

IRSNINSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée en 2008

Station Observatoire du Rhône en Arles (SORA)

DIRECTION DE L'ENVIRONNEMENT
ET DE L'INTERVENTION

Service d'Étude et de SURveillance de la Radioactivité dans
l'Environnement

LISTE DES PARTICIPANTS

Nom	Organisme
Christelle Antonelli Vincent Boullier Frédérique Eyrolle	DEI/SESURE/LERCM
Rodolfo Gurriaran Xavier Cagnat Djamel Mekhlouche	DEI/STEME/LMRE
Patrick Rimbault Michel Fournier	Centre d'Océanologie de Marseille

RESUME

En 2008, six radionucléides supplémentaires ont été analysés dans les échantillons collectés par la station SORA : tritium, strontium 90, plutonium 238, 239+240 et américium 241. Ainsi, avec les radionucléides émetteurs gamma dont les analyses se sont poursuivies, des bilans de flux ont pu pour la première fois être réalisés pour les dix principaux radionucléides artificiels qui transitent dans le Rhône (^{14}C excepté).

Le flux le plus important est celui du tritium libre, 293 ± 48 TBq pour cette année 2008. Cette valeur est largement supérieure au radionucléide naturel le plus abondant : le ^{40}K (flux de $6,7 \pm 0,7$ TBq). Le tritium provient principalement des rejets des installations nucléaires rhodaniennes.

Viennent ensuite mais avec des niveaux 3000 fois inférieurs, le ^{90}Sr et le ^{137}Cs (environ 100 GBq) puis le ^{60}Co , ^{125}Sb et ^{54}Mn à des niveaux plus faibles (de 5 à 10 GBq). Les flux d'actinides, (isotopes du plutonium et ^{241}Am), sont les plus faibles (0,3 à 1 GBq).

L'année 2008 a été caractérisée par un export de matières en suspension important ($9,1 \cdot 10^6$ tonnes), notamment durant les crues et lâchers de barrage des mois de mai et décembre. Il en résulte des flux annuels parmi les plus élevés mesurés sur la dernière décennie pour les radionucléides artificiels présents dans les sols et sédiments du bassin versant, du fait des retombées atmosphériques globales anciennes (cas du ^{137}Cs , des actinides).

Pour les radionucléides artificiels issus des rejets de l'industrie nucléaire (^{60}Co , ^{125}Sb notamment), les bilans entre rejets et flux annuels estimés en Arles tendent à démontrer que leur export vers la Méditerranée est très rapide.

Notons enfin que les limites métrologiques, les incertitudes statistiques et/ou la méconnaissance des incertitudes sur les données de rejets sont à l'origine de bilans non équilibrés pour ^{54}Mn et $^{110\text{m}}\text{Ag}$. Pour le tritium, ces limites ne suffisent pas à expliquer l'excédent calculé en Arles et des recherches complémentaires vont être initiées pour étayer les hypothèses formulées dans le présent rapport.

MOTS-CLE : MES, émetteurs gamma, émetteurs alpha, ^{90}Sr , tritium, SORA, Arles, Rhône.

REMERCIEMENTS

Les auteurs remercient l'Agence de l'Eau Rhône Méditerranée et Corse pour l'intérêt porté à la station SORA et les soutiens financiers octroyés qui permettent le fonctionnement et le développement de cette station ainsi que la Compagnie Nationale du Rhône pour la mise à disposition gratuite des données de débits du Rhône à Arles pour l'année 2008.

Les données produites à partir de l'exploitation de la station SORA sont valorisées dans le cadre de la Zone Atelier ORME (Observatoire Régional Méditerranéen de l'Environnement - INSU/CNRS) et contribuent aux travaux de recherche développés dans le cadre des projets EXTREME (programme IRSN, 2005-2010), EXTREMA (contrat ANR-06-VUL-005, 2007-2010) et CHACCRA (contrat ANR-06-VUL-001, 2007-2009). Elles alimentent également les thèmes de recherche développés dans le cadre de l'Observatoire des Sédiments du Rhône (OSR) piloté par la ZABR (Zone Atelier Bassin du Rhône).

TABLE DES MATIERES

REMERCIEMENTS	9
TABLE DES MATIERES	11
1. INTRODUCTION.....	13
2. PRÉSENTATION DES DONNÉES UTILISÉES.....	13
2.1. DÉBIT DU RHÔNE À ARLES	13
2.2. CHARGE SOLIDE (CONCENTRATION EN MATIERES EN SUSPENSION)	14
2.3. CONCENTRATIONS EN RADIONUCLEIDES EMETTEURS GAMMA	16
2.3.1. <i>Activités mesurées au cours de l'année 2008</i>	16
2.3.1.1. Hydrologie normale ($Q < 3000 \text{ m}^3\text{s}^{-1}$)	16
2.3.1.2. Période de crue ($Q > 3000 \text{ m}^3\text{s}^{-1}$)	21
2.4. CONCENTRATIONS DES AUTRES RADIONUCLEIDES MESURES	24
2.4.1.1. ^{90}Sr	24
2.4.1.2. ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am	25
2.4.1.3. Activités en tritium libre	26
3. FLUX DU RHONE A LA MER	27
3.1. FLUX DE MATIERES EN SUSPENSION	27
3.2. FLUX DE RADIOACTIVITE ASSOCIEE A LA PHASE PARTICULAIRE.....	27
3.3. FLUX DE RADIOACTIVITE EXPORTEE PAR VOIE DISSOUTE	29
3.4. FLUX TOTAUX : BILAN ET DISCUSSION.....	30
4. CONCLUSIONS.....	34
5. PERSPECTIVES.....	35
6. BIBLIOGRAPHIE	36
ANNEXES	38
1. RAPPEL SUCCINCT DES STRATEGIES DE PRELEVEMENT ET DE MESURE	38
2. CALCUL DES FLUX	38
2.1.1. <i>Matières en suspension</i>	38
2.1.2. <i>Radionucléides</i>	39
2.1.2.1. Phase particulaire.....	39
2.1.2.2. Phase dissoute.....	40
2.1.3. <i>Radioactivité totale (particulaire et dissous)</i>	40

1. INTRODUCTION

La station SORA (Station Observatoire du Rhône à Arles) du réseau OPERA¹ inaugurée en mars 2002, est complètement opérationnelle depuis début 2004. Après un premier travail de vérification, de calibrage et d'adaptation des procédures de prélèvements aux spécificités de terrain (Masson et al., 2004 ; Antonelli, 2004), les concentrations en radionucléides et les flux en transit vers la mer Méditerranée sont calculés depuis 2005 (Antonelli et al., 2007a et 2007b, 2008). En 2008, le monitoring s'est poursuivi normalement et a permis d'obtenir les concentrations de matières, de radionucléides émetteurs gamma, de tritium, de ⁹⁰Sr et actinides (Pu et Am), et, pour les MES et certains radionucléides, une estimation des flux à la Méditerranée.

2. PRÉSENTATION DES DONNÉES UTILISÉES

2.1. DÉBIT DU RHÔNE À ARLES

Les données de débits journaliers du Rhône à Arles sont fournies par la Compagnie Nationale du Rhône (CNR) pour la période complète. Les débits n'ont pas tous été validés par la CNR et présentent une marge d'erreur de $\pm 10\%$. Le processus de validation étant long, les débits non validés sont toutefois utilisés dans ce rapport.

La Figure 1 représente l'évolution du débit en Arles durant l'année 2008. Le débit moyen s'établit à $1\,608\text{ m}^3\cdot\text{s}^{-1}$, soit proche du débit moyen estimé à $1\,500\text{ m}^3\cdot\text{s}^{-1}$ par la CNR. Six événements de moyenne importance se sont produits cette année. En janvier et septembre, deux crues de faible ampleur ont été enregistrées (débits journaliers maximaux respectivement de $3\,003$ et $3\,012\text{ m}^3\cdot\text{s}^{-1}$). En avril, une crue légèrement plus importante s'est produite ($3\,426\text{ m}^3\cdot\text{s}^{-1}$). Fin mai, des crues de la Durance et de l'Isère concomitantes à des lâchers de barrage sur Serre-Ponçon (Durance) ont conduit à un débit encore supérieur, avec une moyenne journalière de $4\,156\text{ m}^3\cdot\text{s}^{-1}$ (Eyrolle, 2009 ; Eyrolle et al. 2010). En novembre, la crue la plus importante de l'année s'est produite, avec un débit journalier maximal de $4\,806\text{ m}^3\cdot\text{s}^{-1}$. Enfin, une dernière crue a eu lieu en décembre, avec un débit maximal de $3\,863\text{ m}^3\cdot\text{s}^{-1}$. En 2008, le débit moyen journalier a dépassé le débit seuil de $3\,000\text{ m}^3\cdot\text{s}^{-1}$ durant 23 jours.

¹ <http://opera.irsn.org/opera/>

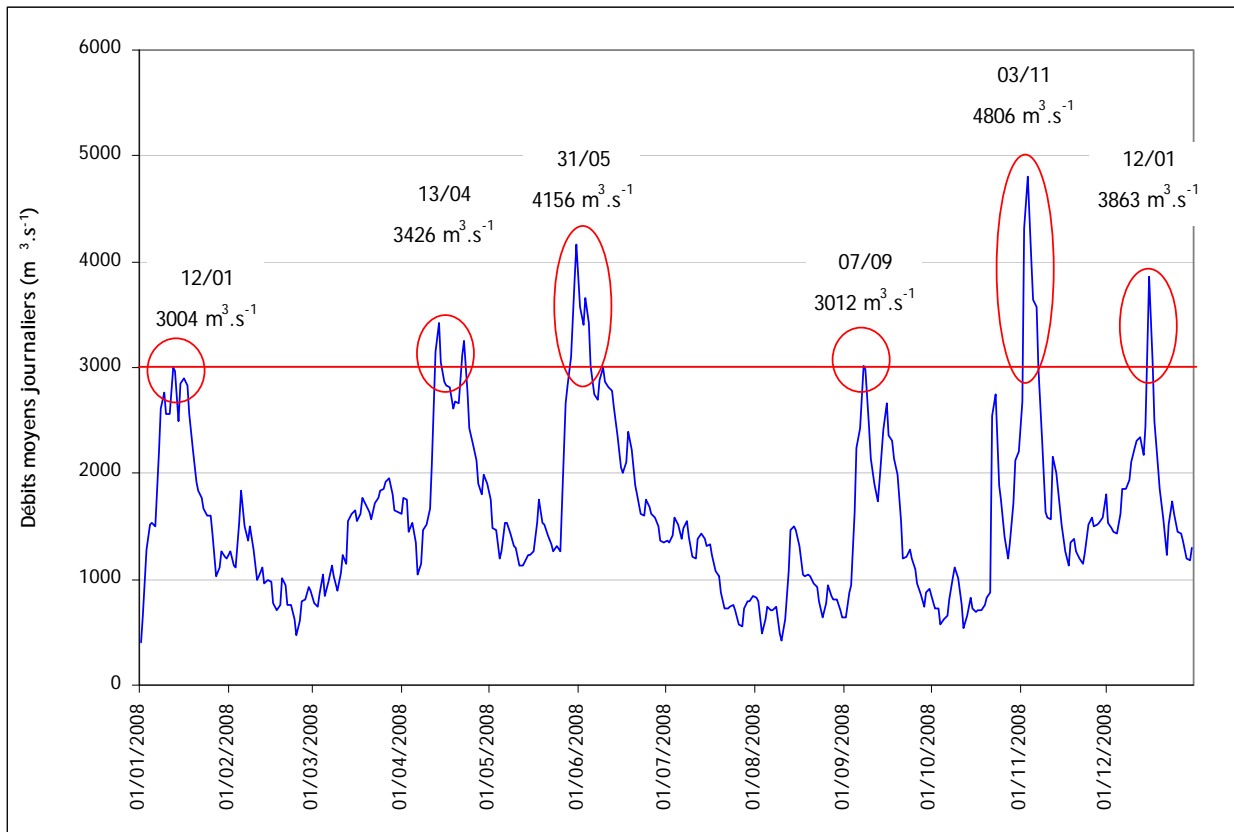


Figure 1 - Évolution du débit moyen journalier à Arles au cours de l'année 2008 (données CNR) et identification des événements de crue (débit maximal journalier enregistré)

2.2. CHARGE SOLIDE (CONCENTRATION EN MATIÈRES EN SUSPENSION)

Le prélèvement et la mesure des concentrations en matières en suspension sont réalisés par le Centre d'Océanologie de Marseille. En 2008, seuls 16 jours n'ont pas fait l'objet de mesure. Cependant, lors de la crue de mai-juin 2008 qui a occasionné la panne de la pompe, la détermination de la charge en suspension a pu être réalisée sur des prélèvements ponctuels et sur des prélèvements intégrés effectués à l'aide d'un préleveur automatique de type ISCO. Pour les 4 autres jours sans données, les MES ont été estimées à l'aide de la relation Débit/MES calculée à partir des données de débits et de MES obtenus entre 2005 et 2008 (Figure 2). Cette équation s'écrit :

$$\log MES = 2,1 \log Q - 5,2$$

Avec MES la concentration en matière en suspension en mg.L⁻¹

Et Q le débit liquide en m³.s⁻¹

La Figure 3 représente les concentrations journalières de MES mesurées par le COM. Comme attendu, l'évolution des concentrations en MES suit celle des débits avec cependant quelques singularités au cours de l'année. Ainsi, les concentrations en MES ont varié de 2,5 à 4 967 mg.L⁻¹; la moyenne s'établissant à 99 mg.L⁻¹. Le 14 janvier 2008, une concentration en MES de 632 mg.L⁻¹ a été mesurée pour un débit de 1191 m³.s⁻¹. L'hypothèse d'un « coup de bélier » sur le circuit d'alimentation en eau de la station est retenue suite à l'intervention du technicien pour la maintenance de la pompe. Cette valeur aberrante a été remplacée par la valeur théorique calculée selon l'équation ci-dessus.

En mai/juin, une crue importante sur l'Isère et sur la Durance a conduit à l'augmentation remarquable des teneurs en matières en suspension qui ont atteint $4\,967\text{ mg.L}^{-1}$ en moyenne journalière, le 1^{er} juin.

Enfin, en décembre, une dernière augmentation des concentrations en MES a été enregistrée avec un maximum de $3\,751\text{ mg.L}^{-1}$ mesuré le 14 décembre, avant l'arrivée du pic de crue liquide ($3\,863\text{ m}^3.\text{s}^{-1}$ le 15 décembre).

En avril, septembre et novembre, les débits moyens journaliers ont dépassé le seuil de $3\,000\text{ m}^3.\text{s}^{-1}$ à Arles mais les concentrations en MES sont restées relativement modestes (70 à 413 mg.L^{-1}).

