

## **Mise en évidence de la contamination radioactive des rivières et fleuves au moyen de bioindicateurs aquatiques**

Monitoring of the radiological contamination of streams and rivers using aquatic bioindicators

Bruno Chareyron

CRIIRAD (Commission de Recherche et d'Information Indépendantes sur la RADioactivité), 29 cours Manuel de Falla, 26 000 Valence, France  
(corresponding author : [bruno.chareyron@criirad.org](mailto:bruno.chareyron@criirad.org) )

### **RÉSUMÉ**

Le laboratoire de la CRIIRAD utilise depuis plusieurs décennies des bioindicateurs aquatiques (Fontinalis, Potamogeton, Myriophyllum) pour étudier l'impact des installations susceptibles de rejeter des éléments radioactifs dans le milieu aquatique. L'analyse des bioindicateurs par spectrométrie gamma HpGe a permis de mettre en évidence la contamination par du radium 226, présent dans les rejets liquides d'une ancienne mine d'uranium, à plus de 30 kilomètres du point de rejet. Elle a permis également de révéler la contamination chronique de rivières et fleuves (Isère, Rhône) par de l'iode 131. L'iode 131 est utilisé en grande quantité en médecine nucléaire. Le recours aux bioindicateurs permet d'identifier de nombreuses substances radioactives (en fonction des techniques analytiques utilisées), de localiser les sources de pollution et d'effectuer des suivis de manière plus efficace que les contrôles portant sur l'eau elle-même.

### **ABSTRACT**

For more than 30 years, the CRIIRAD laboratory has been using aquatic bioindicators (Fontinalis, Potamogeton, Myriophyllum) in order to study the impact of facilities that may discharge radioactive elements into the aquatic environment. The analysis of bioindicators by HpGe gamma spectrometry enabled to show the contamination with radium 226 present in the liquid effluents from a former uranium mine at a distance exceeding 30 kilometers from the discharge point. It also enabled to reveal the permanent contamination of streams and rivers (such as the Rhône or Isère rivers) by iodine 131. Iodine 131 is used in very significant quantities for medical applications. Using bioindicators enables to identify various radioactive substances (depending on the analytical techniques), to locate the source term and to monitor the impact in a more efficient way than the direct monitoring of water itself.

### **MOTS CLES**

Bioindicateurs aquatiques, centrales nucléaires, médecine nucléaire, mines d'uranium, radioactivité

## 1 INTRODUCTION

De nombreuses installations rejettent des éléments radioactifs dans les milieux aquatiques de surface. Il peut s'agir d'installations liées à l'industrie nucléaire (mines d'uranium, centrales électronucléaires, etc.) ou à d'autres modes d'utilisation des radionucléides (pratiques médicales par exemple, comme la scintigraphie ou l'irathérapie).

Certains de ces rejets sont effectués par un émissaire clairement identifié et dans le cadre d'autorisations spécifiques, d'autres le sont de manière diffuse. Dans beaucoup de cas, les niveaux de contamination des eaux réceptrices sont faibles et variables dans le temps. La mise en évidence de l'impact à partir d'analyses d'échantillons d'eau peut nécessiter des moyens lourds eu égard au nombre d'échantillons nécessaires pour une même station et au choix des moyens analytiques. Du fait de ces contraintes, certaines contaminations ne sont pas toujours clairement identifiées.

Nombre de substances radioactives rejetées sont métabolisées par les plantes aquatiques, qu'il s'agisse de constituants de base de la matière vivante (c'est le cas du tritium, isotope radioactif de l'hydrogène et du carbone 14 rejetés en grande quantité par les centrales électronucléaires), ou d'éléments dont la bioaccumulation est notable (métaux, halogènes). L'analyse des bioindicateurs constitue alors un moyen efficace d'identifier et de localiser une contamination.

Deux exemples sont mentionnés ici, le premier porte sur la mise en évidence de l'impact d'une ancienne mine d'uranium, le second sur l'impact des activités de médecine nucléaire.

## 2 METHODOLOGIE

### 2.1 Choix des bioindicateurs

Plusieurs types de bioindicateurs aquatiques peuvent être retenus pour la réalisation d'études radioécologiques. Pour chaque étude, dans la mesure du possible, un repérage est effectué de l'amont vers l'aval afin de déterminer s'il existe une espèce présente en chaque station (situation idéale). Si ce n'est pas le cas, et que deux ou trois espèces sont présentes dans le cours d'eau ou le bassin versant, il est souhaitable d'échantillonner plusieurs espèces en une même station afin de comparer les résultats.

La présente communication porte sur l'analyse de fontinales (mousses aquatiques) échantillonnées en onze stations, dans le bassin versant de la rivière Besbre (Loire-Allier) en septembre 2014 ; et de diverses plantes aquatiques (fontinales, myriophylles et potamots) échantillonnées entre juin et octobre 2007 en 26 stations du bassin versant du Rhône (Drac, Isère, Ain, Saône).

### 2.2 Méthode analytique

La spectrométrie gamma haute résolution (HpGe) est une méthode analytique qui permet de détecter et de quantifier de très nombreux radionucléides avec une bonne précision. C'est le cas de radionucléides naturels (radium 226, plomb 210) et artificiels (cobalt 58 et 60, iode 131, césium 134 et 137, etc.). L'analyse peut être effectuée sur matière fraîche lorsqu'il s'agit de détecter des radionucléides volatils ou à courte période physique (comme l'iode 131) ou après dessiccation (ce qui permet d'améliorer la précision de la mesure, cas du radium 226). Le laboratoire de la CRIIRAD est agréé par l'ASN (Autorité de Sûreté Nucléaire) pour ce type de mesure.

