

Flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée en 2016

Station Observatoire du Rhône en Arles (SORA)

Rapport n° RT/PSE-ENV/2017-00027

Pôle Santé et Environnement

Service d'expertise et d'étude en radioprotection des populations et de la radioactivité dans l'environnement

Table des Matières

TABLE DES ILLUSTRATIONS ET DES TABLEAUX	6
RESUME.....	8
1 INTRODUCTION	9
2 PRESENTATION DES DONNEES UTILISEES	9
2.1 Débits du Rhône à Arles.....	9
2.2 Charge solide (concentrations en matières en suspension)	10
2.3 Activités en radionucléides émetteurs gamma	12
2.3.1 Hydrologie normale ($Q < 3000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$).....	13
2.3.2 Période de crue ($Q > 3000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)	17
2.4 Activités en radionucléides émetteurs bêta et alpha.....	18
2.4.1 ^{90}Sr	18
2.4.2 ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am et ^{244}Cm	19
2.4.3 Tritium libre.....	20
3 FLUX DU RHONE A LA MER	21
3.1 Flux de matières en suspension	21
3.2 Flux de radioactivité associée à la phase particulaire.....	22
3.3 Flux de radioactivité exportée par voie dissoute	25
4 CONCLUSIONS.....	27
ANNEXE 1 METHODES DE PRELEVEMENT ET DE CALCULS	31
ANNEXE 2 DONNEES DE REFERENCE	34

Table des illustrations et des tableaux

Illustrations

Figure 1 : Evolution des débits moyens journaliers à Arles entre octobre 2015 et décembre 2016.....	10
Figure 2 : Relation débit-MES établie d'après les données obtenues entre 2005 et 2016 à la station SORA.....	11
Figure 3 : Evolution des concentrations en MES et des débits du Rhône au cours de l'année 2016.	11
Figure 4 : Évolution des activités massiques des radionucléides d'origine naturelle mesurés par spectrométrie gamma dans les MES du Rhône en 2016	14
Figure 5 : Évolution des activités massiques des radionucléides artificiels détectés par spectrométrie gamma dans les MES du Rhône en 2016 (symboles) et limites de détection des autres radionucléides d'intérêt (tirets).	14
Figure 6 : Évolution des activités volumiques des radionucléides d'origine naturelle mesurés par spectrométrie gamma dans la phase dissoute en 2016	16
Figure 7 : Évolution des activités volumiques des radionucléides artificiels détectés par spectrométrie gamma dans les eaux du Rhône en 2016 (symboles) et limite de détection des autres radionucléides (tirets).....	16
Figure 8 : Gammes de variation des activités massiques des principaux radionucléides détectés hors crue et en crue en 2016	18
Figure 10 - Évolution de l'activité en tritium libre du Rhône au cours de l'année 2016.	21

Tableaux

Tableau 1 : Nombre et fréquence de mesures 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 cités).	13
Tableau 2 : Nombre et fréquence de mesures 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 cités).	15
Tableau 3 : Nombre et fréquence de mesures par 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).	17
Tableau 4 - Charge solide en suspension annuellement transportée dans le Rhône entre 1967 et 2016. En noir, compilation de données issues de [23] (estimations 1972-2002), [24] et [10]. En bleu, les flux calculés à partir des mesures acquises par SORA.....	22

Tableau 5 - Flux des radionucléides associés à la phase particulaire mesurés en 2016. ⁽¹⁾ Flux annuel calculé à partir des seules données significatives	23
Tableau 6 - Flux de radionucléides associés à la phase dissoute mesurés sur les six premiers mois de 2016. ⁽¹⁾ Flux minimal calculé à partir des seules données significatives. ⁽²⁾ Flux annuel indicatif (cf texte)	25

Résumé

En 2016, le régime hydrologique du Rhône s'inscrit dans la moyenne des débits enregistrés au cours des dernières années, avec des événements peu nombreux et de faible amplitude relative.

L'année 2016 présente des flux liquide et solide dans la moyenne de ceux observés depuis près de 50 ans. Les concentrations mesurées en phase particulaire sur l'année et en phase dissoute durant les six premiers mois de l'année s'inscrivent dans la gamme des concentrations habituellement observées.

Comme attendu, le flux de radioactivité le plus important est celui du tritium libre estimé à 203 ± 13 TBq. Concernant les flux particuliers, parmi les radionucléides d'origine artificielle, c'est le ^{137}Cs qui présente le flux le plus élevé. Comme déjà observé en 2014, on constate que certains radionucléides auparavant détectés assez régulièrement, ne le sont plus aussi fréquemment. Il s'agit essentiellement des ^{58}Co et ^{54}Mn (jamais détectés en 2016), et dans une moindre mesure de ^{125}Sb et ^{124}Sb , tous issus du fonctionnement actuel des installations nucléaires présentes sur le Rhône et qui effectuent des rejets d'effluents liquides dans le fleuve. Cette difficulté à quantifier ces radionucléides tient sans doute au fait que les rejets industriels sont en diminution constante depuis plusieurs années.

On notera enfin que pour pallier aux difficultés techniques d'acquisition des données comme ce fût le cas cette année suite à une panne sur l'évaporateur industriel, la connaissance des flux liquides et des concentrations en radionucléides de la phase dissoute ne suffit pas. En effet, les relations, quand elles existent, sont statistiquement peu robustes et ne concernent que les radionucléides naturels. Il est donc nécessaire de poursuivre l'acquisition de données *in situ* pour établir, avec un bon degré d'assurance, l'état radiologique du Rhône.

1 INTRODUCTION

Conformément à la convention cadre établie entre l'Agence de l'eau et l'IRSN, ce rapport présente les résultats obtenus au cours de l'année 2016 à la Station Observatoire du Rhône à Arles (SORA).

Depuis 2004, la station SORA permet de prélever des échantillons d'eau du Rhône à haute fréquence afin de déterminer les concentrations en matières en suspension et en radionucléides émetteurs gamma, ce qui permet de calculer les flux en transit vers la mer Méditerranée. Ce monitoring initial s'est enrichi au fil des années, permettant aujourd'hui d'obtenir également une estimation des flux à la Méditerranée pour les transuraniens (Pu, Am et Cm), le ^{90}Sr et le tritium libre.

Sur un plan technique, l'année 2016 a été marquée par une panne sur l'évaporateur industriel qui permet de concentrer la fraction dissoute et constituer les échantillons mensuels. La principale conséquence est que les flux annuels pour cette fraction n'ont pu être calculés car seuls 7 échantillons sur les 12 habituellement prélevés ont été récoltés.

2 PRESENTATION DES DONNEES UTILISEES

2.1 Débits du Rhône à Arles

Les données de débits journaliers du Rhône à Arles sont fournies par la Compagnie Nationale du Rhône pour la période complète. Les débits sont validés par la CNR et présentent une marge d'erreur de $\pm 10\%$.

La Figure 1 représente l'évolution du débit en Arles en 2016. Le débit moyen s'établit à $1\,511\text{ m}^3\cdot\text{s}^{-1}$, très proche du module estimé à $1\,500\text{ m}^3\cdot\text{s}^{-1}$ par la CNR. En 2016, seuls trois événements de crue ont été enregistrés, avec des fréquences de retour faibles pour les événements de février et juin (< 1 an) et plus élevée pour la crue de fin novembre (environ 3 ans).

Le nombre de jours présentant un débit supérieur à $3\,000\text{ m}^3\cdot\text{s}^{-1}$ est peu élevé : 12 jours, soit à peine plus de 3 % du temps. S'il est bien connu que les débits les plus élevés sont relativement rares dans l'année, on observe toutefois que ce nombre est parmi les plus faibles enregistrés depuis la mise en service de la station SORA.

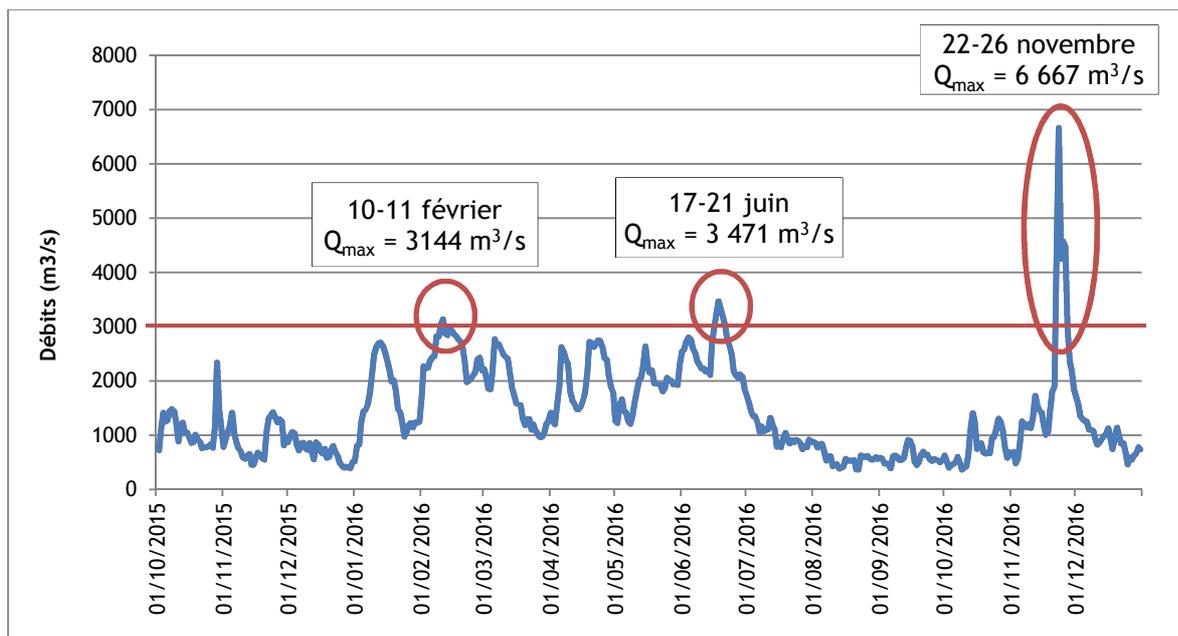


Figure 1 : Evolution des débits moyens journaliers à Arles entre octobre 2015 et décembre 2016.