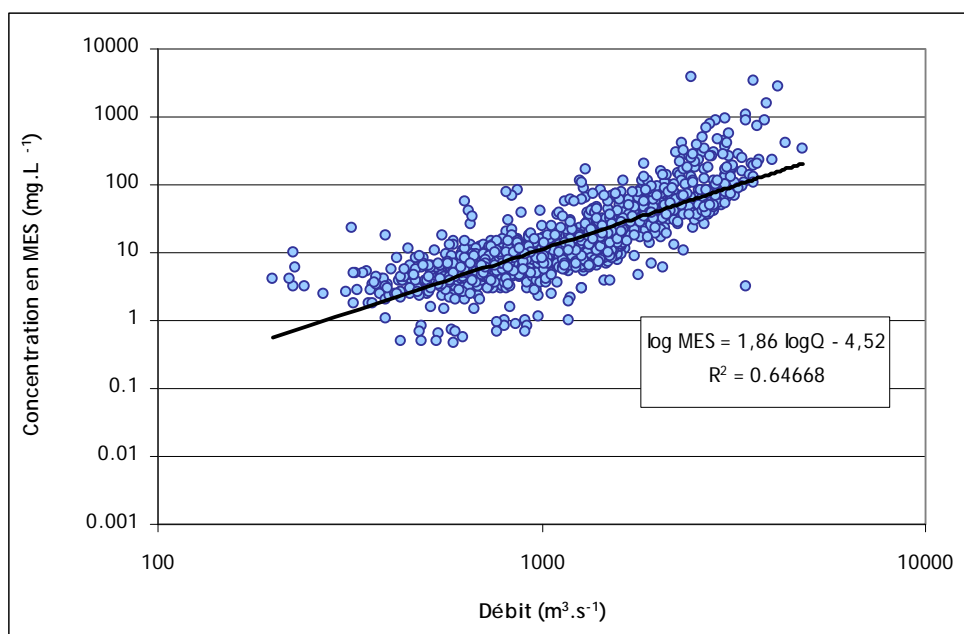


Figure 2 - Relation débit-MES établie d'après les données obtenues entre 2005 et 2008 à la station SORA.

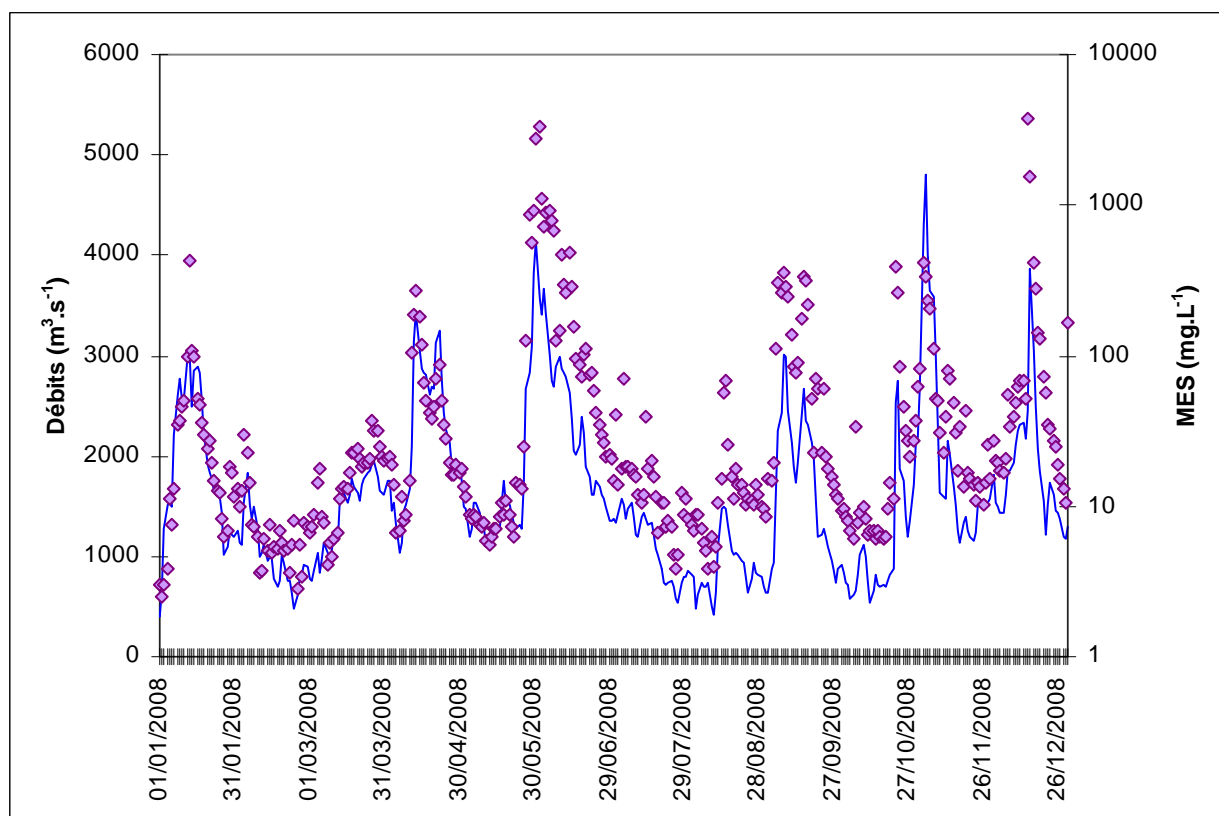


Figure 3 - Évolution des concentrations en MES et des débits du Rhône au cours de l'année 2008.

2.3. CONCENTRATIONS EN RADIONUCLÉIDES ÉMETTEURS GAMMA

Les radionucléides peuvent avoir une origine naturelle ou artificielle. La radioactivité naturelle est essentiellement due aux radionucléides de la famille de l' ^{238}U et du ^{232}Th ainsi qu'au ^{40}K . Les familles de l' ^{238}U et du ^{232}Th contiennent, respectivement, 14 et 10 nucléides fils, dont le ^{234}Th et ^{210}Pb pour la première, et l' ^{228}Ac pour la seconde. Le ^7Be , d'origine cosmogénique², contribue également à la radioactivité naturelle.

Les radionucléides artificiels ont été émis dans l'environnement à partir du milieu du siècle dernier par l'utilisation militaire puis industrielle de l'énergie nucléaire. Les radionucléides artificiels présents aujourd'hui dans le Rhône ont plusieurs origines :

- Les retombées atmosphériques globales des essais nucléaires effectués entre 1945 et 1980 et celles de l'accident de Tchernobyl. Si la majeure partie des éléments à vie courte et moyenne issus de ces retombées a aujourd'hui disparu de l'environnement par désintégration, des activités rémanentes notamment en ^{137}Cs , ^{90}Sr , ou actinides (^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am) sont observées dans les sols du bassin rhodanien. Par érosion, altération et drainage des sols, ces radionucléides artificiels sont transférés au milieu fluvial sous forme dissoute et/ou associés aux matières solides.

- Les rejets liquides de l'industrie nucléaire effectués dans un cadre réglementaire. Dans la vallée du Rhône, les sources principales sont le centre de retraitement du combustible irradié de Marcoule et les Centres Nucléaires de Production d'Électricité (C.N.P.E.). Le centre de Marcoule contribue encore aujourd'hui à l'essentiel des rejets industriels introduits dans les eaux du Rhône (Eyrolle et al., 2007).

2.3.1. ACTIVITÉS MESURÉES AU COURS DE L'ANNÉE 2008

Au cours de l'année 2008, 28 échantillons (14 échantillons de MES et 14 échantillons représentatifs de la phase dissoute) prélevés hors crue ont fait l'objet de mesurages par spectrométrie gamma (Bouisset et Calmet, 1997) au sein du Laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans l'Environnement de l'IRSN (IRSN/DEI/STEME/LMRE). D'autre part, 61 échantillons de MES et 6 échantillons représentatifs de la phase dissoute collectés en crue ont également été mesurés.

2.3.1.1. Hydrologie normale ($Q < 3000 \text{ m}^3\text{s}^{-1}$)

Phase particulière

Les radionucléides émetteurs gamma détectés au moins une fois dans l'année sont les ^{228}Ac , ^7Be , ^{40}K , ^{234}Th , et ^{210}Pb pour les naturels et ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{54}Mn , $^{110\text{m}}\text{Ag}$ et ^{125}Sb pour les artificiels (Tableau 1).

Les figures 4 et 5 retracent l'évolution des activités massiques des principaux radionucléides d'origine naturelle et artificielle mesurés dans les MES du Rhône au cours de l'année 2008.

Le ^{40}K présente les activités massiques les plus élevées, comprises entre 475 ± 38 et $638 \pm 77 \text{ Bq.kg}^{-1}\text{sec}$. Les activités en ^{234}Th et l' ^{228}Ac , éléments de filiation des chaînes de l' ^{238}U et du ^{232}Th , varient respectivement de 28 ± 13 à $53 \pm 6 \text{ Bq.kg}^{-1}\text{sec}$ et de 37 ± 5 à $51 \pm 6 \text{ Bq.kg}^{-1}\text{sec}$. Ces valeurs sont comprises dans la gamme de variation observée dans les sédiments fluviaux à l'échelle du territoire français (Le Roux, 2007).

Le ^7Be présente une gamme de variation étendue (32 ± 4 à $200 \pm 20 \text{ Bq.kg}^{-1}\text{sec}$) qui s'explique par la période de décroissance radioactive très courte (53 jours) de cet élément apporté par l'atmosphère. Son activité dépend aussi

² Produit dans les couches supérieures de la troposphère et dans la stratosphère

fortement de l'occurrence de précipitations sur le bassin versant et du temps de résidence des masses d'eau et de matières dans le système hydrographique.

Radionucléides	Nombre de résultats >LD	Fréquence
^{228}Ac	14	100%
^7Be	14	100%
^{40}K	14	100%
^{234}Th	13	93%
^{210}Pb	6	43%
$^{110\text{m}}\text{Ag}$	3	21%
^{137}Cs	14	100%
^{60}Co	14	100%
^{54}Mn	11	79%
^{125}Sb	1	7%

Tableau 1 - Nombre et fréquence de mesure de spectrométrie γ dont le résultat est supérieur à la limite de détection dans la phase particulaire (seuls les radionucléides ayant été décelés au moins une fois sont représentés).

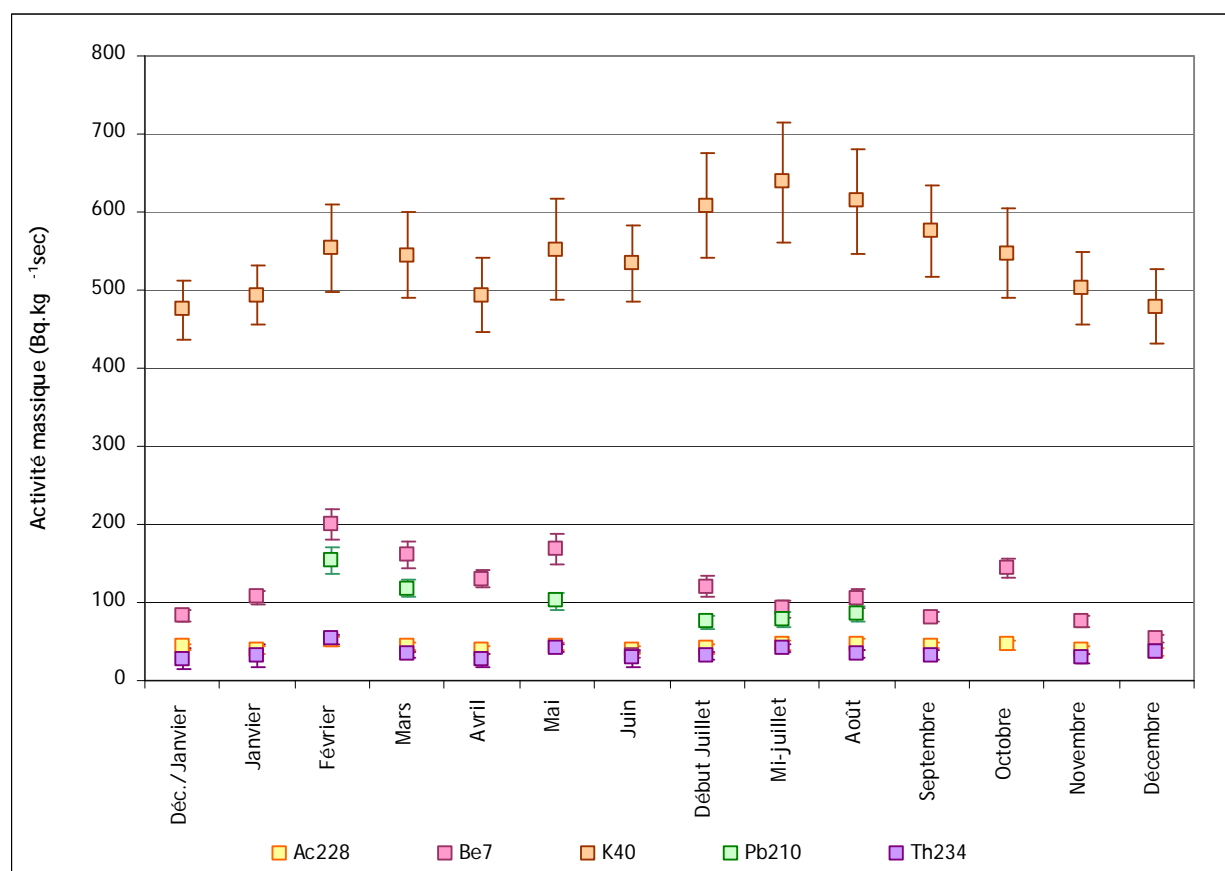


Figure 4 - Évolution des activités massiques des radionucléides d'origine naturelle mesurés dans les MES du Rhône en 2008.

Les radionucléides artificiels détectés en 2008 sont par ordre d'activité décroissante le ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{54}Mn , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, et ^{125}Sb . Les activités mesurées en ^{137}Cs et ^{60}Co sont respectivement comprises entre $9,5 \pm 0,9$ et $34,2 \pm 3,7 \text{ Bq.kg}^{-1}\text{sec}$ et entre $0,9 \pm 0,2$ et $13,2 \pm 1,7 \text{ Bq.kg}^{-1}\text{sec}$. Ces éléments ont été systématiquement détectés. Le ^{54}Mn a été détecté à 11 reprises à des teneurs variant de $0,4 \pm 0,1$ à $11,3 \pm 1,0 \text{ Bq.kg}^{-1}\text{sec}$. Le $^{110\text{m}}\text{Ag}$, détecté à 3 reprises, présente des activités comprises entre $0,2 \pm 0,1$ et $0,6 \pm 0,2 \text{ Bq.kg}^{-1}\text{sec}$. Enfin, le ^{125}Sb a été détecté en décembre ($0,3 \pm 0,2 \text{ Bq.kg}^{-1}\text{sec}$). Cet élément est rarement détecté sur les MES car il transite majoritairement par voie dissoute.

