

Association
Information
Radiologique
Environnementale
sur l'**E**nergie

Foyer Henri Barbusse
38150 ROUSSILLON

Commission de Recherche
et d'Information Indépendantes
sur la Radioactivité

Rapport d'Etude N°00-5

Contrôle de la radioactivité des sédiments et plantes aquatiques du Rhône, en amont et en aval du CNPE de Saint-Alban

Etude réalisée par le laboratoire de la CRIIRAD à la demande de l'association AIRE ,

Avec le soutien financier du Conseil Général de l'Isère,

Et des communes de Roussillon, Péage de Roussillon, Saint-Maurice l'Exil, Salaise-sur-Sanne, Les Roches de Condrieu, Condrieu, Saint-Appolinard, Saint-Romain de Surieu et Sablons

Date de réalisation des prélèvements : 17 au 21 juillet 2000.

Date de publication du rapport final : mai 2001.

Responsable d'étude : Bruno CHAREYRON, ingénieur en physique nucléaire,
Responsable de la mission d'échantillonnage : Christian COURBON, technicien spécialisé,
Responsable de la préparation et de l'analyse par spectrométrie gamma des échantillons : Stéphane PATRIGEON, technicien spécialisé,
Assistants au laboratoire : Julien SYREN , Antoine ORSAT, Yann MEYER
et Jocelyne RIBOUËT

LABORATOIRE DE LA CRIIRAD
471, Avenue Victor Hugo, 26000 Valence
☎ 04 75 41 82 50 📠 04 75 81 26 48

INTRODUCTION	3
1. Recherche documentaire préalable	4
1.1. Liste des organismes consultés	4
1.1.1. Agence de Bassin Rhône Méditerranée Corse.....	4
1.1.2. Service Navigation Rhône-Saône	4
1.1.3. DRIRE	5
1.2. Résumé des informations recueillies	5
1.2.1. Termes sources pour l'iode 131.....	5
1.2.2. Termes sources pour l'uranium	5
2. Réalisation des prélèvements	7
2.1. Sélection initiale des points de prélèvement	7
2.2. Réalisation des prélèvements	7
2.2.1. Prélèvements de sédiments.....	9
2.2.2. Prélèvements de plantes aquatiques.....	9
3. Radioactivité dans les Sediments	10
3.1. Méthodologie de préparation et d'analyse	10
3.2. Radionucléides naturels	10
3.2.1. Chaîne de désintégration de l'uranium 238	12
3.2.2. Chaîne de désintégration de l'uranium 235	12
3.2.3. Chaîne de désintégration du thorium 232.....	12
3.2.4. Potassium 40	14
3.2.5. Beryllium 7	14
3.2.6. Comparaison sédiment brut / fraction fine :	14
3.2.7. Radioactivité artificielle.....	16
4. Radioactivité dans les PLANTES AQUATIQUES	19
4.1. Méthodologie de préparation et d'analyse	19
4.2. Radioactivité naturelle	19
4.3. Radioactivité artificielle	21
4.3.1. Présence systématique d'iode 131	21
4.3.2. Présence aléatoire de césium 137 et cobalt 58.....	23
5. ORIGINE DE L'EXCes d'URANIUM DANS LES SEDIMENTS	25
5.1. Localisation géographique du terme source	25
5.1.1. Présentation du site chimique.....	25
5.1.2. L'ancien atelier d'acide phosphorique	25
5.2. Anomalies radiométriques en bordure du site chimique	27
5.3. Caractéristiques radiologiques du matériau pulvérulent noir	29
6. Contrôles portant sur les métaux	30
6.1. Plantes Aquatiques	30
6.2. SEDIMENTS	30
SYNTHESE ET CONCLUSIONS	31



INTRODUCTION

En 1993 et 1997, à la demande de l'association AIRE, le laboratoire de la CRIIRAD a réalisé des contrôles de la radioactivité des sédiments et plantes aquatiques en amont et en aval de la centrale électronucléaire de Saint-Alban. Outre le marquage attendu du milieu aquatique, en aval de la centrale, du fait des rejets radioactifs liquides, deux anomalies radiologiques ont été mises en évidence en amont du site nucléaire :

- un excès d'**uranium 238 (et ses descendants radium 226 et plomb 210) et d'uranium 235** dans les sédiments prélevés à 3 kilomètres en amont de la centrale en 1993 et 1997 (excès d'un facteur 6 à 10 environ par rapport à l'aval lointain),
- la présence, en 1997, d'**iode 131** dans les plantes aquatiques (potamots pectinés) prélevées à 1 et 3 kilomètres en amont de la centrale.

Les sédiments constituent de bons témoins de la contamination radioactive de l'eau. Ils ont en effet une forte capacité à fixer les radioéléments présents dans l'eau, par sédimentation ou par échanges physico-chimiques au niveau de l'interface eau / sédiment. Ils peuvent renseigner sur des périodes de contamination étendues, de l'ordre de plusieurs années, voire dizaines d'années. Ceci dépend, bien entendu, des vitesses de sédimentation, de la profondeur de sédiment prélevée, des phénomènes de remise en suspension et de transfert (exportation lors des crues, curages de voies navigables, etc ...).

Les potamots pectinés ont la capacité de concentrer certains radionucléides présents dans l'eau. Leur étude renseigne sur un passé plus récent que celui des sédiments, de l'ordre de quelques mois environ.

Le principal objectif de cette étude est de vérifier si les anomalies détectées en 1993 et 1997 perdurent en l'an 2000, et de tenter d'en déterminer l'origine.

- ◆ L'excès d'uranium pourrait être dû à l'impact d'industries non nucléaires.
- ◆ La présence d'iode 131 pourrait être due aux rejets de services de médecine nucléaire ou au rejet diffus liés aux patients de retour à domicile.

A l'occasion de ces investigations, des prélèvements ont également été effectués en aval de la centrale de Saint-Alban, afin de vérifier l'impact de ses rejets radioactifs liquides sur l'environnement aquatique.

REMERCIEMENTS

Le laboratoire de la CRIIRAD tient à remercier tout particulièrement l'association AIRE, le Conseil Général de l'Isère et les communes de Roussillon, Péage de Roussillon, Saint-Maurice l'Exil, Salaise-sur-Sanne, Les Roches de Condrieu, Condrieu, Saint-Appolinard, Saint-Romain de Surieu et Sablons qui ont permis par leur soutien financier la réalisation de cette étude.

Les renseignements techniques fournis par les services de la DRIRE, l'Agence de Bassin Rhône Méditerranée Corse, le Service Navigation Rhône-Sône, et la société Rhodia Chimie ont été extrêmement utiles pour la conduite de cette étude.

1. RECHERCHE DOCUMENTAIRE PREALABLE

Une étude documentaire préalable a été effectuée au début du mois de juillet 2000, avant la campagne de prélèvements et complétée dans les mois suivants. Il s'agissait de disposer d'une image cohérente des termes sources potentiels naturels ou liés aux activités humaines sur la portion du Rhône allant de Lyon à l'aval de la centrale électronucléaire de Saint-Alban.

Il s'agissait pour cela de recueillir des éléments d'information sur les thèmes suivants :

- ◆ recensement des principales industries situées sur le cours du Rhône entre l'aval de Lyon et Saint-Alban, connaissance de la nature de leurs rejets liquides et de la localisation des points de rejet,
- ◆ recensement des services de médecine nucléaire et des I.N.B.(Installations Nucléaires de Base) susceptibles de produire des rejets d'iode 131 dans le Rhône sur le secteur étudié,
- ◆ étude des cartes géologiques et hydrogéologiques.

1.1. Liste des organismes consultés

1.1.1. Agence de Bassin Rhône Méditerranée Corse

L'Agence de Bassin Rhône Méditerranée Corse n'a pas fait réaliser d'étude spécifique sur la radioactivité du milieu aquatique de surface.

Selon les informations fournies¹ par monsieur Gilles POUSSARD, de la sous-direction Planification et Etude des Milieux Aquatiques, la question de la radioactivité n'a pas été prise en compte par l'Agence dans la mesure où elle ne constitue pas un paramètre de la redevance.

Depuis plusieurs mois cependant des axes d'étude ont été définis par un comité scientifique de l'Agence de Bassin, mais les programmes restent gelés en l'attente d'une définition claire des rôles respectifs des services de l'Etat et de l'Agence de Bassin.

La seule documentation dont dispose l'Agence est constituée par les rapports sur la synthèse des connaissances sur la radioécologie du Rhône. Il s'agit de deux rapports distincts, réalisés d'une part par le laboratoire de la CRIIRAD et d'autre part par l'IPSN (Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire), à la demande de l'Agence de Bassin.

1.1.2. Service Navigation Rhône-Saône

Le Service Navigation Rhône-Saône est chargé de la police des eaux. Il veille au respect des prescriptions concernant le rejet de certains polluants² dans le Rhône (indice de classement 1B). La DRIRE consulte les Services de la Navigation pour l'établissement des arrêtés préfectoraux concernant la nature et les conditions des rejets dans le Rhône.

L'auto-contrôle effectué par les industriels est adressé à la DRIRE. La cellule Environnement du Service Navigation effectue parfois ses propres contrôles.

La cellule Environnement du Service Navigation n'a pas fourni d'éléments spécifiques dans le cadre de cette étude.

¹ Entretien téléphonique du 4 juillet 2000.

² Matières en Suspension, Hydrocarbures, DBO₅, DCO, etc...

1.1.3. DRIRE

Par télécopie en date du 3 juillet 2000, nous avons demandé à la DRIRE Rhône Alpes, de nous transmettre les éléments d'information utiles à cette étude. Lors d'un entretien téléphonique en date du 5 juillet, Monsieur Simonin (adjoint au chef de la division Environnement), nous a donné un certain nombre d'informations préliminaires qui ont été complétées par courrier.

1.2. Résumé des informations recueillies

1.2.1. Termes sources pour l'iode 131

1.2.1.1. Services de médecine nucléaire

Les services de médecine nucléaire peuvent constituer une source d'iode 131 directe (rejet des effluents liquides de l'hôpital) et indirecte (urines des patients à domicile). Selon la DRIRE de la Loire, les établissements de médecine nucléaire situés à Saint-Étienne effectuent leurs rejets dans le bassin versant de la Loire via le Furan. Un impact vers le Gier et le Rhône ne pourrait donc être dû qu'aux rejets diffus par les patients de retour à leur domicile.

La CRIIRAD a adressé un questionnaire aux 6 établissements de Lyon et Villeurbanne dotés d'un service de médecine nucléaire. Quatre³ établissements ont répondu au questionnaire. Les résultats sont présentés au paragraphe 4.3.1.

1.2.1.2. Stations de traitement des eaux usées urbaines

Selon la DRIRE Rhône-Alpes, les stations de traitement des eaux usées n'ont un statut d'ICPE que si la proportion de rejets industriels traités excède 70 %. Nous avons demandé à la DRIRE communication des points de rejets de ces stations. Les stations qui ne sont pas des ICPE devraient être répertoriées par les Services de la Navigation.

1.2.1.3. Installations Nucléaires de Base

D'après la DRIRE Rhône-Alpes, il n'y a aucune INB susceptible d'effectuer des rejets dans le Rhône entre l'aval de Lyon et l'amont du CNPE de Saint-Alban. Un rejet d'iode 131 par les INB en amont de Lyon est cependant à prendre en compte.

