

## Le projet CAROL (Camargue-Rhône-Languedoc)

• P. RENAUD (IRSN)  
• S. CHARMASSON (IRSN)

• F. EYROLLES (IRSN)

• L. POURCELOT (IRSN)

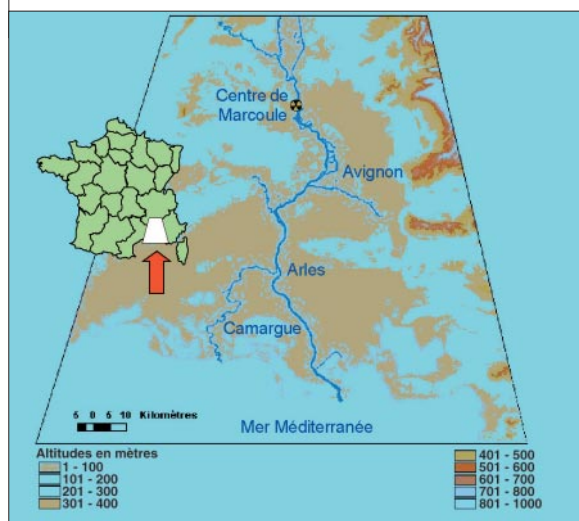
• C. DUFFA (IRSN)

Le projet CAROL, lancé en 1998, avait pour objectif initial d'étudier et de quantifier la répartition des radionucléides artificiels dans l'un des environnements les plus nucléarisés au monde: la basse vallée du Rhône (figure 1). Les résultats obtenus, l'évolution des préoccupations des chercheurs et l'actualité ont conduit à élargir la zone étudiée et à considérer notamment le Mercantour et la Corse.

Parmi la dizaine de radionucléides artificiels régulièrement présents en quantité mesurable dans toutes les composantes de l'environnement, les isotopes 238, 239 et 240 du plutonium, l'américium 241 ainsi que le césium 137 ont été plus particulièrement étudiés durant les quatre premières années de ce projet.

Figure 1

Localisation de la zone d'étude.



1 - Mesurées le plus souvent par spectromètre alpha, les activités de  $^{239}\text{Pu}$  et  $^{240}\text{Pu}$  ne peuvent être distinguées en raison des énergies très voisines des particules alpha.

### Les actinides (plutonium 238, 239, 240 et américium 241)

#### DANS LES SOLS

L'étude menée sur le plutonium et l'américium a montré que, dans l'environnement de la basse vallée du Rhône, ces actinides ont deux origines (Renaud et al 2000, Duffa 2001) :

- les retombées anciennes liées aux essais atmosphériques d'armes nucléaires effectués de 1945 à 1980 et l'explosion en 1964 d'un satellite américain qui contenait du  $^{238}\text{Pu}$ ;
- les rejets du centre nucléaire de Marcoule.

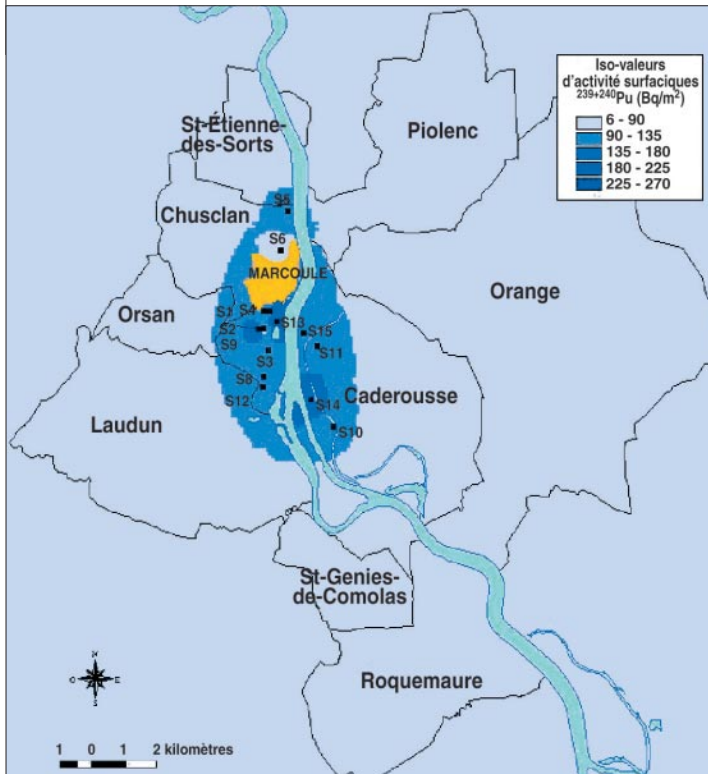
Avec des activités surfaciques de l'ordre de  $50 \text{ Bq/m}^2$  en  $^{239} + ^{240}\text{Pu}$ <sup>1</sup> et de  $1,5 \text{ Bq/m}^2$  en  $^{238}\text{Pu}$  et en  $^{241}\text{Am}$ , la répartition de ces actinides dans les sols est assez homogène et liée aux retombées anciennes, excepté sur une zone d'une trentaine de kilomètres carrés autour du site de Marcoule, pour laquelle des concentrations en plutonium supérieures ont été mises en évidence. L'activité totale répartie sur cette zone a été évaluée à :

