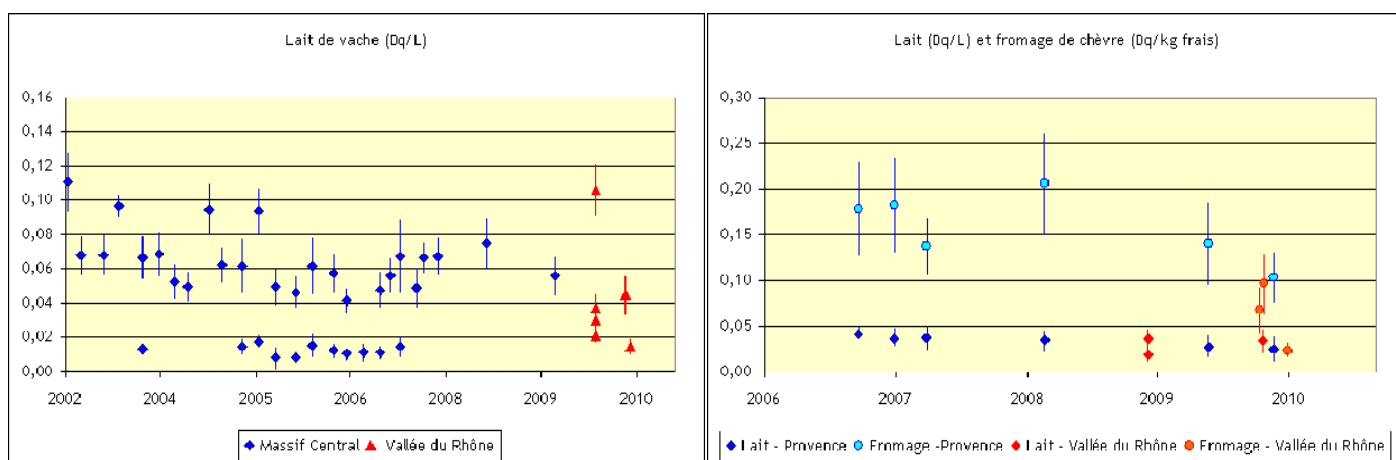
Le ^{90}Sr provient de la rémanence des dépôts des tirs atmosphériques. Il est encore possible de mesurer des valeurs significatives dans les échantillons environnementaux notamment les produits laitiers (riches en calcium et en son analogue chimique le strontium).

Le tableau 14 présente les résultats de l'analyse du ^{90}Sr dans le lait de vache et de chèvre et dans le fromage de chèvre. Les valeurs obtenues sont reportées sur la figure 26, où elles peuvent être comparées aux résultats acquis sur deux sites du réseau OPERA terrestre éloignés de toute installation : une station du Massif central (lait de vache) et une station située à Forcalquier (lait et fromage de chèvre).

Les activités du strontium se situent entre 0,02 et 0,05 Bq/L dans le lait de vache comme dans le lait de chèvre et entre 0,02 et 0,07 Bq/kg frais dans le fromage de chèvre, sans que l'on note une différence entre ZI et ZNI ; ces valeurs sont dans la gamme des données acquises par ailleurs.

Tableau 14. Résultats d'analyse du ^{90}Sr dans les produits laitiers.

Échantillon	Date de prélèvement	Station	Site voisin	^{90}Sr Bq/kg frais
Fromage de chèvre	08/04/2010	Toulaud		$0,068 \pm 0,025$
	21/04/2010	Les Farjons	TRI	$0,096 \pm 0,033$
	28/06/2010	Saint-Uze		$0,024 \pm 0,009$
Lait de chèvre	04/06/2009	Clansayes	TRI	$0,037 \pm 0,010$
	04/06/2009	Les Farjons	TRI	$0,020 \pm 0,008$
	19/04/2010	Châteauneuf-du-Rhône	CRU	$0,034 \pm 0,014$
Lait de vache	13/04/2010	Loyettes	BUG	$0,021 \pm 0,005$
	13/04/2010	Leyrieu	BUG	$0,030 \pm 0,007$
	14/04/2010	Ferme Quincieu	CRM	$0,037 \pm 0,008$
	15/04/2010	Hameau de Velay	ALB	$0,106 \pm 0,015$
	21/09/2010	Dardilly		$0,045 \pm 0,011$
	11/10/2010	Seysssel		$0,015 \pm 0,005$



6 Résultats de prélèvements ou d'analyses particuliers

Ce chapitre rappelle brièvement des résultats qui ont été détaillés dans le rapport d'avancement émis en 2011 (Roussel-Debet et Saey, 2011).

6.1 Étude particulière des sols et des bio-indicateurs au voisinage de Marcoule.

6.1.1 Échantillons de sols

Deux sols cultivés (2 strates¹⁹), deux sols non cultivés (friches, 5 strates) et un sol forestier (1 strate), prélevés au voisinage de Marcoule ont été mesurés par spectrométrie gamma et, pour certains d'entre eux, par spectrométrie alpha ainsi que par comptage bêta pour la mesure du ⁹⁰Sr.