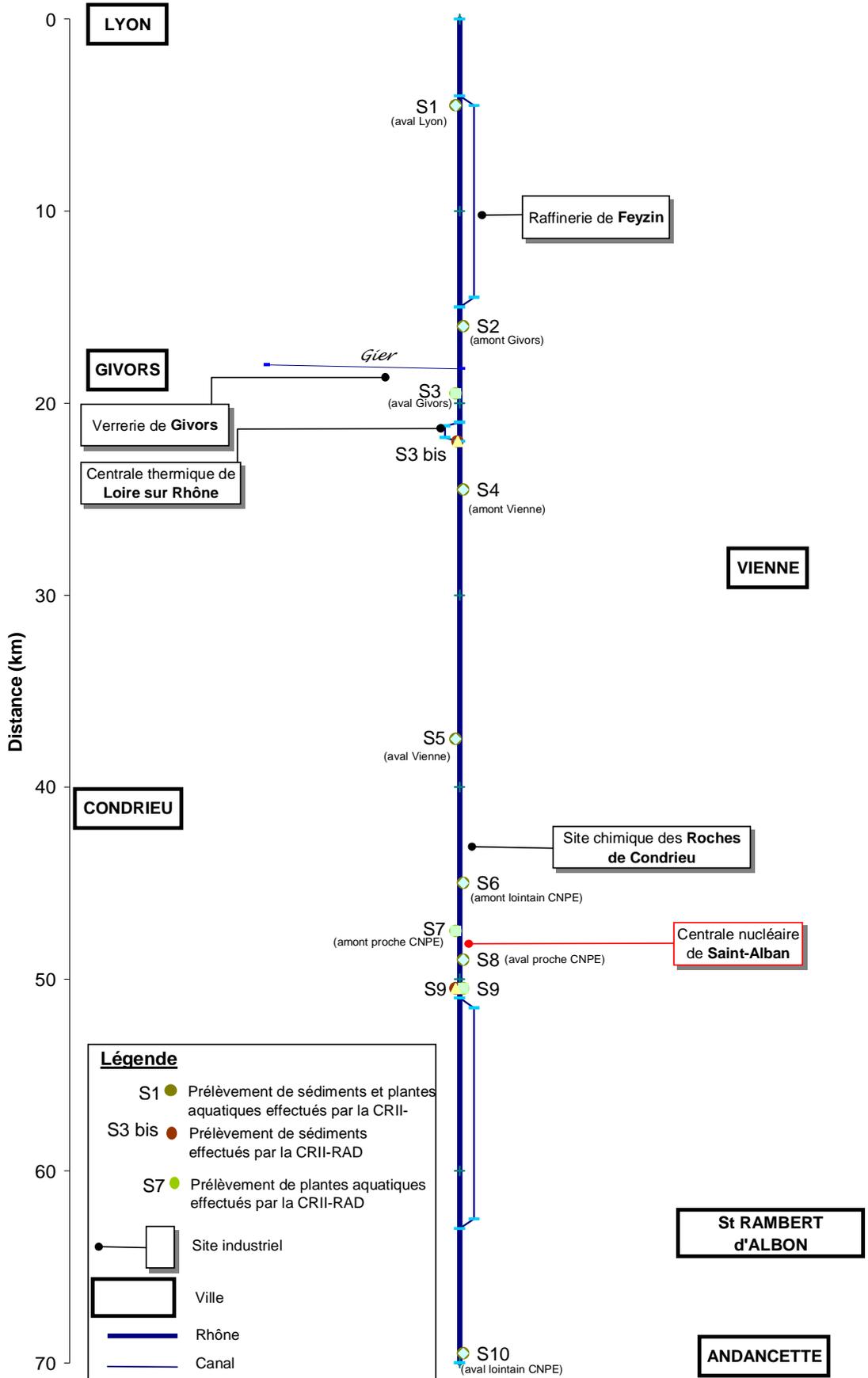
1.2.2. Termes sources pour l'uranium

D'après les ingénieurs DRIRE des subdivisions du Rhône et de l'Isère, seuls trois établissements pourraient, de part leur activité industrielle, conduire à un marquage de l'environnement par des radionucléides naturels :

1. La Verrerie de Givors (69),
2. Le site ELF-ANTAR de Feyzin (69),
3. Le site RHODIA CHIMIE de Saint-Clair-du-Rhône / Les Roches de Condrieu (38). Ce site comportait une unité de production d'acide phosphorique arrêtée en 1992 et dont l'arrêt de démantèlement date de 1996.

³ Les 2 établissements qui n'ont pas répondu sont la Clinique de la Sauvegarde et le Centre Léon Bérard à Lyon.

Situation des points de prélèvement de sédiments et plantes dans le cadre du suivi de la centrale de Saint-Alban. CRII-RAD, 2000



La mesure des radionucléides naturels dans les rejets de ces 3 installations n'est pas demandée par l'administration. Nous avons demandé copie des arrêtés préfectoraux et de la carte de localisation des points de rejet de ces 3 établissements à monsieur Simonin de la DRIRE Rhône-Alpes, ainsi qu'une vérification des sites de la Loire susceptibles de rejets de radionucléides naturels vers le bassin du Gier.

2. REALISATION DES PRELEVEMENTS

2.1. Sélection initiale des points de prélèvement

Dans le programme initial élaboré en 1999, nous avons proposé de sélectionner les 10 stations de prélèvement de sédiments et plantes aquatiques selon le schéma suivant :

- Quatre stations réparties sur le cours du Rhône de Lyon aux Roches de Condrieu : aval de Lyon, de Chasse sur Rhône, de Vienne, et des Roches de Condrieu,
- Deux stations correspondant à l'amont de la centrale (comme en 1993 et 1997),
- Trois stations en aval proche et lointain de la centrale (comme en 1993 et 1997).

Après examen attentif des cartes, des termes sources potentiels, et des résultats des campagnes de mesure CRIIRAD 1993 et 1997, nous avons sélectionné les groupes de stations de manière à disposer de couples amont / aval afin de mieux cerner les impacts éventuels. Ils figurent sur la [carte générale ci-contre](#) et sur les cartes détaillées en [annexe 1](#).

Il s'agit de stations en amont et aval :

- ◆ du site industriel de Feyzin (S1 / S2),
- ◆ du Gier, de la ville de Givors, et de la Verrerie de Givors (S2 / S3 et S3 bis),
- ◆ des sites industriels de Chasse-sur-Rhône et Loire-sur-Rhône (S3 et S3 bis / S4),
- ◆ de la ville de Vienne (S4 / S5),
- ◆ du site RHODIA CHIMIE des roches de Condrieu (S5 / S6),
- ◆ la station S7 (plantes aquatiques seulement) correspond au suivi en amont du CNPE de Saint-Alban,
- ◆ les stations S8, S9, et S10 correspondent au suivi en aval du CNPE de Saint-Alban.

2.2. Réalisation des prélèvements

Les prélèvements ont été effectués du mardi 18 au jeudi 20 juillet 2000, par monsieur Christian Courbon, technicien spécialisé et monsieur Julien Syren, géologue assistant au laboratoire de la CRIIRAD. Ils ont été effectués à partir d'un Zodiac.

Il convient de noter que les jours précédant le prélèvement ont été marqués par de fortes pluies.

Tableau T1 : localisation des stations de prélèvement de sédiments et plantes aquatiques

	Code	Sédiment	Plante aquatique	Objectif	Localisation	Rive (D ou G)
Jour 1 18 juillet 2000	S1	oui	oui	Aval Lyon (confluent Rhône-Saône) /Amont Feyzin	entre PK 4 et 5 (Pierre Bénite)	D
	S2	oui	oui	Aval Feyzin /Amont confluence du Gier	PK 16 (Ternay)	G
	S3 (S3 bis)	en S3 bis	en S3	Aval Givors et confluence du Gier /Amont Loire-sur-Rhône	PK 19-PK 20 (S3) PK 22 (S3 bis) (Chasse-sur-Rhône)	D
Jour 2 19 juillet 2000	S4	oui	oui	Aval sites industriels Chasse et Loire sur-Rhône /Amont Vienne	PK 24-25 (Seyssuel)	D
	S5	oui	oui	Aval Vienne / Amont Roches de Condrieu	PK 37-38	D
	S6	oui	oui	Aval Roches de Condrieu /Amont lointain du CNPE	PK 45 (suivi 1997)	G
Jour 3 20 juillet 2000	S7	NON	oui	Amont proche du CNPE /Suivi 1997	PK 47,3	G
	S8	oui	oui	Aval immédiat CNPE /Suivi 1993 et 1997	PK 49	G
	S9	oui	oui	Aval CNPE /Suivi 1993 et 1997	PK 51	D et G
	S10	oui	oui	Aval lointain CNPE /Suivi 1993 et 1997	PK 69	G

BC/CRII-RAD/LABO/ETUDES/SAINT-ALBAN 2000/CHOIX STATIONS

La localisation des stations avec indication des PK (Point kilométrique sur le cours du Rhône), des dates de prélèvement, et de la rive (Droite ou Gauche) sont précisées dans le [tableau T1 ci-contre](#).

2.2.1. Prélèvements de sédiments

Les prélèvements de sédiments ont été effectués au moyen d'un tube gradué en méthacrylate extrudé (diamètre intérieur 36 mm). Les sédiments ont été prélevés sur une profondeur de 0 à 20 cm à 1 cm près. Il a fallu une vingtaine de prises pour obtenir environ 4 litres de sédiments qui ont été conditionnés dans deux pots B2000 de 2 litres de contenance.

2.2.2. Prélèvements de plantes aquatiques

Les prélèvements de plantes aquatiques ont été réalisés à la main ou au moyen d'une perche. Comme en 1993 et 1997, le bioindicateur retenu est le potamot pectiné (*potamogeton pectinatus*) qui est relativement polyvalent dans sa capacité à piéger les radionucléides présents dans l'eau, et est en outre assez répandu dans le Rhône. Les échantillons de potamot ont été soigneusement rincés in situ dans l'eau du Rhône afin de les débarrasser des particules fines de sédiments qui pourraient fausser l'interprétation des résultats. En règle générale environ 1,5 Kg de plantes ont pu être prélevés en chaque station. Ils ont été conditionnés en double sac plastique.

Note 1 : mardi 18 juillet 2000, ont pu être échantillonnés comme prévu les sédiments et plantes aquatiques aux stations S1 et S2. Par contre en S3 (aval de la confluence du Gier), seules les plantes ont pu être prélevées. En effet, aucune poche de sédimentation n'a pu être localisée sur les fonds rocheux des 2 rives entre les PK 19 et 21. Cette zone n'est pas propice à la sédimentation. La mission d'échantillonnage s'est terminée à 20 H, et il a été décidé de reporter au lendemain la recherche de sédiments plus en aval, tout en restant en amont hydraulique de la station thermique EDF de Loire-sur-Rhône. Le site S3 bis au PK 22 a été localisé le 19 juillet 2000 pour effectuer le prélèvement de sédiments.

3. RADIOACTIVITE DANS LES SEDIMENTS

3.1. Méthodologie de préparation et d'analyse

A réception au laboratoire de la CRIIRAD, les sédiments ont été stockés au réfrigérateur entre les différentes phases de traitement et d'analyse.

Les échantillons bruts ont fait l'objet d'un contrôle radiométrique au moyen d'un scintillomètre SPP2 de marque SAPHYMO. Cet appareil mesure le flux de rayonnement gamma émis par l'échantillon. Le résultat de la mesure est exprimé en coups par seconde (c/s). Un seul échantillon a présenté un flux de rayonnement gamma sensiblement supérieur au bruit de fond du laboratoire (40 à 45 c/s). Il s'agit du sédiment S6 prélevé en aval du site chimique des Roches-de-Condrieu (60 c/s).