Les activités massiques en radionucléides artificiels sont en général inférieures à celles des radionucléides naturels : en prenant par exemple le ^{40}K , élément majoritaire parmi les émetteurs gamma d'origine naturelle et le ^{137}Cs , élément systématiquement détecté avec les plus fortes activités massiques parmi les radionucléides d'origine artificielle, on obtient un rapport entre l'activité maximale du ^{40}K et celle du ^{137}Cs de 48.

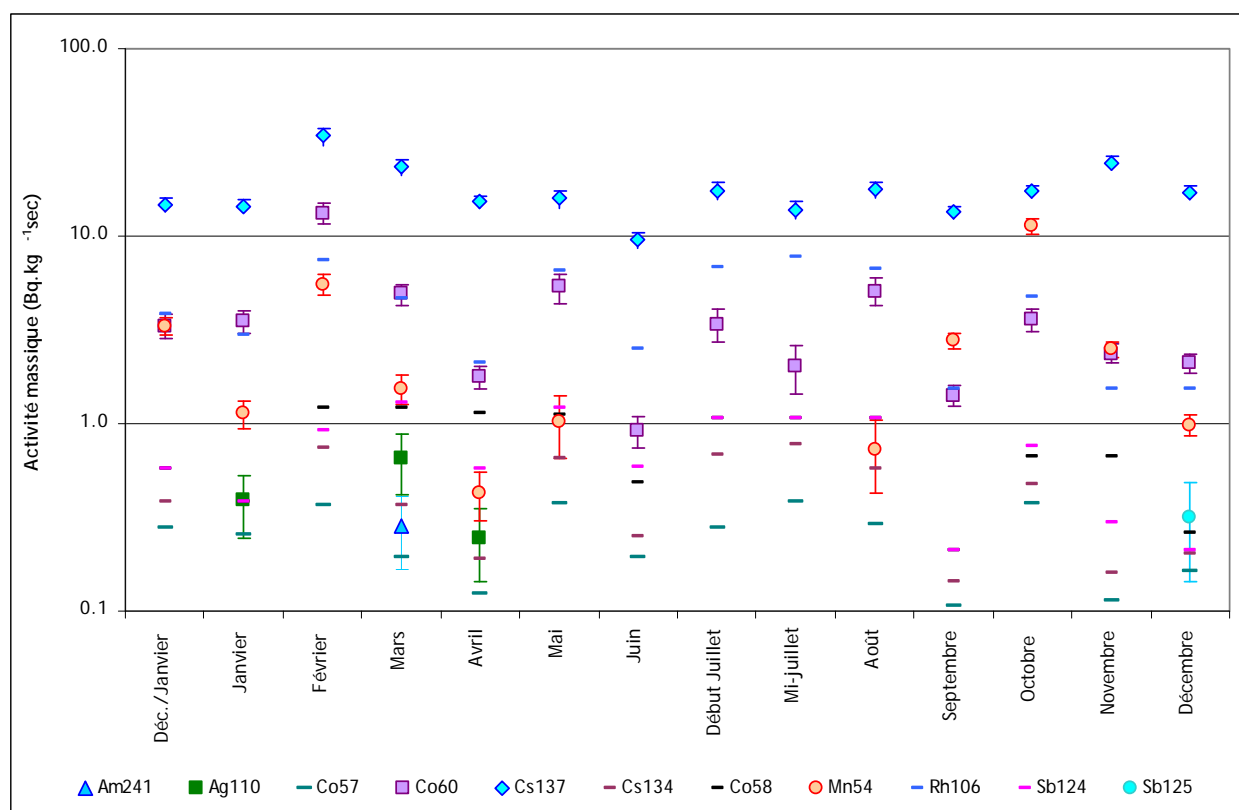


Figure 5 - Évolution des activités massiques des radionucléides artificiels détectés dans les MES du Rhône en 2008 et limite de détection des autres RN.

Phase dissoute

Les radionucléides détectés au moins une fois sont, par fréquence d'apparition, les ^{228}Ac , ^7Be , ^{40}K , ^{234}Th , et ^{22}Na pour les naturels et les ^{137}Cs , ^{60}Co et ^{125}Sb pour les artificiels (Tableau 2).

Les figures 6 et 7 illustrent l'évolution des activités volumiques des radionucléides émetteurs gamma d'origine naturelle et artificielle présents en phase dissoute dans les eaux du fleuve. Le ^{40}K est le radionucléide naturel le plus abondant dans l'eau avec des concentrations variant de 17 ± 1 à $60 \pm 5 \text{ mBq.L}^{-1}$. Le ^{234}Th varie de $2,7 \pm 1,5$ à $8,7 \pm 0,9 \text{ mBq.L}^{-1}$ et l' ^{228}Ac de $0,6 \pm 0,1$ à $1,8 \pm 0,2 \text{ mBq.L}^{-1}$. Le ^7Be présente des niveaux d'activité compris entre $0,5 \pm 0,1$ et $2,5 \pm 0,3 \text{ mBq.L}^{-1}$. Le ^{22}Na , d'origine cosmogénique, a été détecté à 6 reprises à des activités

volumiques inférieures de 1 à 3 ordres de grandeur aux activités volumiques des radionucléides précédemment cités.

Radionucléides	Nombre de résultats >LD	Fréquence
²²⁸ Ac	14	100%
⁷ Be	14	100%
⁴⁰ K	14	100%
²³⁴ Th	13	93%
²² Na	6	8%
¹³⁷ Cs	14	100%
⁶⁰ Co	13	93%
¹²⁵ Sb	9	64%

Tableau 2 - Nombre et fréquence de mesure de spectrométrie γ dont le résultat est supérieur à la limite de détection dans la phase dissoute (seuls les radionucléides ayant été décelés au moins une fois sont représentés).

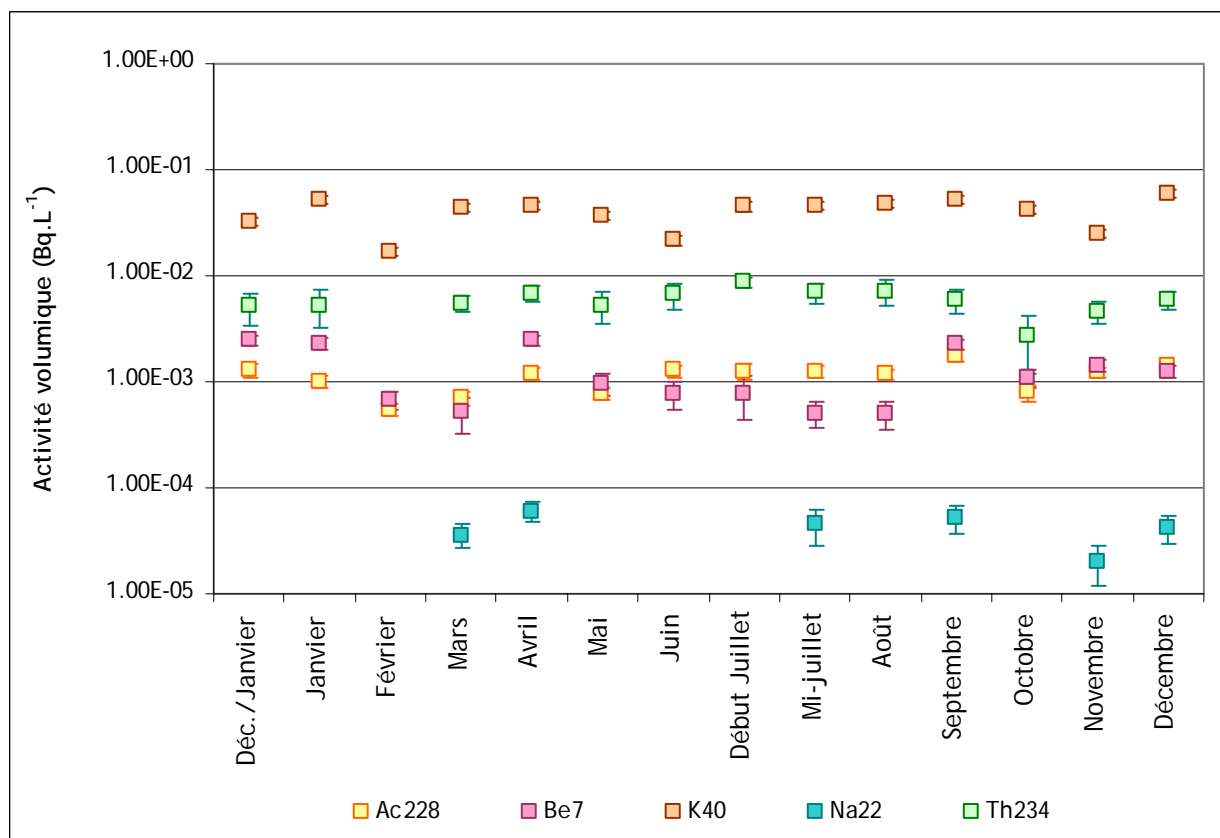


Figure 6 - Évolution des activités volumiques des radionucléides d'origine naturelle mesurés dans la phase dissoute au cours de l'année 2008.

Parmi les radionucléides artificiels, seul le ¹³⁷Cs est systématiquement détecté à des niveaux d'activités volumiques compris entre $0,14 \pm 0,02$ et $0,43 \pm 0,04$ mBq.L⁻¹. On notera que son activité volumique maximale est plus de 120 fois inférieure à celle du ⁴⁰K. Les activités mesurées en ⁶⁰Co sont comprises entre $0,02 \pm 0,01$ et $0,43 \pm 0,03$ mBq.L⁻¹. Le ¹²⁵Sb, essentiellement présent dans la fraction dissoute dans la plupart des systèmes

aquatiques (Filella et al., 2002), a été détecté à 9 reprises à des concentrations comprises entre $0,04 \pm 0,01$ et $0,26 \pm 0,03$ mBq.L⁻¹.

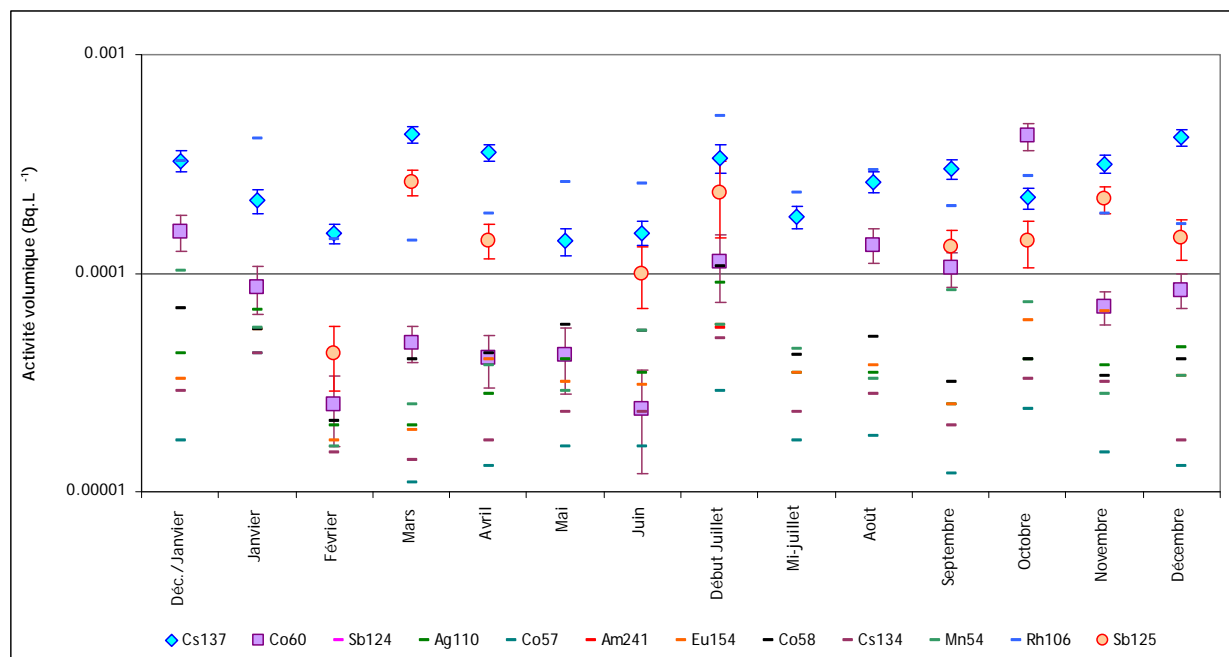


Figure 7 - Évolution des activités volumiques des radionucléides artificiels détectés dans les eaux du Rhône en 2008 et limite de détection des autres RN

Activité γ totale de l'eau brute

Les activités des radionucléides naturels et artificiels ont été calculées d'après les résultats d'analyse obtenus dans la phase particulaire et dans la phase dissoute, pour chaque radionucléide mesuré au moins une fois dans l'une des deux phases, selon la relation :

$$A_T = \left[\frac{[A_P]}{1\,000\,000} \times [MES_M] \right] + A_D$$

Avec A_T = l'activité volumique totale en Bq.L⁻¹

A_P = l'activité massique de la phase particulaire en Bq.kg⁻¹sec

A_D = l'activité volumique de la phase dissoute en Bq.L⁻¹

[MES_M] : la concentration moyenne mensuelle en MES, en mg.L⁻¹

Lorsque l'activité d'un radionucléide est inférieure à la limite de détection dans l'une des deux phases, il a été décidé de lui attribuer conventionnellement une activité égale à la moitié de la valeur affectée à la limite de détection, afin de disposer d'une teneur dans l'eau brute pour les principaux radionucléides émetteurs gamma détectés.

La Figure 8 présente l'évolution des activités volumiques de l'eau brute au cours de l'année 2008. Comme observé dans la phase dissoute et dans la phase particulaire, les radionucléides d'origine naturelle présentent généralement les activités volumiques totales les plus élevées, supérieures de 1 à 3 ordres de grandeur à celles des radionucléides d'origine artificielle. Ce constat est conforme aux observations d'Eyrolle et al., 2008.

Les activités en ^{137}Cs dans l'eau brute varient ainsi de 0,32 à 4,45 mBq.L^{-1} tandis que celles du ^{40}K s'échelonnent de 21 à 227 mBq.L^{-1} .