6.1.1.1 Radionucléides d'origine naturelle

Les concentrations du potassium 40, qui vont de 440 à 670 Bq/kg sec, se situent dans la gamme des valeurs habituellement observées. Le plomb 210 varie de 50 à 92 Bq/kg sec. Les concentrations en ²²⁸Ac varient de 26 à 50 Bq/kg sec ; celles du ²³⁴Th varient de 22 à 46 Bq/kg sec, ce qui est théoriquement équivalent²⁰ à une concentration massique de 0,003 g/kg sec d'uranium naturel. Ces valeurs sont dans la fourchette de celles observées en métropole hors de toute zone d'influence d'installation.

6.1.1.2 Radionucléides d'origine artificielle

Le césium 137 est détecté à des niveaux allant de 12 à 47 Bq/kg sec, selon le type de sol. Dans les sols cultivés, les concentrations sont voisines de 15 Bq/kg sec, avec des activités massiques similaires dans les 2 strates échantillonnées, ce qui est cohérent avec les labours qui tendent à homogénéiser les teneurs en radionucléides. Les sols non cultivés présentent, comme cela est observé habituellement, des concentrations plus élevées : 13 à 22 Bq/kg sur la strate superficielle (0-5 cm) et jusqu'à 47 Bq/kg sec pour le sol forestier. Par rapport aux observations faites antérieurement (e.g., Descamps, 1997 ; Duffa, 2003...) ces valeurs ne présentent aucune anomalie. Le strontium 90 (⁹⁰Sr) est mesuré à des niveaux moyens de 1,6 Bq/kg sec en sol non cultivé et de 1,1 Bq/kg sec en sol cultivé, ce qui se situe dans la gamme des valeurs acquises ces dernières années dans les strates supérieures des sols.

L'iode 129 (¹²⁹I) a été détecté dans la plupart des échantillons de sols. Les niveaux sont de l'ordre de 1 à 5 Bq/kg sec, jusqu'à $13 \pm 1,8$ Bq/kg sec dans un des sols non cultivés (strate de surface 1-5 cm). L'iode 129 a été rejeté dans l'atmosphère au cours des essais atmosphériques d'armes nucléaires et localement par les installations de retraitement de combustible de Marcoule ; les rejets ont fortement diminué à partir de l'arrêt du retraitement en 1997 et sont actuellement de l'ordre de quelques dizaines de MBq/an. Un marquage de l'environnement proche avait été observé en 1995 (4 à 100 Bq/kg frais dans le thym et 270 Bq/kg sec dans les bryophytes, cf. Descamps, 1997) puis en 1999 : niveaux variant entre LD pour le thym, le romarin et les feuilles de chênes à 7 Bq/kg sec dans

¹⁹ Strate : au sens de couche prélevée entre 2 profondeurs prélevées à partir de la surface du sol (exemple : 0-10 cm).

²⁰ La concentration massique en uranium naturel, U_{nat} , des sols est calculée à partir de la mesure du ²³⁴Pa (ou de ²³⁴Th), s'il n'existe pas de déséquilibre isotopique entre les isotopes constitutifs de l'uranium, ce qui est raisonnable en dehors des zones ayant été soumises à des apports anthropiques. En effet, l'uranium naturel est en moyenne constitué à 99,3 % en masse par de l'²³⁸U. Si a (Bq/kg) est l'activité massique mesurée dans l'échantillon de ²³⁴Pa, l'échantillon contient une masse de ²³⁸U égale à : $a \times 8,1 \times 10^{-5}$ (g/kg), le facteur $8,1 \times 10^{-5}$ étant l'inverse de l'activité spécifique de l'isotope ²³⁸U dans l'uranium naturel. Cette masse représente une fraction égale à 0,993 fois la masse de l'uranium naturel (U) de l'échantillon, soit un facteur de conversion de $a \times 8,2 \times 10^{-5}$.

des graminées (Duffa et Fréchou, 2003). En 2009, l'iode 129 n'a pas été détecté dans les végétaux prélevés au même endroit que les sols en question ou à proximité. De ce fait, il est probable que l'iode 129 encore présent dans les sols proches du site est une rémanence d'une contamination datant de quelques années car, s'il s'agissait d'un dépôt actuel, on devrait le retrouver dans les végétaux.