Après décantation et pipetage des eaux surnageant, les échantillons de sédiments ont été tamisés à 2 mm, homogénéisés, puis :

- ◆ une fraction aliquote d'environ 1 kilogramme a été conditionnée à l'état frais en géométrie Marinelli 560 cc pour analyse préliminaire, sans délai, par spectrométrie gamma au laboratoire de la CRIIRAD, tandis que les restes de granulométrie inférieure à 2 mm étaient conservés au réfrigérateur. Cette analyse préliminaire avait pour objet de permettre la détection de radionucléides artificiels à période courte ou volatils comme l'iode 131, et de disposer d'une caractérisation globale de l'échantillon. Un pré-comptage d'une heure a été effectué afin de détecter la présence éventuelle de radionucléides de très courte période comme le technétium 99^m,
- ◆ à l'issue de l'analyse préliminaire, l'échantillon a été mélangé avec les restes, puis mis à l'étuve à 90°C jusqu'à obtention d'un poids constant. Cette opération a permis de déterminer le taux de matières sèches de l'échantillon. L'échantillon sec a été ensuite tamisé au moyen de 3 tamis de maille 1 mm, 250 µm et 63 µm. Environ 400 à 600 grammes de la fraction inférieure à 63 microns a été conditionnée en géométrie Marinelli pour analyse par spectrométrie gamma au laboratoire de la CRIIRAD. Cette analyse a été réalisée 21 jours après conditionnement de manière à pouvoir doser le radium 226 à l'équilibre à partir de ses descendants le plomb 214 et le bismuth 214. Cette analyse sur des fractions de granulométrie comparable avait également pour objet de permettre une comparaison plus fiable des différents échantillons. En effet, les fractions fines ont tendance à fixer davantage les radionucléides en suspension dans l'eau. La comparaison de résultats bruts issus de sédiments présentant des caractéristiques granulométriques différentes pourrait conduire à une interprétation discutable,
- ◆ 100 grammes de la fraction inférieure à 63 microns ont ensuite été adressés au LDA 26 (Laboratoire Départemental d'Analyses de la Drôme) afin de réaliser le dosage semi-quantitatif des métaux par ICP Torche à plasma.

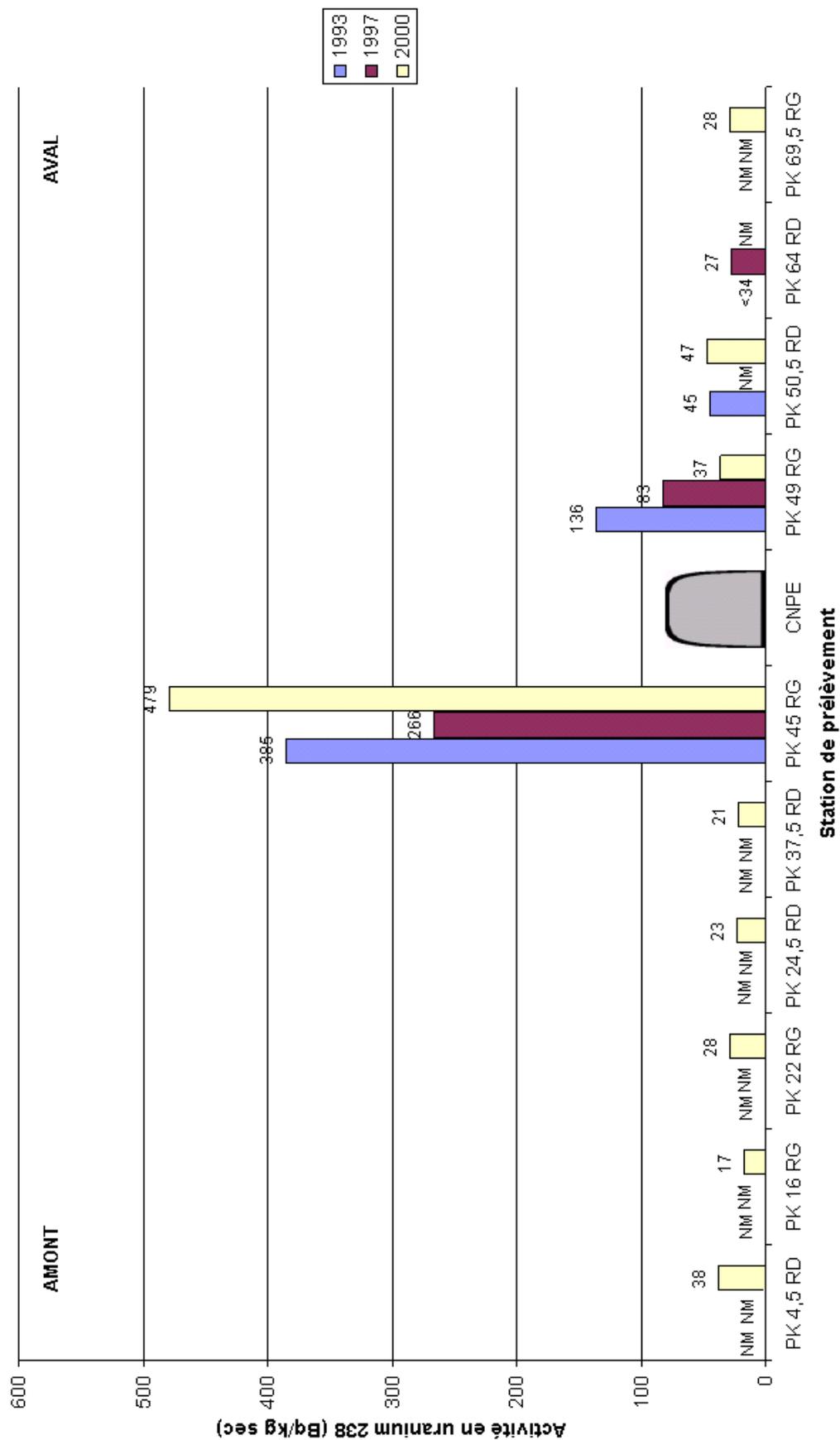
Les analyses par spectrométrie gamma ont été réalisées au laboratoire de la CRIIRAD, sur détecteurs EGG ORTEC au Germanium Hyperpur, type N (protocole reproduit en [annexe 2](#)). Le laboratoire de la CRIIRAD est agréé par le Ministère de la Santé pour la mesure de la radioactivité dans l'environnement et les denrées alimentaires.

3.2. Radionucléides naturels

Les résultats détaillés des analyses par spectrométrie gamma ainsi que les informations concernant les lieux et dates de prélèvement et les conditions de préparation et de comptage, sont reproduits dans les tableaux en [annexe 3 \(sédiments frais\)](#) et [4 \(sédiments tamisés à 63 microns\)](#).

L'écorce terrestre contient 4 radionucléides naturels primordiaux principaux : uranium 238, uranium 235, thorium 232 et potassium 40. Les 3 premiers donnent naissance à une chaîne de désintégration.

Graphe G1 : Activité en uranium 238 dans les sédiments du Rhône à Saint-Alban en 1993, 1997 et 2000



Nous avons reproduit en [Annexe 5](#) les chaînes de désintégration de l'uranium 238, de l'uranium 235 et du thorium 232.

Ces radionucléides présents depuis la formation de notre planète ont toujours une radioactivité non négligeable du fait de leur longue période physique (de 700 millions d'années pour l'uranium 235 à 14 milliards d'années pour le thorium 232).

3.2.1. Chaîne de désintégration de l'uranium 238

3.2.1.1. L'uranium 238

Si l'on excepte le sédiment S6, l'activité du thorium 234 est comprise entre 17 et 47 Bq/kg sec avec une moyenne de **30 Bq/kg sec** (écart-type de 34 %). Cette moyenne est légèrement inférieure à l'activité moyenne de l'écorce terrestre qui est de l'ordre de 40 Bq/kg selon l'UNSCEAR.

Par contre le sédiment S6 prélevé en aval du site chimique des Roches-de-Condrieu présente une activité du thorium 234 plus de 10 fois supérieure à la normale (479 Bq/kg sec).

Nous avons reporté dans l'histogramme G1 ci-contre les activités en uranium 238 mesurées par le laboratoire de la CRIIRAD dans les sédiments du Rhône en 1993, 1997 et 2000.

3.2.1.2. Les descendants de l'uranium 238

Si l'on excepte le sédiment S6, les activités du plomb 214 et du bismuth 214, descendants du radium 226⁴ sont du même ordre de grandeur que celles du thorium 234 (de 24 à 44 Bq/kg sec avec une moyenne de 35 et 33 Bq/kg sec et un écart-type de 18 %). Le sédiment S6 présente un fort excès de plomb 214 et bismuth 214 (environ 300 Bq/kg sec).

Si l'on excepte le sédiment S6, les teneurs en radionucléides naturels de la chaîne de désintégration de l'uranium 238 sont normales. La chaîne est en équilibre à l'exception d'un léger excès de plomb 210⁵ (de 27 à 94 Bq/kg sec, avec une valeur moyenne de 62 Bq/kg sec et un écart-type de 41 %).

3.2.2. Chaîne de désintégration de l'uranium 235

L'uranium 235 n'est détecté que dans le sédiment S6 à un niveau anormalement élevé (29 Bq/kg sec), mais cohérent, compte tenu des marges d'incertitudes, avec les fortes teneurs en uranium 238 dans le sédiment S6. Dans les 8 autres sédiments, l'activité de l'uranium 235 est toujours inférieure aux limites de détection⁶.

3.2.3. Chaîne de désintégration du thorium 232

Si l'on excepte S6, les valeurs moyennes des activités de l'actinium 228 et du plomb 212 sont respectivement de 36 Bq/kg sec (écart-type 20 %) et 39 Bq/kg sec (écart-type 18 %). L'activité de la chaîne du thorium 232 dans les sédiments du Rhône (évaluée à partir de l'actinium 228) est comprise

⁴ Le plomb 214 et le bismuth 214 ne sont pas forcément en équilibre avec le radium 226 leur précurseur dans la mesure où les analyses par spectrométrie gamma sur échantillon brut ont été réalisées sans délai après conditionnement des échantillons.

⁵ Cet excès n'est pas anormal car au plomb 210 endogène s'ajoute la contribution du plomb 210 lié à la désintégration du radon 222, isotope radioactif naturel présent dans l'atmosphère.

⁶ Seuil de détection compris entre 2,7 et 5,3 Bq/kg sec. Ces résultats sont compatibles avec les teneurs en uranium 235 calculées à partir de celles de l'uranium 238 et du rapport isotopique naturel $U\ 238 / U\ 235 = 21,6$ (soit ici de 0,8 à 2,2 Bq/kg sec).