- 3 gigabecquerels ( $1 \text{ GBq} = 10^9 \text{ Bq}$ ) de plutonium, soit une activité surfacique moyenne d'environ  $120 \text{ Bq/m}^2$  au lieu de  $50 \text{ Bq/m}^2$  ;
- $0,6 \text{ GBq}$  d' $^{241}\text{Am}$ , soit  $24 \text{ Bq/m}^2$ . En France, l'activité surfacique moyenne de l' $^{241}\text{Am}$  est de l'ordre de  $20 \text{ Bq/m}^2$ .

**La répartition des actinides dans les sols est assez homogène et liée aux retombées anciennes, excepté sur une zone située immédiatement autour du site de Marcoule.**

Figure 2

Répartition du plutonium 239 et 240 dans les sols autour de Marcoule.



Cette activité supplémentaire en plutonium résulte principalement des rejets atmosphériques antérieurs à 1975, lorsque le centre de Marcoule effectuait l'extraction de plutonium de qualité militaire.

La carte de la **figure 2**, réalisée à partir des différentes mesures dans l'environnement, précise la répartition du plutonium 239+240. Des cartes similaires ont été dressées pour le plutonium 238 et l'américium 241.

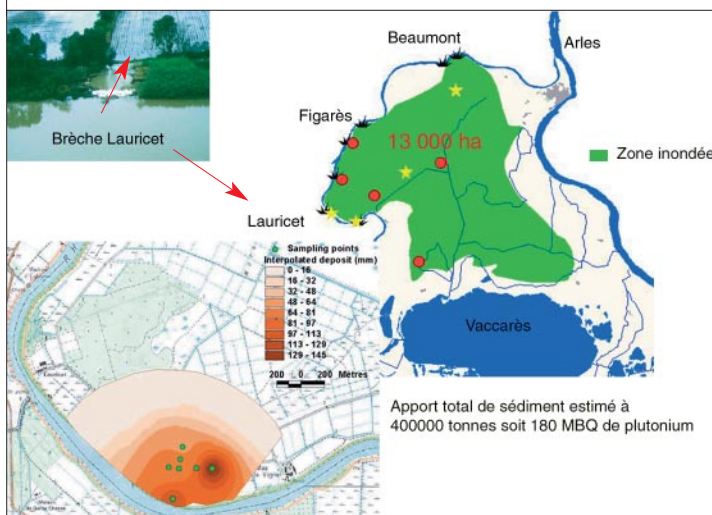
C'est le rapport des activités isotopiques du plutonium 238 et du plutonium 239+240 qui permet de déterminer les contributions relatives des deux origines possibles des actinides présents dans les sols. Les retombées anciennes sont caractérisées par un rapport des activités  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  proche de 0,03. Les rejets liés à l'extraction du plutonium militaire à Marcoule portent ce rapport à une valeur de 0,05, en accord avec les mesures faites dans les sols autour de Marcoule. En outre, des rejets plus récents, liés au retraitement du combustible nucléaire et caractérisés par un rapport des activités beaucoup plus élevé (plutonium 0,3) ont marqué jusqu'en 1998, et sur la même zone, certains végétaux comme les mousses terrestres, le thym et le raisin, sans que cela se traduise par une augmentation notable de leurs activités.

Aujourd'hui, les opérations de retraitement ont cessé à Marcoule, et les très faibles quantités de plutonium constatées dans les sols ne peuvent pas conduire à une exposition significative des habitants des communes concernées (les doses calculées sont inférieures à 0,001 mSv par an). Les activités en plutonium et américium mesurées en 1999 et 2000 dans les productions agricoles locales sont à des niveaux d'activité extrêmement bas, à la limite de détection des meilleures techniques de mesure disponibles.