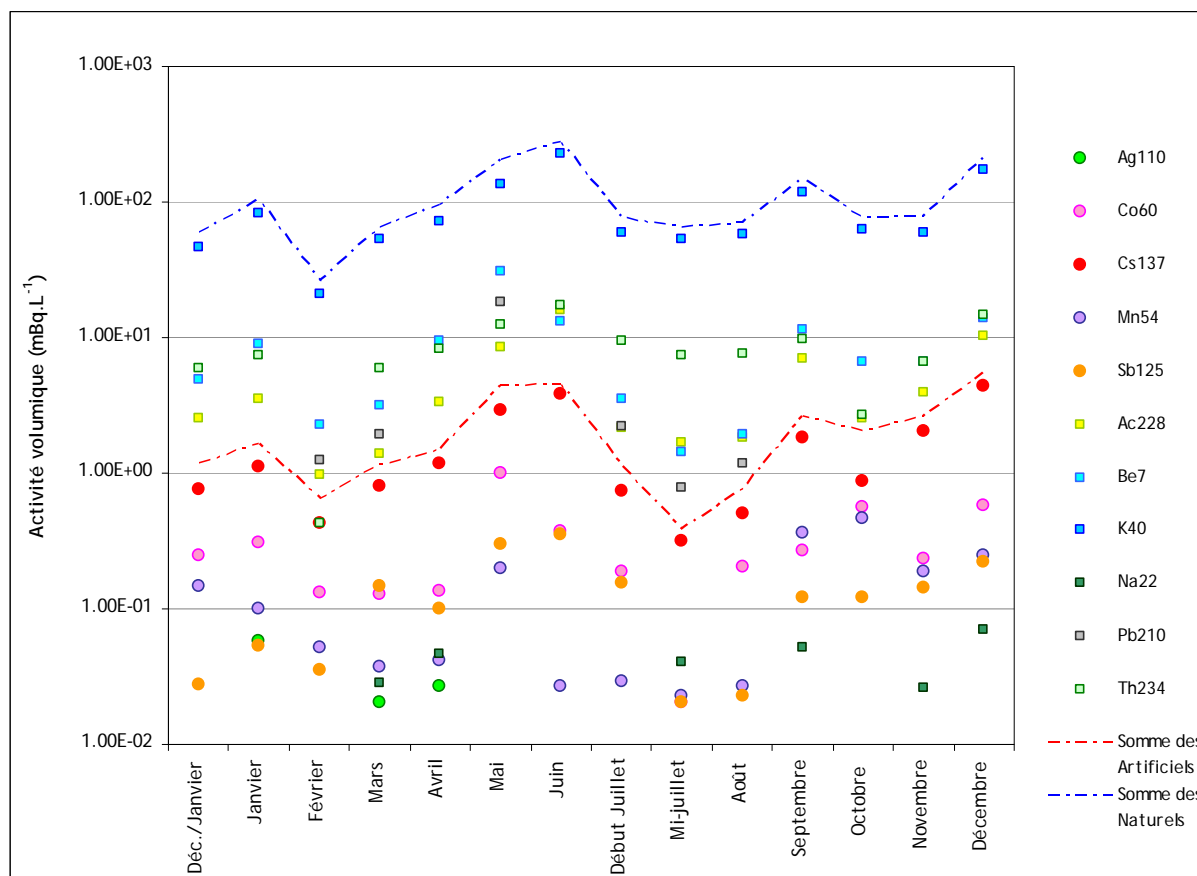


Figure 8- Évolution des activités volumiques totales (particulaire+dissous) des différents radionucléides détectés dans les eaux du Rhône. Évolution de l'activité volumique brute des radionucléides d'origine naturelle (bleu) et artificielle (rouge).

2.3.1.2. Période de crue ($Q > 3000 \text{ m}^3\text{s}^{-1}$)

Phase particulaire

Le Tableau 3 récapitule les fréquences de détection des radionucléides émetteurs gamma recherchés en crue. On note que les ^{228}Ac , ^{40}K et ^{137}Cs sont systématiquement détectés, comme hors période de crue. Le ^{234}Th et le ^{210}Pb sont systématiquement détectés durant les événements de crue, en relation probable avec les temps de déplacement rapides des sédiments mis en jeu depuis leur source jusqu'à Arles. On note en revanche que les radionucléides artificiels ayant pour seule origine les rejets de l'industrie nucléaire (^{60}Co et ^{54}Mn) sont moins fréquemment détectés qu'hors période de crue. Ceci s'explique par le fait que les rejets ne sont pas autorisés lorsque le Rhône est en crue. Compte tenu de la taille du fleuve, le débit retenu varie d'un site à l'autre, ainsi pour le site de Marcoule, le seuil d'interdiction des rejets est fixé à $4\,000 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$.

Les gammes de variations des activités volumiques sont généralement comparables à celles obtenues hors période de crue (Figure 9), même si les activités massiques maximales sont légèrement moins élevées que pour les débits modaux. Par exemple, l'activité massique du ^{137}Cs atteint $21,7 \pm 2,2 \text{ Bq.kg}^{-1}\text{sec}$ au début de la crue d'avril 2008 alors que la moyenne du mois de février, caractérisée par un débit moyen mensuel peu élevé ($1\,016 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$), atteint $34,2 \pm 3,7 \text{ Bq.kg}^{-1}\text{sec}$. Cette observation vaut également pour les éléments naturels comme le ^{234}Th ou le

^{210}Pb qui enregistrent des maxima de concentration massique inférieurs de 25 à 38 % à ceux obtenus hors période de crue.

Radionucléides	Nombre de résultats >LD	Fréquence
^{40}K	61	100%
^{228}Ac	61	100%
^{234}Th	61	100%
^{210}Pb	61	100%
^7Be	59	97%
^{137}Cs	61	100%
^{60}Co	26	43%
^{54}Mn	15	25%

Tableau 3 - Nombre et fréquence de mesure de spectrométrie γ dont le résultat est supérieur à la limite de détection dans la phase particulaire prélevée en crue (Seuls les radionucléides ayant été décelés au moins une fois sont représentés).

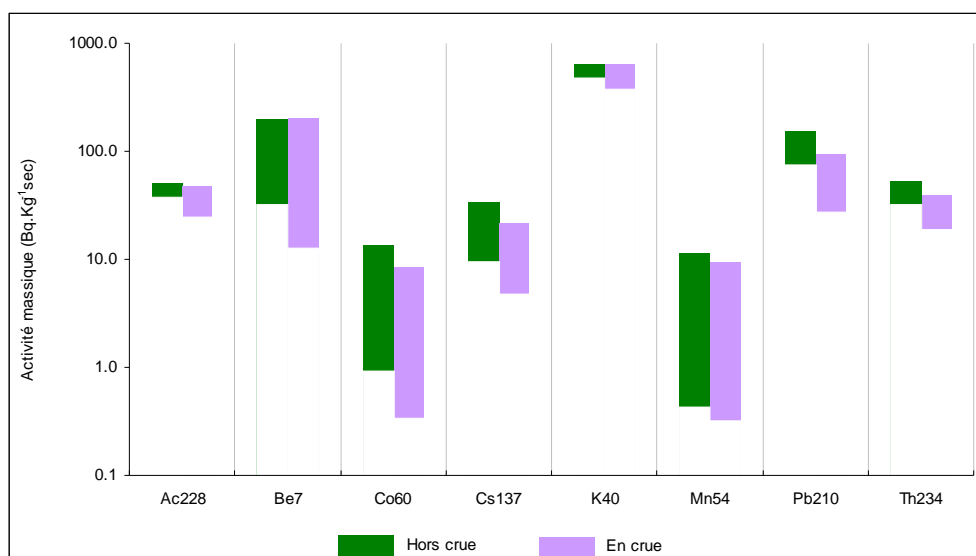


Figure 9 - Gammes de variation des activités massiques des principaux radionucléides détectés hors crue et en crue.

Ces observations sont interprétées par [Eyrolle et al.](#) (soumis), qui ont étudié un grand nombre de crues et une gamme de débit étendue, comme la tendance des activités massiques des matières en suspension à se rapprocher d'un bruit de fond géochimique caractéristique du bassin versant. En particulier, les crues tendent à lessiver les dépôts sédimentaires les plus récents peu marqués avant de remettre en jeu des sédiments plus anciens, marqués par les retombées atmosphériques anciennes.

Phase dissoute

Les travaux de [Rolland \(2006\)](#) ont démontré que, durant les crues, la contribution du flux dissous au flux total annuel des radionucléides suivis durant cette étude (^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^7Be et ^{210}Pb) était négligeable au regard des flux exportés par voie particulaire. De plus, les mesures de l'activité du ^{137}Cs en phase dissoute en période d'hydrologie normale et durant quelques événements de crue ont mis en évidence des activités volumiques inférieures lors des événements de crue. Ceci a conduit à réduire les mesures de radioactivité en phase dissoute des émetteurs gamma durant les périodes de crues. Néanmoins, afin de vérifier ponctuellement ces observations, un échantillon composite constitué lors de chaque événement de crue a été analysé. Les résultats obtenus indiquent que les éléments prépondérants hors période de crue sont systématiquement détectés également en crue (Tableau 4). Seul le ^{54}Mn , fréquemment mesuré hors période de crue, n'a pu être déterminé qu'à une seule reprise. A contrario, le ^{210}Pb , très peu décelé en période d'hydrologie normale est presque toujours mesuré durant les crues.

Radionucléides	Nombre de résultats >LD	Fréquence
^{228}Ac	6	100%
^7Be	6	100%
^{40}K	6	100%
^{210}Pb	5	83%
^{234}Th	5	83%
^{137}Cs	6	100%
^{60}Co	3	50%
^{125}Sb	2	33%
^{54}Mn	1	17%

Tableau 4 - Nombre et fréquence de mesure de spectrométrie γ dont le résultat est supérieur à la limite de détection dans la phase dissoute prélevée en crue (seuls les radionucléides ayant été décelés au moins une fois sont représentés).

Par ailleurs, les maxima des activités volumiques obtenues sur les échantillons prélevés en crue sont en général supérieurs à ceux obtenues hors période de crue (Figure 10), excepté pour le ^{60}Co .

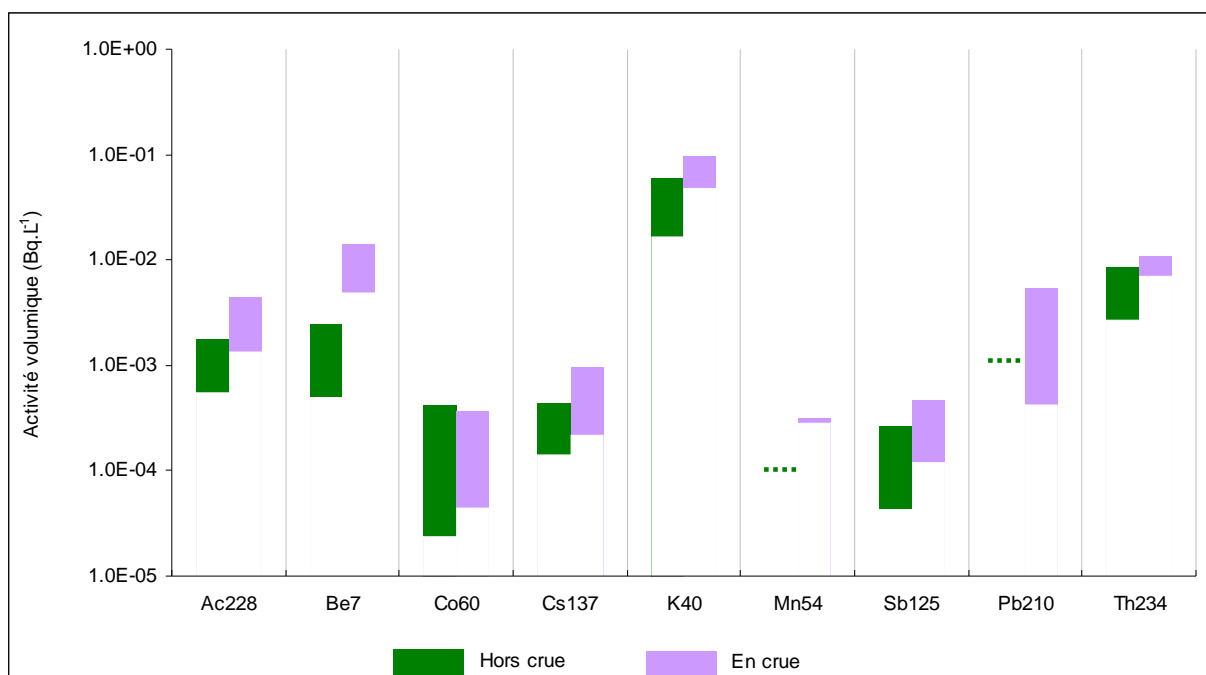


Figure 10 - Gammes de variation des activités volumiques des principaux radionucléides détectés hors crue et en crue (en tiret, les limites de détection déterminées pour le ^{54}Mn et le ^{210}Pb , hors période de crue).

Ces résultats sont différents de ceux de [Rolland \(2006\)](#). Cependant, cet auteur soulignait la variabilité des activités volumiques du ^{137}Cs en phase dissoute reportée dans la littérature. Mais il faut également rappeler que la taille et la diversité du bassin versant rhodanien (aussi bien géologique que climatique) entraîne une variabilité des réponses hydro-sédimentaires du fleuve, et par suite, une variabilité radiologique des résultats obtenus. D'autres facteurs peuvent également expliquer ces écarts, témoignant de la nécessité d'appréhender ces résultats avec prudence. Par exemple, les échantillons prélevés à SORA en période de crue correspondent en partie à des débits liquides relativement peu élevés, compris en moyenne journalière entre 2 950 et 3 300 $\text{m}^3.\text{s}^{-1}$. Or, les industries nucléaires implantées le long du Rhône possèdent des autorisations de rejets couvrant une gamme de débit légèrement plus large (jusqu'à 4 000 $\text{m}^3.\text{s}^{-1}$ par exemple pour Marcoule) ce qui peut expliquer que les échantillons prélevés par SORA en crue présentent des activités volumiques en radionucléides supérieures à ceux prélevés hors période de crue.

2.4. CONCENTRATIONS DES AUTRES RADIONUCLEIDES MESURÉS

En 2008, les premières mesures de ^{90}Sr (émetteur bêta) et de ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am (émetteurs alpha) ont été obtenues. Elles complètent le spectre des radionucléides régulièrement recherchés à Arles depuis plusieurs années.