2.2 Charge solide (concentrations en matières en suspension)

Le prélèvement et la mesure des concentrations en matières en suspension (MES) sont réalisés par l'Institut Méditerranéen d'Océanologie (MIO). Les concentrations moyennes en MES sont acquises quotidiennement et correspondent à des échantillons composites obtenus à partir de prélèvements distribués dans le temps (méthodologie présentée en Annexe 1). En 2016, 8 jours n'ont pu faire l'objet de prélèvements pour la détermination des concentrations en matières en suspension par pesée. Ces données manquantes ont été estimées à l'aide de la relation débit/MES établie à partir des données de débits et de MES obtenues entre 2005 et 2016 (Figure 2). Cette équation s'écrit :

$$\log MES = 2.047 \log Q - 5.05$$

Avec MES : la concentration en matières en suspension en mg.L^{-1}

Q : le débit liquide en $\text{m}^3.\text{s}^{-1}$.

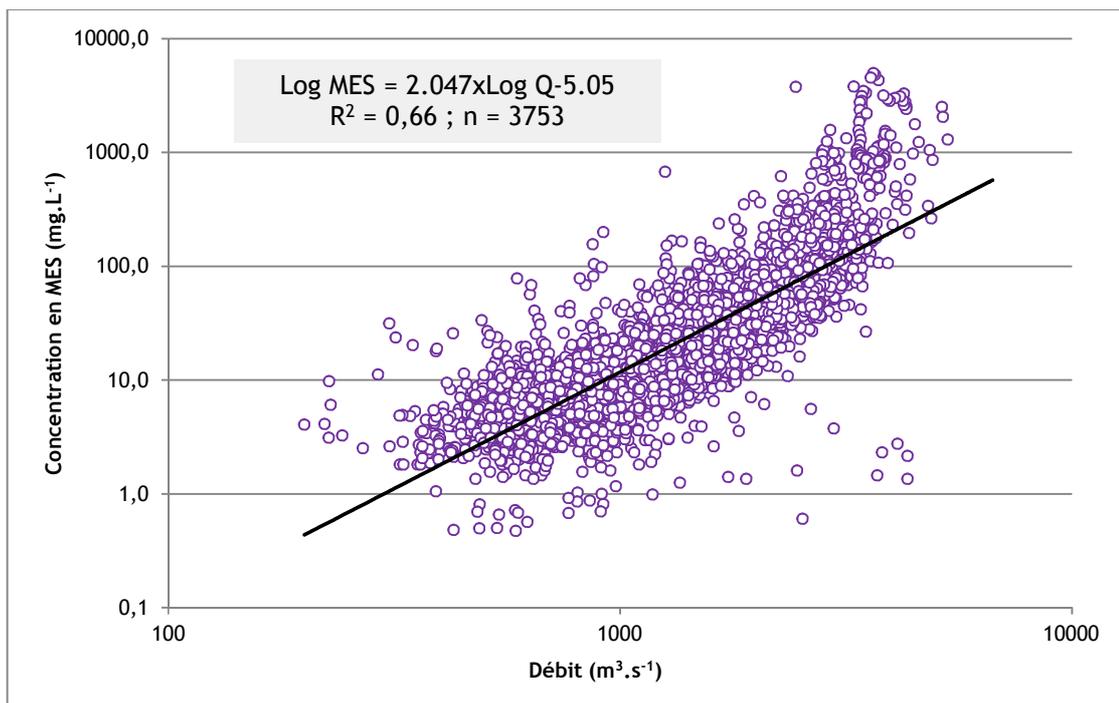


Figure 2 : Relation débit-MES établie d'après les données obtenues entre 2005 et 2016 à la station SORA.

La Figure 3 représente l'évolution des concentrations journalières des MES mesurées par le MIO au cours de la période d'étude.

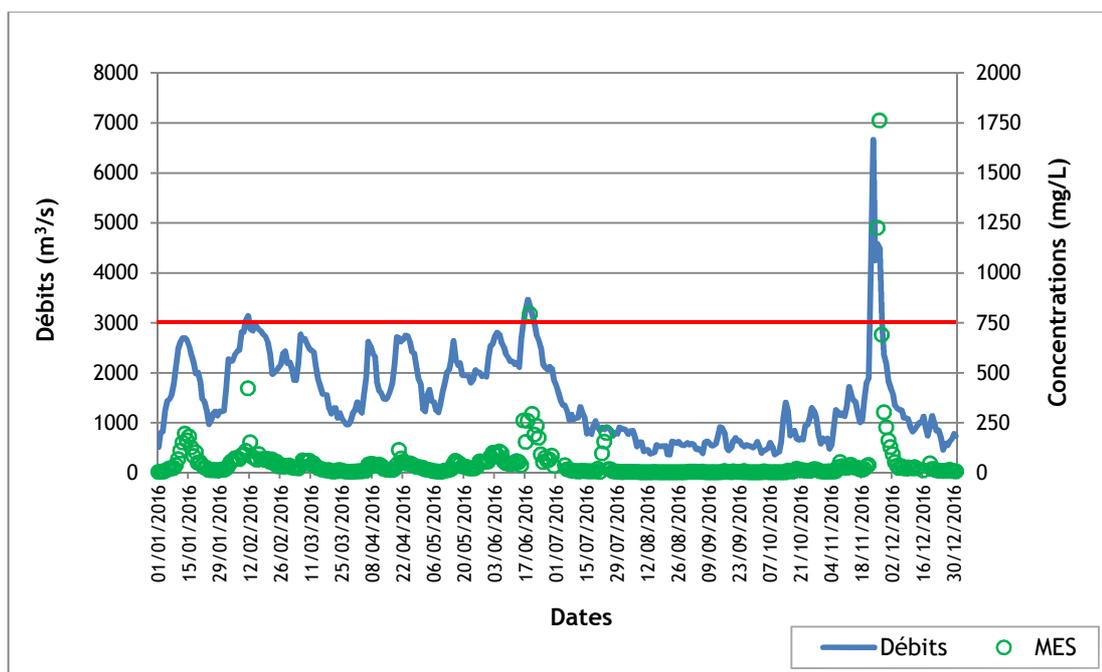


Figure 3 : Evolution des concentrations en MES et des débits du Rhône au cours de l'année 2016.

2.3 Activités 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 comportent, respectivement, 14 et 10 nucléides fils, dont le ^{234}Th et le ^{210}Pb pour la première, et l' ^{228}Ac pour la seconde. Le ^7Be et le ^{22}Na , d'origine cosmogénique¹, contribuent également à la radioactivité naturelle.

Les radionucléides artificiels ont été émis dans l'environnement à partir du milieu du XX^e siècle 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 transuraniens (^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am) sont observées dans les sols du bassin rhodanien. Par érosion et drainage des sols, ces radionucléides artificiels sont transférés au milieu fluvial sous forme dissoute et/ou associés aux matières en suspension ;
- les rejets liquides de l'industrie nucléaire effectués dans un cadre réglementaire. Dans la vallée du Rhône, les principaux contributeurs sont le site de Marcoule et les Centres Nucléaires de Production d'Électricité (C.N.P.E.) de Bugey, Saint-Alban, Cruas et Tricastin ainsi que, dans une moindre mesure, les sites de Pierrelatte et celui en déconstruction de Creys-Malville. Bien que ces rejets ont fortement décliné au cours des dernières décennies, le centre de Marcoule contribue encore aujourd'hui de manière importante aux rejets industriels introduits dans les eaux du Rhône [1], [2]. Les principaux radionucléides rejetés dans le fleuve par ces différentes installations sont majoritairement le tritium, puis le carbone 14, des émetteurs gamma (^{137}Cs , ^{60}Co , ^{58}Co , ^{54}Mn , $^{110\text{m}}\text{Ag}$,...) ainsi que des émetteurs alpha (^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am ,...)
- les rejets hospitaliers : plusieurs unités de diagnostic et de soins utilisant des sources nucléaires sont implantées sur le Rhône et sur quelques-uns de ses affluents. Les radionucléides utilisés présentent en général des courtes périodes radioactives (ex. ^{131}I : 8 jours) ;
- les rejets dus aux installations situées sur les affluents, comme l'usine AREVA de Romans-sur-Isère ou les instituts de recherche de Grenoble sur l'Isère et de Cadarache sur la Durance ;
- des résidus tritiés issus des ateliers d'horlogerie implantés sur le bassin versant du haut Rhône depuis le début du XX^e siècle [3], [4], [5]. Des teneurs relativement élevées de tritium organiquement lié (TOL) sont observées dans l'ensemble du linéaire du fleuve [6].

En 2016, 20 échantillons (13 échantillons de MES et 7 échantillons représentatifs de la phase dissoute) prélevés hors crue ont fait l'objet de mesurages par spectrométrie gamma [7] au sein du Laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans

¹ Produit dans les couches supérieures de la troposphère et dans la stratosphère.

l'Environnement de l'IRSN (IRSN/PSE-ENV/SAME/LMRE). D'autre part, 15 échantillons de MES collectés en période de crue ont également été mesurés.

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

2.3.1.1 *Phase particulière*

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

Les Figure 4 et Figure 5 retracent l'évolution des activités massiques des principaux radionucléides d'origine naturelle et artificielle mesurés dans les MES du Rhône en 2016.

Origine	Radionucléides	Nombre de résultats >LD	Fréquence
Naturelle	^{228}Ac	13	100%
	^7Be	12	92%
	^{40}K	13	100%
	^{210}Pb	13	100%
	^{234}Th	13	100%
Artificielle	$^{110\text{m}}\text{Ag}$	1	8%
	^{60}Co	11	92%
	^{137}Cs	12	100%
	^{125}Sb	2	15%

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

Le ^{40}K présente les activités massiques les plus élevées, comprises entre 379 ± 38 et $693 \pm 69 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$. Les activités en ^{234}Th et ^{228}Ac , éléments de filiation des chaînes de l' ^{238}U et du ^{232}Th , varient respectivement de 27 ± 3 à $56 \pm 6 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$ et de 27 ± 4 à $60 \pm 8 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$. Comme attendu, ces valeurs, similaires à celles observées les années passées, s'inscrivent dans la gamme de variation observée dans les sédiments fluviaux à l'échelle du territoire français ([1], [2] et [8]).

Le ^7Be présente une gamme de variation plus étendue (14 ± 2 à $374 \pm 37 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1} \text{ sec}$) qui s'explique par la période de décroissance radioactive relativement courte de cet élément (53 jours), et qui reflète l'hétérogénéité des apports atmosphériques. Son activité dépend fortement de l'occurrence de précipitations sur le bassin versant et du temps de résidence des masses d'eau et des sédiments dans le système hydrographique.