Des traces de rejets plus récents provenant des installations de Marcoule sont également décelables dans les sols irrigués par l'eau du Rhône ou inondés lors de crues. Les rapports des activités calculés à partir des mesures faites à proximité des points de rupture des digues du Rhône lors des inondations de 1993 et de 1994 ont permis de reconstituer les épaisseurs de sédiments déposés et d'en déduire une estimation du volume total de sédiments déposés (**figure 3**).

Figure 3

Localisation des surfaces inondées en 1993 et en 1994 et des points de rupture des digues, estimations des dépôts sédimentaires et de l'activité de plutonium déposée.



### DANS LE RHÔNE

Contrairement au milieu terrestre, dans lequel les rejets de Marcoule ne sont décelables que ponc-

tuellement, le Rhône et ses canaux ont été très régulièrement marqués par les rejets liquides de ce centre. Ainsi, jusqu'à très récemment, 90 % du plutonium véhiculé dans le Rhône provenait du fonctionnement de l'usine elle-même. Aujourd'hui, avec l'arrêt du retraitement et la diminution des rejets, le principal stock, et donc la principale source de plutonium, est le réservoir de sédiments du Rhône, de ses canaux et de son delta en mer. Lorsque le Rhône est en crue, ses sédiments constituent la deuxième source de plutonium dans les eaux, après le drainage des sols du bassin versant et devant les rejets des installations nucléaires rhodaniennes (figure 4) (Eyrolle, 2001).

La figure 5 présente un bilan des stocks et des flux de plutonium dans la basse vallée du Rhône au cours des quarante dernières années. La majeure partie du plutonium présent dans les sols de la basse vallée du Rhône provient des retombées anciennes des essais d'armes nucléaires, soit 770 GBq. Les rejets atmosphériques de Marcoule n'en représentent qu'une faible part (28 GBq), visible seulement au voisinage immédiat du site. En revanche, 90 % du plutonium qui a transité dans le Rhône ces quarante dernières années provient de cette installation (920 GBq). Les apports supplémentaires sur les sols résultant de l'irrigation ou des crues du fleuve sont très faibles et visibles uniquement près des points de rupture des digues lors des crues.

## Le césium

### RECONSTITUTION DES DÉPÔTS DE CÉSIUM 137 DE 1986

Comme dans tout l'est de la France, le césium 137 présent dans l'environnement de la basse vallée du Rhône provient principalement des retombées de l'accident de Tchernobyl. Ces retombées ont été très hétérogènes car elles sont liées aux pluies. Les dépôts ont augmenté avec les précipitations durant la première semaine de mai 1986 (figure 6) (Renaud et al, 2001). Cette relation a été notamment étudiée en certains sites du Vaucluse qui ont pour particularité, d'une part, d'avoir été très arrosés en mai 1986, d'autre part, d'avoir des sols riches en argiles qui ont retenu la majeure partie du césium. À partir de cette relation pluie/dépôt et des hauteurs de précipitations enregistrées par Météo France en mai 1986, une carte des dépôts de césium 137 sur tout l'est de la France a été établie (figure 7, page 204).

Figure 4

Origine du plutonium présent dans les eaux du Rhône en fonction de son débit.

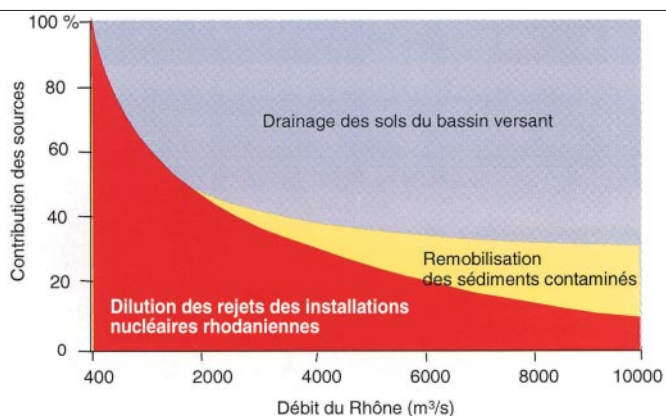


Figure 5

Stocks et flux de plutonium en GBq dans la basse vallée du Rhône dans les quarante dernières années.