2.4.1.1. ^{90}Sr

Cet élément est issu des retombées atmosphériques anciennes et de rejets liquides effectués par le centre de retraitement de Marcoule. Le ^{90}Sr transite majoritairement sous forme dissoute bien qu'il puisse se fixer en partie aux particules (Kd variant de 1 à 1000, [Roussel-Debet et Beaugelin, 2005](#)). En 2008, il a été recherché dans les phases dissoutes et particulaires en routine mais également durant les épisodes de crues.

Phase particulaire

En 2008, le ^{90}Sr a été détecté à 12 reprises avec des niveaux d'activité s'échelonnant de $0,56 \pm 0,49$ à $1,54 \pm 1,06 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$. Durant les épisodes de crues, il est moins fréquemment décelé (5 fois sur les 11 mesures réalisées) avec des activités cependant proches de celles mesurées hors période de crue ($0,54 \pm 0,47$ à $1,48 \pm 0,79 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$).

Phase dissoute

Dans cette phase, le ^{90}Sr a été systématiquement mesuré en routine. Ces concentrations varient de $0,9 \pm 0,1$ à $3,1 \pm 0,5 \text{ mBq.L}^{-1}$. Aucune mesure n'a été effectuée en période de crue car des études antérieures ont montré que ces événements ne contribuaient pas à un export massif de radioactivité par voie dissoute (Rolland, 2006).

2.4.1.2. ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am

Ces trois éléments sont présents dans le bassin versant rhodanien en raison de leur présence dans les retombées atmosphériques anciennes (^{241}Am étant un élément de filiation du ^{241}Pu qui était présent dans ces retombées). Ils sont également rejetés par le centre de retraitement du combustible irradié de Marcoule. L'intérêt de ces éléments vient également du fait que le calcul de leur rapport d'activité permet de « signer » leur origine. En effet, ces différents radionucléides ont ou sont rejetés dans l'environnement avec des rapports d'activité bien connus. Ainsi, pour le plutonium issu des retombées atmosphériques anciennes, le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ est aujourd'hui de l'ordre de 0,03 (Rolland, 2006). Quand aux rejets de Marcoule, ils sont caractérisés par un rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ de l'ordre de 0,30 (Rolland, 2006). Connaissant ces rapports d'activité, il est possible de déterminer la part des apports particuliers issus du bassin versant de ceux marqués par les rejets de Marcoule (Duffa, 2001). Notons enfin que ces radionucléides présentent une forte affinité avec les matières en suspension.

Phase particulaire

Ces éléments ont été systématiquement quantifiés dans les échantillons analysés que ce soit en routine ou lors des événements de crue.

Hors période de crue, les concentrations varient de $0,07 \pm 0,01$ à $0,28 \pm 0,03 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ pour ^{241}Am , de $0,14 \pm 0,10$ à $0,35 \pm 0,02 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ pour le $^{239+239}\text{Pu}$ et de $0,015 \pm 0,02$ à $0,082 \pm 0,008 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ pour le ^{238}Pu . Durant les crues, les concentrations mesurées sont légèrement inférieures pour chacun de ces éléments : comprises entre $0,032 \pm 0,08$ et $0,24 \pm 0,02 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ pour ^{241}Am , entre $0,048 \pm 0,005$ et $0,28 \pm 0,02 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ pour le $^{238+239}\text{Pu}$ et entre $0,002 \pm 0,001$ et $0,083 \pm 0,06 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ pour le ^{238}Pu . Les rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ calculés pour les échantillons prélevés en période de crue varient de 0,04 à 0,23. Lors de la crue de mai-juin 2008, ce rapport est resté proche de celui des retombées atmosphériques globales, cohérent avec l'origine des masses d'eau et de sédiments issus des bassins-versant isérois et durancien. A contrario, durant les crues de novembre et décembre, le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ (compris entre 0,14 et 0,20) se rapproche du rapport d'activité des rejets de Marcoule (0,3). Or, les débits ayant dépassé les $4\,000 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$ (seuil au-delà duquel Marcoule ne peut rejeter d'effluent dans le Rhône), ces rapports d'activité témoignent de la remobilisation de sédiments marqués par les rejets et accumulés au fil du temps entre Marcoule et Arles.

Phase dissoute

Bien que peu solubles, ces éléments ont été presque systématiquement mesurés dans la phase dissoute, notamment en raison des grandes quantités prélevées et des performances analytiques obtenues par le laboratoire de mesure de la radioactivité dans l'environnement de l'IRSN. Les activités mesurées sont extrêmement faibles, comprises entre $0,42 \pm 0,25$ et $6,3 \pm 1,2 \mu\text{Bq.L}^{-1}$ pour ^{241}Am , $0,72 \pm 0,20$ et $7,0 \pm 0,7 \mu\text{Bq.L}^{-1}$ pour $^{238+239}\text{Pu}$ et entre $0,14 \pm 0,13$ et $2,9 \pm 0,4 \mu\text{Bq.L}^{-1}$ pour le ^{238}Pu .

2.4.1.3. Activités en tritium libre

Le tritium (^3H) est l'isotope radioactif de l'hydrogène. Émetteur bêta, il peut être d'origine naturelle ou artificielle. Produit dans l'atmosphère, il se transforme à 99% en eau tritiée et s'intègre au cycle normal de l'eau (Calmon et Garnier-Laplace, 2001). Cependant, de grandes quantités de tritium ont été introduites dans l'environnement durant les essais de tirs d'armes nucléaires dans l'atmosphère, mais de par sa période radioactive (12,33 ans), un retour à la situation antérieure est actuellement en cours (Figure 1, Annexe A). Les centrales nucléaires et les centres de retraitement du combustible irradié rejettent également du tritium dans l'atmosphère et dans le milieu aquatique. Les activités totales rejetées annuellement sont très nettement supérieures à celles des rejets des radionucléides émetteurs gamma. L'eau tritiée, très mobile, est rapidement exportée depuis les points de rejets vers la mer.

La Figure 11 présente les activités volumiques de tritium libre mesurées dans les eaux du fleuve en 2008. Les résultats obtenus varient de $2,7 \pm 0,8$ à $13,1 \pm 1,1 \text{ Bq.L}^{-1}$ pour une moyenne de $6,0 \pm 0,8 \text{ Bq.L}^{-1}$. Ces activités sont, pour la plupart, significativement supérieures au bruit de fond naturel, de l'ordre de 1 Bq.L^{-1} dans les eaux de surface (SFRP, 2002).

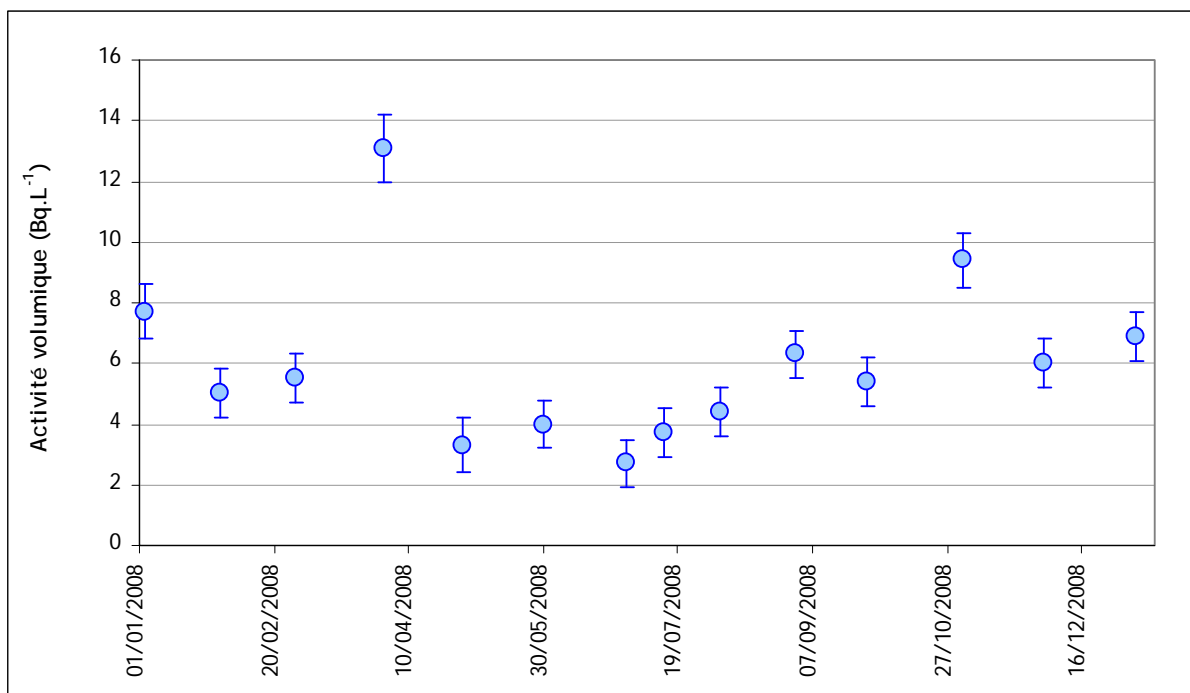


Figure 11 - Évolution de l'activité en tritium libre du Rhône au cours de l'année 2008.

3. FLUX DU RHONE À LA MER

3.1. FLUX DE MATIÈRES EN SUSPENSION

Le flux annuel de MES est estimé à $9,1 \cdot 10^6$ t pour l'année 2008 et fait suite à 4 années durant lesquelles les flux de MES étaient restés modestes (Tableau 5 ; IRSN, 2008). Le flux de MES ayant transité durant les périodes de crues (débits moyens journaliers supérieur à $3\,000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, soit 23 jours en 2008) a conduit à l'export d'environ 53% du flux total, confirmant l'importance des événements de crue dans le transit des matières en suspension (Pont et al., 2002 ; Antonelli, 2002 ; Rolland, 2006).

Année	Débit moyen annuel ($\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)	Tonnage (10^6 t)	Année	Débit moyen annuel ($\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)	Tonnage (10^6 t)	Année	Débit moyen annuel ($\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)	Tonnage (10^6 t)
1967	1466	3,07	1981	1956	8,22	1995	2100	10,56
1968	1836	5,61	1982	1980	11,42	1996	1796	10,62
1969	1632	5,01	1983	2057	15,50	1997		-
1970	1998	8,66	1984	1678	4,54	1998	1256	2,90
1971	1227	2,24	1985	1476	4,40	1999	1780	9,90
1972	1258	2,43	1986	1710	8,31	2000	1582	-
1973	1192	2,18	1987	1980	7,18	2001	1820	7,08
1974	1487	3,14	1988	1991	9,37	2002	1531	8,20
1975	1658	3,39	1989	1063	2,09	2003	1387	6,51
1976	1351	6,00	1990	1291	3,04	2004	1249	2,12
1977	2376	16,19	1991	1395	3,47	2005	1009	0,98
1978	1886	11,34	1992	1687	6,72	2006	1301	1,98
1979	1838	8,41	1993	1678	15,24	2007	1284	1,50
1980	1791	4,78	1994	2175	19,69	2008	1608	9,1

Tableau 5 - Charge solide en suspension annuellement transportée dans le Rhône entre 1967 et 2007. Compilation de données de Pont et al, 2002 ; Antonelli, 2002 ; Rolland, 2006. En bleu, les flux calculés d'après les mesures acquises par SORA et compilées dans Antonelli et al., 2007a et 2007b ; Antonelli et al., 2008).

3.2. FLUX DE RADIOACTIVITÉ ASSOCIÉE À LA PHASE PARTICULAIRE

Le Tableau 6 représente le flux annuel de chaque radionucléide détecté au moins une fois durant l'année 2008. Pour les éléments détectés ponctuellement (^{234}Th , ^{210}Pb , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{54}Mn et ^{125}Sb), le flux reporté est un flux plancher, calculé uniquement à partir des concentrations supérieures aux limites de détection.

Les flux des radionucléides émetteur gamma d'origine naturelle sont nettement supérieurs à ceux des radionucléides d'origine artificielle (Tableau 6). La radioactivité d'origine artificielle est apportée à plus de 85% par le ^{137}Cs issu du drainage des sols du bassin versant, marqués par les retombées atmosphériques suite aux essais nucléaires et à l'accident de Tchernobyl, par la remobilisation de stocks sédimentaires plus anciens présents dans le fleuve et par les rejets d'effluents liquides émis par les installations nucléaires rhodaniennes (Centrales de

Tricastin, Cruas, Saint-Alban et Bugey, centrale en déconstruction de Creys-Malville, complexes de Pierrelatte et de Marcoule ; Rolland, 2006). Environ 13% des flux artificiels sont dus au ^{60}Co et au ^{54}Mn (respectivement 8% et 5%), ces deux radionucléides étant caractéristiques des rejets des installations nucléaires.

	Radionucléides	Origine	Flux 2008 (GBq)
Emetteur γ	$^{238}\text{U}^{(1)}$	Naturel	3486±742
	$^{232}\text{Th}^{(2)}$		3240±420
	^{40}K		4610±470
	^7Be		428±46
	^{210}Pb		248±28 ⁽³⁾
	$^{110\text{m}}\text{Ag}$	Artificiel	0,15±0,05 ⁽³⁾
	^{60}Co		8,6±1,8
	^{137}Cs		90±8
	^{54}Mn		4,9±0,9 ⁽³⁾
	^{125}Sb		0,28±0,15 ⁽³⁾
Emetteur β	^{90}Sr		4,6±2,8
Emetteur α	^{241}Am		1,0±0,1 ⁽³⁾
	$^{239+240}\text{Pu}$		1,5±0,1 ⁽³⁾
	^{238}Pu		0,23±0,03 ⁽³⁾

Tableau 6 - Flux annuel des radionucléides associés à la phase particulaire mesurés en 2008. ⁽¹⁾ Estimé à partir du flux de ^{234}Th ; ⁽²⁾ Estimé à partir du flux de ^{228}Ac ; ⁽³⁾ Flux annuel plancher calculé à partir des seules données significatives.