Les actinides transuraniens, américium 241 (^{241}Am), et plutonium (^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$), qui proviennent des retombées globales et des rejets anciens des installations de retraitement de combustibles, ont été recherchés par spectrométrie alpha. Les sols ont été prélevés sur les zones où des échantillons avaient déjà été prélevés en 1999 et 2000 (Duffa, 2001), afin de disposer d'éléments de comparaison. Les niveaux mesurés sont cohérents avec les résultats des mesures antérieures. Ils vont de : 0,07 à 0,37 Bq/kg sec pour ^{241}Am , de 0,016 à 0,074 pour ^{238}Pu et de 0,11 à 0,50 pour $^{239+240}\text{Pu}$. Ces concentrations sont en diminution sensible par rapport aux échantillons de 1999, de façon plus prononcée dans les sols non cultivés que dans les sols cultivés. Les rapports isotopiques observés sur les sols prélevés en 2009 présentent toujours les anomalies qui avaient été observées. En particulier, le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ qui permet de déterminer l'origine du plutonium est supérieur à celui théorique des tirs (i.e., 0,03), ce qui confirme que le plutonium présent n'est pas uniquement imputable à cette origine. Pour deux des échantillons (rapport isotopique de l'ordre de 0,15), le plutonium provient en majorité des rejets historiques issus du retraitement de combustible qui s'effectuait sur le site jusqu'en 1997. Dans les autres cas, le plutonium mesuré actuellement témoigne d'une rémanence du marquage lié à la production de plutonium militaire des années 60-70. À l'exception d'un sol, les rapports isotopiques $^{137}\text{Cs}/^{239+240}\text{Pu}$ sont plus élevés que ceux spécifiques aux retombées des tirs, ce qui est en accord avec la double origine du césium (retombées des tirs et de l'accident de Tchernobyl), en particulier sur le sol forestier. Les rapports isotopiques $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ sont quant à eux 4 à 9 fois plus élevés que la valeur théorique actuelle du rapport isotopique initial des tirs atmosphériques (actuellement environ 1,7) du fait qu'une grande partie du césium 137 de cette région est issue des retombées de Tchernobyl, et secondairement, en raison d'une migration verticale bien plus rapide du strontium que du césium.

6.1.2 Échantillons de végétaux

Pour compléter les mesures précédentes, quelques végétaux : bryophytes (mousses, prélevées ici sur des murs), thym, raisin, ont été prélevés aux mêmes endroits que les sols ou à proximité immédiate.

On constate que chacun des deux échantillons de mousses a des concentrations similaires en ^{228}Ac et ^{234}Th , ce qui signe un apport de poussières provenant du sol. On note également une teneur élevée en ^{210}Pb et en ^7Be (dépôt atmosphérique). Un échantillon de mousses, prélevé approximativement à l'endroit où avaient été observées par Duffa (2001) des concentrations relativement élevées d'actinides, est 10 à 20 fois plus contaminé en plutonium et en américium que le deuxième échantillon de mousse, et de l'ordre de 100 à 1000 fois plus que les autres végétaux (thym, raisin, salade). Les rapports isotopiques $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ présentent encore pour ces échantillons de mousse et de thym, des valeurs allant de 0,04 à 0,26, supérieures à celles théoriques des tirs ; pour le raisin, ce rapport isotopique est proche de 0,03 (0,027) ce qui est probablement lié au fait que l'incorporation racinaire des radionucléides par la vigne s'effectue en profondeur, au delà de la zone où se retrouvent les dépôts issus des rejets anciens de Marcoule.

6.1.3 Conclusion sur les mesures des sols et bio-indicateurs prélevés à proximité de Marcoule

Ces résultats montrent que les quelques singularités qui subsistent encore à proximité de Marcoule reflètent, comme cela était prévisible, la persistance des contaminations anciennes liées à l'exploitation du site : les sols situés dans la zone sud proche du site et quelques échantillons végétaux témoignent encore des rejets passés

d'actinides transuraniens et, uniquement pour les sols, d'iode 129, sans pour autant constituer des anomalies au regard des rejets historiques de ce site. Ces données présentent un intérêt en termes d'actualisation des résultats des mesures qui avaient fait l'objet, il y a une dizaine d'années, d'études plus approfondies ; actuellement, comme auparavant, les niveaux d'activité mesurés ne présentent aucun risque sanitaire. Par ailleurs, l'ensemble de ces observations vient confirmer l'origine des activités de césium 137 mesurées actuellement dans les sols, imputables à la rémanence des dépôts anciens.

6.2 Sables des plages de Camargue

L'IRSN a expertisé en 2003 les « sables noirs radioactifs » des plages de Camargue (Saintes-Maries-de-la-Mer), riches en uranium et en thorium (Pourcelot et Vassas, 2005 ; Vassas et al., 2006). Ces plages présentent des zones de sables plus sombres, appelées « placers », caractérisées par des niveaux d'activité atteignant quelques milliers de Bq/kg en uranium et en thorium, en lien avec une accumulation de minéraux lourds (apatite et zircon). Ces études ont montré que tous les isotopes des chaînes de l'uranium 238 et du thorium 232 sont à l'équilibre radioactif dans ces minéraux, que la radioactivité de ces sables est d'origine naturelle, et que les minéraux lourds des plages proviennent de l'érosion des roches mères (granite et roches volcaniques) du bassin versant du Rhône. Des échantillons ont été prélevés en 2009, sur l'une des plages où les concentrations les plus élevées en radionucléides naturels avaient été observées (plage du phare de Beauduc). Les résultats de mesures de spectrométrie gamma de 3 prélèvements de surface, réalisés respectivement en bas, en milieu et en haut de plage, confirment, comme attendu, les observations antérieures (figure 27). Les concentrations du ^{228}Ac (famille de ^{232}Th), d'une part, et du ^{234}Th (famille de ^{238}U), d'autre part, sont dans la gamme des valeurs déjà observée ; le ^{210}Pb et le ^{234}Th sont à l'équilibre (concentrations voisines), tout comme cela avait été déjà observé sur l'ensemble des isotopes de ces familles.

