

## Mesures, estimation et bilan des flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée

Measurements, quantification and budget recoveries of radionuclide fluxes exported by the Rhône River to the Mediterranean Sea

Antonelli C.<sup>1</sup>, Eyrolle F.<sup>1</sup>, Boullier V.<sup>1</sup>, Gurriaran R.<sup>2</sup>, Cossonnet C.<sup>2</sup>

<sup>1</sup> IRSN, Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, Direction de l'Environnement et de l'Intervention, Service d'Etude et de Surveillance de la Radioactivité de l'Environnement, Laboratoire d'Etude Radioécologique en milieux Continental et Marin, Bât. 153, BP 3, 13115 Saint Paul Lez Durance, France.

<sup>2</sup> IRSN, Direction de l'Environnement et de l'Intervention, Service de Traitement des Echantillons et de Métrologie pour l'Environnement, Laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans l'Environnement (LMRE), Bât 501, Le Bois des Rames, 91400 Orsay.

### RÉSUMÉ

La Station Observatoire du Rhône en Arles (SORA) est un outil de surveillance de la radioactivité exportée par le Rhône en Méditerranée. Cette plateforme instrumentée, entièrement automatisée, permet de suivre à haute-fréquence les concentrations en MES et les activités en polluants associés. Les flux estimés annuellement ont été comparés aux rejets liquides autorisés des différents exploitants nucléaires implantés le long du fleuve et de ses affluents. A l'échelle de l'année, les bilans établis montrent un équilibre entre les rejets liquides et les exports en Méditerranée pour les radionucléides spécifiques des seuls rejets de l'industrie nucléaire. Les temps de transfert semblent ainsi courts, inférieurs à l'année. En revanche, certains radionucléides présentent des flux excédentaires en Arles qui témoignent de la présence d'autres sources de radioactivité artificielle dans le bassin versant rhodanien. Pour l'essentiel, il s'agit des radionucléides rémanents dans les sols du bassin versant introduits par les retombées atmosphériques des essais d'armes nucléaires réalisés entre les années 60 et les années 80 dans l'hémisphère Nord mais aussi par les retombées de l'accident de Tchernobyl survenu en 1986.

### ABSTRACT

The Rhône monitoring station at Arles (SORA station) is a monitoring tool of radioactivity exported by the Rhône River to the Mediterranean Sea. This automated sampling system allows a high frequency monitoring of suspended sediment and associated pollutants. Radioactivity fluxes estimated annually were compared with the authorized liquid releases of the various nuclear developers implanted along the river and along its tributaries. Results show a good mass balance recovery between the liquid releases and the exports into the Mediterranean Sea for the radionuclides provided by the nuclear industry. Time-lag transfers seem short, of the order of the year. On the other hand, some radionuclides present a surplus in Arles which testifies of the presence of other sources of artificial radioactivity in the Rhone catchment. For the main part, this source is linked to radionuclide fixed to catchment soils further to the atmospheric fallout from the nuclear atmospheric test that occurred between the 1960's et the 1980's in northern hemisphere and also from the global fallout linked to the Chernobyl accident that occurred in 1986.

### MOTS CLES

Bilans de masse et de matières, monitoring, MES, radioactivité artificielle.

## 1 OBJECTIFS ET FONCTIONNEMENT

Depuis 2005, la Station Observatoire du Rhône en Arles (SORA) permet de réaliser des prélèvements d'échantillons d'eau du Rhône à haute-fréquence et de déterminer les concentrations en matière en suspension et les activités des principaux radionucléides artificiels présents dans le fleuve.

L'ensemble des opérations (ouverture/fermeture de vannes, temps de purge, volumes prélevés, fréquences, etc...) est entièrement automatisée, ce qui permet d'assurer un suivi fin des flux d'eau, de matières et de polluants associés, notamment durant les événements de crues. Les caractéristiques techniques de cette station sont précisées dans la contribution d'Eyrolle et al. (ce volume).