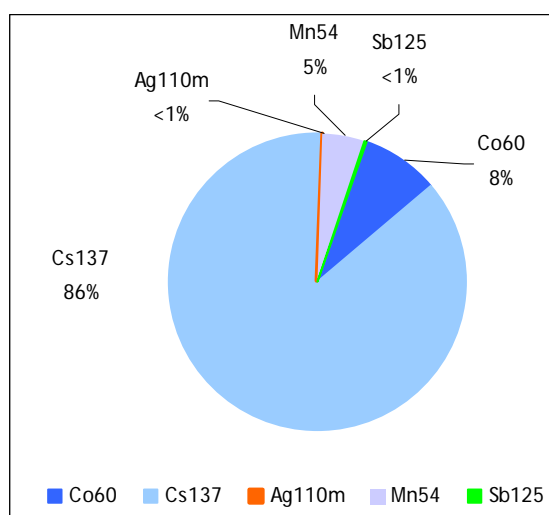


Figure 12 - Répartition (en %) de la radioactivité d'origine artificielle associée à la phase particulaire dans les matières en suspension du Rhône

Les événements de crue ont favorisé l'export d'un pourcentage élevé du flux pour certains radionucléides (Figure 13), confirmant les données précédemment acquises (Rolland, 2006 ; Antonelli, 2008). Ainsi, 53% du flux de ^{40}K , 47% du flux de ^{228}Ac , 45% du flux de ^{234}Th ou encore 39% du flux de ^{137}Cs ont transité en 6% du temps.

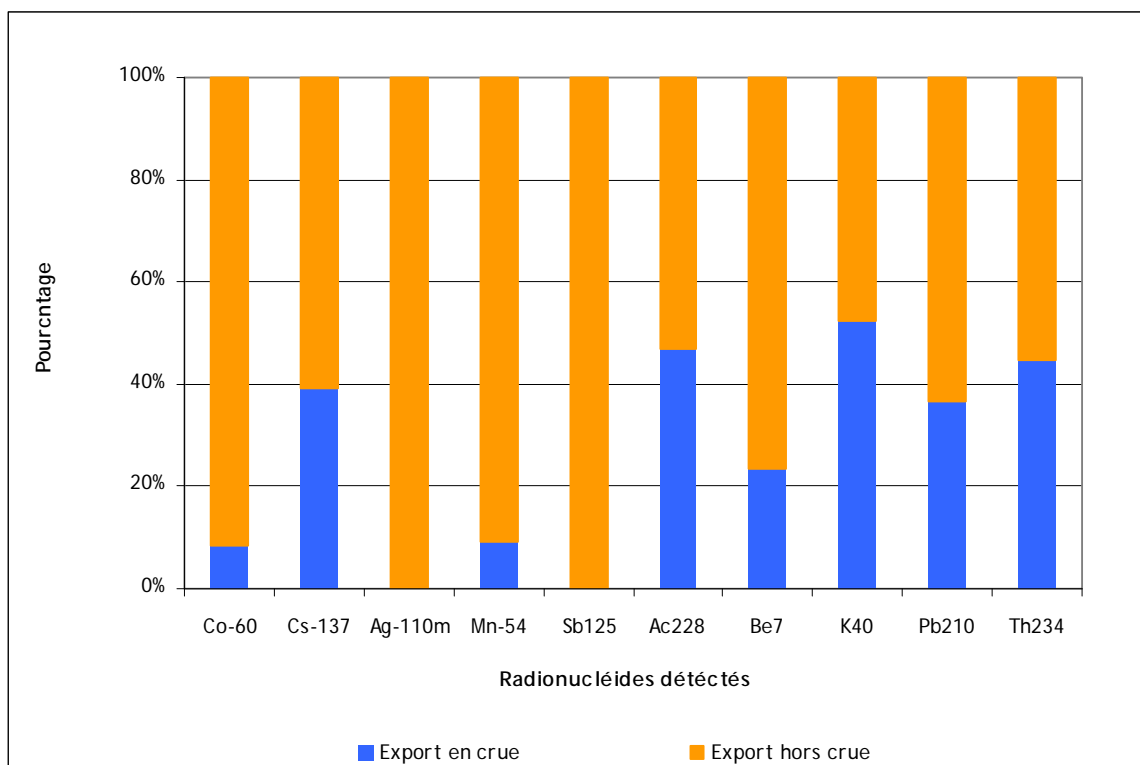


Figure 13 - Pourcentage de radioactivité exporté en et hors période de crue

En ce qui concerne le ^{90}Sr , le flux annuel est estimé à 4,6 GBq. 45% de ce total ont transité durant les périodes de crues. Quand aux flux d'émetteurs alpha, ils s'élèvent à $1,02 \pm 0,12$ GBq pour ^{241}Am , à $1,47 \pm 0,09$ GBq pour $^{239+240}\text{Pu}$ et à $0,23 \pm 0,03$ GBq pour ^{238}Pu . Là encore, les événements de crue ont permis l'export de près de 50% de la radioactivité associée à ces radionucléides.

3.3. FLUX DE RADIOACTIVITÉ EXPORTÉE PAR VOIE DISSOUE

La comparaison du flux de ^{210}Pb ($5,5 \pm 1,2$ GBq) et ^{234}Th (276 ± 76) issus de la chaîne du ^{238}U , montre un déséquilibre isotopique entre ces deux éléments dans la phase dissoute. Ceci conduit à ne pas pouvoir calculer un flux total pour ^{238}U car le postulat utilisé pour le calcul repose sur l'équilibre séculaire entre tous les éléments de la chaîne de désintégration. Par défaut, le flux annuel de chaque élément composant les principales chaînes de désintégration est présenté. Le flux de radioactivité émetteur gamma transitant en phase dissoute est essentiellement dû au ^{40}K (2067 ± 182 GBq ; Tableau 5).

Le flux de radionucléides émetteurs gamma d'origine artificielle est très inférieur, de l'ordre de 34 ± 6 GBq. Le ^{137}Cs en est le principal contributeur (57%), devant le ^{125}Sb (24%) et le ^{60}Co (13%).

Le flux de ^{90}Sr est estimé à 101 ± 18 GBq en 2008. Les concentrations obtenues en 2007 mais non exploitées précédemment permettent d'aboutir à un flux en phase dissoute de 87 ± 16 GBq, cohérent avec celui de 2008 si l'on considère les masses d'eau en jeu (respectivement $42 \cdot 10^9 \text{ m}^3$ et $51 \cdot 10^9 \text{ m}^3$ pour 2007 et 2008).

Les flux d'émetteurs alpha exportés par voie dissoute sont négligeables compte tenu de la forte propension de ces éléments à se fixer aux matières en suspension présentes dans l'eau. Ils s'établissent à $0,06 \pm 0,02$ GBq pour ^{241}Am , à $0,11 \pm 0,02$ GBq pour $^{239+240}\text{Pu}$ et à $0,02 \pm 0,01$ GBq pour ^{238}Pu .

Le flux de tritium libre est estimé à environ 293 ± 48 TBq pour l'année 2008, soit plus de 100 fois supérieur au ^{40}K , lui-même déjà largement supérieur aux flux des autres radionucléides.

	Radionucléides	Origine	Flux 2008 (GBq)
Emetteur γ	^{228}Ac	Naturel	$56,8 \pm 7,5$
	^7Be		$67,6 \pm 14,1$
	^{40}K		2067 ± 182
	^{22}Na		$1,1 \pm 0,3^{(1)}$
	^{210}Pb		$5,5 \pm 1,2^{(1)}$
	^{234}Th		276 ± 76
Emetteur β	^{60}Co	Artificiel	$4,5 \pm 1,2$
	^{137}Cs		$13,8 \pm 1,5$
	^{54}Mn		$0,14 \pm 0,02^{(1)}$
	^{125}Sb		$5,8 \pm 1,4^{(1)}$
Emetteur α	^{90}Sr		$101,2 \pm 17,9$
	^3H		292700 ± 47800
	^{241}Am		$0,06 \pm 0,02^{(1)}$
Emetteur α	$^{239+240}\text{Pu}$		$0,11 \pm 0,02^{(1)}$
	^{238}Pu		$0,02 \pm 0,01^{(1)}$

Tableau 7 - Flux annuel des radionucléides associés à la phase dissoute mesurés en 2008. ⁽¹⁾ : Flux annuel plancher.

3.4. FLUX TOTAUX : BILAN ET DISCUSSION

Bien que des bilans totaux ne puissent être établis pour les radionucléides émetteur gamma d'origine naturelle, en raison des déséquilibres isotopiques observés dans les chaînes de décroissance des principaux radioéléments mesurés en phase dissoute, leurs flux sont généralement supérieurs à ceux des radionucléides artificiels.

Le ^{40}K , pour lequel le flux total (particulaire+dissous) a pu être estimé à $6\,676 \pm 652$ GBq, est plus de 60 fois supérieur à celui du ^{137}Cs (104 ± 10 GBq).

L'activité des radionucléides émetteurs gamma d'origine artificielle est estimée à $128 \pm 15,4$ GBq. Les radionucléides qui y contribuent sont majoritairement le ^{137}Cs , le ^{60}Co et le ^{54}Mn , et pour une faible part, l' $^{110\text{m}}\text{Ag}$ et l' ^{125}Sb . Hormis l' ^{125}Sb qui transite essentiellement par voie dissoute (95%), les autres radionucléides sont exportés via la phase solide en raison de leur affinité avec les sédiments fins (Figure 14). C'est notamment le cas pour le ^{54}Mn (97%) et le ^{137}Cs (88%), un peu moins pour le ^{60}Co (66%). Ce dernier présente une propension à se fixer aux colloïdes, ce qui peut expliquer sa présence relativement importante en phase dissoute malgré sa forte affinité avec les supports solides (Eyrolle et Charmasson, 2001 ; 2004). Le flux total de ^{137}Cs est estimé à 104 ± 10 GBq en 2008 ce qui est cohérent avec les travaux de Rolland (2006) qui propose un export annuel de ^{137}Cs de 158 ± 47 GBq en 2003, année durant laquelle plusieurs crues d'importance avaient affecté le bassin versant rhodanien. Ces flux sont en hausse par rapport à ceux mesurés depuis 2005, en raison notamment des nombreux événements de crue survenus en 2008 et dont on connaît l'importance pour le transfert des radionucléides naturels et artificiels.

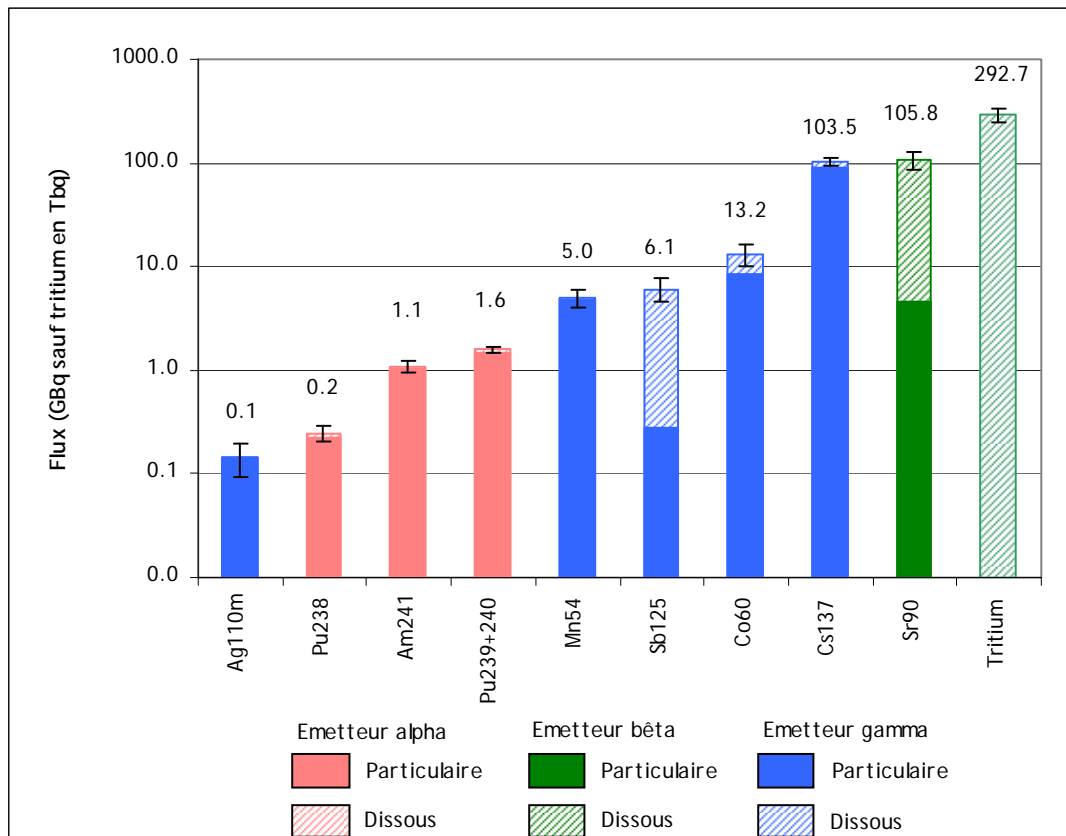


Figure 14 : Flux totaux de radionucléides artificiels mesurés dans les eaux du Rhône à Arles (GBq sauf pour tritium en TBq).

Comparés aux rejets réalisés par les Centres Nucléaires de Production d'Electricité (C.N.P.E.) et aux rejets de l'usine de retraitement du combustible irradié de Marcoule, les bilans effectués à SORA permettent de montrer des situations variées pour les émetteurs gamma (Figure 15) :

- Les flux annuels de ^{60}Co et de ^{125}Sb présentent un bilan globalement équilibré avec les rejets industriels (déficitaires respectivement de $5,2 \pm 2,9$ et $6,1 \pm 1,5$ GBq, soit en moyenne $28 \pm 16\%$ et $52 \pm 12\%$), permettant de conclure à un transit rapide de ces radionucléides depuis les points de rejets jusqu'en Méditerranée,
- Le flux d' $^{110\text{m}}\text{Ag}$ estimé à Arles est déficitaire par rapport aux rejets industriels de 1,2 GBq (représentant seulement 11% du rejet annuel). Ce déficit est très certainement lié aux limites métrologiques. En effet, les mesures réalisées en 2008 ont donné des résultats inférieurs à la limite de détection à plusieurs reprises. Or, la présence de ce radionucléide peut être possible à des niveaux inférieurs à la sensibilité des appareils de comptage. Une méthode de calcul tenant compte des limites de détection est en cours de réflexion pour améliorer l'estimation du flux de ce radionucléide.
- Le flux de ^{54}Mn estimé à Arles est excédentaire ($4,9 \pm 1,0$ GBq) par rapport aux rejets déclarés par les industriels. Cet écart s'explique sans doute par le fait que les données de rejets annuels fournies par le centre de Marcoule ne mentionnent pas ce radionucléide pour l'année 2008, alors qu'il était identifié en 2007. En effet, les règles de comptabilisation des rejets de Marcoule ont changé entre 2007 et 2008 et n'imposent plus à l'exploitant de déterminer spécifiquement ce radionucléide. Ses rejets sont ainsi inclus avec d'autres radionucléides dans une colonne dite « autre RN ». A titre d'information, le rejet de ^{54}Mn déclaré par Marcoule en 2007 (4,4 GBq) a été comparé au flux estimé pour l'année 2008 à partir des données acquises à SORA : les bilans sont sensiblement équilibrés, ce qui tend à démontrer que cet

élément est rapidement exporté depuis les sources industrielles jusqu'en Méditerranée, comme ^{60}Co et ^{125}Sb .