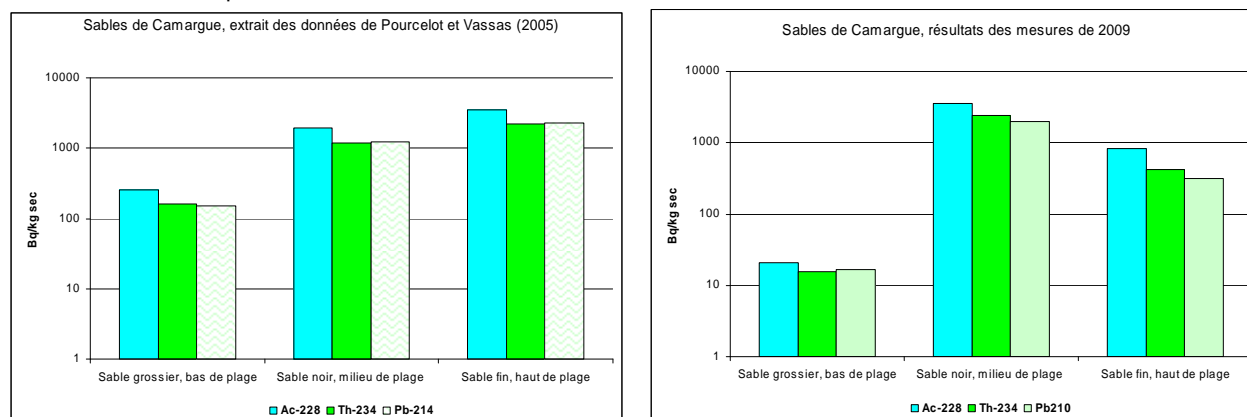


Figure 27. Comparaison des concentrations en radionucléides naturels de sables prélevés en 2009 et en 2005 .

6.3 Sol de rizière

Le Rhône en aval de Valence a connu en décembre 2003 une crue exceptionnelle, atteignant 13 000 m³/s à Beaucaire. En conséquence, la basse vallée du Rhône a subi des inondations par débordement du Rhône et rupture de digues, notamment en Camargue. Ces inondations extrêmes sont à l'origine de flux de sédiments qui constituent l'essentiel de la phase porteuse des radionucléides rejetés auparavant dans le fleuve. Suite à une demande d'expertise spécifique de la CLI du Gard, l'IRSN avait étudié les conséquences de ces épisodes sur le transport des radionucléides vers les sols de la plaine alluviale (Eyrolle et al., 2004). Quatre échantillons de sol (et

un échantillon de riz) ont donc été prélevés au niveau de la Brèche de Claire Farine (Lauricet) où les sols avaient fait l'objet d'investigations antérieures.

Les résultats obtenus sur les 4 prélèvements de sols sont très semblables, ce qui est à mettre en relation avec le mode d'exploitation des rizières (Pey, 2005) dans lesquelles les travaux de labours, de nivellement et les cycles de mise en eau et d'assèchement tendent à homogénéiser et à lessiver le substrat. Les radionucléides d'origine naturelle sont dans la gamme des valeurs habituelles, avec une concentration assez faible des uranium et thorium et plutôt élevée du ^{40}K , en lien avec l'origine des sols (sédiments alluviaux du bassin versant du Rhône). Le ^{137}Cs est présent en concentrations faibles (5 à 8 Bq/kg sec) et le ^{90}Sr présente des valeurs habituelles (0,2 à 0,5 Bq/kg sec). En ce qui concerne les transuraniens, qui avaient été l'objet essentiel des études antérieures, les résultats de 2009 peuvent être comparés, d'une part à ceux acquis en 2002 sur des points de prélèvements très proches et, d'autre part, à des résultats acquis de 2002 à 2008 sur différentes stations situées hors influence de site nucléaire (observatoire bas bruit de fond OPERA). Les concentrations moyennes observées en 2009 sont les suivantes : 0,11 Bq/kg sec en ^{241}Am , 0,01 Bq/kg sec en ^{238}Pu et 0,18 Bq/kg sec en $^{239+240}\text{Pu}$; elles sont de l'ordre de grandeur de celles observées dans le cadre de OPERA – quoique légèrement plus fortes en ^{238}Pu et plus faibles en $^{239+240}\text{Pu}$ – et en diminution par rapport aux valeurs mesurées en 2002.