T2 : Sédiments du Rhône
comparaison des activités massiques sur fraction < 63 µm et fraction < 2 mm

Code Sédiment	S1	S2	S3 bis	S4	S5	S6	S8	S9	S10
Taux de matières sèches (%)	48,4	71,0	61,6	60,7	70,8	51,3	53,6	47,3	67,6
Fraction < 63 µm / fraction < 2 mm	19%	12%	20%	20%	13%	20%	23%	22%	16%

Radioactivité naturelle

										Moyenne	Sigma
Chaîne de l' Uranium 238											
Thorium 234	1,2	3,2	1,4	2,1	2,2	1,2	1,8	1,1	2,1	1,8	37%
Plomb 214	1,3	2,0	1,4	1,8	1,8	1,3	1,4	1,3	1,7	1,5	19%
Bismuth 214	1,3	2,1	1,4	1,7	1,7	1,3	1,3	1,3	1,8	1,5	19%
Plomb 210	1,1	3,5	1,3	1,8	2,2	1,1	1,2	1,0	1,5	1,6	48%
Uranium 235											
						1,1					
Chaîne du Thorium 232											
Actinium 228	1,1	2,1	1,3	1,5	1,4	1,1	1,1	1,2	1,5	1,4	24%
Plomb 212	1,2	1,8	1,4	1,5	1,5	1,1	1,2	1,2	1,5	1,4	17%
Thallium 208	1,1	1,9	1,4	1,5	1,5	1,1	1,2	1,1	1,5	1,4	20%
Potassium 40	0,9	1,3	1,0	1,1	1,0	0,9	1,2	1,0	1,1	1,1	13%
Beryllium 7		1,0		0,8			0,8		1,3		

Radioactivité artificielle

Césium 137	1,1	2,3	1,3	1,6	2,1	1,0	1,1	1,0	1,6	1,5	33%
Cobalt 60		1,1	1,5	2,0	2,2		1,8	1,1			

BC/CRIIRAD/LABO/ETUDES 2000/SAINT-ALBAN 2000/SPECTROGAMMA/SEDIMENTS63/COMPARAISON

entre 23 et 47 Bq/kg sec. De telles valeurs sont proches de l'activité moyenne du thorium 232 dans l'écorce terrestre (40 Bq/kg selon l'UNSCEAR).

Le sédiment S6 présente un léger excès de thorium 232 par rapport à la valeur moyenne des 8 autres sédiments du Rhône (58 Bq/kg sec pour l'actinium 228 alors que la moyenne est de 36 Bq/kg sec).

3.2.4. Potassium 40

L'activité du potassium 40 est comprise entre 343 et 508 Bq/kg sec, avec une valeur moyenne de 425 Bq/kg sec (écart-type de 12 %). Cette valeur est très proche de l'activité moyenne du potassium 40 dans l'écorce terrestre (400 Bq/kg selon l'UNSCEAR). L'activité du potassium 40 dans le sédiment S6 est normale (383 Bq/kg sec).

3.2.5. Beryllium 7

On détecte dans 4 cas sur 9 du béryllium 7, radionucléide naturel produit par interaction du rayonnement cosmique avec les atomes de l'air dans la haute atmosphère. Son activité est comprise entre 3,1 et 15,2 Bq/kg sec.

3.2.6. Comparaison sédiment brut / fraction fine :

Les résultats obtenus sur la fraction inférieure à 63 microns sont comparés aux résultats obtenus sur les sédiments bruts dans le [tableau T2 ci-contre](#).

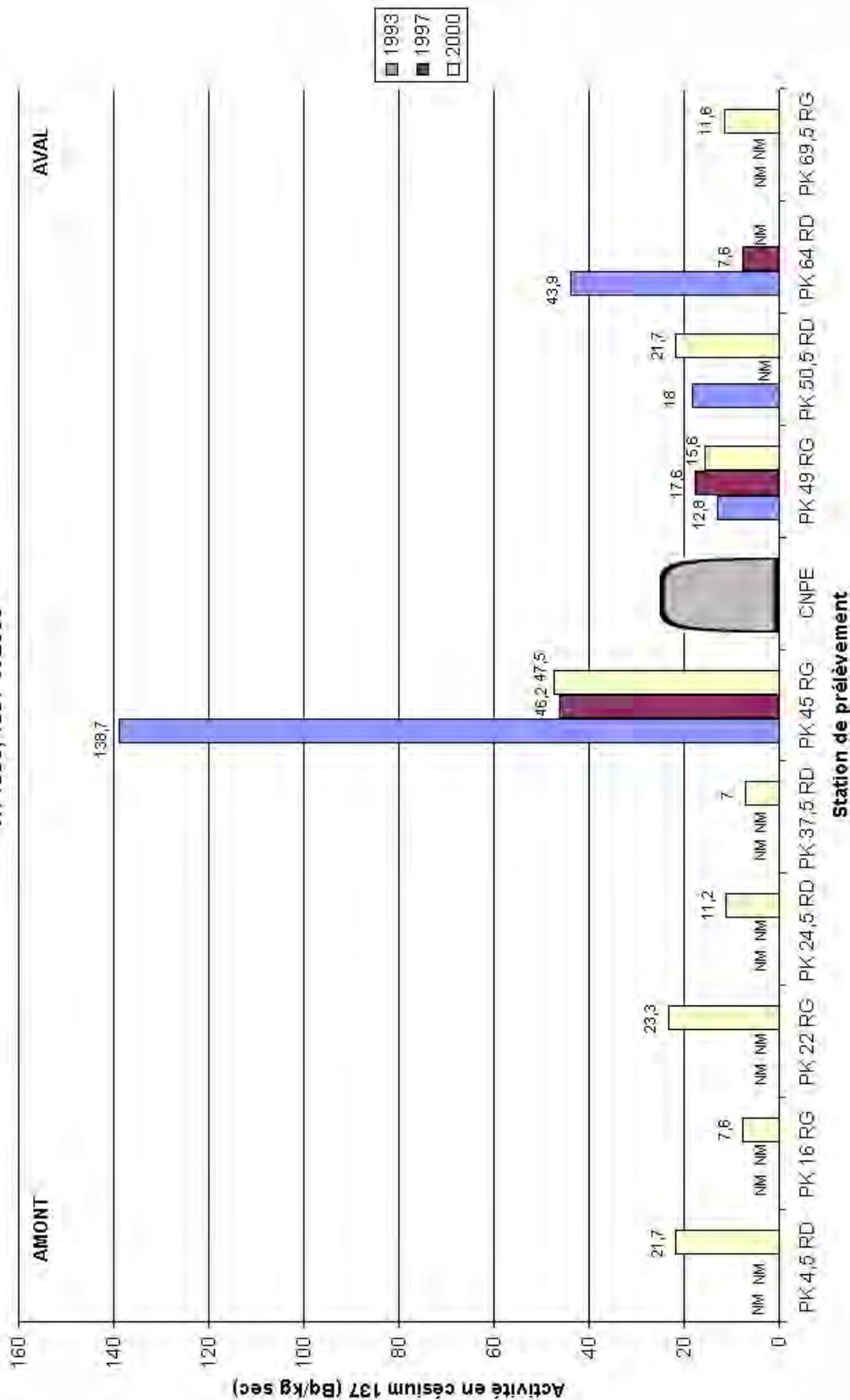
Les analyses effectuées sur la fraction fine (< 63 µm) ont confirmé les résultats obtenus sur les sédiments bruts, c'est-à-dire que les sédiments présentent des teneurs en radionucléides naturels normales sauf le sédiment S6 en face du site chimique des Roches-de-Condrieu.

Une analyse plus fine des résultats montre un comportement différent des radionucléides par rapport à la fraction fine :

- ◆ pour le potassium 40 et le béryllium 7, les activités massiques mesurées dans la fraction fine sont quasiment égales, aux marges d'incertitude près, aux valeurs obtenues sur les sédiments bruts,
- ◆ pour les descendants de la chaîne du thorium 232, les activités dans la fraction fine sont en moyenne supérieures de 40 %, et le ratio ne dépasse un facteur 2 que pour le sédiment S2. Il s'agit d'un sédiment particulièrement sableux pour lequel la fraction fine ne représentait que 12 % en masse,
- ◆ pour les descendants de la chaîne de l'uranium 238, les activités dans la fraction fine sont en moyenne supérieures de 80 % (thorium 234). Pour le thorium 234, le ratio est supérieur à 2 dans 4 cas sur 9, dont 3 correspondent aux sédiments les plus grossiers (fraction < 63 µm représentant moins de 16 % en masse).

Les teneurs en radionucléides naturels des sédiments du Rhône entre l'aval de Lyon et l'aval de la centrale nucléaire de Saint-Alban sont relativement homogènes et comparables aux valeurs moyennes de l'écorce terrestre, sauf au droit du site chimique des Roches-de-Condrieu où les sédiments présentent un fort excès d'uranium 238 (et ses descendants) et uranium 235.

Graphe G2 : Activité en césium 137 dans les sédiments du Rhône à Saint-Alban en 1993, 1997 et 2000



3.2.7. Radioactivité artificielle

Seuls 2 radionucléides artificiels émetteurs gamma sont détectés, le césium 137 et le cobalt 60.

3.2.7.1. Césium 137

Le césium 137 est détecté dans les 9 échantillons avec une activité comprise entre 7 et 47,5 Bq/kg sec. La moyenne calculée sans prendre en compte le sédiment S6 (Les Roches de Condrieu) est de **15 Bq/kg sec** avec un écart-type de 44 %.

Les résultats obtenus sur la fraction inférieure à 63 microns sont sensiblement supérieurs (+ 50 % en moyenne) à ceux obtenus sur la fraction inférieure à 2 mm comme le montre le [tableau T2](#) mais conduisent au même constat.

Nous avons reporté dans l'histogramme [G2 ci-contre](#) les activités en césium 137 mesurées par le laboratoire de la CRIIRAD dans les sédiments du Rhône en 1993, 1997 et 2000

En 2000, on n'observe pas de différence significative entre l'amont et l'aval de la centrale de Saint-Alban. L'impact des rejets radioactifs liquides en césium 137 de la centrale (de 40 MBq à 589 MBq par an selon les années de 1985 à 1996) est donc masqué par une autre source.

L'activité du césium 137 dans les sédiments du Rhône en 2000 est comparable à celle mesurée par la CRIIRAD dans les sédiments du Rhin en octobre 1999. Le césium 137 était détecté⁷ dans 12 échantillons prélevés sur une centaine de kilomètres de Bâle à Strasbourg, à un niveau compris entre 10,5 et 23,0 Bq/kg sec (valeur moyenne 16,5 Bq/kg sec ; écart type de 26,1 %). On n'observait pas d'accroissement significatif du niveau de césium 137 en aval de la centrale de Fessenheim.

L'activité du césium 137 dans les sédiments du Rhône et du Rhin est sensiblement supérieure à celle des sédiments collectés par la CRIIRAD⁸ dans les principaux cours d'eau du bassin Seine-Normandie en septembre 1998 (entre 0,9 et 11 Bq/kg sec, pour une moyenne de 5 Bq/kg sec dans 23 échantillons et un écart-type de 67 %).