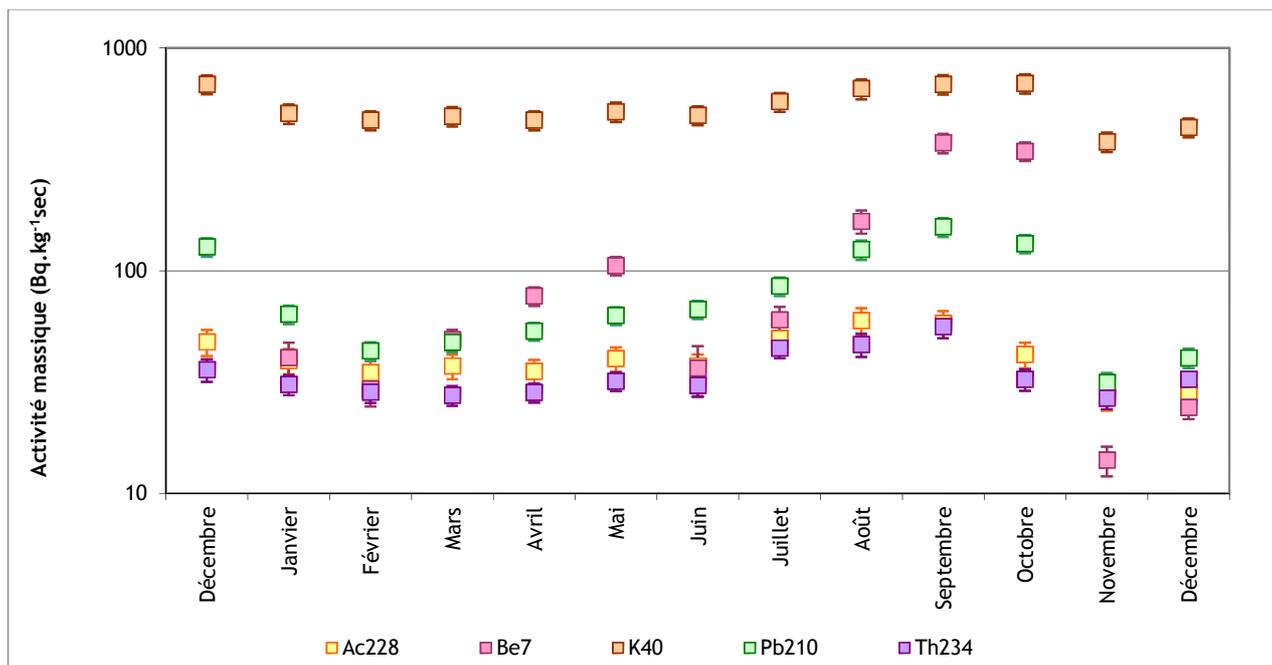


Figure 4 : Évolution des activités massiques des radionucléides d'origine naturelle mesurés par spectrométrie gamma dans les MES du Rhône en 2016

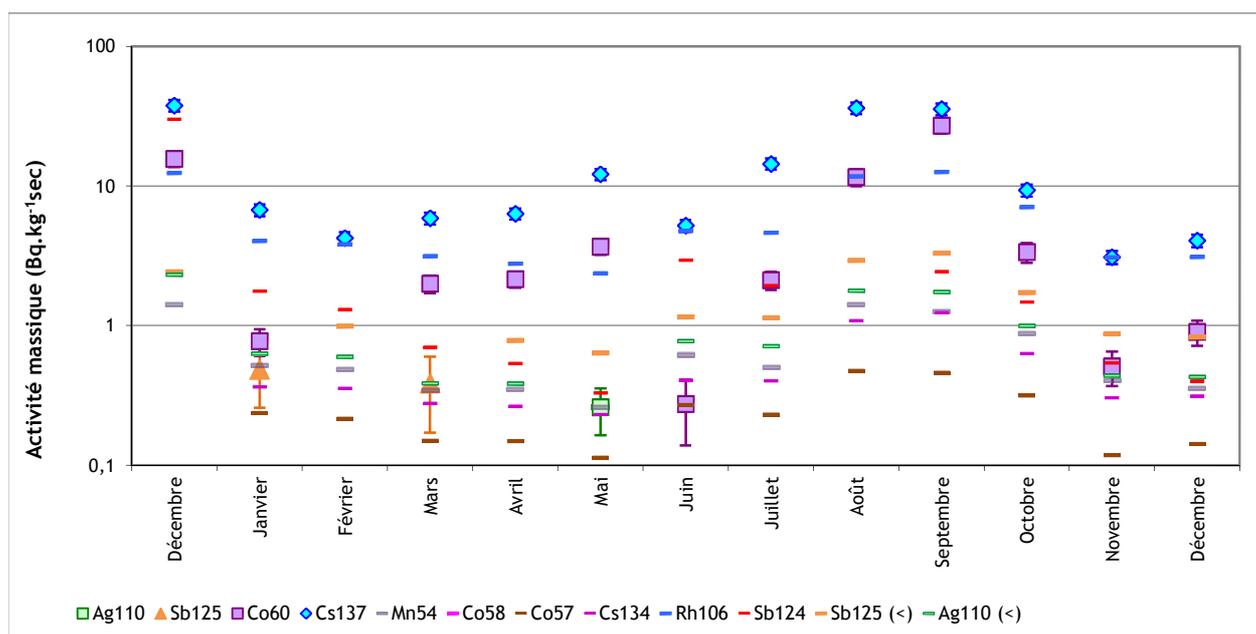


Figure 5 : Évolution des activités massiques des radionucléides artificiels détectés par spectrométrie gamma dans les MES du Rhône en 2016 (symboles) et limites de détection des autres radionucléides d'intérêt (tirets).

Les radionucléides artificiels détectés en 2016 sont, par fréquence de détection décroissante, ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{125}Sb et $^{110\text{m}}\text{Ag}$. Les activités mesurées en ^{137}Cs sont comprises entre $3,1 \pm 0,3$ et $35,5 \pm 3,4 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$; celles de ^{60}Co entre $0,3 \pm 0,1$ et

27,0 ± 3,3 Bq.kg⁻¹ sec. Le ¹²⁵Sb a été mesuré avec une activité comprise entre 0,4 ± 0,2 et 0,5 ± 0,2 Bq.kg⁻¹ sec, et l'^{110m}Ag a été mesuré à une reprise en 2016 avec une activité de 0,3 ± 0,1 Bq.kg⁻¹ sec.

Ces activités sont bien inférieures aux activités massiques des radionucléides d'origine naturelle : l'activité massique moyenne annuelle du ¹³⁷Cs est en effet 35 fois inférieure à celle du ⁴⁰K.

2.3.1.2 Phase dissoute

Rappelons en préambule que suite à la panne de l'évaporateur sous vide, seuls les six premiers mois de l'année ont pu être suivis. Parmi les radionucléides d'origine naturelle, les ⁴⁰K, ²²⁸Ac, et ²³⁴Th ont été systématiquement détectés au cours de cette période, tandis que le ²²Na et ²¹⁰Pb ont été décelés dans 86% des échantillons. Enfin, le ⁷Be a pu être mesuré dans 71% des cas. Parmi les radionucléides d'origine artificielle, ont été décelés, par fréquence d'apparition décroissante, les ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co et ¹²⁴Sb (Tableau 2).

Origine	Radionucléides	Nombre de résultats >LD	Fréquence
Naturelle	²²⁸ Ac	7	100%
	⁴⁰ K	7	100%
	²³⁴ Th	7	100%
	²² Na	6	86%
	²¹⁰ Pb	6	86%
	⁷ Be	5	71%
Artificielle	¹³⁷ Cs	7	100%
	⁶⁰ Co	6	86%
	¹²⁴ Sb	1	9%

Tableau 2 : Nombre et fréquence de mesures 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 cités).

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. Parmi ces radionucléides, le ⁴⁰K est le radionucléide naturel le plus abondant dans l'eau avec des activités variant de 6,1 ± 0,6 à 64 ± 7 mBq.L⁻¹. Le ²³⁴Th varie de 1,7 ± 0,2 à 12 ± 1 mBq.L⁻¹, l'²²⁸Ac de 0,5 ± 0,1 à 2,3 ± 0,3 mBq.L⁻¹, le ⁷Be de 1,1 ± 0,3 à 2,3 ± 0,5 mBq.L⁻¹, le ²¹⁰Pb de 0,16 ± 0,07 à 1,4 ± 0,2 mBq.L⁻¹ et le ²²Na de 0,007 ± 0,004 à 0,08 ± 0,03 mBq.L⁻¹.

Parmi les radionucléides artificiels, seul le ¹³⁷Cs a été systématiquement détecté à des niveaux d'activités volumiques compris entre 0,07 ± 0,01 et 0,23 ± 0,03 mBq.L⁻¹. On note que l'activité volumique maximale du ¹³⁷Cs est près de 300 fois inférieure à celle du ⁴⁰K. Le ⁶⁰Co, détecté à 6 reprises, présente des activités comprises entre 0,013 ± 0,004 et 0,06 ± 0,02 mBq.L⁻¹.

Enfin, ¹²⁴Sb, habituellement essentiellement présent dans la fraction dissoute dans la plupart des systèmes aquatiques [9], n'a été détecté qu'à une reprise, avec une activité volumique de 0,08 ± 0,03 mBq.L⁻¹.

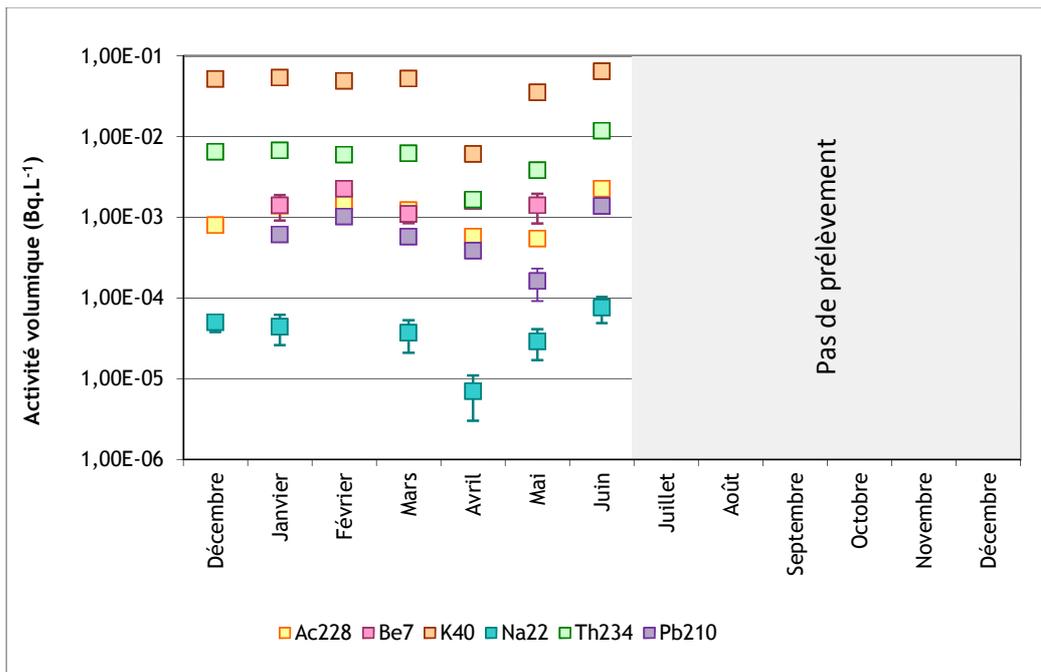


Figure 6 : Évolution des activités volumiques des radionucléides d'origine naturelle mesurés par spectrométrie gamma dans la phase dissoute en 2016