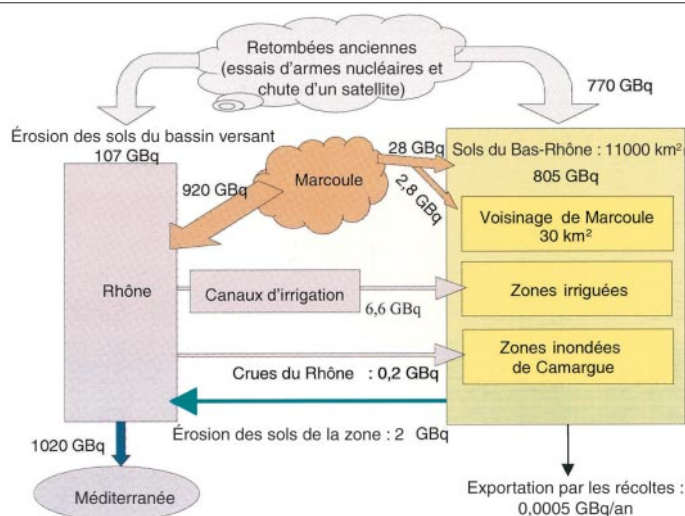


Figure 6

Relation entre les dépôts de césium 137 et les pluies durant la première semaine de mai 1986.

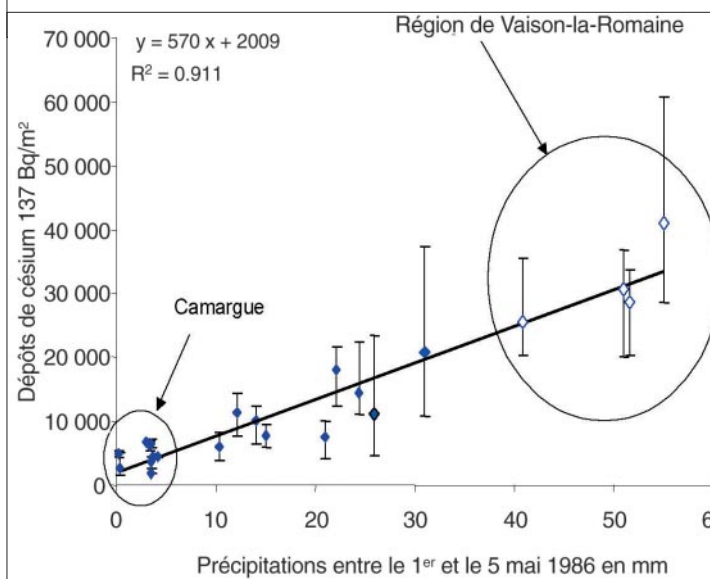
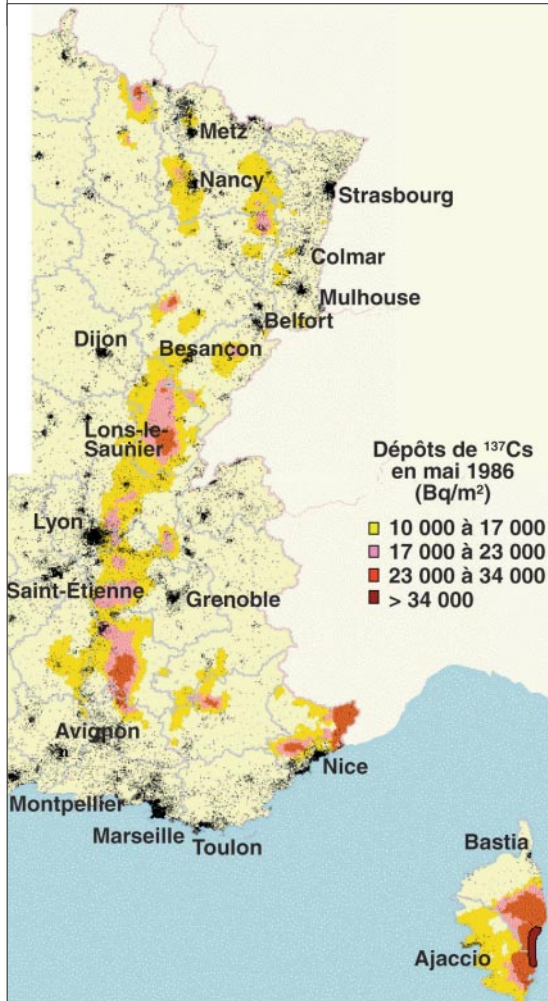


Figure 7

Carte de répartition des dépôts de césium 137 en mai 1986.