- Le flux de ^{137}Cs estimé à Arles est excédentaire par rapport aux rejets industriels. Cet excédent, de l'ordre de 63 GBq, provient en majorité des particules drainées sur l'ensemble du bassin versant et marquées par les retombées atmosphériques globales (tirs et accident de Tchernobyl) et par la remobilisation de sédiments stockés dans le chenal lors des crues (Rolland, 2006 ; Eyrolle *et al.*, 2008).

Pour ce qui concerne le flux total de ^{90}Sr , il est estimé à 106 ± 21 GBq dont 95% transitent en phase dissoute. Connaissant les rejets de l'usine de retraitement du combustible irradié de Marcoule, estimé à 64 GBq pour 2008³, on enregistre donc un excédent à Arles d'environ 42 GBq. Ce flux provient des apports du bassin versant et de la remobilisation de masses d'eau et de sédiments marqués par les retombées atmosphériques des essais aériens militaires.

Les flux de radionucléides émetteur alpha s'élèvent respectivement à $1,1 \pm 0,1$ GBq pour ^{241}Am , à $1,6 \pm 0,1$ GBq pour $^{239+240}\text{Pu}$ et à $0,25 \pm 0,04$ GBq pour ^{238}Pu . Ces radionucléides sont majoritairement exportés par les matières en suspension (plus de 90%) avec lesquelles ils ont une forte affinité (K_d de $2 \cdot 10^5$ pour ^{238}Pu et $^{239+240}\text{Pu}$ et compris entre $2 \cdot 10^3$ et $7 \cdot 10^5$ pour ^{241}Am ; Eyrolle et Charmasson, 2004 ; Rolland, 2006 ; Garnier-Laplace et Roussel-Debet, 2001). Comparés aux rejets d'effluents du site de Marcoule, les flux mesurés à Arles présentent un excédent pour chacun de ces radionucléides. Comme pour le ^{90}Sr , cet excédent provient des apports du bassin versant et de la remobilisation de sédiments plus anciens stockés dans le système fluvial en aval de Marcoule. Des études antérieures ont d'ailleurs démontré, par l'utilisation du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, que les crues participaient au déstockage d'une partie de ces sédiments (Rolland, 2006). Les résultats acquis par SORA en 2008 corroborent ces conclusions.

Le flux annuel de tritium libre est estimé à environ 293 ± 48 TBq pour l'année 2008. Comparé aux rejets des centres nucléaires de production d'électricité implantés sur le Rhône (soit un total d'environ 174 TBq) et à ceux du centre de retraitement du combustible irradié de Marcoule (24 TBq), il apparaît un excédent à Arles d'environ 95 TBq. Si l'on ramène ce chiffre au volume d'eau exporté par le Rhône en 2008 (environ $51 \cdot 10^9$ m³), on obtient une teneur dans l'eau de l'ordre de $1,8 \pm 0,9$ Bq.L⁻¹, supérieure aux valeurs proposées dans la littérature pour les cours d'eau non soumis à des rejets industriels (0,1 à 0,9 Bq/l⁻¹ ; SFRP, 2002). Les hypothèses émises pour expliquer cet excédent sont :

- Un apport de tritium par les rejets atmosphériques, estimé à environ 95 TBQ pour les 6 sites nucléaires, dont une partie pourrait se redéposer localement et être drainée par les eaux de ruissellement vers le Rhône ;
- Une contribution du tritium lié à la matière organique : on tâchera de déterminer si les sédiments marqués en tritium lié du haut-Rhône (Gontier, 1991) ne peuvent être à l'origine d'une diffusion de tritium vers la colonne d'eau, bien que des études antérieures ne retiennent pas cette hypothèse (Gontier, in prep) ;
- Des sources de tritium exogènes, non encore déterminées.

En tout état de cause, ces premiers bilans doivent être affinés par la précision des flux estimés (entraînant une meilleure prise en compte des incertitudes et des valeurs non décelées) d'une part, et par la recherche d'informations quantifiées sur les rejets émis par les industriels installés le long du Rhône et des principaux affluents d'autre part.

³ Les C.N.P.E. en fonctionnement et en déconstruction ne rejettent pas de ^{90}Sr , ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am .

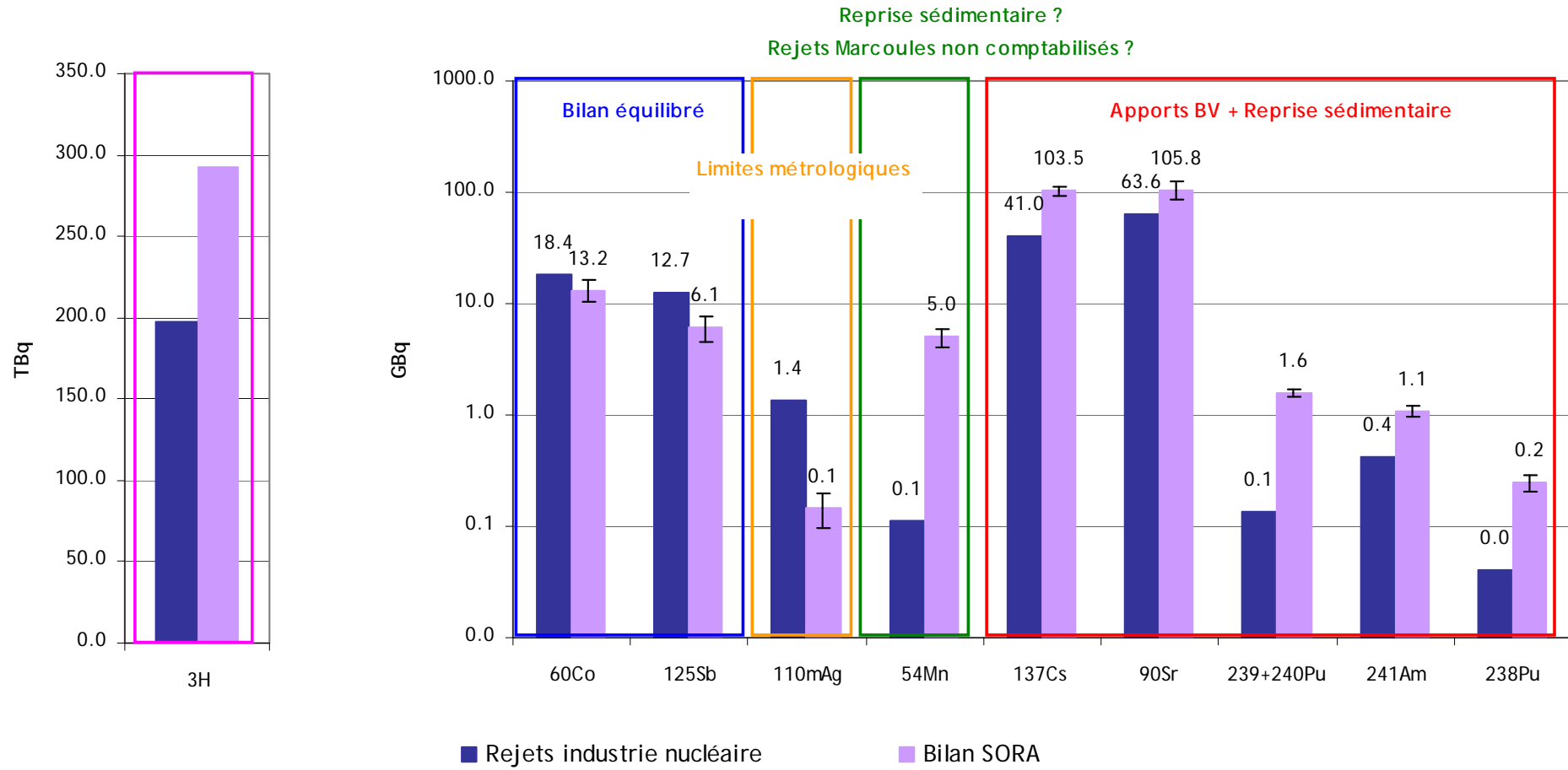


Figure 15 - Bilan des flux de radionucléides mesurés à SORA et comparaison avec les rejets de l'industrie nucléaire implantée le long du Rhône (CNPE et Marcoule)

4. CONCLUSIONS

En 2008, six radionucléides supplémentaires ont été analysés dans les échantillons collectés par la station SORA : tritium, strontium 90, plutonium 238, 239+240 et américium 241. Ainsi, avec les radionucléides émetteurs gamma dont les analyses se sont poursuivies, des bilans de flux ont pu pour la première fois être réalisées pour les dix principaux radionucléides artificiels qui transitent dans le Rhône (^{14}C excepté).

Le flux le plus important est celui du tritium libre, 293 ± 48 TBq pour cette année 2008. Cette valeur est même très supérieure à celle du radionucléide naturel le plus abondant : le ^{40}K (flux de $6,7 \pm 0,7$ TBq). Le tritium provient principalement des rejets des installations nucléaires rhodaniennes. Viennent ensuite mais avec des niveaux 3000 fois inférieurs, le ^{90}Sr (106 ± 21 GBq) et ^{137}Cs (104 ± 10 GBq). Les flux de ^{60}Co , ^{125}Sb et ^{54}Mn sont compris entre 5 et 13 GBq. Les flux d'actinides (isotopes du plutonium et ^{241}Am), sont les plus faibles, de l'ordre de 0,3 à 1 GBq.

Pour ^{60}Co et ^{125}Sb , les flux de 2008 sont proches de ceux mesurés en 2007, en relation avec la stabilité des rejets industriels. Pour ^{137}Cs , le flux estimé pour 2008 (104 GBq) est nettement supérieur à celui de l'an passé (53 GBq). Cet écart est à mettre en relation avec des crues plus fréquentes et importantes qu'en 2007. Lors des crues, la charge de Matières En Suspension (MES) augmente du fait du drainage des sols du bassin versant et de la reprise sédimentaire. En 2008, $9,1 \cdot 10^6$ tonnes de MES ont ainsi transité dans le Rhône, soit 6 fois plus qu'en 2007. Il faut remonter à 1999 pour trouver un flux de MES aussi important. 81% de cette charge ont transité lors des 6 crues d'une durée totale de 23 jours (6% du temps), durant lesquelles le débit du Rhône à Arles a dépassé $3\,000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ (débit maximal journalier de $4\,800 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ le 3 novembre 2008). Durant ces crues, 36 GBq de ^{137}Cs ont transité, ce qui représente 40 % du flux annuel de ce radionucléide. Bien que ^{90}Sr et les actinides soient analysés pour la première fois, il est probable que pour ces radionucléides très liés aux MES (près de 100 % pour le plutonium et plus de 60% pour le ^{90}Sr) et dont l'origine est essentiellement liée aux stocks dans les sols et les sédiments, les flux estimés en 2008 soient également parmi les plus élevés susceptibles d'être observés.

La comparaison des flux d'activités estimées en Arles et les activités rejetées par l'industrie nucléaire montre que les radionucléides spécifiques des seuls rejets de l'industrie nucléaire (^{60}Co , ^{125}Sb et ^{54}Mn) sont rapidement exportés en Méditerranée. On observe par ailleurs un excédent à Arles pour le ^{137}Cs , les isotopes du Pu, l' ^{241}Am et pour le ^{90}Sr qui indique une contribution exogène aux effluents industriels, correspondant aux apports du bassin-versant rhodanien marqués par les retombées atmosphériques anciennes. Quand au flux annuel de tritium libre, dont l'estimation réalisée à partir des données acquises par SORA est largement excédentaire par rapport aux rejets liquides connus de l'industrie nucléaire, les sources ne sont pas totalement identifiées. Les origines potentielles de cet excédent de tritium dans les eaux du fleuve sont une contribution des rejets atmosphériques qui sont rabattus localement autour des C.N.P.E. et de Marcoule, des apports depuis le bassin versant provenant de sources non identifiées, des échanges entre des nappes d'eau marquées en tritium et le Rhône, la diffusion de tritium depuis les sédiments vers la colonne d'eau. Ces hypothèses feront l'objet de recherche plus approfondie afin de déterminer plus précisément l'origine de cet excédent de tritium libre dans les eaux du Rhône.

5. PERSPECTIVES

Le tritium et le ^{14}C sont les radionucléides les plus rejetés par l'industrie nucléaire. Or les protocoles de prélèvement de SORA ne permettent pas leur mesure du fait de la calcination des cartouches filtrantes. Pour pallier cette difficulté, une boîte à sédiment permettant la récupération de MES par décantation des particules contenues dans l'eau (circulation continue au travers de la boîte) a été installée fin 2008. Ce système ne permet pas de connaître avec précision le flux transitant par la boîte à sédiments, ni de certifier la bonne représentativité de l'échantillonnage. Néanmoins, les prélèvements, réalisés une fois par mois, permettront de connaître les niveaux d'activité de ces radionucléides en aval du Rhône. L'expérience se déroulera durant toute l'année 2009, permettant de calculer les flux de ces deux éléments si les imprécisions sur les quantités et les qualités échantillonnées sont acceptables.