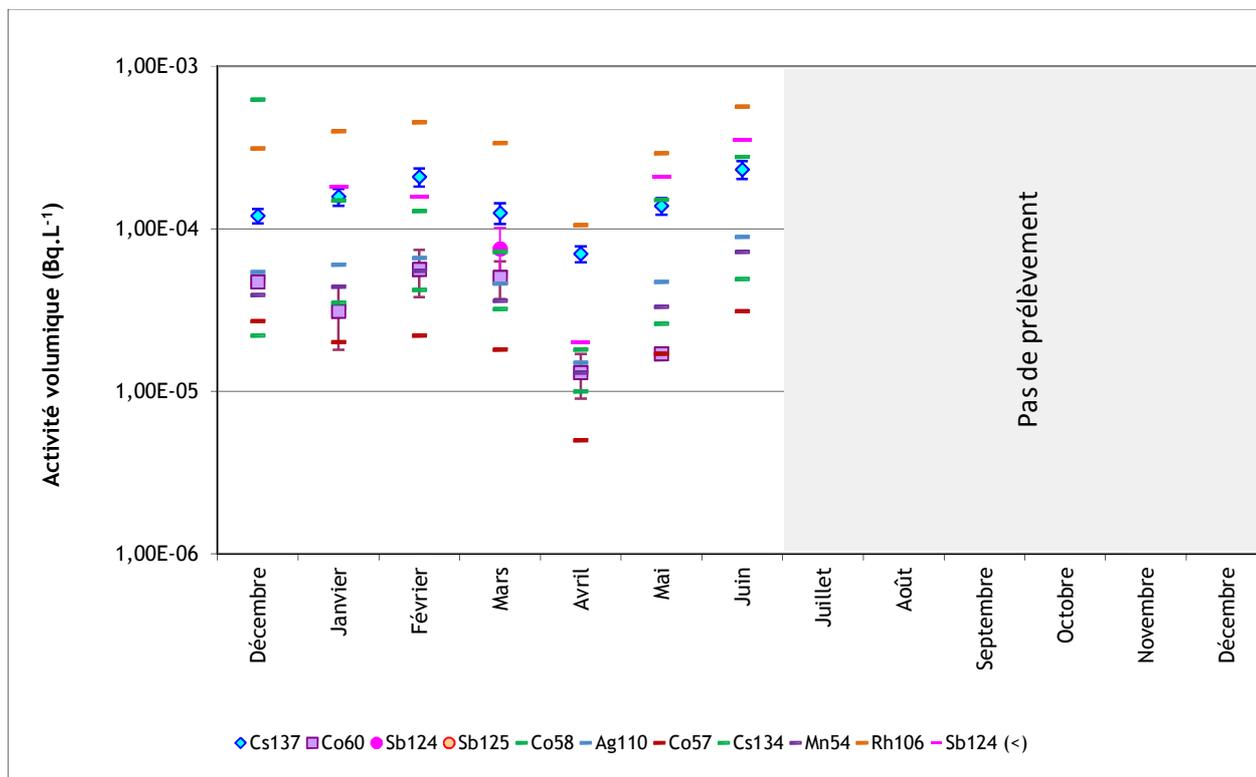


Figure 7 : Évolution des activités volumiques des radionucléides artificiels détectés par spectrométrie gamma dans les eaux du Rhône en 2016 (symboles) et limite de détection des autres radionucléides (tirets).

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

Rappelons en préambule que les activités volumiques de la phase dissoute ne sont pas déterminées pour les périodes de crue. En effet, les résultats obtenus par [10] et à SORA entre 2005 et 2009, [11] à [14], ont mis en évidence d'une part, la grande variabilité des activités volumiques mesurées dans le Rhône aval dans ces conditions de crues, d'autre part, la faible contribution des événements de crues sur l'export annuel de radioactivité par voie dissoute.

Le Tableau 3 récapitule les fréquences de détection des radionucléides émetteurs gamma recherchés dans la phase particulière durant les événements de crue échantillonnés en 2016.

Origine	Radionucléides	Nombre de résultats >LD	Fréquence
Naturelle	^{228}Ac	15	100%
	^7Be	15	100%
	^{40}K	15	100%
	^{234}Th	15	100%
	^{210}Pb	15	100%
Artificielle	^{137}Cs	15	100%
	^{60}Co	2	13%

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

On note que les ^{228}Ac , ^{40}K , ^{210}Pb , ^{234}Th et ^{137}Cs sont systématiquement détectés, comme en dehors des périodes de crue.

A contrario, le ^{60}Co , radionucléide artificiel ayant pour seule origine les rejets contemporains de l'industrie nucléaire est bien moins fréquemment détecté qu'en régime hydrologique de base. Ceci s'explique par le fait que les rejets ne sont pas autorisés lorsque le Rhône est en crue.

Aucun autre radionucléide artificiel n'a été détecté au cours des crues échantillonnées en 2016.

Si les gammes de variations des activités massiques sont comparables à celles obtenues hors période de crue (Figure 8), les activités maximales sont généralement moins élevées que pour les débits modaux. Ce constat a déjà été fait au cours des années précédentes. Ces tendances sont enregistrées pour la plupart des éléments traces en transit dans les fleuves. Les travaux de [1] qui mentionnent un grand nombre de crues et une gamme de débit étendue, permettent d'interpréter ces observations comme la tendance des activités massiques des matières en suspension à se rapprocher d'un bruit de fond géochimique caractéristique du bassin versant en ce qui concerne les radionucléides naturels, et d'un bruit de fond anthropique, caractéristique des activités massiques rémanentes dans le bassin versant rhodanien pour les radionucléides d'origine industrielle. En effet, les crues tendent à lessiver les dépôts sédimentaires les plus récents.

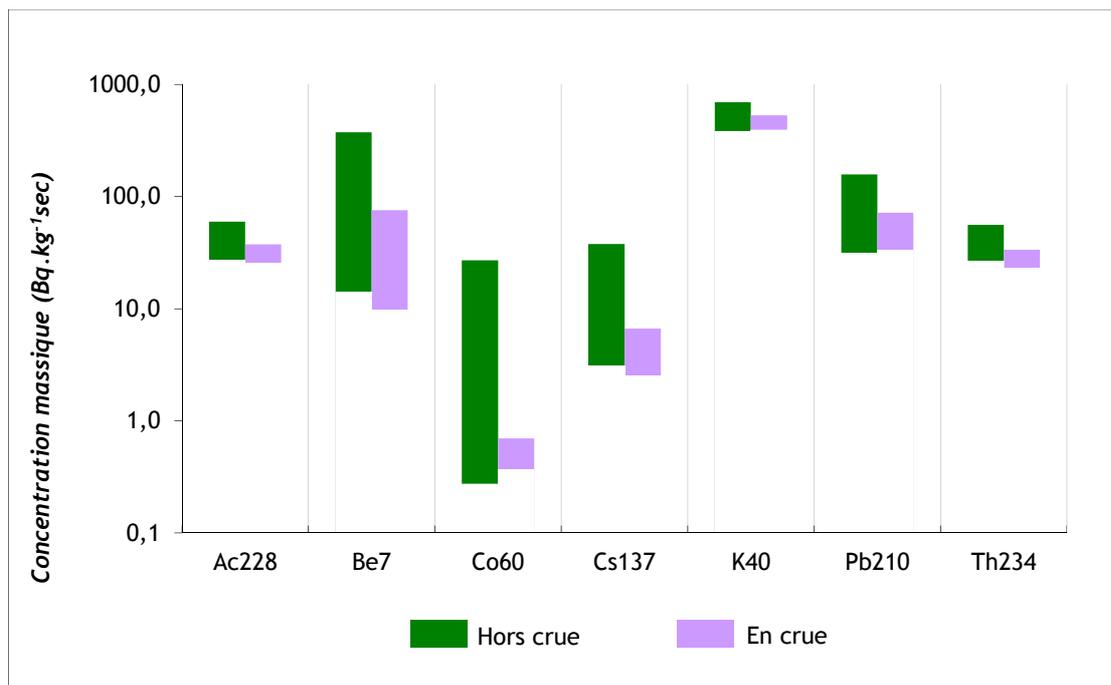


Figure 8 : Gammes de variation des activités massiques des principaux radionucléides détectés hors crue et en crue en 2016

2.4 Activités en radionucléides émetteurs bêta et alpha

2.4.1 ⁹⁰Sr

Rappelons que cet élément est issu des retombées atmosphériques anciennes et des rejets liquides effectués par le centre de retraitement de Marcoule. Le ⁹⁰Sr transite majoritairement sous forme dissoute bien qu'il puisse se fixer en partie aux particules (Kd variant de 1 à 1000, [15]). En raison du faible nombre de résultats comparativement aux analyses par spectrométrie gamma, les résultats en crue et hors crue sont présentés conjointement pour la phase particulaire. Rappelons qu'aucun échantillon n'est prélevé en crue dans la phase dissoute.

2.4.1.1 Phase particulaire

En période d'hydrologie normale, le ⁹⁰Sr a été détecté à 5 reprises (sur 12 échantillons), avec des niveaux d'activité variant de $0,6 \pm 0,5$ à $1,1 \pm 0,7$ Bq.kg⁻¹sec. Durant les épisodes de crues, il n'a été détecté qu'à 2 reprises sur les 15 échantillons analysés ($0,7 \pm 0,5$ et $1,8 \pm 0,7$ Bq.kg⁻¹sec). La détection de ce radionucléide au sein des matières en suspension est difficile, entraînant des incertitudes associées importantes.

2.4.1.2 Phase dissoute

Dans cette phase, le ⁹⁰Sr a été systématiquement détecté en période d'hydrologie normale (7 échantillons analysés). Ses activités varient de $0,8 \pm 0,1$ à $2,5 \pm 0,3$ mBq.L⁻¹. Les activités de ce radionucléide sont environ 7 à 15 fois supérieures à celles du ¹³⁷Cs.