Cette carte met en évidence l'hétérogénéité des dépôts radioactifs et montre que ce sont les régions qui ont connu des hauteurs de précipitations supérieures à 20 mm qui ont reçu les dépôts les plus importants.

2 300 communes ont été concernées par des dépôts supérieurs aux moyennes départementales, estimées en 1997 entre 3 000 et 6 000 Bq/m<sup>2</sup> pour les plaines agricoles de l'est de la France, parmi lesquelles 180 communes ont eu des dépôts compris entre 25 000 Bq/m<sup>2</sup> et 35 000 Bq/m<sup>2</sup>.

Les dépôts en iode 131 étaient cinq à dix fois supérieurs à ceux de césium 137 (Renaud & Métivier, 2000).

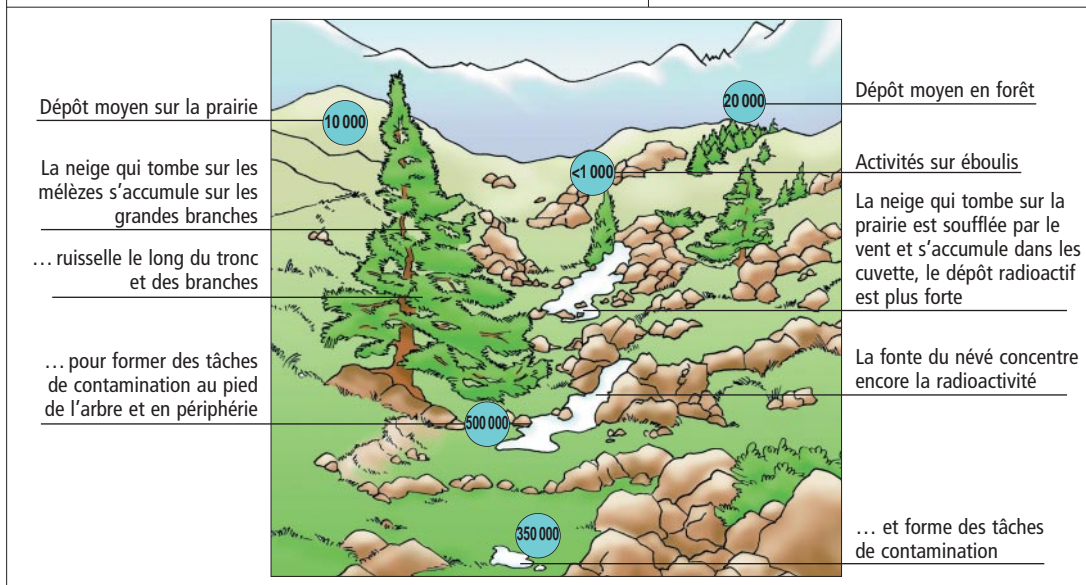
### LES DÉPÔTS DE CÉSIMUM 137 AUJOURD'HUI

#### • Le cas du Mercantour

Une étude spécifique a été menée pour expliquer l'existence de "points chauds", c'est-à-dire de taches de césium 137 d'activité supérieure à 100 000 Bq/m<sup>2</sup> sur quelques décimètres carrés à quelques mètres carrés en montagne (Pourcelot et al, 2001). Elle a montré qu'il s'agissait de points d'accumulation de dépôts neigeux en mai 1986 et de reconcentration à la fin du printemps, lors de la fonte des névés. Sur ces points se sont également concentrés les autres polluants atmosphériques: le plomb provenant des carburants, l'antimoine issu des systèmes de freinage des véhicules, le cuivre, le nickel, le cadmium... (figure 8).

Figure 8

Localisation et origine des "taches" de contamination en montagne.