## 3 RESULTATS

### 3.1 Contamination par le radium 226 à grande distance en aval d'une mine d'uranium

La mine d'uranium des Bois Noirs (Loire), fermée depuis 1981, est autorisée à rejeter des effluents dans la rivière Besbre. Officiellement, les rejets sont effectués par l'exploitant après traitement et les concentrations résiduelles en éléments radioactifs sont en dessous des normes fixées par arrêté préfectoral. L'impact sur le milieu aquatique est jugé nul par l'administration. L'utilisation de bioindicateurs aquatiques (fontinales) a permis au laboratoire de la CRIIRAD de montrer que l'accumulation du radium 226 est très significative et sur une longue distance en aval de l'émissaire de rejet. Le radium 226 est un des descendants radioactifs de l'uranium 238.

En amont du site minier, le radium 226 est détecté avec une activité massique de  $106 \pm 16$  Bq/kg sec qui correspond à un niveau classiquement rencontré en milieu granitique.

Au niveau de la demi-buse de rejet du site minier, la bioaccumulation du radium 226 dépasse 300 000 Bq/kg sec soit une valeur 3 000 fois supérieure à la normale. Le niveau de radiation émis au contact de l'émissaire de rejet est plus de 20 fois supérieur à la normale. Ces mousses peuvent être considérées comme des déchets radioactifs.

Dans la rivière en aval immédiat du rejet, la contamination est de  $85\,000 \pm 9\,000$  Bq/kg sec à 100 mètres,  $60\,000 \pm 6\,000$  Bq/kg sec à 1,5 kilomètres,  $5\,100 \pm 600$  Bq/kg sec à 4 kilomètres etc. L'impact est toujours mis en évidence à 30 kilomètres en aval :  $1\,320 \pm 150$  Bq/kg sec, soit une valeur 10 fois supérieure au niveau mesuré en amont.

Dans ce dossier, l'utilisation de bioindicateurs a permis, en une seule campagne d'échantillonnage, de mettre clairement en évidence l'impact des rejets du site minier uranifère et l'extension spatiale de la zone d'influence. Cette étude montre que les normes de rejet ne tiennent pas compte des phénomènes de bioaccumulation dans le milieu naturel et doivent être revues à la baisse. Le radium 226 est un métal très radiotoxique, émetteur de particules alpha et de longue période physique (1 600 ans).

### **3.2 Contamination chronique par l'iode 131 du fait des activités de médecine nucléaire**

L'iode 131 n'est pas détecté dans les plantes aquatiques de l'Ain et de la Saône : les valeurs sont inférieures aux limites de détection ( $< 0,13$  à  $< 0,38$  Bq/kg frais). Dans le Rhône, par contre, l'iode 131 est détecté de manière quasi systématique, à des niveaux de l'ordre du Becquerel par Kg frais ou plus, mais on n'observe pas de différence significative entre l'amont et l'aval des centrales nucléaires (sites de Bugey, Saint-Alban, Cruas et Tricastin). On relève par contre une forte augmentation, dans l'Isère, en aval de la station de traitement des eaux usées de l'agglomération grenobloise ( $46 \pm 5$  Bq/kg frais en aval, contre  $2,1 \pm 0,6$  Bq/kg frais en amont) et dans le Rhône en aval de celle de Lyon ( $20,9 \pm 3,0$  Bq/kg frais en aval contre  $0,45 \pm 0,2$  Bq/kg frais en amont).

Cette étude a permis de confirmer la contamination chronique des plantes aquatiques par de l'iode 131 dans le Rhône. Son origine est à rechercher principalement dans les activités de médecine nucléaire qui mettent en jeu des centaines de milliards de Becquerels par an dans certains établissements. Si les services de médecine nucléaire ont fait beaucoup de progrès, ces dernières années, en matière de gestion des effluents radioactifs (installation de cuves de décroissance permettant de diminuer le niveau de radioactivité des effluents avant rejet), il reste beaucoup à faire pour traiter la contamination diffuse liée à l'élimination progressive de l'iode 131 par les urines des patients de retour à leur domicile. La période physique de l'iode 131 n'est que de 8 jours, mais le caractère régulier des rejets explique cette contamination chronique.

## **4 CONCLUSION**

L'analyse de bioindicateurs aquatiques est une méthode relativement aisée à mettre en œuvre et qui permet d'effectuer une photographie du niveau de contamination du milieu aquatique pour une vaste gamme de substances radioactives et de réaliser des études comparatives dans le temps et dans l'espace. Cette technique a permis au laboratoire de la CRIIRAD de mettre en évidence des contaminations insuffisamment documentées comme celle liée aux rejets de radium 226 par d'anciennes mines d'uranium, ou encore la contamination diffuse et chronique de nombreux cours d'eau (Isère, Rhône) par de l'iode 131 utilisé pour des applications médicales.

Cette technique peut être utile également pour mettre en évidence d'autres impacts (rejets de tritium et carbone 14 par les centrales électronucléaires par exemple).

## **BIBLIOGRAPHIE**

- Chareyron, B., Courbon, C., Castanier, C., Patrigeon, S., Jeambrun, M., Ribouët, J. (2015). Contamination radioactive des mousses aquatiques dans l'environnement du site AREVA des Bois Noirs. *Rapport CRIIRAD N°15-55*.
- Chareyron, B., Courbon, C., Patrigeon, S., Ribouët, J. (2011). Etat des lieux de la radioactivité de l'eau, des sédiments et plantes aquatiques du Rhône et de ses affluents (Ain, Saône, Isère). *Rapport CRIIRAD N°10-140*.
- Chareyron, B. (2008). Les Effluents radioactifs directs et diffus générés par les activités de médecine nucléaire et de Curiethérapie. in *Actes du congrès : « Les effluents liquides des établissements de santé : Etat des lieux et perspectives de gestion »*, Chambéry.