2.4.2 ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am et ^{244}Cm

Ces radionucléides ne sont pas présents dans les rejets d'effluents liquides des C.N.P.E. en fonctionnement normal.

Les ^{238}Pu , $^{239+240}\text{Pu}$ et ^{241}Am sont mesurables 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 ainsi que le ^{244}Cm . Ce dernier n'était en revanche pas présent à la suite des retombées atmosphériques.

Le calcul des rapports d'activité de ces radionucléides permet de discriminer leur origine. En effet, ces différents radionucléides ont été ou sont rejetés dans l'environnement avec des rapports d'activité spécifiques caractéristiques de chaque source. Ainsi, pour le plutonium issu des retombées atmosphériques anciennes, le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ théorique, calculé à partir des données publiées par [18] et [19], est aujourd'hui de l'ordre de 0,025. Quant aux rejets de Marcoule, ils sont caractérisés par un rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$, déduit à partir de l'activité mesurés dans des échantillons de sédiments du Rhône, de l'ordre de 0,3. Connaissant les valeurs de ces rapports d'activité, il est possible de déterminer la part des apports issus du bassin versant de ceux marqués par les rejets de Marcoule [20]. Notons enfin que ces radionucléides présentent une forte affinité avec les matières en suspension.

Comme pour le ^{90}Sr , en raison du faible nombre de résultats comparativement aux analyses par spectrométrie gamma, les résultats en crue et hors crue sont présentés conjointement pour la phase particulaire. Rappelons qu'aucun échantillon n'est prélevé en crue dans la phase dissoute.

2.4.2.1 *Phase particulaire*

La quantification de ces éléments n'est rendue possible que par la mise en œuvre de méthodes analytiques incluant des étapes de radiochimie qui permettent d'atteindre des limites de détection bien inférieures à celles de la spectrométrie gamma. Ces radionucléides ont été systématiquement quantifiés dans les 20 échantillons analysés en 2016, que ce soit en routine ou lors des événements de crue, à l'exception du ^{244}Cm .

En dehors des périodes de crue, les activités varient de $0,09 \pm 0,01$ à $2,29 \pm 0,11$ Bq.kg⁻¹sec pour l' ^{241}Am , de $0,057 \pm 0,006$ à $0,19 \pm 0,01$ Bq.kg⁻¹sec pour le $^{239+240}\text{Pu}$, de $0,002 \pm 0,001$ à $0,025 \pm 0,003$ Bq.kg⁻¹sec pour le ^{238}Pu et de $0,24 \pm 0,19$ à $7,1 \pm 0,8$ mBq.kg⁻¹sec pour le ^{244}Cm . **Durant les crues**, les activités mesurées sont du même ordre de grandeur que celles mesurées en routine (figure 9) même si les maxima ont tendance à être inférieurs à ceux mesurés hors période de crues.

Hors période de crue, les rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ calculés pour les échantillons prélevés oscillent entre 0,03 et 0,23, témoignant du marquage des matières en suspension en transit dans le Rhône aval par les rejets d'effluents liquides du site de Marcoule. **Durant les épisodes de crue**, le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ est supérieur, variant de 0,14 à 0,27. Ces résultats témoignent d'une remobilisation toujours significative de sédiments marqués par les activités de Marcoule puisque les rapports calculés sont systématiquement supérieurs au rapport caractéristique des retombées atmosphériques globales (0,03).

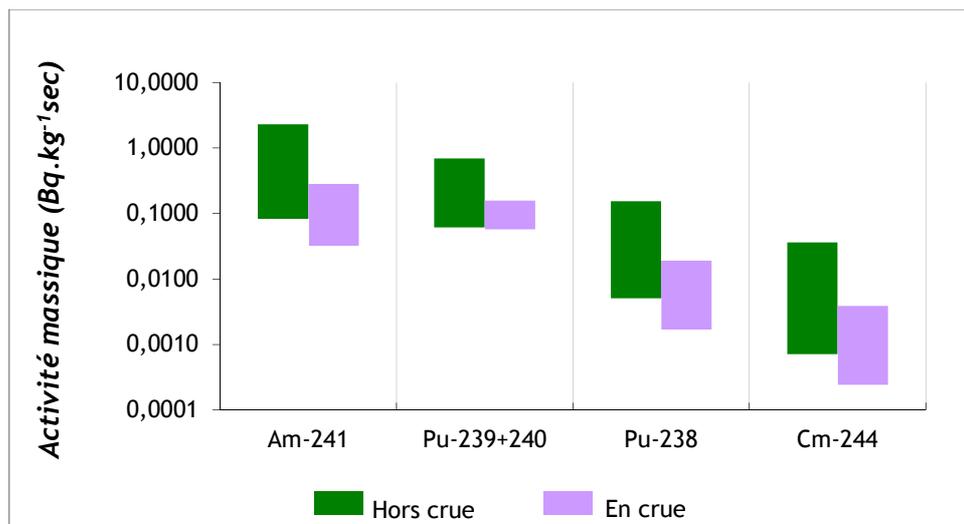


Figure 9 - Gamme de variations des activités en transuraniens mesurées en crue et hors période de crue.

2.4.2.2 Phase dissoute

Bien que peu solubles, ces éléments ont été systématiquement mesurés dans la phase dissoute, notamment en raison des grandes quantités prélevées et des techniques analytiques mises en œuvre par le laboratoire de mesure de la radioactivité dans l'environnement de l'IRSN. Les activités mesurées sont extrêmement faibles, comprises entre $1,9 \pm 0,2$ et $5,1 \pm 0,4 \mu\text{Bq.L}^{-1}$ pour l' ^{241}Am , $1,4 \pm 0,2$ et $3,8 \pm 0,4 \mu\text{Bq.L}^{-1}$ pour le $^{238+239}\text{Pu}$, entre $0,14 \pm 0,07$ et $0,54 \pm 0,11 \mu\text{Bq.L}^{-1}$ pour le ^{238}Pu , et entre $0,04 \pm 0,03$ et $0,02 \pm 0,06 \mu\text{Bq.L}^{-1}$ pour le ^{244}Cm . La gamme de variation du rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ (0,05 à 0,25) met en évidence la contribution des rejets de Marcoule dans ces apports dissous.

2.4.3 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 tritiée² (HTO) et intègre le grand cycle de l'eau [21]. Une partie du tritium peut s'associer à la matière organique lors des processus métaboliques (principalement lors de la photosynthèse). Ces formes du tritium, dites organiquement liées (TOL), intègrent le cycle du carbone [6]. Elles ne sont pas considérées dans cette étude car le piégeage des particules par filtration nécessite une calcination du filtre qui détruit ce radionucléide, empêchant sa mesure.

De grandes quantités de tritium ont été introduites dans l'environnement durant les essais de tirs d'armes nucléaires dans l'atmosphère, mais du fait de sa période radioactive (12,33 ans) et de sa rapidité de dispersion, un retour à la situation antérieure est actuellement en cours (Figure A1, Annexe 2). Les C.N.P.E. et les centres de retraitement du combustible irradié rejettent également du tritium dans l'atmosphère et dans le milieu aquatique. L'eau tritiée, très mobile, est rapidement exportée depuis les points de rejets vers la mer, suivant la dynamique des masses d'eau [21].

L'analyse est réalisée sur des prélèvements collectés pendant un mois. Les méthodes détaillées de prélèvement et d'analyse du tritium sont exposées en Annexe 1.

La Figure 10 présente les activités volumiques de tritium libre mesurées dans les eaux du fleuve en 2016.

² Le 1% résiduel est sous forme gazeuse (HT ou CH_3T)

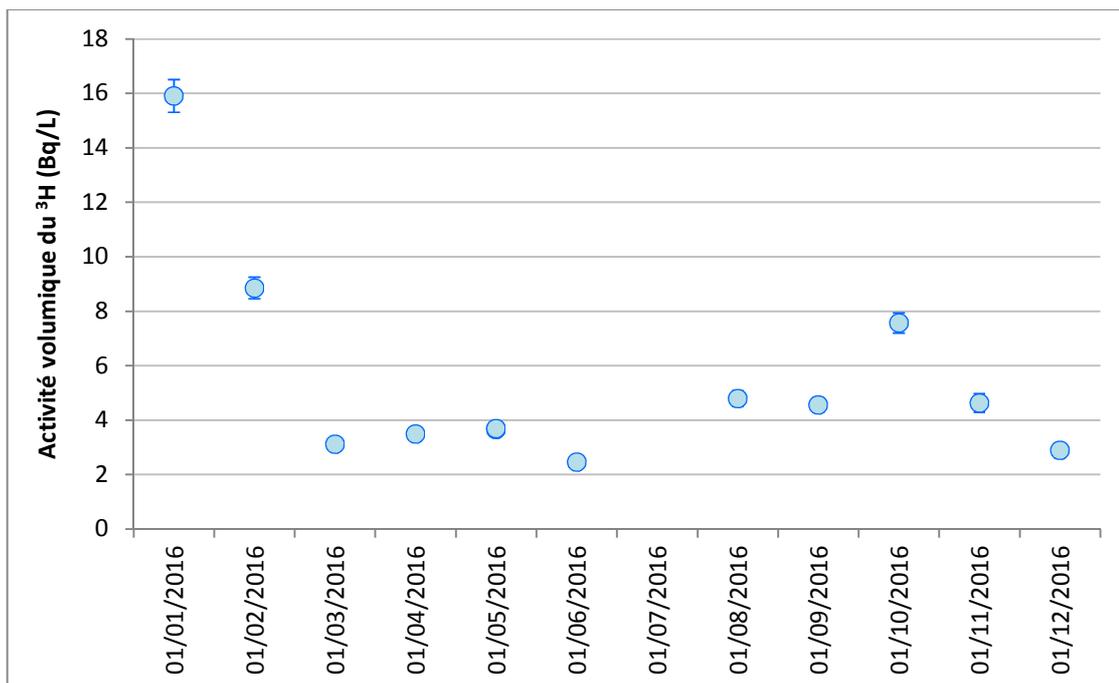


Figure 10 - Évolution de l'activité en tritium libre du Rhône au cours de l'année 2016.

Entre janvier et décembre 2016, l'activité volumique du tritium a varié de $2,9 \pm 0,3$ à $15,9 \pm 0,6$ Bq.L⁻¹. Ces activités sont toutes supérieures au bruit de fond³ qui est aujourd'hui < 1 Bq.L⁻¹ [6].

3 FLUX DU RHONE A LA MER

Les méthodes d'évaluation des flux sédimentaires et des flux de radioactivité en phases particulaire et dissoute sont présentées en Annexe 1.