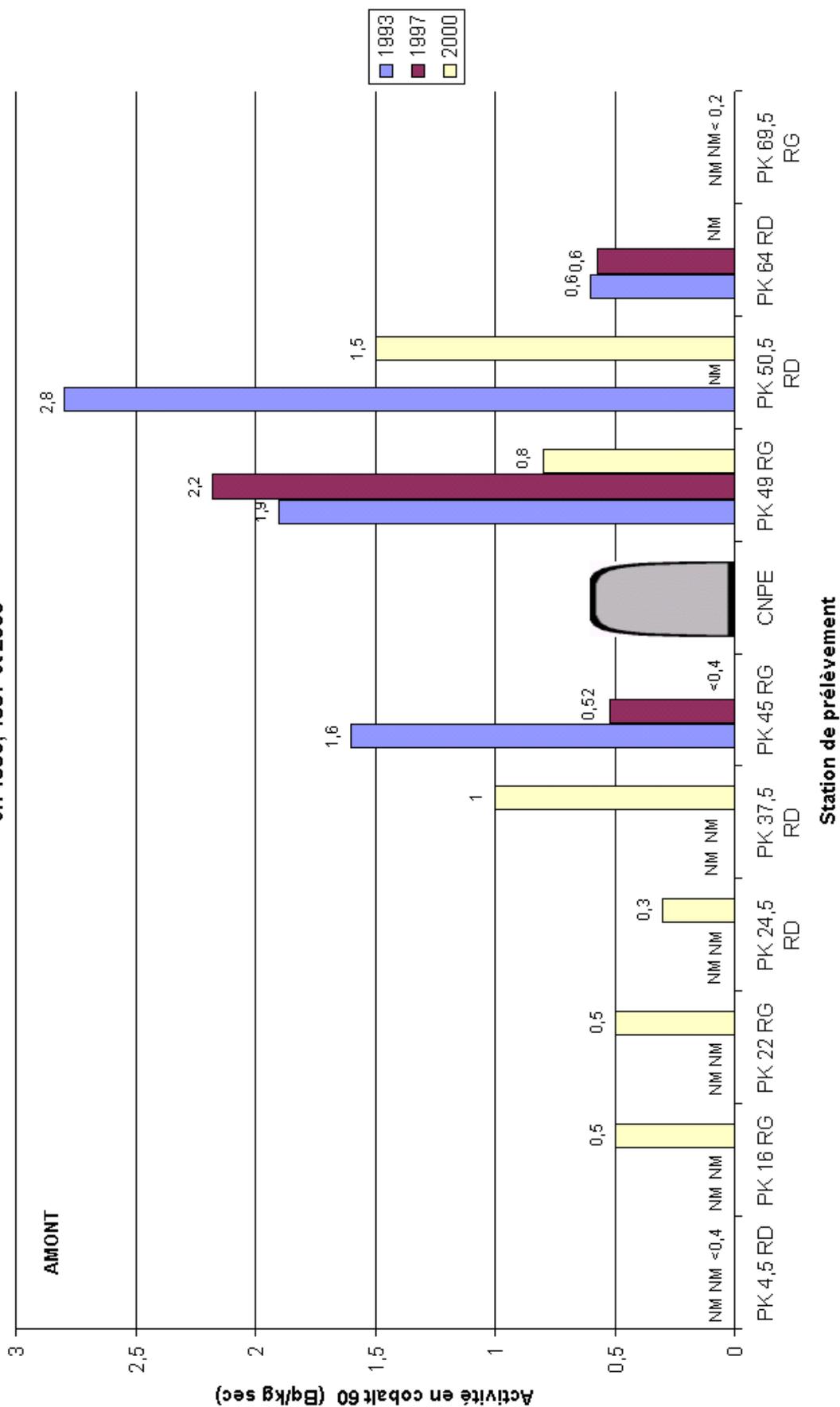
Le césium 137 détecté dans le Rhône provient principalement d'une contamination à grande échelle liée aux retombées des essais nucléaires atmosphériques des années 50-60 et aux retombées de l'accident de Tchernobyl en 1986. Cette contamination, en l'absence d'autres apports (rejets de centrales ou d'installations nucléaires par exemple), est amenée à diminuer avec le temps (par décroissance naturelle du césium 137 dont la période physique est de 30 ans, et par les mécanismes de migration, redissolution, désorption et transport vers l'aval).

L'activité du césium 137 est globalement supérieure dans les sédiments du Rhin et du Rhône, par rapport aux cours d'eau du Bassin Seine-Normandie. Ce phénomène peut-être lié au fait de la plus forte contamination de l'Est de la France par les retombées de Tchernobyl en 1986, mais aussi à l'impact des centrales nucléaires. Dans les années à venir, la diminution de la contamination résiduelle par le césium 137 de Tchernobyl et des essais militaires, permettra de mettre plus facilement en évidence l'impact spécifique des rejets de césium 137 par les centrales nucléaires.

⁷ Contrôle de la radioactivité des sédiments du canal du Rhin, en amont et en aval du CNPE de Fessenheim / Etude réalisée par le laboratoire de la CRIIRAD pour la CLS de Fessenheim / B. Chareyron / juin 2000.

⁸ Etude de l'impact des rejets d'effluents radioactifs liquides par les services de médecine nucléaire / secteur dépendant de l'Agence de Bassin Seine Normandie / Etude réalisée par le laboratoire de la CRIIRAD à la demande de l'Agence de Bassin Seine-Normandie / B. Chareyron / septembre 2000.

Graphe G3 : Activité en cobalt 60 dans les sédiments du Rhône à Saint-Alban en 1993, 1997 et 2000



3.2.7.2. Cobalt 60

Le cobalt 60 est détecté dans 6 des 9 échantillons bruts (fraction inférieure à 2 mm), avec une activité comprise entre 0,3 et 1,5 Bq/kg sec. Les résultats obtenus sur la fraction inférieure à 63 microns sont sensiblement supérieurs comme le montre le [tableau T2](#) mais ils restent du même ordre de grandeur (entre 0,5 et 2,2 Bq/kg sec).

La présence de cobalt 60 en amont de la centrale de Saint-Alban montre qu'il existe un terme source plus en amont (il peut s'agir d'autres centrales nucléaires). On n'observe pas de différence réellement significative entre l'amont et l'aval de la centrale de Saint-Alban ce qui suggère que l'impact des rejets radioactifs de la centrale (entre 140 MBq et 14 000 MBq par an selon les années de 1985 à 1996) est en partie masqué par une source située plus en amont.

Nous avons reporté dans [l'histogramme G3 ci-contre](#) les activités en cobalt 60 mesurées par le laboratoire de la CRIIRAD dans les sédiments du Rhône en 1993, 1997 et 2000. Les activités mesurées en 2000 en aval de la centrale sont 2 à 3 fois plus faibles que lors des campagnes de 1993-1997.

L'activité du cobalt 60 dans les sédiments du Rhône est comparable à celle mesurée par la CRIIRAD dans les sédiments du Rhin en octobre 1999. Le cobalt 60 était détecté⁹ dans 7 échantillons prélevés sur une centaine de kilomètres de Bâle à Strasbourg, à un niveau compris entre 0,3 et 1,2 Bq/kg sec. Dans la mesure où le cobalt 60 n'était pas mis en évidence en amont de la centrale de Fessenheim, l'étude suggérait un impact de la centrale bien que des travaux antérieurs de la CRIIRAD et de l'IPSN aient montré la présence de cobalt 60 en amont de Fessenheim (impact probable des centrales Suisses).

L'activité du cobalt 60 dans les sédiments du Rhône et du Rhin est sensiblement supérieure à celle des sédiments collectés par la CRIIRAD¹⁰ dans les principaux cours d'eau du bassin Seine-Normandie en septembre 1998. Le cobalt 60 n'était détecté que dans un échantillon sur 23 (5,1 Bq/kg sec dans les sédiments de l'Orne en aval de Caen. Cette contamination provenait très probablement de l'impact des rejets de l'usine de retraitement de la COGEMA à la Hague).

⁹ Contrôle de la radioactivité des sédiments du canal du Rhin, en amont et en aval du CNPE de Fessenheim / Etude réalisée par le laboratoire de la CRIIRAD pour la CLS de Fessenheim / B. Chareyron / juin 2000.

¹⁰ Etude de l'impact des rejets d'effluents radioactifs liquides par les services de médecine nucléaire / secteur dépendant de l'Agence de Bassin Seine Normandie / Etude réalisée par le laboratoire de la CRIIRAD à la demande de l'Agence de Bassin Seine-Normandie / B. Chareyron / septembre 2000.

4. RADIOACTIVITE DANS LES PLANTES AQUATIQUES

4.1. Méthodologie de préparation et d'analyse

A réception au laboratoire de la CRIIRAD, les plantes aquatiques ont été stockées au réfrigérateur entre les différentes phases de traitement et d'analyse. Les contrôles radiométriques effectués au contact des échantillons bruts n'ont révélé aucune augmentation du flux de rayonnement gamma.

Les plantes aquatiques (potamots pectinés) ont été triées manuellement, identifiées¹¹, puis :

- ◆ 300 à 500 grammes ont été conditionnés à l'état frais en géométrie Marinelli 560 cc pour analyse sans délai, par spectrométrie gamma, au laboratoire de la CRIIRAD,
- ◆ 200 grammes ont été conditionnés à l'état frais dans un pot de 250 cc pour acheminement vers le LDA 26 (Laboratoire Départemental d'Analyses de la Drôme) afin de réaliser le dosage semi-quantitatif des métaux par ICP Torche à plasma,
- ◆ à l'issue du comptage, les échantillons frais ont été homogénéisés et passés en étuve à 60 °C, jusqu'à obtenir un poids constant (environ 48 heures). Cette opération a permis d'obtenir les taux de matières sèches, afin d'exprimer les résultats d'activité massique en becquerels par kilogramme de matières sèches (Bq/kg sec). On notera que les taux de matières sèches sont variables (de 8,8 à 14,5 %).

Les résultats détaillés des analyses par spectrométrie gamma ainsi que les informations concernant les lieux et dates de prélèvement et les conditions de préparation et de comptage, sont reproduits dans le tableau en [annexe 6](#).

4.2. Radioactivité naturelle

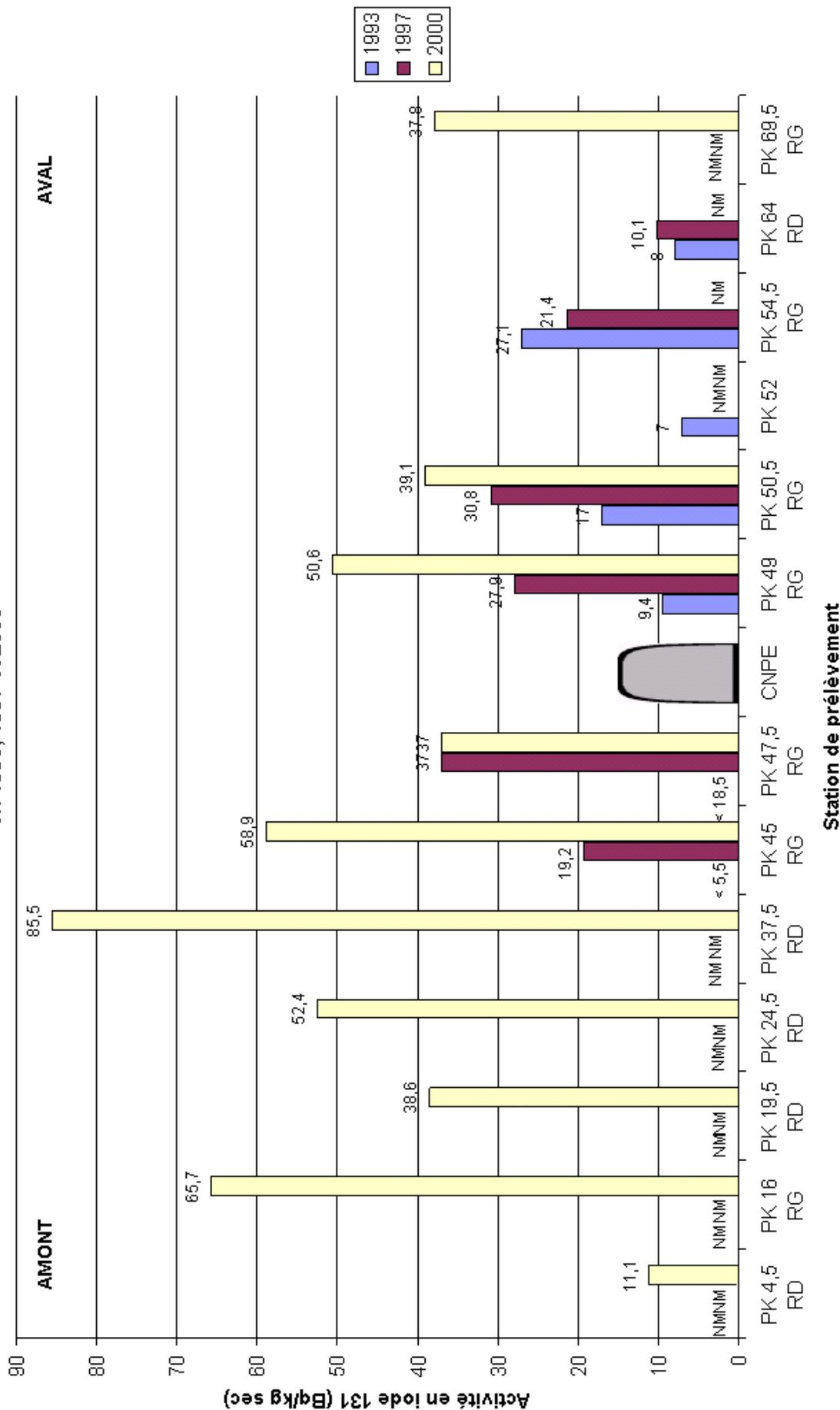
De manière à privilégier la détection de radionucléides artificiels de courte période ou volatils, les plantes ont été analysées fraîches, ce qui limite la quantité de matière et donc l'activité introduite dans le détecteur. De ce fait, le dosage des traces de radionucléides naturels est difficile, la limite de détection de la méthode employée est bien souvent supérieure à l'activité réelle. On notera cependant :