Les rapports isotopiques $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ montrent que par rapport à la valeur de 0,03, caractéristique de celle des retombées des tirs, les sols étudiés présentent encore aujourd'hui un excès de ^{238}Pu relativement au $^{239+240}\text{Pu}$: ce rapport qui est en moyenne de 0,068 en 2009 a rapidement diminué puisqu'il était 2 fois plus élevé en 2002. L'empreinte des inondations passées qui ont amené des sédiments marqués par les rejets anciens de Marcoule reste donc encore détectable.

6.4 Aperçu des mesures spécifiques réalisées après l'accident de Fukushima et conséquences de cet accident en vallée du Rhône

Dans le cadre de la surveillance renforcée mise en place suite à l'accident de Fukushima, des prélèvements et des analyses ont été réalisés sur diverses régions françaises et notamment sur le territoire concerné par la présente étude (IRSN, 2011). Les radionucléides spécifiquement imputables aux retombées de cet accident (^{131}I , ^{134}Cs) ont pu être décelés fugacement, à des niveaux proches des limites de détection, dans quelques échantillons de légumes, d'herbe et de viande prélevés en France. Par exemple, des valeurs significatives en iode 131 ont été mesurées en avril 2011 dans des échantillons prélevés en avril-mai dans la Drôme : de 0,1 à 0,6 Bq/kg frais dans les légumes feuilles (salades...) ; des concentrations allant de 0,5 à 2 Bq/L ont été observées dans le lait de chèvre provenant des alentours de St Alban et de Tricastin respectivement (Parache et al., 2011). Du ^{134}Cs a été détecté dans l'herbe (0,1 à 0,5 Bq/kg frais) et dans le lait de chèvre (environ 0,01 Bq/L) de fin mars jusqu'en début mai 2011 ; enfin, du ^{134}Cs a été sporadiquement mesuré dans des échantillons de viande jusqu'en automne 2011, à un niveau très faible : 0,05 à 0,1 Bq/kg frais (Saey et al., 2012).

L'élimination de l'iode 131 a été rapide du fait de sa décroissance radioactive. Le ^{134}Cs a été déposé sur les feuilles des végétaux (et incorporé par les animaux en pacage) ; par la suite, sa concentration dans les végétaux (et dans les animaux nourris avec ceux-ci) ne sera plus mesurable, les feuilles n'étant plus contaminées directement. Enfin, le léger incrément de ^{137}Cs lié aux retombées de Fukushima et dont l'activité était égale à celle du ^{134}Cs a été trop faible pour pouvoir être discriminé dans les productions agricole du ^{137}Cs antérieurement déposé. Au final, les retombées liées à cet accident n'ont pas de conséquences durables en France et notamment en vallée du Rhône et n'y modifieront pas les niveaux de radioactivité.

7 Conclusion

Ce rapport présente les résultats acquis dans le cadre du constat « Vallée du Rhône » pour le milieu terrestre.

Il s'agissait, en premier lieu, de vérifier que la concentration en radionucléides des principales productions agricoles du territoire, sélectionnées à partir de statistiques agricoles, était en accord avec les (faibles) niveaux attendus. L'environnement immédiat des sites EDF de la vallée du Rhône fait l'objet d'une surveillance régulière et d'études récurrentes (suivis annuels et études décennales...). Le plan d'échantillonnage a donc privilégié pour cet objectif des types de denrées qui, bien que dominantes ou emblématiques, ne sont pas prélevées habituellement lors de ces études, ainsi que des zones de production éloignées des sites et, de ce fait, rarement investiguées. Toutefois, des échantillons de référence (salade et lait notamment) ont également été prélevés pour disposer d'éléments de comparaison avec les études habituelles. Les principaux radionucléides mesurables en spectrométrie gamma ont été recherchés, avec des appareils à bas niveau de détection, dans les échantillons de denrées (70 échantillons environ). Le ^{90}Sr a été mesuré dans les produits laitiers.

Le ^{137}Cs , seul radionucléide artificiel mesuré en spectrométrie gamma au dessus des limites de détection pour 60 % des échantillons des denrées prélevées, et le ^{90}Sr des produits laitiers ont pu être comparés, d'une part sur la vallée du Rhône entre les zones potentiellement influencées et les zones non influencées, et d'autre part aux valeurs régulièrement acquises sur des sites de référence, situés hors de toute influence d'installation (en particulier sur les stations de l'observatoire OPERA terrestre). Ces comparaisons permettent de vérifier qu'il n'y a pas de marquage visible qui serait imputable aux rejets des installations en milieu terrestre. Les activités du ^{137}Cs et du ^{90}Sr se situent à des niveaux habituels, correspondant à la rémanence des retombées anciennes. Enfin, les concentrations du ^{137}Cs dans les types d'échantillons rarement prélevés (fruits, ail, miel, viandes...) ne se démarquent pas de celles des autres denrées. Le bref épisode de retombées radioactives (^{131}I , ^{134}Cs et ^{137}Cs) liées à l'accident de Fukushima ne modifie pas les niveaux de référence présentés dans ce constat. Ces niveaux ne présentent, par ailleurs, aucun risque sanitaire.