3.1 Flux de matières en suspension

Le flux annuel de MES est estimé à $6,84 \pm 0,69$ Mt pour l'année 2016 (Tableau 4). Le flux de MES ayant transité durant les événements de crues (débits moyens journaliers supérieurs à $3\,000$ m³.s⁻¹, soit 12 jours en 2016) atteint $4,66$ Mt soit 68% du flux total exporté par le fleuve en seulement 3% du temps.

³ Le bruit de fond du tritium correspond à la production naturelle de ce radionucléide et à sa rémanence dans l'environnement suite à son introduction massive durant les essais atmosphériques d'armes nucléaires.

Année	Débit moyen annuel (m ³ .s ⁻¹)	Tonnage (10 ⁶ t)	Année	Débit moyen annuel (m ³ .s ⁻¹)	Tonnage (10 ⁶ t)	Année	Débit moyen annuel (m ³ .s ⁻¹)	Tonnage (10 ⁶ t)
1967	1466	3,07	1986	1710	8,31	2005	1009	0,98
1968	1836	5,61	1987	1980	7,18	2006	1301	1,98
1969	1632	5,01	1988	1991	9,37	2007	1284	1,50
1970	1998	8,66	1989	1063	2,09	2008	1608	9,1
1971	1227	2,24	1990	1291	3,04	2009	1377	3,09
1972	1258	2,43	1991	1395	3,47	2010	1633	3,06
1973	1192	2,18	1992	1687	6,72	2011	1243	2,71
1974	1487	3,14	1993	1678	15,24	2012	1563	5,61
1975	1658	3,39	1994	2175	19,69	2013	1953	7,33
1976	1351	6,00	1995	2100	10,56	2014	1581	5,33
1977	2376	16,19	1996	1796	10,62	2015	1270	2,3
1978	1886	11,34	1997	-	-	2016	1511	6,84
1979	1838	8,41	1998	1256	2,90			
1980	1791	4,78	1999	1780	9,90			
1981	1956	8,22	2000	1582	-			
1982	1980	11,42	2001	1820	7,08			
1983	2057	15,50	2002	1531	8,20			
1984	1678	4,54	2003	1387	6,51			
1985	1476	4,40	2004	1249	2,12			

Tableau 4 - Charge solide en suspension annuellement transportée dans le Rhône entre 1967 et 2016. En noir, compilation de données issues de [23] (estimations 1972-2002), [24] et [10]. En bleu, les flux calculés à partir des mesures acquises par SORA.

3.2 Flux de radioactivité associée à la phase particulaire

Le Tableau 5 représente le flux annuel de chaque radionucléide associé à la phase particulaire détecté au moins une fois durant l'année 2016. Pour les éléments détectés ponctuellement (²¹⁰Pb, ⁷Be, ⁹⁰Sr), le flux reporté est calculé uniquement à partir des activités supérieures aux limites de détection. En effet, pour cette étude, lorsque l'activité d'un radionucléide pour un mois donné est inférieure à la limite de détection, le flux de ce radionucléide est considéré comme nul. Cette approche conduit à l'obtention d'un flux minimal pour tous les radionucléides non systématiquement détectés.

Comme attendu, les flux des radionucléides émetteurs gamma d'origine naturelle sont nettement supérieurs à ceux des radionucléides d'origine artificielle (Tableau 5). Ainsi, le flux particulaire de ^{137}Cs est près de 6 fois inférieur au flux de ^7Be , élément naturel le moins présent en fréquence et en activité dans les eaux du Rhône mesurées à Arles (et plus de 100 fois inférieur au flux de ^{40}K , radionucléide d'origine naturelle prépondérant dans le fleuve).

	Radionucléides	Origine	Flux (GBq)	
Emetteur γ	^{228}Ac	Naturelle	210 ± 26	
	^7Be		$168 \pm 22^{(1)}$	
	^{40}K		2986 ± 298	
	^{210}Pb		292 ± 31	
	^{234}Th		180 ± 19	
		Artificielle	$^{110\text{m}}\text{Ag}$	$0,04 \pm 0,01^{(1)}$
			^{60}Co	$2,64 \pm 0,48^{(1)}$
			^{137}Cs	$28,5 \pm 2,77$
			^{125}Sb	$0,20 \pm 0,11$
	Emetteur β		^{90}Sr	$0,10 \pm 0,03^{(1)}$
Emetteur α	^{241}Am		$0,84 \pm 0,04$	
	$^{239+240}\text{Pu}$		$0,63 \pm 0,04$	
	^{238}Pu		$0,05 \pm 0,01$	
	^{244}Cm		$0,010 \pm 0,002$	

Tableau 5 - Flux des radionucléides associés à la phase particulaire mesurés en 2016. ⁽¹⁾Flux annuel calculé à partir des seules données significatives

En 2016, la radioactivité d'origine artificielle transitant dans le Rhône via la phase particulaire est apportée à 86% par le ^{137}Cs (Figure 11). Pour rappel, le ^{137}Cs est 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 (C.N.P.E. de Tricastin, Cruas, Saint-Alban et Bugey, site en déconstruction de Creys-Malville, complexes de Pierrelatte et de Marcoule), [10]. Environ 8% du flux est dû au ^{60}Co , ce radionucléide étant caractéristique des rejets des installations nucléaires. Si la contribution du ^{137}Cs est du même ordre de grandeur que celle observée depuis plusieurs années [25], il n'en est pas de même pour les radionucléides caractéristiques des rejets des installations nucléaires. En effet, on constate depuis 2013 une diminution de leur flux qui représentait de l'ordre de 20% du total, liée essentiellement à la diminution du flux de ^{54}Mn , mesurés de plus en plus rarement (détecté à 1 seule reprise entre 2013 et 2016).

Les flux de ^{90}Sr et de transuraniens sont peu élevés, compris entre $0,010 \pm 0,004$ et $0,84 \pm 0,04$ GBq et du même ordre de grandeur que ceux des années précédentes.

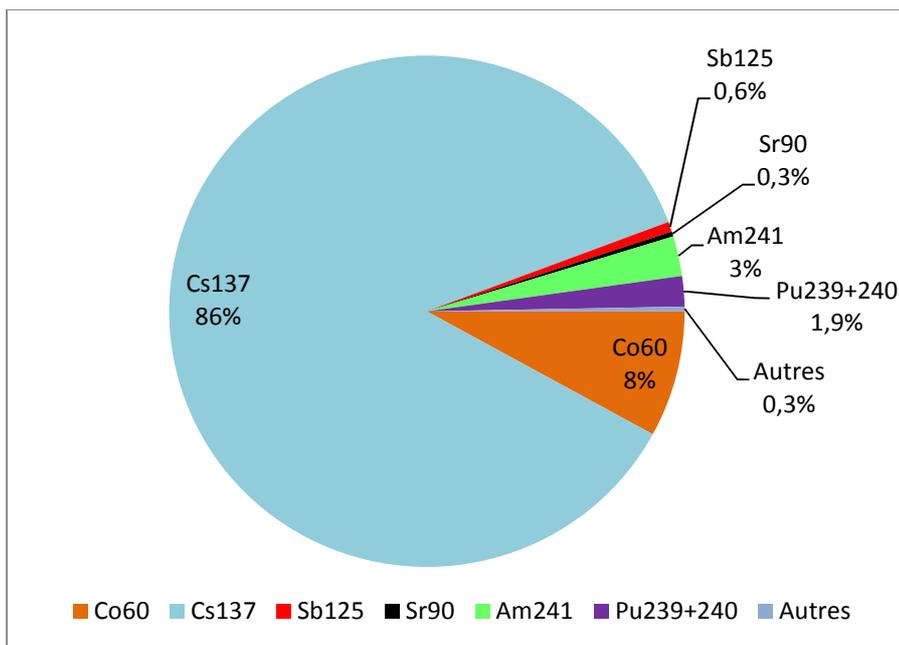


Figure 11 - Contribution des principaux radionucléides d'origine artificielle mesurés dans les matières en suspension du Rhône (en %).

Les événements de crues ont permis l'export d'un pourcentage important du flux de radionucléides (Figure 12). On note par exemple que plus de 50% du flux annuel de ^{137}Cs a transité au cours des 12 jours durant lesquels le débit moyen du fleuve a dépassé $3000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. Il en va de même pour les transuraniens (45 à 55%) et le ^{90}Sr (43%) qui ont été largement exportés pendant ces événements de crues. Seul le ^{60}Co , rejeté par les industriels hors période de crue, échappe à cette règle.



Figure 12 - Proportions exportées par la phase particulière en crue et hors période de crue, pour les différents radionucléides.

3.3 Flux de radioactivité exportée par voie dissoute

Le flux de radionucléides émetteurs gamma transitant en phase dissoute a été calculé sur les 6 premiers mois de l'année 2016, période au cours de laquelle les échantillons ont été prélevés (Tableau 6). Comme attendu, c'est le ^{40}K qui présente le flux le plus important (1435 ± 144 GBq). Le flux des trois radionucléides émetteurs gamma d'origine artificielle décelés en 2016 est très inférieur, de l'ordre de $7,1 \pm 1,0$ GBq. Le ^{137}Cs en est le principal contributeur (81%), suivi du ^{60}Co (13%) puis de ^{124}Sb (6%). Le flux de ^{90}Sr est estimé à 60 ± 8 GBq, lié à sa propension à transiter sous forme dissoute. Les flux d'émetteurs alpha exportés par voie dissoute sont en revanche peu importants, compte-tenu de la forte propension de ces éléments à se fixer aux matières en suspension présentes dans l'eau.

	Radionucléides	Origine	Flux calculés sur les six premiers mois de 2016 (GBq)
Emetteur γ	^{228}Ac	Naturelle	42 ± 6
	^7Be		$39 \pm 9,0^{(1)}$
	^{40}K		1435 ± 144
	^{22}Na		$1,1 \pm 0,5^{(1)}$
	^{210}Pb		$13,5 \pm 2,1^{(1)}$
	^{234}Th		$202 \pm 20^{(1)}$
	^{60}Co	Artificielle	$0,8 \pm 0,3^{(1)}$
	^{137}Cs		$5,9 \pm 0,6$
	^{124}Sb		$0,4 \pm 0,1^{(1)}$
Emetteur α	^{241}Am	Artificielle	$0,10 \pm 0,01$
	$^{239+240}\text{Pu}$		$0,08 \pm 0,01$
	^{238}Pu		$0,010 \pm 0,003^{(1)}$
	^{244}Cm		$0,003 \pm 0,001^{(1)}$
Emetteur β	^{90}Sr		60 ± 8
	^3H		$203000 \pm 13000^{(2)}$

Tableau 6 - Flux de radionucléides associés à la phase dissoute mesurés sur les six premiers mois de 2016. ⁽¹⁾ Flux minimal calculé à partir des seules données significatives. ⁽²⁾ Flux annuel indicatif (cf texte)

Le flux de tritium libre a pu être évalué pour l'année entière car les échantillons sont collectés avant que l'évaporation sous-vide n'intervienne. Notons que l'évaluation du flux de tritium peut être assortie d'une incertitude plus forte que celle indiquée, cette dernière correspondant seulement à l'incertitude métrologique et ne tenant donc pas compte de l'incertitude liée au prélèvement et aux différentes étapes de transport/traitement. En effet, ces étapes, en amont de l'analyse, peuvent induire des échanges avec l'eau de l'atmosphère qui, à distance de toute installation nucléaire, présente une activité en tritium inférieure à celles mesurées dans les eaux du Rhône. Des précautions de conditionnement et d'entreposage des échantillons limitent toutefois ces biais potentiels.