La liste des radionucléides mesurés s'est enrichie à mesure des adaptations techniques réalisées dans la station pour favoriser des prélèvements d'échantillons plus volumineux. Ainsi, si les radionucléides émetteurs gamma ont été mesurés dès 2005, il a fallu attendre 2008 pour obtenir les premiers résultats d'activité du tritium libre.

## 2 ESTIMATION DES FLUX DE MATIERES ET DE RADIOACTIVITE ASSOCIEE

Les méthodes d'analyses et de calculs mis en œuvre pour déterminer les activités des différents radionucléides recherchés et calculer les flux annuels de matières et de polluants associés sont précisées dans les rapports annuels de l'IRSN (ex : Antonelli, 2010).

Les flux de radionucléides artificiels présents en phase dissoute et particulaire, estimés depuis 2005 permettent de préciser que :

- les flux de radioactivité en phase dissoute sont prépondérants en termes d'export à la Méditerranée (en liaison avec le volume total d'eau exporté par le fleuve),
- les activités massiques en radionucléides artificiels mesurés en crue sont en revanche modifiées par rapport aux activités mesurées hors événements. Ces modifications résultent de trois facteurs principaux que sont l'arrêt des rejets par les industriels au-delà de débits fixés par arrêté, des apports du bassin versant par érosion et ruissellement des sols anciennement marqués par les retombées globales des tirs d'armes nucléaires et par celles de l'accident de Tchernobyl, des remobilisations sédimentaires dans le chenal même du fleuve.

Parmi les radionucléides d'origine artificielle, le flux le plus important est celui du tritium libre, évalué à environ 300 TBq an<sup>-1</sup>. Viennent ensuite mais avec des niveaux 3500 fois inférieurs, le <sup>90</sup>Sr et le <sup>137</sup>Cs dont les flux varient entre 50 et 100 GBq an<sup>-1</sup>. Les flux de <sup>60</sup>Co, <sup>125</sup>Sb, et <sup>54</sup>Mn sont compris entre 2 et 15 GBq an<sup>-1</sup>. Les flux des autres radionucléides détectés (actinides, <sup>110m</sup>Ag, <sup>58</sup>Co, <sup>124</sup>Sb) sont les plus faibles, de l'ordre de 0,002 à 2 GBq. A titre de comparaison, on estime le flux de <sup>40</sup>K, radionucléide naturel le plus abondant, à environ 900 à 1000 GBq an<sup>-1</sup>.

## 3 BILAN DES FLUX EXPORTES EN MEDITERRANEE

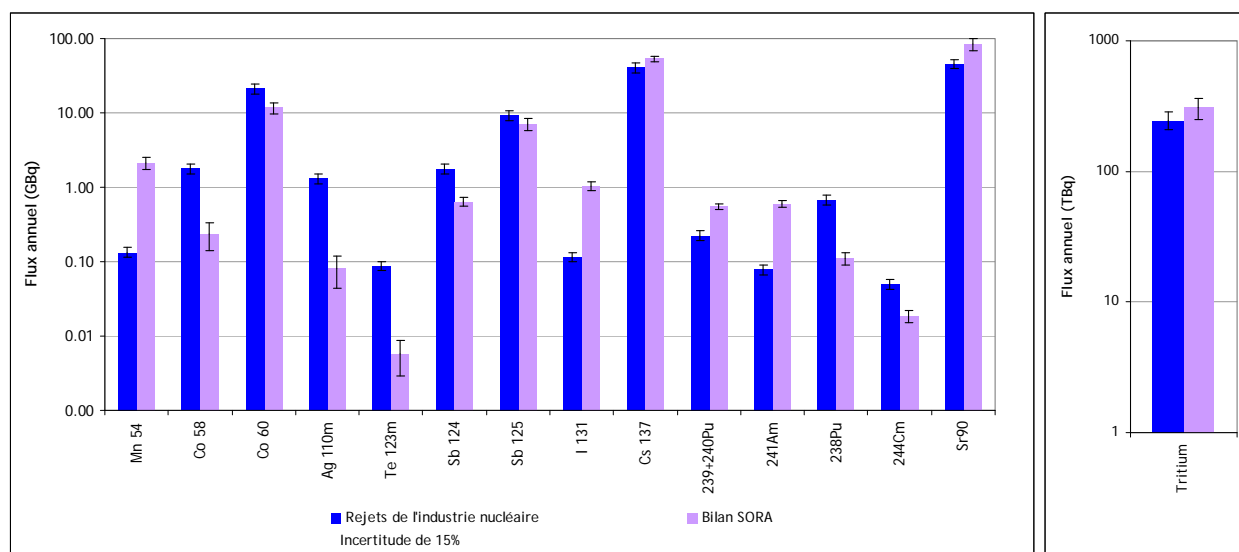
Contrairement à la plupart des contaminants artificiels, les rejets de l'industrie nucléaire proviennent de sites industriels peu nombreux, bien localisés et suffisamment contraints par la réglementation en matière de déclaration de rejets pour permettre d'établir des bilans d'entrées/sorties à l'échelle du bassin versant rhodanien. L'introduction de radioactivité dans le milieu aquatique s'effectue principalement par les rejets d'effluents liquides des Centres Nucléaires de Production d'Electricité (C.N.P.E.) et par ceux de l'usine de retraitement du combustible irradié de Marcoule dans la partie aval du fleuve, en démantèlement depuis 1997. D'autres sources existent sur le bassin versant rhodanien, tels que les rejets des grands centres hospitaliers par exemple, mais les activités en jeu sont bien moins élevées et/ou les radionucléides concernés présentent des périodes radioactives courtes qui entraînent la disparition rapide de ces éléments.