- ◆ la présence systématique de descendants de la chaîne du thorium 232 à des niveaux relativement constants dans l'ensemble des échantillons (l'activité du plomb 212 est comprise entre 17 et 28 Bq/kg sec),
- ◆ la présence aléatoire de béryllium 7, radionucléide cosmogénique. Il est détecté dans 6 échantillons sur 10 avec une activité comprise entre 20 et 82 Bq/kg sec.

L'étude de la radioactivité naturelle dans les plantes nécessiterait la mise en œuvre d'un autre programme d'étude. Dans ce cas, il conviendrait de réaliser les analyses sur matière sèche voire sur les cendres, ce qui ne permettrait plus de détecter des radionucléides de courte période ou volatils.

¹¹ L'identification a été effectuée par Monsieur Christian Courbon technicien spécialisé.

Graphe G4 : Activité en iode 131 dans les potamots du Rhône à Saint-Alban en 1993, 1997 et 2000



4.3. Radioactivité artificielle

4.3.1. Présence systématique d'iode 131

4.3.1.1. Activités mesurées

De l'iode 131 est détecté dans tous les échantillons, avec une activité comprise entre 11 et 85,5 Bq/kg sec. L'activité moyenne de l'iode 131 dans les potamots pectinés depuis l'aval de Lyon jusqu'à l'aval du CNPE de Saint-Alban est de **47,7 Bq/kg sec** (écart-type de 42 %). La période physique de l'iode 131 étant de 8 jours, sa présence est le signe de rejets liquides récents et probablement chroniques.

Les résultats figurent sur [l'histogramme G4 ci-contre](#), ainsi que les mesures réalisées en 1993 et 1997. La présence d'iode 131 en amont du CNPE de Saint-Alban, et l'absence de gradient significatif amont / aval montre que l'impact des rejets liquides d'iode 131 de la centrale (de 20 MBq à 340 MBq par an selon les années de 1985 à 1996) est masqué par un terme source situé plus en amont.

En comparant les résultats des mesures des différentes campagnes on constate que les activités en iode 131 mesurées en juillet 2000 sont en 3 stations sur 4 supérieures à celles de 1997.

Les facteurs de concentration typiques de l'iode 131 dans les algues marines sont de l'ordre de 1 000 Bq/kg frais par Bq/l dans l'eau. Pour des plantes présentant une activité massique en iode 131 de 48 Bq/kg sec, soit environ 5 Bq/kg frais, on peut donc évaluer l'activité volumique moyenne de l'eau à 5 mBq/l. Les algues marines présentent une capacité de concentration de l'iode a priori supérieure aux plantes aquatiques de type potamot pectiné. On peut donc supposer que pour des potamots pectinés, une contamination chronique à 5 Bq/kg frais correspond à une activité volumique de l'eau de quelques dizaines de mBq/l.

4.3.1.2. Origine de l'iode 131

L'origine de l'iode 131 situé en amont du CNPE de Saint-Alban et d'une partie de celui mesuré en aval de la centrale peut-être à rechercher dans les activités de médecine nucléaire (rejets directs des services ou rejet diffus liés aux patients de retour à domicile).

Quatre des six établissements hospitaliers de la région lyonnaise susceptibles d'utiliser de l'iode 131 en radiodiagnostic et radiothérapie ont répondu au questionnaire CRIIRAD. Les principaux éléments sont reportés dans le tableau [T3 ci-après](#).

L'activité totale administrée à des patients qui ne sont pas admis en chambre plombée était en 1999 de 98 300 millions de becquerels. Sachant que en moyenne 84 % de l'activité est éliminée dans les urines des 5 premiers jours on peut estimer que le rejet direct par les hôpitaux et le rejet diffus par le patient de retour à domicile est de l'ordre de plusieurs milliards de becquerels par an. En effet, ces urines radioactives ne sont pas collectées dans des cuves de décroissance comme le sont en général celles issues des patients durant leur hospitalisation en chambres plombées.

En 1999, le Centre de Médecine Nucléaire de l'Hôpital Neuro-Cardio de Lyon a administré 1 146 000 millions de becquerels d'iode 131 à 321 patients admis en chambres plombées. A leur sortie de chambre, soit quelques jours après l'administration de l'iode 131, ces patients continuent à excréter de l'iode 131 qui via les urines va rejoindre les dispositifs de collecte des eaux usées.

Bien entendu l'étude fine de ces transferts nécessiterait la conduite d'une étude spécifique. Le problème de la contamination chronique du milieu aquatique en aval des villes dotées de services de médecine nucléaire a été démontré par le laboratoire de la CRIIRAD lors d'études antérieures réalisées en aval de la ville de Toulouse (étude réalisée pour l'ARPE et la CGE) d'une part et dans le bassin Seine-Normandie (étude réalisée pour l'Agence de Bassin Seine-Normandie).

**Tableau T3 : Bilan du questionnaire CRIIRAD /
iode 131 en médecine nucléaire et
Curiethérapie**

Service	Centre de Médecine Nucléaire	Service de médecine nucléaire	Service central de médecine nucléaire	Service autonome de médecine nucléaire
Etablissement	Hôpital Neuro- Cardio	Centre Hospitalier Lyon-Sud	Faculté Rockefeller et Hôp. E Herriot	La Doua
Ville	Lyon 3ème	Pierre Bénite	Lyon 8ème	Villeurbanne
Responsable	Pr R. Itti	Dr A. Bonmartin	Pr J-J Mallet	Dr L. Mathieu

Activité I 131 commandée en 1999 (GBq)	1 200	44,4	23,1	0,1
---	-------	------	------	-----

**Cas des patients qui ne sont pas admis en chambre plombée (< 740 MBq
soit 20 mCi)**

Nombre de Patients hors chambre plombée	234	156	82	2
Activité moyenne I 131 par patient (MBq)	235	158	225	3
Activité administrée (GBq)	55,1	24,7	18,5	0,006
Gestion des effluents	Pas de fosse septique	?	Pas de fosse septique	fosse septique
Mesure en sortie de bâtiment	3 700 Bq/l	Non mesuré	Non mesuré	Non mesuré

Cas des patients admis en chambre plombée

Nombre de Patients en chambre plombée	321	sans objet	sans objet	sans objet
Activité moyenne I 131 par patient (MBq)	3 570	sans objet	sans objet	sans objet
Activité administrée (GBq)	1 146	sans objet	sans objet	sans objet

**Vidange des cuves de décroissance (chambres plombées et/ou eviers
chauds)**

Date vidange	26/08/99	15/04/99	09/01/99	jamais
Activité volumique avant rejet	< 7 Bq/l	Pas d'iode 131	non mesurable	sans objet

4.3.2. Présence aléatoire de césium 137 et cobalt 58

4.3.2.1. Césium 137

Le césium 137 détecté systématiquement dans les sédiments n'est mis en évidence que dans 3 des 10 plantes aquatiques prélevées en juillet 2000.

Nous avons reporté dans l'histogramme [G5 ci-après](#) les activités en césium 137 mesurées par le laboratoire de la CRIIRAD dans les potamots en 1993, 1997 et 2000

En amont de la centrale électronucléaire de Saint-Alban, l'activité du césium 137 en juillet 2000 est systématiquement inférieure au seuil de détection ($< 1,5$ à $< 3,5$ Bq/kg sec). En 1997, le césium 137 était détecté dans les potamots en amont de la centrale (2,2 à 6,1 Bq/kg sec).

En aval de la centrale du césium 137 est mis en évidence en juillet 2000 dans les 3 échantillons : de 1,9 à 7,6 Bq/kg sec. Ces résultats mettent en évidence l'impact des rejets liquides de la centrale électronucléaire de Saint-Alban (de 40 MBq à 589 MBq par an selon les années de 1985 à 1996).

4.3.2.2. Cobalt 58

On détecte des traces de cobalt 58 dans un seul échantillon, au point S8 en aval immédiat du CNPE de Saint-Alban (4,1 Bq/kg sec). Dans tous les autres échantillons, son activité est inférieure au seuil de détection ($< 1,1$ à $< 3,1$ Bq/kg sec).

Le cobalt 58 est un produit d'activation émetteur bêta gamma de période physique égale à 70,9 jours présent dans les rejets liquides de la centrale (rejet de cobalt 58 compris entre 720 MBq et 95 000 MBq par an selon les années de 1985 à 1996).

Lors des campagnes de mesure de 1993 et 1997 le cobalt 58 n'a jamais été détecté dans les potamots en amont du CNPE de Saint-Alban. Son activité en aval au point S8 en juillet 2000 est inférieure à celle mesurée en 1997 (on mesurait de 8,1 à 23,5 Bq/kg sec en aval proche).

En conclusion les potamots pectinés sont caractérisés par la présence de césium 137 et cobalt 58, uniquement en aval du CNPE de Saint-Alban, ce qui suggère qu'il s'agit de l'impact lié aux rejets liquides de la centrale. On observe une contamination chronique des plantes aquatiques par de l'iode 131 sur l'ensemble du secteur étudié. L'origine de cet iode 131 en amont de la centrale est à rechercher a priori dans les activités de médecine nucléaire.

5. ORIGINE DE L'EXCES D'URANIUM DANS LES SEDIMENTS

5.1. Localisation géographique du terme source

L'analyse de la radioactivité des sédiments a montré un fort excès d'uranium 238 et ses descendants au point S6 au sud des Roches-de-Condrieu ([voir carte détaillée en annexe 1](#)).

5.1.1. Présentation du site chimique

Le site chimique Rhodia Chimie des Roches-de-Condrieu / Saint-Clair-du-Rhône a été réorganisé en 1999. Actuellement 3 sociétés différentes sont en activité :

1. Europhos¹². Cette société fabrique des phosphates de qualité alimentaire. Les matières premières utilisées sont de l'acide phosphorique, de la soude liquide et de la potasse liquide. Bien que les caractéristiques de ces matières ne soient pas contrôlées, leur label « qualité alimentaire » rend peu probable la présence d'uranium. Les matières premières sont des liquides et les produits finis se présentent sous forme d'une poudre blanche,
2. Ecoservice, filiale du groupe Rhodia. Cette société fabrique de l'acide sulfurique et du sulfure de carbone, et recycle de l'acide sulfurique,
3. Aventis Nutrition Animale¹³. Cette société fabrique de la méthionine. Les matières premières utilisées (méthanol, propylène, acroléine) ne présentent pas a priori de traces d'uranium. Cette société est désormais la seule à utiliser le quai en bordure du Rhône. Chaque semaine, une barge y livre du méthanol liquide.