#### • Le cas du Comtat Venaissin (partie du Vaucluse)

Aujourd'hui, certains sols riches en argiles comme ceux du Comtat Venaissin ou de Haute Provence ont fortement retenu le césium 137 déposé en mai 1986 ; d'autres, comme ceux de Corse, n'en ont retenu qu'une partie. Une étude a montré que, dans le Comtat Venaissin, plus de 80 % du césium 137 est piégé dans les argiles des dix premiers centimètres de sol et que les vitesses de migration sont extrêmement faibles. Il en résulte que, dans cette région pourtant très touchée par les retombées de l'accident de Tchernobyl, l'activité en césium 137 du vin est revenue aujourd'hui à son niveau d'avant l'accident. En effet, la **figure 9** montre que la cuvée de 1986 a répercuté faiblement les dépôts radioactifs en raison du stade de développement précoce des vignes début mai. L'activité du vin a ensuite diminué rapidement par élimination du césium 137 fixé dans les ceps. L'activité mesurée en 2000 est proche de celle de 1983. Ceci s'explique par le fait que la majeure partie du césium déposé à la suite de l'accident de Tchernobyl, restée à la surface du sol, n'est toujours pas disponible pour les racines de la vigne et ne le sera pas avant plus de cinquante ans. D'ici là, 80 % de l'activité initialement déposée aura disparu par décroissance radioactive (Renaud et al, 2001).

#### • Le cas de la Corse

Les premiers résultats des trois campagnes de prélèvements de sols effectuées en Corse en 2001 par l'IRSN montrent que la côte orientale et les massifs montagneux de l'île figurent bien parmi les endroits de France où les retombées de l'accident de Tchernobyl ont été les plus importantes. L'hétérogénéité des activités de césium 137 rémanentes y est cependant extrêmement forte, liée aux précipitations de mai 1986 et, surtout, aux caractéristiques pédologiques des sols, qui ont plus ou moins retenu ces dépôts. Dans certains cas, plus de la moitié du césium 137 a disparu par drainage des sols et a rejoint la mer *via* les nappes phréatiques et les cours d'eau (Pourcelot et al, 2002).

#### • Le delta immergé du Rhône

Dans le delta immergé du Rhône (**figure 10**), ce drainage des sols a conduit à une accumulation de 6 TBq de césium 137 piégé dans les sédiments sur une surface relativement petite de 160 km<sup>2</sup>. À cette activité viennent s'ajouter notamment 10

Figure 9

Activité volumique du vin des côtes du Rhône.

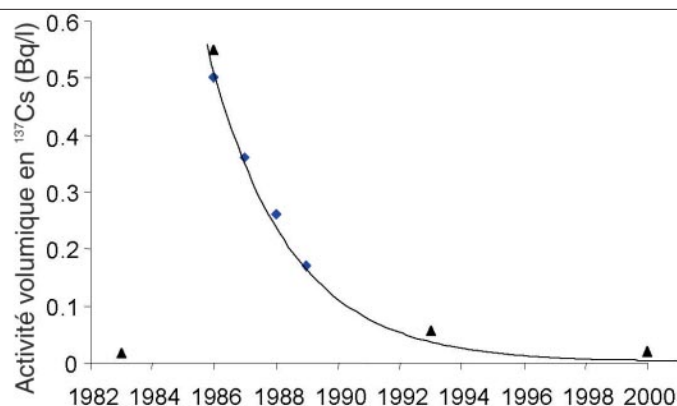
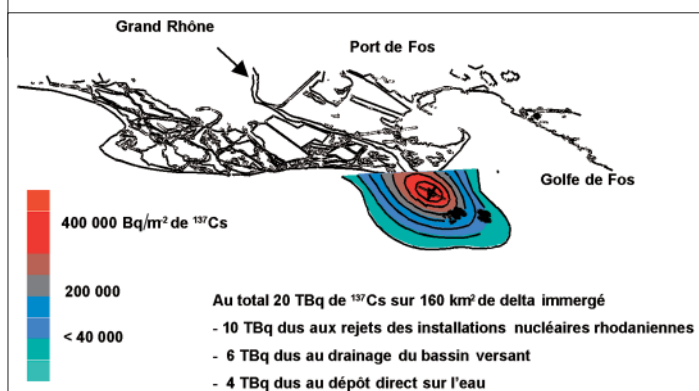


Figure 10

Répartition, stock et origine du césium 137 dans le delta immergé du Rhône.



**La côte orientale et les massifs montagneux de la Corse figurent parmi les endroits de France où les retombées de l'accident de Tchernobyl ont été les plus importantes.**

TBq qui résultent des rejets des installations nucléaires rhodaniennes, ce qui représente 20 % des activités rejetées dans le Rhône depuis 1961 (Charmasson, 1998).