Notons que ce flux est très largement supérieur à celui du ^{40}K qui constitue le flux prépondérant parmi les radionucléides d'origine naturelle.

Afin d'estimer les flux annuels, les relations entre les volumes écoulés et les flux de radionucléides estimés ont été établies pour la période 2008-2014 et pour les résultats obtenus sur les six premiers mois de l'année 2016, pour les radionucléides systématiquement mesurés avec une activité supérieure au seuil de décision. Il s'agit des ^{40}K , ^{234}Th , ^{228}Ac pour les radionucléides d'origine naturelle et du ^{90}Sr et ^{137}Cs pour les radionucléides d'origine artificielle (Figure 13). Les résultats montrent que les corrélations existent mais ne sont pas toutes très robustes. Dans le détail, la corrélation est statistiquement significative avec un bon degré de confiance⁴ pour le ^{40}K et le ^{234}Th ($\alpha=0,01$), avec un degré de confiance bien moindre pour ^{228}Ac et ^{90}Sr ($\alpha=0,2$). En revanche, la corrélation n'existe pas pour le ^{137}Cs .

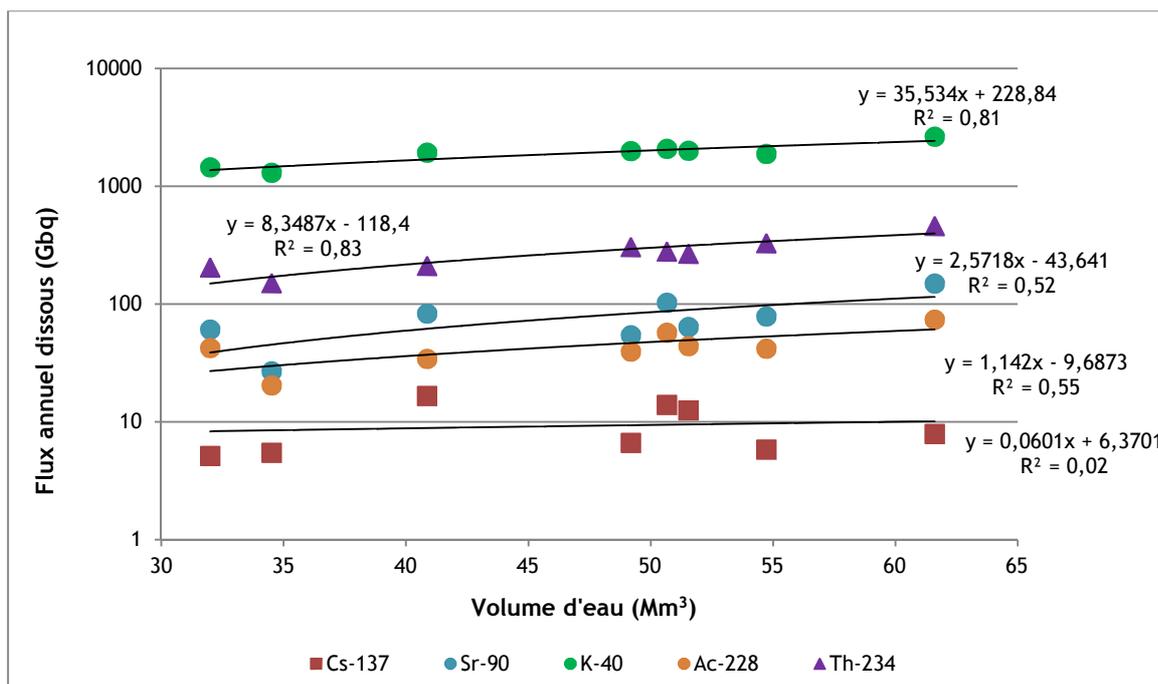


Figure 13 - Relations entre le volume d'eau écoulé et le flux annuel dissous pour les principaux radionucléides mesurés à Arles entre 2008 et 2014 et sur les 6 premiers mois de l'année 2016.

Ainsi, la variabilité d'origine naturelle et/ou artificielle (cas du ^{137}Cs et dans une moindre mesure du ^{90}Sr) ne permet pas de prédire ou de reconstruire les flux dissous avec des méthodes statistiques simples et à partir des seules données de terrain. Cette difficulté technique plaide pour le maintien des activités de prélèvement et d'analyse d'échantillons pour fournir une indication aussi fiable que possible des flux de radionucléides transitant dans le milieu aquatique. Des travaux seront prochainement entrepris pour définir si une approche plus fine par modélisation des flux de polluants peut constituer une alternative à l'absence de données de terrain.

⁴ Test du R^2 (Bravais-Pearson) : pour un degré de liberté de $n-1$ (soit 7 dans notre cas), le R^2 rend compte d'une relation entre deux variables avec un degré de confiance de $\alpha=0,01$ (soit 1% de risque qu'il n'y ait pas relation) pour un $R^2 \geq 0,7978$ et avec un degré de confiance de $\alpha=0,2$ (soit 20% de risque qu'il n'y ait pas relation) pour un $R^2 \geq 0,4717$.

4 CONCLUSIONS

L'année 2016 présente un flux liquide et solide dans la moyenne de ceux observés depuis près de 50 ans. Les activités mesurées en phase particulaire sur l'année et en phase dissoute durant les six premiers mois de l'année s'inscrivent dans la gamme des activités habituellement observées.

Comme attendu, le flux de radioactivité le plus important est celui du tritium libre estimé à 203 ± 13 TBq. Concernant les flux particulaires, on note que les flux des radionucléides d'origine artificielle sont bien moins élevés que ceux d'origine naturelle. Ainsi, le flux particulaire de ^{137}Cs est-il près 6 fois inférieur au flux de ^7Be , élément naturel le moins présent en fréquence et en activité dans les eaux du Rhône mesurées à Arles (et plus de 100 fois inférieur au flux de ^{40}K , radionucléide d'origine naturelle prépondérant dans le fleuve).

En 2016, plusieurs radionucléides spécifiques des rejets actuels de l'industrie nucléaires n'ont pas pu être quantifiés à une activité supérieure aux limites de détection des appareils de mesures. Cette difficulté à quantifier certains radionucléides (^{54}Mn , ^{58}Co) tient sans doute au fait que les rejets industriels sont en diminution constante depuis plusieurs années.

La panne de l'évaporateur industriel n'a pas permis de mesurer les activités en radionucléides sous forme dissoute pendant plusieurs mois. L'analyse des données acquises antérieurement et la connaissance des flux liquides permettant le transfert de ces radionucléides n'a pas permis d'estimer ces flux dissous (exception faite des radionucléides d'origine naturelle pour lesquels l'intérêt de l'approche est faible), ce qui témoigne du fait que l'acquisition de données *in situ* reste nécessaire pour disposer de l'état radiologique des cours d'eau.

Liste des références

- [1] EYROLLE F., RADAKOVITCH O., RAIMBAULT P., ANTONELLI C., FERRAND E., RACCASI G., AUBERT D., GURRIARAN R. (2012) - Long term survey of suspended particles and associated natural and artificial radionuclides transport in the Rhône River. *Journal of Soils and Sediments*, 12, 1479-1495.
- [2] EYROLLE-BOYER F., ANTONELLI C., RENAUD Ph., TOURNIEUX D., (2015) - Origins and trend of radionuclides within the Rhône River over the last decades, *Radioprotection*, 50, 1, 27-34.
- [3] KREJCI, K., ZELLER, A., (1979) - Tritium pollution in the Swiss luminous compound industry. In: *Behaviour of Tritium in the Environment*, IAEA Proceedings Series, IAEA-SM-232/11, Vienna, pp. 65-77.
- [4] JEAN-BAPTISTE P., BAUMIER D., CLAVEL B., (2007) - The distribution of tritium in the terrestrial and aquatic environments of the Crey-Malville nuclear power plant (2002-2005), *Journal of Environmental Radioactivity*, 94, 2, 107-118.
- [5] IRSN, (2012) - Constat radiologique Vallée du Rhône. Rapport final relatif au milieu terrestre, Rapport PRP-ENV/SESURE/2012-16.
- [6] IRSN, 2017, Actualisation des connaissances acquises sur le tritium dans l'environnement, 7 ans après le livre blanc de l'ASN : que sait-on de plus et que reste-t-il à faire ? Rapport PRP-ENV/SERIS/2017-004.
- [7] 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.
- [8] 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 2007-42.
- [9] 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.
- [10] 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.
- [11] 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.
- [12] 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.
- [13] ANTONELLI C. (2008a) - Flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée en 2007. Rapport IRSN/DEI/SESURE 2008-35, 26 p.
- [14] ANTONELLI C. (2010) - Flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée en 2008. Rapport IRSN/DEI/SESURE 2010-04, 41p.