Les informations mentionnées ci-dessus résultent d'entretiens téléphoniques effectués dans le cadre d'une enquête préliminaire. Elles ne pourront être considérées comme fiables que dans le cadre d'une expertise plus approfondie qui sort du champ de la présente étude.

Elles suggèrent en première analyse, que la pollution par l'uranium au droit du site est d'origine ancienne et n'est pas liée aux activités industrielles en cours. Il serait utile cependant de vérifier les caractéristiques radiochimiques des matières premières utilisées pour la production d'acide phosphorique par Europhos.

5.1.2. L'ancien atelier d'acide phosphorique

L'étude documentaire a montré que le site RHODIA CHIMIE de Saint-Clair-du-Rhône / Les Roches de Condrieu (38) était susceptible d'avoir utilisé dans son process des matières à radioactivité naturelle renforcée. Une unité de production d'acide phosphorique a fonctionné sur ce site jusqu'en 1993.

Certaines portions de l'ancien site chimique Rhodia Chimie des Roches-de-Condrieu sont actuellement des friches industrielles. La DRIRE nous a transmis un arrêté en date du 6 décembre 1996 qui renforce les prescriptions réglementant le démantèlement de l'atelier phosphorique de l'ancien établissement RHÔNE-POULENC des Roches de Condrieu. Cet ancien atelier est actuellement sous la responsabilité du GIE OSIRIS. Nous avons adressé le 27 octobre 2000 un questionnaire au responsable environnement de Rhodia qui nous a apporté des précisions écrites par courrier en date du 6 février 2001.

¹² Informations fournies par téléphone, le 27/10/2000 par Monsieur Jérôme Déchelette de la société EUROPHOS.

¹³ Informations fournies par téléphone, le 27/10/2000 par Monsieur Sellard de la société AVENTIS.



Prélèvement de la terre souillée P2

**SITE RHODIA CHIMIE DES
ROCHES DE CONDRIEU /
SAINT CLAIR DU RHÔNE**
MESURES CRIIRAD DU 23/08/00



Matériau pulvérulent noir sur le quai de déchargement

« De 1976 à 1985 l'atelier de production d'acide phosphorique utilisait 1 200 tonnes de minerai par jour. Après 1985, la consommation a été diminuée de moitié. Le minerai venait principalement du Maroc puis d'Afrique du Sud et d'Israël. Le minerai contenait en moyenne 75 ppm d'uranium 238 et 5 ppm de thorium 232. Le minerai était transporté en vrac par minéraliers et transbordé sur des barges. Il était sous forme d'une poudre de couleur ocre gris et de granulométrie inférieure à 1 mm pour 93 %. »

« Le minerai était déchargé à partir d'un appontement situé sur le site. Le minerai était ensuite transporté à l'atelier par tapis fermé depuis l'appontement. »

« Le minerai était attaqué à l'acide sulfurique pour donner de l'acide phosphorique et du phosphogypse. L'acide phosphorique était utilisé sur place pour produire du tripolyphosphate de sodium et des phosphates spéciaux (sous forme solide ou de solutions aqueuses). Le rejet acide aqueux était mélangé au phosphogypse pour neutralisation et dilué avec les autres effluents du site. La quantité de gypse rejeté a été en moyenne de 1 500 tonnes par jour ». »

Le plan de l'installation avec localisation de l'atelier de production d'acide phosphorique, de l'appontement et du point de rejet des effluents liquides dans le Rhône figure en [annexe 7](#).

5.2. Anomalies radiométriques en bordure du site chimique

Afin de vérifier si une radioactivité anormale était détectable à terre au droit du site RHODIA CHIMIE (du fait en particulier du fonctionnement passé de l'unité de production d'acide phosphorique), monsieur Chareyron, responsable du laboratoire de la CRIIRAD s'est rendu sur place le 23/08/2000, de 17H à 22H30, afin de réaliser des relevés radiométriques préliminaires au moyen d'un scintillomètre DG5 de marque Novelec. Cet appareil permet d'enregistrer le flux de rayonnement gamma ambiant (mesure en impulsion par seconde : i/s).

La zone contrôlée est reportée sur la carte correspondant à la station S6 en [annexe 1](#). Entre les PK 43 et 44,5, le chemin CNR borde un site industriel grillagé qui comporte des cuves d'acroléine et de pentanal. Un quai de chargement est accessible par le chemin CNR, en bordure du Rhône, entre le PK 43 et le PK 43,5 :

- ◆ à 100 m de la clôture du site industriel, le flux de rayonnement gamma sur le chemin CNR est compris entre 60 et 70 i/s au contact du sol et 50 à 70 i/s à un mètre au dessus du sol. Ces valeurs, sont a priori classiques pour cette région compte tenu des teneurs en radionucléides naturels du sol. Elles peuvent être considérées comme le bruit de fond naturel ambiant. Un échantillon de terre de référence (code P1) a été prélevé dans ce secteur au niveau du PK 43,
- ◆ à 100 m plus au sud, au niveau du PK 43,1, le chemin est barré. Le talus entre le chemin CNR et le grillage du site industriel présente une forte anomalie radiométrique (560 i/s au contact et 390 i/s à 1 m du sol). Un échantillon de terre souillée par une fine poudre noire a été prélevé en ce point (code P2), ce site figure sur les [photographies page ci-contre](#).
- ◆ au delà de la barrière, se présente le quai de chargement en béton. On observe sur le quai des traces de matières pulvérulentes noires qui sont responsables de l'augmentation du flux de rayonnement gamma (520 i/s au contact et 250 i/s à 1 mètre), voir [photographies ci-contre](#).

Tableau T4 : Comparaison des caractéristiques radiologiques de la terre prélevée sur les quai du site chimique des Roches de Condrieu et des sédiments du Rhône

NATURE	Sédiments du Rhône / fraction < 63µm		Terre sur chemin CNR / Les Roches de Condrieu			
	Amont usine chimique	Aval usine chimique	P1 Terre de référence (chemin CNR)		P2 Terre souillée : quai usine chimique	
	Sédiment S5	Sédiment S6	Fraction 63 à 250 µm	Fraction < 63 µm	Fraction 63 à 250 µm	Fraction < 63 µm
Date de prélèvement	19/07/00	19/07/00	23/08/00	23/08/00	23/08/00	23/08/00
Lieu de prélèvement	PK 37,5 RD	PK 45 RG	PK43	PK43	PK43,1	PK43,1
N° d'analyse	C 18830	B 18829	C 18837	B 18836	C 18835	B 18833
Date d'analyse	18/09/00	18/09/00	21/09/00	20/09/00	20/09/00	19/09/00
Temps de comptage (s)	85 198	84 209	83 880	85 040	87 720	86 374
Géométrie	Marinelli	Marinelli	Petri	PP	Petri	PP
Masse analysée (g)	499,24	488,94	73,80	22,53	93,56	30,49
Taux de matières sèches (%)	70,8%	51,3%	90,9%	90,9%	90,8%	90,8%

Radioactivité naturelle

Chaîne de l' Uranium 238												
Thorium 234*	47,6	± 10,7	596,2	± 69,0	60,3	± 22,3	80,0	± 34,0	1 049,0	± 132,0	726,0	± 105,0
Radium 226**	50,9	± 6,2	389,2	± 41,3	55,7	± 9,2	100,5	± 17,5	1 168,0	± 126,0	1 007,5	± 112,5
Plomb 214	52,2	± 6,3	407,2	± 43,1	58,0	± 9,3	109,0	± 18,0	1 224,0	± 131,0	1 051,0	± 116,0
Bismuth 214	49,6	± 6,1	371,1	± 39,6	53,4	± 9,1	92,0	± 17,0	1 112,0	± 121,0	964,0	± 109,0
Plomb 210*	81,1	± 13,1	545,9	± 63,7	85,5	± 22,5	157,0	± 41,0	762,0	± 99,0	847,0	± 115,0
Uranium 235	<	4,0	31,4	± 9,0	<	10,0	<	17,0	70,0	± 23,0	59,0	± 29,0
Chaîne du Thorium 232												
Actinium 228	45,9	± 6,4	64,0	± 8,5	45,9	± 10,6	64,0	± 18,0	31,0	± 9,0	70,0	± 17,0
Plomb 212	49,9	± 5,7	70,6	± 8,0	45,3	± 6,7	63,0	± 11,0	33,0	± 6,0	83,0	± 12,0
Thallium 208	16,7	± 2,2	23,3	± 2,9	15,2	± 3,1	20,0	± 5,0	10,8	± 2,6	25,0	± 6,0
Potassium 40	466,9	± 58,5	360,0	± 44,6	486,0	± 94,6	477,0	± 116,0	<	100,0	<	100,0
Beryllium 7	<	1,6	<	2,0	17,3	± 9,1	<	11,0	<	7,0	<	11,0

Radioactivité artificielle

Césium 137	15,0	± 2,0	47,7	± 5,6	19,3	± 3,5	40,2	± 7,6	16,3	± 3,2	37,8	± 6,7
Cobalt 60	2,2	± 0,6	0,9	± 0,4	<	0,7	<	1,3	<	0,9	<	1,3

BC/CRIIRAD/LABO/ETUDES 2000/SAINTALBAN2000/SPECTROGAMMA/SEDIMENTS63/TERRE SOUILLEE

5.3. Caractéristiques radiologiques du matériau pulvérulent noir

Les 2 échantillons de terre (terre de référence P1, et terre souillée P2) ont été analysés par spectrométrie gamma au laboratoire de la CRIIRAD. Les analyses ont porté sur la fraction de granulométrie inférieure à 63 microns et également sur la fraction de granulométrie comprise entre 63 et 250 microns. En effet, il est apparu lors du tamisage que les grains noirs étaient plus abondants dans cette dernière fraction.

Les résultats d'analyse figurent dans le tableau T4 ci-contre, ainsi que, pour mémoire, les résultats concernant les sédiments S5 et S6 prélevés dans le Rhône en amont et en aval du site industriel des Roches-de-Condrieu.

Ces analyses permettent de faire les constats suivants :

- ◆ la terre de référence P1 présente des teneurs en radionucléides naturels proches de celles du sédiment amont,
- ◆ la terre P2 souillée par le matériau pulvérulent noir présente par contre un fort excès d'uranium 238 et 235 (10 à 20 fois plus que la terre dite « de référence »),
- ◆ la terre P2 souillée, dans sa fraction inférieure à 63 μm , présente un léger excès de radionucléides de la chaîne du thorium 232 par rapport à la terre P1 dite de référence. Le même écart est observé entre les sédiments contaminés S6 et les sédiments du Rhône S5 prélevés en amont du site chimique,
- ◆ la terre souillée P2 présente un fort déficit de potassium 40 par rapport à la terre dite de référence P1. On observe un léger déficit de potassium 40 dans les sédiments contaminés S6 par rapport aux sédiments du Rhône S5 prélevés en amont du site chimique.

Ces résultats montrent que les caractéristiques radiologiques du sédiment S6 et de la terre souillée sont comparables. L'excès d'uranium dans les sédiments du Rhône entre le site chimique des roches de Condrieu et la centrale de Saint-Alban provient donc très probablement de matières utilisées par les usines chimiques du site industriel des Roches-de-Condrieu. Il conviendrait de déterminer s'il s'agit de l'impact des rejets liquides ou de matières pulvérulentes rejetées lors des transferts de matières.