Une dizaine d'échantillons de feuilles d'arbres destinés à la mesure du tritium et du carbone 14, ont été prélevés, de l'amont de Creys-Malville jusqu'en Camargue. Si l'on excepte le secteur et l'aval de Marcoule, les résultats permettent de déceler dans quelques échantillons un très faible excès de tritium, sans pour autant correspondre spécifiquement à des zones directement influencées par les installations ; en ce qui concerne le carbone 14, les échantillons sont au niveau ou très légèrement supérieurs au bruit de fond, qui est en majorité d'origine naturelle.

En second lieu, il s'agissait de réactualiser les données autour du site de Marcoule qui n'avait pas fait l'objet d'un bilan radioécologique récent. Des prélèvements de feuilles d'arbres ont été réalisés en 2009, 2010 et 2011, avec une densité d'échantillonnage (une trentaine d'échantillons) plus élevée que dans les autres parties du territoire, en vue d'y mesurer le tritium. Une partie de ces échantillons a été mesurée en carbone 14. Des sols et des bio-indicateurs ont été également prélevés pour suivre l'évolution des actinides transuraniens (Am, Pu) qui avaient été étudiés en 2000 dans le cadre d'une thèse. Les échantillons prélevés aux environs immédiats du site de Marcoule ont confirmé les singularités de cette zone, déjà mises en évidence par le passé. En particulier, un net marquage en tritium des végétaux a pu être observé, principalement dans l'axe de la vallée (direction des vents dominants) jusqu'à plus d'une dizaine de kilomètres au nord et au sud du site ; les concentrations observées sont cohérentes avec celles issues des mesures du CEA publiées dans le Réseau National de Mesures. Un renforcement

faible (quelques Bq de ^{14}C /kg C) des concentrations en carbone 14 est observé au voisinage du site. En ce qui concerne les transuraniens, la rémanence des contaminations anciennes reste perceptible, avec une diminution des niveaux observés, du fait de la diminution des rejets entre les études précédentes et le présent constat. Les niveaux de ces différents radionucléides ne présentent aucun risque sanitaire.

D'autre part, des zones ou radionucléides particuliers qui avaient été étudiés il y a une dizaine d'années ont été investigués à nouveau pour suivre leur évolution : quelques sols et bio-indicateurs proches de Marcoule, dont le marquage en transuraniens avaient fait l'objet d'une thèse en 2001; des sols de rizières ayant subi des inondations en 2003 ; des sables noirs de Camargue, étudiés en 2005. Ces quelques points particuliers n'ont mis en évidence aucune anomalie.

En définitive, ce constat a été l'occasion de confirmer et d'élargir les connaissances déjà acquises par ailleurs dans le cadre des observations liées à la surveillance du territoire.

Une partie de cette démarche de réalisation de constats radiologiques régionaux est consacrée à la présentation des observations réalisées aux interlocuteurs locaux, permettant ainsi au public concerné de mieux appréhender l'état radiologique de leur territoire.

8 Annexes

8.1 Annexe 1. Calendrier général du déroulement du constat Vallée du Rhône.

	2009				2010				2011				2012	
	janv.- mars	avril- juin	juil.- sept.	oct.- déc.	janv.- mars	avril- juin	juil.- sept.	oct.- déc.	janv.- mars	avril- juin	juil.- sept.	oct.- déc.	janv.- juin	juil.- déc.
Définition de la stratégie générale en milieu terrestre														
Prélèvements en milieu terrestre														
Traitements et mesures des échantillons du milieu terrestre														
Définition de la stratégie générale en milieu aquatique														
Prélèvements en milieu aquatique														
Traitements et mesures des échantillons du milieu aquatique														
Analyse des résultats préexistants ou nouveaux														
Présentations en CLI		*				*						*		*
Rapport méthodologique <i>M</i> , Rapports d'avancement terrestre <i>A_T</i> et aquatique <i>A_A</i> Rapport de synthèse terrestre <i>S_T</i> et aquatique <i>S_A</i>		<i>M</i>								<i>A_T</i>		<i>A_A</i>	<i>S_T</i>	<i>S_A</i>

8.2 Annexe 2. Aperçu succinct des méthodes d'analyses

Mesure des transuraniens $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am

Le traitement radiochimique de l'échantillon calciné dure environ 4 semaines et comprend un ajout de traceur, une mise en solution par attaque acide oxydante, des coprécipitations puis une série d'élutions sur résines. L'éluat est électrodéposé sur un support destiné à la spectrométrie α . Le détecteur est un détecteur silicium à barrière de surface ; la durée d'acquisition du spectre est de l'ordre de 7 jours.

Strontium 90

Après minéralisation des échantillons et ajout d'un traceur, les éléments alcalino-terreux sont isolés par coprécipitation par une solution d'oxalate d'ammonium, suivie d'une calcination. L'hydroxyde d'yttrium formé est ensuite éliminé de l'échantillon par précipitation. Quinze jours plus tard, l'yttrium nouvellement formé est précipité sous forme d'oxalate d'yttrium. Le comptage de ^{90}Y est effectué avec un compteur β et l'activité du ^{90}Sr est égale à celle de ^{90}Y à l'équilibre.