A l'échelle annuelle, la comparaison des flux d'activités estimées en Arles avec les activités rejetées par l'industrie nucléaire montre que les radionucléides spécifiques des seuls rejets de l'industrie nucléaire (<sup>58</sup>Co, <sup>60</sup>Co, <sup>124</sup>Sb, <sup>125</sup>Sb et <sup>54</sup>Mn) sont rapidement exportés en Méditerranée, avec un temps de transfert inférieur à l'année. On note parfois des bilans déficitaires à SORA, lors d'années hydrologiques peu actives : on estime par exemple qu'en 2009, environ 55% du <sup>60</sup>Co introduit dans le milieu aquatique se serait stocké au sein du compartiment sédimentaire fluvial.

En revanche, on observe presque systématiquement un excédent de <sup>137</sup>Cs, des isotopes du Pu,

d' $^{241}\text{Am}$  et de  $^{90}\text{Sr}$  à Arles, indiquant une contribution exogène aux effluents industriels. Cette source annexe correspond aux apports du bassin versant rhodanien, marqué par les retombées atmosphériques anciennes (essais d'armes nucléaires et accident de Tchernobyl) et à la reprise sédimentaire dans le chenal. Ces observations soutiennent les résultats obtenus par Rolland (2006) et Eyrolle et al. (2007) sur les conséquences des crues dans la remobilisation de sédiments fluviaux anciens.

Quand au flux annuel de tritium libre, l'estimation réalisée à partir des données acquises par SORA est parfois excédentaire par rapport aux rejets liquides connus de l'industrie nucléaire mais les sources ne sont pas totalement identifiées. Cet excédent de tritium (observé par exemple en 2008) peut provenir d'une contribution des rejets atmosphériques rabattus localement autour des C.N.P.E. et du site de Marcoule, d'apports depuis le bassin versant provenant de sources non identifiées. Une mauvaise estimation des rejets par les industriels et/ou des flux mesurés à SORA ne peut être exclue compte-tenu de la très grande mobilité et réactivité de ce radionucléide.



Exemple de bilan obtenu à SORA entre les flux mesurés et les rejets liquides de l'industrie nucléaire implantée le long du Rhône (année 2009)

## BIBLIOGRAPHIE

- Antonelli C. (2010) - *Flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée en 2008*. Rapport IRSN/DEI/SESURE 2010-04, 41p.
- Eyrolle F., Rolland B., Antonelli C., Métivier 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.
- 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.