Au total, les 20 TBq de césium 137 stockés dans le delta immergé du Rhône constituent la plus importante accumulation de ce radionucléide dans la basse vallée du Rhône. Avec des valeurs dépassant par endroits les 400 000 Bq/m<sup>2</sup>, les activités surfaciques en présence s'apparentent plus aux taches de contamination du Mercantour qu'aux activités rencontrées dans les sols de la vallée, qui ne dépassent pas le dixième de cette valeur. Ceci s'explique par le fait que, dans le milieu aquatique, le césium est à plus de 80 % fixé aux particules en suspension (moins de 20 % sous forme dissoute) ; particules qui viennent se déposer dans le delta immergé. Après le césium, l'accumulation des actinides (plutonium et américium) et le devenir de ces radionucléides ainsi piégés sont actuellement étudiés.

## PERSPECTIVES

• Au terme de sa quatrième année, le projet CAROL a répondu aux principales questions concernant l'origine des radionucléides présents dans l'environnement de la basse vallée du Rhône et a fourni un état des stocks actuels et une modélisation des flux d'apport et d'échange entre ses différentes composantes pour les cinq radionucléides étudiés : <sup>137</sup>Cs, <sup>238</sup>Pu, <sup>239</sup>Pu, <sup>240</sup>Pu et <sup>241</sup>Am. Outre l'achèvement des travaux en cours, comme l'évaluation du stock d'actinides dans le prodelta, la continuité de ce programme pourrait concerner d'autres radionucléides, notamment <sup>129</sup>I et <sup>90</sup>Sr, l'étude des flux anthropiques, qui n'a été qu'abordée jusque-là, et, surtout, une étude plus précise de certains mécanismes dont la première partie de CAROL a permis de quantifier globalement les effets résultants : fractionnement chimique lors de la migration des radionucléides dans les sols, compétitions entre éléments stables et radioactifs, spéciation des radionucléides en eau douce, importance de la remise en suspension de particules de sol dans les transferts aux végétaux.

## Au terme de sa quatrième année, le projet CAROL a répondu aux principales questions concernant l'origine des radionucléides présents dans l'environnement de la basse vallée du Rhône.

### Références

- S. Charmasson, "Cycle du combustible nucléaire et milieu marin. Devenir des effluents rhodaniens en Méditerranée et des déchets immergés en Atlantique nord", thèse de doctorat d'État, rapport CEA-R-5826, 1998.
- C. Duffa, "Répartition du plutonium et de l'américium dans l'environnement terrestre de la basse vallée du Rhône", thèse de doctorat, rapport CEA-R-5977, 2001.
- F. Eyrolle, "Projet CAROL : exportation des radionucléides par voie fluviale dynamique et bilan sur le bassin rhodanien", rapport IPSN/DPRE/SERNAT/2001-26.
- L. Pourcelot, et J.-M. Métivier, "Modélisation spatiale des activités surfaciques des sols du Mercantour", rapport IPSN/DPRE/SERNAT/2001-25, 2001.
- L. Pourcelot, J. Marquet et F. Leprieux, "Rapport scientifique annuel 2000. Contamination des bassins versants d'altitude suite à l'accident de Tchernobyl : exemple du massif du Mercantour", rapport IPSN/DPRE/SERNAT/2001-12, 2001.
- L. Pourcelot, Ph. Renaud, J.-M. Métivier et D. Louvat, "Étude des retombées de l'accident de Tchernobyl en Corse : estimation des dépôts de 1986 et état actuel de la contamination des sols", rapport IPSN/DPRE/SERNAT, 2002, à paraître.
- Ph. Renaud, C. Duffa, B. Descamps et D. Louvat, "Répartition du plutonium et de l'américium dans l'environnement du centre de Marcoule", rapport IPSN/DPRE/SERNAT/2000-02.
- Ph. Renaud, J.-M. Métivier et M. Morello, "Modélisation de la répartition spatiale des dépôts de <sup>137</sup>Cs dans la basse vallée du Rhône", rapport IPSN/DPRE/SERNAT/2001-17.
- Ph. Renaud et J.-M. Métivier, "Caractérisation des zones de France métropolitaine ayant reçu les dépôts de <sup>131</sup>I les plus importants à la suite de l'accident de Tchernobyl", rapport IPSN/DPRE/SERNAT/2000-33.
- Ph. Renaud, C. Colle, R. Guriarran et J. Marquet, "Projet CAROL. Influence des retombées de l'accident de Tchernobyl sur l'activité en <sup>137</sup>Cs du vin des côtes-du-Rhône", rapport IPSN/DPRE/SERNAT/2001-24, 2001.