Une enquête spécifique devrait être engagée de manière à déterminer la nature exacte de ces matières et l'origine des matériaux pulvérulents découverts sur l'appontement du site Rhodia Chimie en Août 2000. Un bilan radiologique complet du site devrait être engagé compte tenu des anomalies radiométriques identifiées par la CRIIRAD à sa périphérie.

6. CONTROLES PORTANT SUR LES METAUX

Un dépistage semi-quantitatif des principaux métaux dans les sédiments et les plantes aquatiques a été effectué par le Laboratoire Départemental d'Analyse de la Drôme à la demande de la CRIIRAD. Les résultats de ces mesures sont reportés en [annexe 8 \(plantes\)](#) et [9 \(sédiments\)](#).

Ces résultats sont donnés à titre indicatif. Il faut insister en effet sur le fait qu'il s'agit d'ordres de grandeur issus d'une méthode d'analyse ICP Torche à plasma semi-quantitative dont l'utilisation est de permettre de mettre en évidence une tendance générale pouvant aider à sélectionner les métaux les plus significatifs pour des mesures quantitatives ultérieures.

6.1. Plantes Aquatiques

Dans les plantes aquatiques 17 métaux ont été détectés systématiquement dans les 10 échantillons depuis l'aval de Lyon jusqu'à l'aval de Saint-Alban, à des teneurs moyennes supérieures à 2 mg/kg. Il s'agit par ordre de teneurs moyennes décroissantes :

- Plus de 800 mg/kg en moyenne : potassium, calcium, sodium, magnésium, soufre,
- de 50 à 400 mg/kg en moyenne : phosphore, fer, manganèse, aluminium, bore,
- de 3 à 30 mg/kg en moyenne : zinc, strontium, titane, baryum, cuivre, nickel, or.

On observe un excès significatif de zinc et de cuivre dans les 3 stations en aval du CNPE de Saint-Alban par rapport à l'amont immédiat (facteur supérieur à 2). On n'observe pas de différence significative dans les teneurs de ces 17 métaux entre l'amont et l'aval du site chimique des Roches.

D'autres métaux sont détectés dans certains échantillons mais à des teneurs en limite des capacités de détection qui ne permettent pas d'en tirer de conclusions.

6.2. SEDIMENTS

Dans les sédiments 35 métaux ont été détectés systématiquement dans les 9 échantillons contrôlés depuis l'aval de Lyon jusqu'à l'aval de Saint-Alban, à des teneurs moyennes supérieures à 1 mg/kg. Il s'agit par ordre de teneurs moyennes décroissantes :

- Plus de 1 g/kg en moyenne : calcium, magnésium, aluminium, fer, potassium, sodium, soufre, titane, phosphore
- de 50 à 800 mg/kg en moyenne : manganèse, baryum, strontium, zinc, lithium, chrome, bore, vanadium, cuivre, plomb, cérium
- de 10 à 50 mg/kg en moyenne : nickel, zirconium, yttrium, lanthane, néodyme, thorium, arsenic, gallium, niobium, étain, cobalt,
- de 1 à 10 mg/kg en moyenne : gadolinium, cadmium, molybdène, béryllium.

On observe un excès significatif de phosphore, cérium, yttrium, lanthane, néodyme et cadmium, dans les sédiments prélevés à l'aval du site chimique des Roches de Condrieu par rapport à l'amont (facteur supérieur à 4). Un excès de phosphore est également observé dans la terre souillée P2.

D'autres métaux sont détectés dans certains échantillons mais à des teneurs en limite des capacités de détection qui ne permettent pas d'en tirer de conclusions.

SYNTHESE ET CONCLUSIONS

1 / Pollution par l'uranium au droit du site chimique des Roches de Condrieu

Les teneurs en radionucléides naturels des **sédiments** du Rhône entre l'aval de Lyon et l'aval de la centrale nucléaire de Saint Alban sont relativement homogènes et comparables aux valeurs moyennes de l'écorce terrestre, sauf en aval immédiat du site Rhodia Chimie des Roches de Condrieu / Saint Clair du Rhône, où le sédiment présente une activité massique en **uranium 238** de 479 Bq/kg sec plus de 10 fois supérieure à la normale. L'étude documentaire a montré que le site RHODIA CHIMIE de Saint-Clair-du-Rhône / Les Roches de Condrieu (38) était susceptible d'avoir utilisé dans son process des matières à radioactivité naturelle renforcée (atelier de production d'acide phosphorique).

Des mesures effectuées par la CRIIRAD sur le quai du site chimique en août 2000 ont montré au niveau du PK 43,1, sur le talus entre le chemin CNR et le grillage du site industriel une anomalie radiométrique significative (flux de rayonnement gamma au contact du sol 8 fois supérieur au niveau naturel). Un échantillon de terre souillée par une fine poudre noire a été prélevé en ce point.

Au delà de la barrière, sur le quai de chargement en béton, on observe des traces de matières pulvérulentes noires qui sont responsables de l'augmentation du flux de rayonnement gamma (jusqu'à 8 fois le niveau naturel).

Les analyses ont montré que les teneurs relatives en radionucléides naturels de la terre souillée et des sédiments du Rhône en aval du site chimique sont comparables.

L'excès d'uranium dans les sédiments du Rhône entre le site chimique des roches de Condrieu et la centrale de Saint Alban provient donc très probablement de matières utilisées par les usines chimiques du site industriel des Roches de Condrieu. Il s'agit vraisemblablement de l'impact résiduel de l'activité de l'atelier d'acide phosphorique (1976 / 1992) qui traitait des phosphates contenant de l'uranium 238 (1 200 Bq/Kg). Le minerai était transporté en vrac par minéraliers et transbordé sur des barges, puis déchargé sur l'apportement. Les effluents liquides étaient rejetés dans le Rhône.

Compte tenu des anomalies radiométriques identifiées à terre autour de ce site une étude radioécologique complète est recommandée.

2 / Présence chronique d'iode 131 dans les plantes aquatiques

De l'**iode 131** est détecté dans tous les échantillons de plantes aquatiques avec une activité comprise entre 11 et 85,5 Bq/kg sec. L'activité moyenne de l'iode 131 dans les potamots pectinés depuis l'aval de Lyon jusqu'à l'aval du CNPE de Saint-Alban est de **47,7 Bq/kg sec** (écart-type de 42 %). La distribution géographique des résultats montre qu'il n'est pas possible de mettre en évidence l'impact spécifique des rejets de la centrale nucléaire de Saint-Alban. La présence chronique d'iode 131 est en partie due à une autre source présente en amont de la centrale. La présence d'iode 131 pourrait être due aux rejets de services de médecine nucléaire ou au rejet diffus liés aux patients de retour à domicile.

Quatre des six établissements hospitaliers de la région lyonnaise susceptibles d'utiliser de l'iode 131 en radiodiagnostic et radiothérapie ont répondu au questionnaire CRIIRAD. L'activité totale administrée à des patients qui ne sont pas admis en chambre plombée était en 1999 de 98 300 millions de becquerels. Sachant que 84 % de l'activité est éliminée dans les urines des 5 premiers jours on peut estimer que le rejet direct par les hôpitaux et le rejet diffus par le patient de retour à domicile est de l'ordre de plusieurs milliards de becquerels par an. Le problème de la contamination chronique du milieu aquatique en aval des villes dotées de services de médecine nucléaire a été démontré par la CRIIRAD sur le bassin Seine-Normandie.

3 / Impact des rejets radioactifs liquides de la centrale de Saint-Alban

Présence de césium 137 et cobalt 60 dans les sédiments du Rhône

Seuls 2 radionucléides artificiels émetteurs gamma ont été détectés dans les **sédiments**. Le **césium 137** est détecté dans tous les sédiments (7 à 47,5 Bq/kg sec). Le **cobalt 60** est détecté dans 6 des 9 sédiments (0,3 à 1,5 Bq/kg sec).

Tant en ce qui concerne le césium 137 que le cobalt 60, on n'observe pas de différence réellement significative entre l'amont et l'aval de la centrale de Saint-Alban. L'impact des rejets radioactifs liquides de césium 137 et cobalt 60 de cette centrale est donc partiellement masqué par une contamination d'une autre origine située plus en amont. En ce qui concerne le césium 137 (période physique égale à 30 ans), l'impact résiduel des essais nucléaires atmosphériques des années 50/60 et de l'accident de Tchernobyl en 1986 est encore mesurable. En ce qui concerne le cobalt 60 (période physique égale à 5 ans), l'impact des rejets liquides d'autres centrales nucléaires situées plus en amont est possible.

Les plantes aquatiques

Les **plantes aquatiques** mettent en évidence un impact des rejets radioactifs liquides de la centrale nucléaire de Saint-Alban. En aval de la centrale électronucléaire on détecte du **césium 137** (1,9 à 7,6 Bq/kg sec) alors qu'il n'est pas détecté en amont. Ces valeurs sont du même ordre de grandeur que celles obtenues en 1997 en aval de la centrale (2,5 à 9,6 Bq/kg sec).

Le **cobalt 58** est détecté dans un seul échantillon, celui prélevé en aval immédiat de la centrale (4,1 Bq/kg sec). Le cobalt 58 est un produit d'activation émetteur bêta gamma de période physique égale à 70,9 jours présent dans les rejets liquides de la centrale de Saint-Alban. Lors des campagnes de mesure de 1993 et 1997 il n'a jamais été détecté dans les plantes aquatiques en amont de la centrale. Son activité en aval est inférieure à celle mesurée en 1997 (on mesurait de 8,1 à 23,5 Bq/kg sec en aval proche).

Ces résultats ne montrent pas d'anomalie inattendue en ce qui concerne les teneurs en radionucléides artificiels émetteurs gamma en aval de la centrale de Saint-Alban, compte tenu des autorisations de rejet radioactifs liquides de la centrale.

L'évaluation complète de l'impact des rejets radioactifs liquides de la centrale de Saint-Alban dans le milieu aquatique nécessiterait cependant la mesure des concentrations en carbone 14, tritium et nickel 63 qui constituent a priori les principaux radionucléides rejetés. Il s'agit d'émetteurs Bêta purs dont la mesure n'a pas pu être effectuée dans la présente étude pour des questions budgétaires.

LISTE DES ANNEXES

CAMPAGNE CRIIRAD 2000

Annexe 1 : Localisation des points de prélèvements de plantes aquatiques et sédiments du Rhône Cartes détaillées

Annexe 2 : Protocole d'analyses par spectrométrie gamma du laboratoire de la CRII-RAD.

Annexe 3 : Résultats des analyses par spectrométrie gamma effectuées sur les sédiments frais tamisés à 2mm.

Annexe 4 : Résultats des analyses par spectrométrie gamma effectuées sur les sédiments secs tamisés à 63µm.

Annexe 5 : Chaînes de désintégration radioactive des trois familles de radioéléments naturels.

Annexe 6 : Résultats des analyses par spectrométrie gamma effectuées sur des plantes aquatiques du Rhône.

Annexe 7 : Site chimique des Roches de Condrieu – Localisation du point de rejet des effluents liquides et de l'apportement.

Annexe 8 : Bilan des dépistages semi-quantitatifs des métaux en mg/kg – Plantes du Rhône. Analyses effectuées par le LDA 26.

Annexe 9 : Bilan des dépistages semi-quantitatifs des métaux en mg/kg – Sédiments du Rhône. Analyses effectuées par le LDA 26.