Tritium

Les échantillons frais sont lyophilisés, pour séparer l'eau et la matière sèche. L'eau de dessiccation est purifiée (tritium libre). La matière sèche subit une combustion sous flux d'oxygène et d'argon. Les vapeurs d'eau de combustion sont récupérées puis condensées et purifiées (tritium lié). La mesure du tritium libre et lié s'effectue sur ces eaux par scintillation liquide.

Carbone 14

Le carbone des échantillons est oxydé en gaz carbonique dans une bombe à combustion. Le gaz carbonique est ensuite transformé en carbure de lithium qui, par hydrolyse, donne de l'acétylène. Ce dernier est trimérisé en benzène qui est ensuite mesuré par scintillation liquide, permettant l'obtention directe du rapport $^{14}\text{C}/\text{C}$.

Pour mesurer le carbone total, l'échantillon subit une combustion totale sous courant d'oxygène. Le dioxyde de carbone obtenu est titré par colorimétrie.

Spectrométrie γ Ge.

La recherche et la quantification des principaux radionucléides émetteurs γ sont réalisées sur les échantillons calcinés, grâce à des détecteurs de type Gamma-X Ge à bas bruit de fond ; les mesures durent de 8 à 12 h.

8.3 Annexe 3. Radionucléides habituellement recherchés en spectrométrie gamma.

Isotope	période radioactive (valeur arrondie)	origine	commentaire
Ag110m	250 j	artificielle (présence dans les rejets liquides des CNPE)	
Co58	71 j	artificielle (présence dans les rejets liquides et gazeux des CNPE)	
Co60	5,3 ans	artificielle (présence dans les rejets liquides et gazeux des CNPE)	
Cs134	2,2 ans	artificielle : retombées de Tchernobyl (présence dans les rejets liquides et gazeux des CNPE)	n'est plus mesurable actuellement du fait de sa décroissance
Cs137	30 ans	artificielle : retombées des tirs et de Tchernobyl (présence dans les rejets liquides et gazeux des CNPE)	mesuré via son descendant Ba237
Mn54	313 j	artificielle (présence dans les rejets liquides des CNPE)	
Rh106	30 s	artificielle (présence dans les rejets liquides des CNPE)	équilibre avec son père Ru106 (période 1 an)
Sb124	60 j	artificielle (présence dans les rejets liquides des CNPE)	
Sb125	2,7 ans	artificielle (présence dans les rejets liquides et gazeux des CNPE)	
Na22	2,6 ans	naturelle cosmogénique	
Be7	53 jours	naturelle cosmogénique	
K40	1,3 milliards d'années	naturelle tellurique	abondance naturelle : 30 Bq de ⁴⁰ K par g de potassium
Pb210	22 ans	naturelle tellurique ou naturelle renforcée à proximité des installations du cycle du combustible	chaîne de U238
Pa234	7 h		
Th234	24 j		
Ac228	6 h		chaîne de Th232

9 Références

- Baglan N, Alanic G, Le Meignen R, Pointurier F (2011). A follow up of the decrease of non exchangeable organically bound tritium levels in the surroundings of a nuclear research center. *Journal of Environmental Radioactivity*, 102: 69-702.
- Boyer C, Vichot L, Fromm M, Losset Y, Tatin-Froux F, Guétat P, Badot PM (2009). Tritium in plants: A review of current knowledge. *Environmental and Experimental Botany*, 67(1): 34-51.
- Claval D (2010). *État radioécologique de référence du site de Pierrelatte dans le cadre du projet d'implantation d'un CNPE GDF-Suez*. Rapport IRSN/DEI/SESURE-2010-14.
- Descamps B, Carrere D, Laurent N (1995). *Étude du marquage des feuilles de chêne de l'environnement du site de Marcoule par le tritium contenu dans les rejets atmosphériques, prélèvements d'octobre 1992*. Rapport IPSN/DPEI/SERE-95-021.
- Descamps B, Carrere D, Laurent N (1997). *Étude radioécologique de l'environnement terrestre du site de Marcoule-Année 1995*. Rapport IPSN/DPEI/SERE-97-02.
- Duffa C. (2001). *Répartition du plutonium et de l'américium dans l'environnement terrestre de la basse vallée du Rhône*. Thèse Université Aix-Marseille III - Géosciences de l'environnement. Rapport CEA-R-5977.
- Duffa C (2003). *Synthèse des études radioécologiques menées par l'IRSN depuis 1992 dans l'environnement de Marcoule*. Rapport IRSN/DEI/SESURE-03-03.
- Duffa C, 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.
- Duffa C., Renaud P. (2004). *Projet CAROL Rapport final*. Rapport IRSN/DEI/SESURE-04-22.
- Eyrolle F, Duffa C, Leprieur F, Rolland B, Antonelli C, Marquet J, Salaun G, Renaud P (2004). *Conséquences radiologiques des inondations de décembre 2003 en Petite Camargue au lieu dit 'Claire Farine'. Résultats de l'expertise réalisée. à la demande de la CLI du Gard*. Rapport IRSN/DEI/SESURE-04-14.
- Guétat P, Boyer C, Tognelli A, Duda JM (2011). 50 Years Environmental Tritium Transfer Review in the Vicinity of French Research Centre. *Fusion Science and Technology*, 60 (4): 1238-1243.
- Jean-Baptiste P, Fourré E, Baumier D, Dapoigny A (2011). Environmental OBT/TFWT Ratios Revisited. *Fusion Science and Technology*, 60 (4): 1248-1251.
- IRSN (2011). *Analyse de l'impact de l'accident de Fukushima en France (métropole et DROM-COM) à partir des résultats de la surveillance renforcée de la radioactivité de l'environnement*. Rapport IRSN-DEI-2011-01
- Le Roux G. (2007). Radionucléides naturels en France. Approche géochimique de la variabilité des radionucléides naturels d'origine tellurique (^{40}K et chaînes U-Th) dans les sols et sédiments fluviaux. Rapport IRSN/DEI/SESURE-2007-21.
- Marang L, Siclet F, Luck M, Maro D, Tenailleau L, Jean-Baptiste P, Fourré E (2011). Modelling tritium flux from water to atmosphere: application to the Loire River. *Journal of Environmental Radioactivity*, 102, (3): 244-251.