6. BIBLIOGRAPHIE

- ANTONELLI C. (2002) - Flux sédimentaires et morphogenèse récente dans le chenal du Rhône aval. Thèse, Université Aix-Marseille I, 279 p.
- ANTONELLI C. (2004) - Représentativité des mesurés par la station-observatoire du Rhône (Station d'Arles - réseau OPERA), rapport IRSN/DEI/SESURE/LERCM-2004-15, 23 p.
- ANTONELLI C., EYROLLE F., MASSON O. (2007a) - Flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée en 2005. Station Observatoire du Rhône en Arles (SORA). Rapport IRSN/DEI/SESURE n°2007-41, 29 p.
- ANTONELLI C., EYROLLE F., MASSON O. (2007b) - Flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée en 2006. Station Observatoire du Rhône en Arles (SORA). Rapport IRSN/DEI/SESURE n°2007-60, 27 p.
- ANTONELLI C., EYROLLE F., ROLLAND B., PROVANSAL M., SABATIER F. (2008) - Suspended sediment and ¹³⁷Cs fluxes during the exceptional December 2003 flood in the Rhone River, southeast France. *Geomorphology*, 95, 3-4, 350-360.
- BOUISSET P., CALMET D. (1997) - Hyper Pure Gamma-Ray Spectrometry applied to low-level environmental sample measurements. International workshop on the status of measurement techniques for the identification of nuclear signatures, Geel, Belgium.
- CALMON P., GARNIER-LAPLACE J. (2001) - Tritium et environnement. Fiche radionucléide de l'IRSN. http://www.irsn.fr/FR/larecherche/Information_scientifique/Publications_Documentation/fiches-techniques-radionucleides/environnement/Documents/Tritium_H3_v1.pdf
- EMERY R.M., KLOPPER D.C., GARLAND T.R. ET WEIMER W.C. (1976) - The ecological behaviour of plutonium and americium in a freshwater pond. In *Proceedings of the Radioecology and Energy Resources*, Corvallis, Oregon, 12-14 Mai 1975.
- EYROLLE F., CHARMASSON S. (2001) - Distribution of organic carbon, selected stable elements and artificial radionuclides among dissolved, colloidal and particulate phases in the Rhône River (France): Preliminary results *Journal of Environmental Radioactivity*, 55-2, 145-155.
- EYROLLE F., CHARMASSON S. (2004) - Importance of colloids in the transport within the dissolved phase (<450 nm) of artificial radionuclides from the Rhône river towards the Gulf of Lions (Mediterranean Sea) *Journal of Environmental Radioactivity*, 72-3, 273-286.
- EYROLLE F., ROLLAND B., ANTONELLI C., METIVIER J.M. (2007) - Artificial radioactivity within the Rhône river waters - Consequences of floods on activity levels and fluxes toward the Sea, *Environnement Risques et Santé*, 5, 2, 83-92.
- EYROLLE F., RADAKOVITCH O., RAIMBAULT P., ANTONELLI C., FERRAND E., RACCASI G., AUBERT D., GURRIARAN R. (soumis) - Long term survey of suspended particles and associated natural and artificial radionuclides transport in the Rhône River. *Applied Geochemistry*

- EYROLLE F., ANTONELLI C., RAIMBAULT P., BOULLIER V., ARNAUD M., (2010) - SORA: a high frequency flux monitoring station at the lower Rhône River, proceedings of the 39th CIESM Congress, Venice, Italy, 10 - 14 May 2010, in press.
- FILELLA M., BELZILE N., CHEN Y.W. (2002) - Antimony in the environment: a review focused on natural waters. I. Occurrence. *Earth Science Review*, 57, 125-176.
- GARNIER-LAPLACE J., ROUSSEL-DEBET S., (2001) - Américium 241 et environnement. Fiche radionucléide de l'IRSN. http://www.irsn.fr/FR/larecherche/Information_scientifique/Publications_Documentation/fiches-techniques-radionucleides/environnement/Documents/Americium_Am241_v1.pdf
- GONTIER G. (1991) - The contribution of *Mytilus* sp. in radionuclide transfer between water column and sediments in the estuarine and delta system of the Rhône River. *Estuarine, coastal and shelf science*, 34, 593-601.
- GONTIER G. (in prep.) - Cycle biogéochimique du carbone-14 et du tritium dans l'environnement des C.N.P.E.: Zones ateliers du Rhône. Rapport IRSN/DEI/SESURE.
- LE ROUX G. (2007) - Radionucléides naturels en France. Approche géochimique de la variabilité des radionucléides naturels d'origine tellurique (⁴⁰K et chaînes U-Th) dans les sols et sédiments fluviaux, Rapport IRSN/DEI/SESURE 2007-42.
- MASSON O., EYROLLE F., ANTONELLI C., BOULLIER V. (2004) - Station observatoire « Rhône aval »-Réseau OPERA-Bilan 2001-2003, rapport IRSN/DEI/SESURE/LERCM-2004-05, 39 p.
- PONT D., SIMONNET J.P., WALTER A.V. (2002) - Medium-term changes in suspended sediment delivery to the ocean: consequences of catchment heterogeneity and river management (Rhône River, France). *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 54, 1-18.
- RAIMBAULT P. (2007) - Rapport d'activité concernant le d'un suivi des apports du Rhône pour l'année 2007.
- ROLLAND B. (2006) - Transfert des radionucléides artificiels par voie fluviale : conséquences sur les stocks sédimentaires rhodaniens et les exports vers la Méditerranée. Thèse, Université Paul Cézanne d'Aix-Marseille, 243 p + annexes.
- ROUSSEL-DEBET S., BEAUGELIN K. (2005) - Strontium 90 et environnement. Fiche radionucléide de l'IRSN. http://www.irsn.fr/FR/larecherche/Information_scientifique/Publications_Documentation/fiches-techniques-radionucleides/environnement/Documents/Strontium_2005_V1.pdf
- SFRP (2002) - Tritium et environnement. Plaquette éditée par la Société Française de Radioprotection, 11p.

ANNEXES

1. RAPPEL SUCCINCT DES STRATEGIES DE PRELEVEMENT ET DE MESURE

Les prélèvements d'eaux du Rhône sont effectués selon le protocole décrit par Masson et al., 2004. De manière simplifiée, un cycle normal (hors période de crue) est constitué d'un échantillon composite issu de prélèvements horaires sur une durée d'environ un mois (+/- 1 à 2 jours selon les dates de visite). En période de crue, c'est à dire lorsque le débit du Rhône dépasse le seuil⁴ de 3 000 m³.s⁻¹, l'échantillon composite est réalisé à partir de prélèvements toutes les 20 minutes pendant 8 heures. Les analyses de radionucléides sont réalisées sur la fraction particulaire et sur la fraction dissoute (fraction inférieure à 0,5 µm) de chaque échantillon, soit à minima sur 12 échantillons par an auxquels peuvent s'ajouter des échantillons prélevés en période de crue. Pour ces derniers, une mesure est réalisée sur la fraction particulaire de tous les échantillons de l'événement, tandis que pour la fraction dissoute, une mesure est réalisée sur un échantillon composite de la crue (regroupement de plusieurs échantillons) puisque les travaux antérieurs ont montré la prépondérance des flux associés à la phase particulaire en période de crue (Rolland, 2006).

2. CALCUL DES FLUX

2.1.1. MATIERES EN SUSPENSION

Le flux annuel de MES est calculé par addition des flux journaliers (F_{MES}). Ces derniers sont obtenus par la relation :

$$F_{MES} = \sum_{t=1}^{t=n} ((MES_t + MES_{t+1}) / 2) \cdot ((Q_t + Q_{t+1}) / 2) \cdot \Delta T$$

Avec n le nombre de prélèvements collectés dans l'année

MES la concentration mesurée au cours d'une période ou ponctuellement (g.L⁻¹)

Q le débit moyen durant une période de prélèvement ou pour un prélèvement ponctuel (m³.s⁻¹)

ΔT le temps entre 2 échantillons successifs prélevés à t et t+1, en s

Les flux en crue ont été calculés selon la même équation lorsque le débit liquide a dépassé 3000 m³.s⁻¹.

⁴ Seuil établi à partir des résultats et observations publiés dans les rapports DEI/SESURE/2004-05 et DEI/SESURE/2004-15.

2.1.2. RADIONUCLÉIDES

2.1.2.1. Phase particulaire

Pour calculer les flux de radionucléides d'origine artificielle émetteurs gamma, bêta et alpha, nous avons appliqué l'activité massique de l'échantillon composite aux flux journaliers de MES, afin de tenir compte des variations de charge selon la relation :

$$F_{RNP} = F_{MES} \times A_{RN} \times 1000$$

Avec F_{RNP} : le flux quotidien de radionucléide associé à la phase particulaire, en Bq.j^{-1}

F_{MES} : le flux quotidien de MES, en t.j^{-1}

A_{RN} : l'activité massique de l'échantillon en $\text{Bq.kg}^{-1}\text{sec}$.

Durant les événements de crue ($Q > 3\,000\text{m}^3.\text{s}^{-1}$), la fréquence de prélèvement des MES et des radionucléides associés à la phase particulaire est augmentée, tout comme celle des MES. Ces échantillonnages resserrés se font à pas de temps non réguliers en fonction du colmatage des filtres de prélèvement, des visites des techniciens et/ou des prélèvements supplémentaires réalisés. Dans ce cas, le flux de radionucléide artificiel est calculé en tenant compte du débit moyen mesuré durant la durée de prélèvement, des variations de MES enregistrées durant cette même durée et de l'activité massique des radionucléides mesurés.

Le flux annuel de radionucléide correspond à la somme des flux de RN quotidiens, mesuré en période de débit moyen et au flux de RN calculé durant les périodes de crue. Cette formule a été appliquée à chacun des radionucléides d'origine naturelle et artificielle détectés régulièrement au cours de l'année 2008. La somme des flux des différents RN constitue, in fine, le flux total de radioactivité artificielle exporté sur la phase particulaire par le Rhône en Méditerranée.

Pour les éléments naturels, on considère dans cette étude que les ^{234}Th et ^{228}Ac sont représentatifs des différents descendants des deux principales chaînes radioactives : celle de l' ^{238}U et celle du ^{232}Th . Ceci est basé sur les concentrations des éléments fils mesurées mensuellement et donc les activités proches suggèrent que ces radionucléides sont en équilibre séculaire. Considérant cela, le flux de radioactivité naturelle correspond aux sommes des flux des différents radioéléments selon la formule :

$$F_{\text{Nat}} = {}^{40}\text{K} + 14 \times {}^{234}\text{Th} + 10 \times {}^{228}\text{Ac} + {}^7\text{Be}$$

2.1.2.2. Phase dissoute

L'estimation des flux de RN en phase dissoute est effectuée par croisement des résultats des spectrométries gamma et alpha et de mesures du ⁹⁰Sr et tritium libre avec les données de débits liquides mises à disposition par la CNR selon la relation :

$$F_{RND} = Q \times A_{RN} \times 3\,600 \times 24 \times 1\,000$$

Avec F_{RND} : le flux quotidien de radionucléide associé à la phase dissoute, en Bq.j⁻¹

Q : le débit moyen journalier du Rhône, en m³.s⁻¹

A_{RN} : l'activité volumique de l'échantillon en Bq.L⁻¹.

En période de crue, l'accroissement du nombre d'échantillons est également pris en compte par les calculs qui intègrent alors la durée des différents prélèvements, le débit moyen durant ces prélèvements et les activités massiques des radionucléides détectées.

Comme pour les flux de radionucléide en phase particulaire, la somme des flux quotidiens constitue in fine le flux annuel de radionucléides émetteurs gamma, bêta et alpha exporté par voie dissoute.

2.1.3. *RADIOACTIVITE TOTALE (PARTICULAIRE ET DISSOUS)*

Le calcul du flux total de radioactivité d'origine artificielle des émetteurs gamma, alpha et ⁹⁰Sr est obtenu par addition des flux des différents radionucléides détectés au cours de l'année. Il s'agit ainsi d'une estimation basse puisque la non-détection d'un radionucléide ne signifie pas son absence totale du système mais une concentration inférieure à la limite de détection mesuré par l'appareil de comptage.

	Débit (m ³ .s ⁻¹)
Débit d'étiage	500
Débit moyen	1 500
Crue Annuelle	3 800
Crue Décennale	7 500

Tableau A1 - Débits de référence du Rhône à Arles calculés à partir des débits mesurés sur la période 1993-2005 (données CNR).

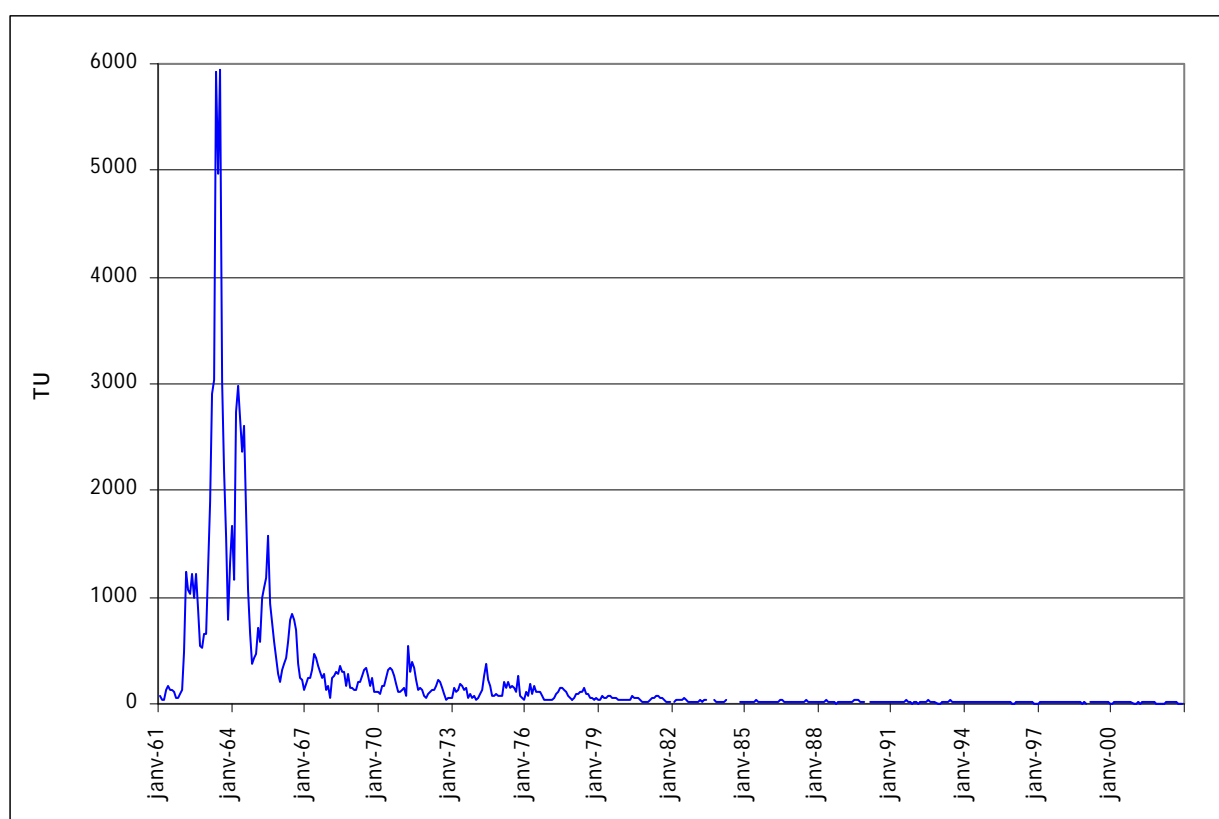


Figure A1 - Évolution du tritium libre mesuré dans les précipitations de la station de Vienne (Autriche, données AIEA). Les résultats de tritium mesurés à très bas niveaux dans le milieu naturel sont souvent donnés en unités de tritium (TU), où 1 TU représente un rapport tritium/hydrogène de 10^{-18} .