- [15] ANTONELLI C. (2011) - Flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée en 2009. Rapport IRSN/DEI/SESURE 2011-19, 41p.
- [16] ANTONELLI C. (2013) - Flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée en 2010 et 2011. Rapport IRSN/PRP-ENV/SESURE 2013-03, 43p.
- [17] ROUSSEL-DEBET S., BEAUGELIN K. (2005) - Strontium 90 et environnement. Fiche radionucléide de l'IRSN. http://www.irsn.fr/FR/Larecherche/publications-documentation/fiches-radionucleides/Documents/environnement/Strontium_2005_V1.pdf
- [18] PERKINS R. W., THOMAS C. W. (1980) - Worldwide Fallout, p. 53-82 in W. C. Hanson editor. "Transuranic elements in the environment", U.S. DOE, USA.
- [19] UNSCEAR (1982) - Rayonnements ionisants, Sources et Effets Biologiques.
- [20] DUFFA C. (2001) - Répartition du plutonium et de l'américium dans l'environnement terrestre de la basse vallée du Rhône. Thèse de doctorat, Université Aix-Marseille III. 179 p.
- [21] IRSN (2010a) - Le tritium dans l'environnement. Point de vue de l'IRSN sur les questions clés et les pistes de recherches et développement. Rapport IRSN/DEI n° 2010-01, 23 p.
- [22] DUCROS L., EYROLLE F., DELLA VEDOVA C., CHARMASSON S., LEBLANC M., MAYER A., BABIC M., ANTONELLI C., MOURIER D., GINER F. (2018) - Tritium in river water from French mediterranean catchments: background levels and variability. *Science of the total environment*, 612, 672-782.
- [23] 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.
- [24] ANTONELLI C. (2002) - Flux sédimentaires et morphogénèse récente dans le chenal du Rhône aval. Thèse, Université Aix-Marseille I, 279 p.
- [25] ANTONELLI C. (2015) - Flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée en 2012. Rapport IRSN/PRP-ENV/SESURE 2013-03, 43p.
- [26] 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.
- [27] 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.
- [28] ANTONELLI C. (2008b) - Niveau d'activité du tritium dans l'environnement. Contribution à la synthèse de la DEI sur le tritium. Rapport IRSN/DEI/SESURE n° 2008-34, 57 p.
- [29] 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.

- [30] EPA (2006) - Data quality assessment: statistical methods for practitioners, EPA QA/G-9S. United States Environmental Protection Agency, EPA/240/B-06/003, 190 p.
- [31] IRSN (2010b) - Bilan de l'état radiologique de l'environnement français en 2008.
- [32] SFRP (2002) - Tritium et environnement. Plaquette éditée par la Société Française de Radioprotection, 11p.
- [33] MASSON O., EYROLLE F., BOULLIER V., ANTONELLI C. (2004) - Station observatoire « Rhône Aval », réseau Opera. Bilan du fonctionnement sur la période 2000-2003 et perspectives. Rapport IRSN/DEI/SESURE 2004-05, 39p.

ANNEXE 1 METHODES DE PRELEVEMENT ET DE CALCULS

1.1 Rappel succinct des stratégies de prélèvement et de mesure

Les prélèvements d'eaux du Rhône sont effectués selon le protocole décrit par [33]. De manière simplifiée, un cycle normal (hors période de crue) est constitué d'un échantillon composite issu de prélèvements réalisés toutes les 80 minutes sur une durée d'environ un mois (+/- 2 à 3 jours selon les dates de visite). En période de crue, c'est à dire lorsque le débit du Rhône dépasse le seuil⁵ 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.

L'ensemble des échantillons récolté fait l'objet d'une spectrométrie gamma destinée à déterminer les niveaux d'activité des principaux radionucléides émetteur gamma présents de manière naturelle ou rémanente ainsi que dans les rejets des exploitants nucléaires. D'autre part, les échantillons de routine sont systématiquement analysés pour détermination du ⁹⁰Sr et des transuraniens (Pu, Am et Cm). En période de crue, la quantité de matière n'est parfois pas suffisante pour assurer l'ensemble des analyses prévues. Dans ce cas, les transuraniens, connus pour leur affinité particulaire, sont privilégiés par rapport à la détermination du ⁹⁰Sr.

Pour l'analyse du tritium libre, des prélèvements ponctuels ont été réalisés en limitant les échanges avec l'atmosphère : 40 mL d'eau sont prélevés dans un bécher de 2 L à l'aide d'une seringue équipée d'un filtre à 0,22 µm puis placés dans un flacon en verre ambré avant d'être mesurés par scintillation liquide. A partir d'avril 2011, le système de prélèvement intégré, testé en 2009, a été remis en place : l'échantillon mensuel est constitué de prélèvements de quelques millilitres, réalisés toutes les 80 minutes et stocké dans un flacon en verre protégé de la lumière. Au retour de la station SORA, l'échantillon ainsi constitué est placé en chambre froide (inférieure à 4°C), dans l'attente de son conditionnement et envoi vers le laboratoire de métrologie. Ces précautions limitent les échanges entre l'échantillon et l'atmosphère qui pourraient conduire à une perte/ un enrichissement en tritium libre.

1.2 Calcul des Flux

1.2.1 Matières en suspension

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

$$F_{MES} = \sum_{i=1}^{i=n} (MES_t \times Q_t) \times 86400$$

⁵ Seuil établi à partir des résultats et observations publiés dans les rapports IRSN/DEI/SESURE/2004-05 et IRSN/DEI/SESURE/2004-15.

Avec F_{MES} : le flux journalier (kg.j^{-1})

n : le nombre de prélèvements collectés dans l'année

MES_t : la concentration mesurée au cours d'une période ou ponctuellement (kg.m^{-3})

Q : le débit moyen durant une période de prélèvement ou pour un prélèvement ponctuel ($\text{m}^3.\text{s}^{-1}$)

86400 : le nombre de secondes par jour

Lorsque le débit liquide a dépassé $3000 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$, cette même relation est utilisée. Seul change le nombre de secondes entre 2 prélèvements. Ceci permet d'affiner le flux journalier qui est donc estimé à partir de la somme de n prélèvements et non à partir d'un seul prélèvement.

La précision de la mesure des matières en suspension est estimée à $0,05 \text{ mg.L}^{-1}$. Celle sur le débit, proposée par la CNR, est de 10%. Les incertitudes relatives ont été additionnées conduisant à une incertitude sur le flux annuel estimée à 10,06 %.

1.2.2 Radionucléides

1.2.2.1 *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 ($Q > 3000 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$), la fréquence de prélèvement des MES et des radionucléides associés à la phase particulaire est augmentée. 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 période et de l'activité massique des radionucléides mesurés.

Le flux annuel de radionucléide correspond à la somme des flux de RN quotidiens, mesurés en période de débit moyen et du 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 2013. 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 applique le même principe de calcul, cependant le flux total ne correspond pas au flux total naturel. En effet, les principales chaînes radioactives (^{238}U et ^{232}Th) comportent plusieurs radionucléides qui ne sont pas tous mesurés (ou mesurables). Afin d'avoir une estimation totale, il faudrait démontrer que les radionucléides fils sont en équilibre séculaire, ce qui n'a aucune raison d'être le cas du fait des ruptures de chaînes, de la géochimie du bassin versant, etc. Ceci est d'ailleurs en partie observable sur les éléments mesurés dans les échantillons récoltés au cours des dernières années.

La précision associée à ces flux est estimée de la manière suivante : la précision de chaque résultat de mesure est convertie en précision relative (%). On calcule ensuite la précision relative moyenne annuelle et on applique ce pourcentage au flux annuel calculé. Cette méthode fournit un calcul d'incertitude majorant.

1.2.2.2 Phase dissoute

L'estimation des flux de radionucléides en phase dissoute est effectuée par croisement de l'activité volumique des radionucléides mesurés (émetteurs gamma, alpha, tritium libre et ^{90}Sr) avec les données de débits liquides mises à disposition par la CNR selon la relation :

$$F_{RND} = Q \times A_{RN} \times 86\,400$$

Avec F_{RND} : le flux quotidien de radionucléide associé à la phase dissoute, en $\text{Bq}\cdot\text{j}^{-1}$

Q : le débit moyen journalier du Rhône, en $\text{m}^3\cdot\text{s}^{-1}$

A_{RN} : l'activité volumique de l'échantillon en $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$

86 400 : le nombre de secondes par jour

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. La précision associée est estimée selon la même méthode que celle effectuée pour la phase particulaire.

1.2.2.3 Radioactivité totale (particulaire et dissous)

Le calcul du flux total de radioactivité d'origine artificielle des émetteurs gamma, alpha et ^{90}Sr 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 activité inférieure à la limite de détection de chaque mesurage.

La précision associée aux flux totaux est calculée selon la même méthode que celle employée pour les flux particulaires et les flux dissous.

ANNEXE 2 DONNEES DE REFERENCE

	Débit ($\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$)
Débit d'étiage	500
Débit moyen (ou module)	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).

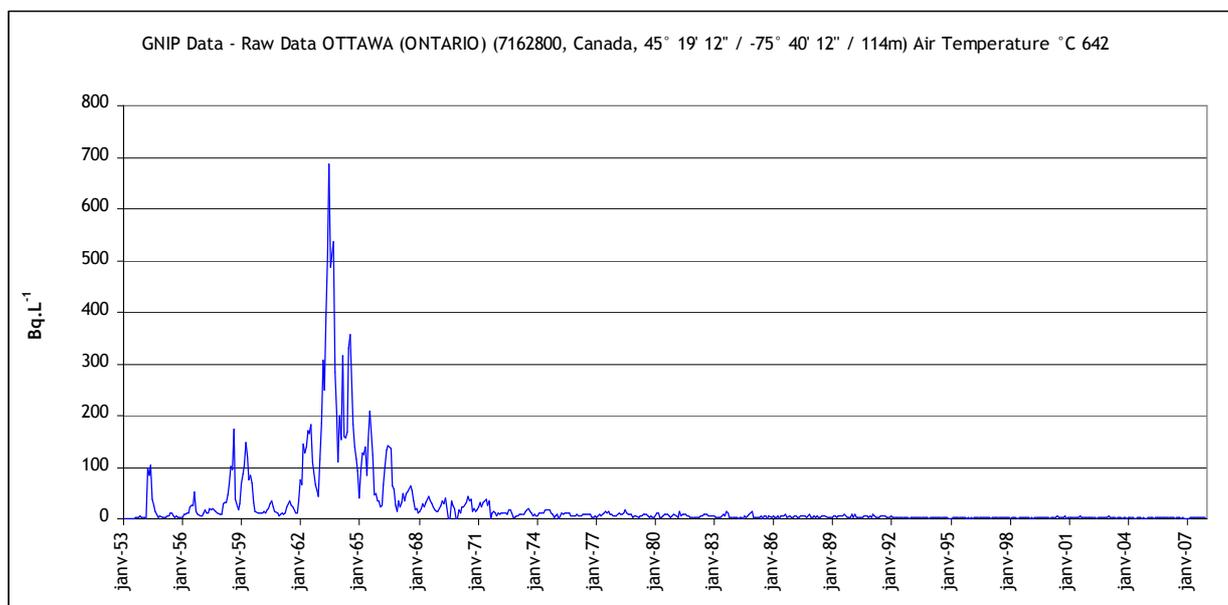


Figure A1 - Évolution du tritium libre mesuré dans les précipitations de la station d'Ottawa (Canada, données AIEA).