Parache V, Pourcelot L, Roussel-Debet S, Orjollet D, Leblanc F, Soria C, Gurriaran R, Renaud P, Masson O (2011). Transfer of ^{131}I from Fukushima to the Vegetation and Milk in France. *Environmental Science and Technology*, 45 : 9998-10003.

Pourcelot L, Renaud P (2006). *Activité des sédiments au large de la pointe de l'Espiguette*. Rapport IRSN/DEI/SESURE-06-24.

Pourcelot L, Vassas C (2005). *Mode de formation des placers radioactifs et origine des minéraux lourds du littoral de Camargue*. Rapport IRSN/DEI/SESURE-05-09.

Renaud P (2010). *Discussion sur la pertinence des analyses radiologiques environnementales pour la surveillance de routine effectuée par les exploitants nucléaires*. Rapport IRSN/DEI/SESURE-10-08.

Renaud P, Gurriaran R (2009). Réflexion sur l'évolution des concentrations en radionucléides artificiels dans l'environnement français, les doses associées et l'adaptation des techniques d'analyse aux besoins de la surveillance. *Radioprotection*, 44(2) : 169-186.

Renaud P, Champion D, Brenot J (2007). *Les retombées radioactives de l'accident de Tchernobyl sur le territoire français. Conséquences environnementales et exposition des personnes*. IRSN. Editions Tec et Doc - Lavoisier.

Renaud P, Métivier J, Castelier E, Pourcelot L, Louvat D (2004). Cartographie des dépôts de ^{137}Cs en mai 1986 sur l'ensemble du territoire français métropolitain. *Radioprotection*, 39 (1): 23-38.

Roussel-Debet S (2007). Evaluation of ^{14}C doses since the end of the 1950's in metropolitan France. *Radioprotection*, 42(3): 297- 313.

Roussel-Debet S. (2008). *Comportement du tritium en milieu terrestre*. Rapport IRSN/DEI/SESURE-08-33.

Roussel-Debet S, Antonelli C (2010). *Constat radiologique régional - Objectifs et Méthode - Application à la Vallée du Rhône*. Rapport IRSN/DEI/SESURE-10-01.

Roussel-Debet S, Gontier G, Siclet F, Fournier M (2006). Distribution of Carbon 14 in the terrestrial environment close to French nuclear power plants. *Journal of Environmental Radioactivity*, 87: 246-259.

Roussel-Debet S, Renaud P, Métivier J (2007). ^{137}Cs in French soils: deposition patterns and 15-year evolution. *Sciences of the Total Environment*, 374 : 388-398.

Roussel-Debet S., Saey L. (2011). *Constat radiologique régional « Vallée du Rhône ». État d'avancement et résultats acquis fin 2010*. Rapport IRSN/DEI/SESURE -11-01.

Saey L, Roussel-Debet S (2011). *Constat radiologique régional « Vallée du Rhône ». État d'avancement du volet aquatique*. Rapport IRSN/DEI/SESURE-11-34.

Saey L, Pourcelot L, Parache V, Roussel- Debet S, Gurriaran R, Renaud P. (2012). The transfer of artificial radionuclides in milk and meat after Fukushima releases. IRPA, 2012 - 13th International Congress of the International Radiation Protection Association. 13-18 mai 2012- Glasgow, Scotland.

Vassas C, Pourcelot L, Vella C, Carpéna J, Pupin JP, Bouisset P, Guillot L (2006). Mechanisms of enrichment of natural radioactivity along the beaches of the Camargue, France. *Journal of Environmental Radioactivity*, 91: 146-159.