

# Note

## Rejets de plutonium dans la Loire Recherche d'un marquage historique au sein d'une archive sédimentaire collectée le 21 juillet 2015 à Montjean-sur-Loire

### Contexte

Les deux réacteurs du CNPE de Saint-Laurent-des-Eaux situé sur la Loire en aval d'Orléans, ont été couplés au réseau les 14 mars 1969 (réacteur SLA1) et 9 août 1971 (SLA2), respectivement. Ces réacteurs ont subi des accidents qui ont conduit à la fusion d'éléments de combustibles : le 17 octobre 1969 (SLA1) et le 13 mars 1980 (SLA2). De plus, le 21 avril 1980, l'éclatement d'un conteneur d'un élément combustible dans la piscine d'entreposage des combustibles usés de SLA2 a conduit à une contamination importante de l'eau de cette piscine. Après un traitement par filtration pendant quelques mois, cette eau a été rejetée en Loire induisant un rejet de l'ordre de 1 GBq en émetteurs alpha sur l'année 1980. Les réacteurs ont été mis à l'arrêt définitif respectivement le 18 avril 1990 et le 27 mai 1992.

Une étude réalisée en 1980 (Thomas,1982) a permis de mettre en évidence à cette époque la présence des isotopes 238 et 239, 240 du plutonium dans les matières en suspension de la Loire, à des niveaux de concentration et dans des rapports d'activité ( $^{238}\text{Pu} / ^{239, 240}\text{Pu} > 0,04$ ) attestant de rejets industriels.

L'IRSN, en collaboration avec l'Université de Tours, a prélevé une archive sédimentaire dans les berges de la Loire en aval d'Angers afin de rechercher la trace de ces rejets anciens.

### Archive sédimentaire sur le site de Montjean-sur-Loire

Le site de Montjean-sur-Loire (0°51'23,1" O - 47°23'34,0" N ; Altitude : 13 m) est une marge alluviale de la plaine d'inondation de l'île Chalonne (Fig. 1). Cette marge n'est immergée que pendant les crues<sup>1</sup>, soit entre 20 et 40 jours par an au cours des 50 dernières années, et offre des conditions satisfaisantes de conservation des dépôts. Le site de Montjean-sur-Loire a été choisi parce qu'il est situé à

---

<sup>1</sup> Dans les marges alluviales, les archives sédimentaires cumulent les dépôts des crues inondant la zone de prélèvement. Au cours de certaines années, l'absence de crue inondante peut conduire à des discontinuités dans les chroniques des dépôts annuels. L'analyse des chroniques de débits permet alors d'identifier ces discontinuités et de recalculer, le cas échéant, l'année d'un dépôt à une date ultérieure, correspond à l'occurrence d'une crue inondante.

l'aval de tous les CNPE du bassin de la Loire (Fig. 2) et que ses archives sédimentaires ont déjà été datées par le  $^{137}\text{Cs}$ <sup>2</sup> (Grosbois *et al.*, 2012).



Figure 1. Localisation du point de prélèvement de l'archive sédimentaire de Montjean-sur-Loire, le 21 juillet 2015 ; coordonnées (0° 51' 23,1" O - 47° 23' 34,0" N ; altitude : 13 m).

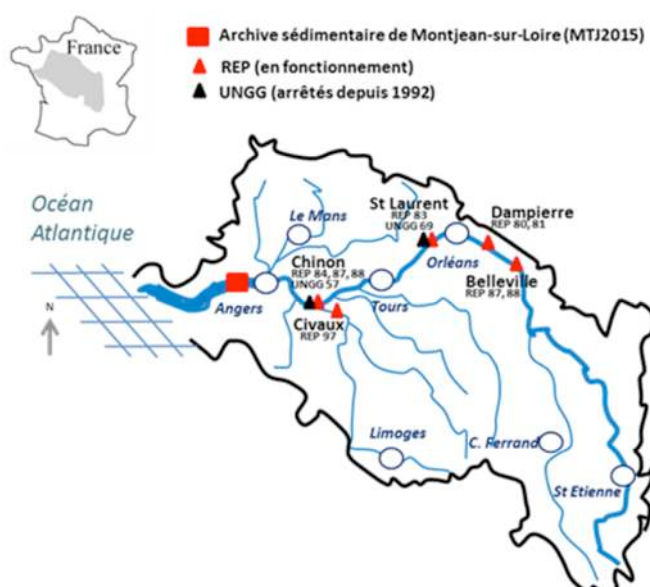


Figure 2. Les CNPE implantés sur le bassin de la Loire ; dates de mise en service et localisation de l'archive de Montjean-sur-Loire.

Des carottages ont été réalisés sur ce site le 21 juillet 2015. Les carottes de 2 m de longueur cumulée ont été ouvertes et découpées en tranches de 5 cm d'épaisseur. Les tranches ont été analysées par spectrométrie gamma pour doser le  $^{137}\text{Cs}$  utilisé pour la datation de l'archive sédimentaire, puis pour certaines, par spectrométrie alpha pour la recherche des isotopes du plutonium.

<sup>2</sup> Principe de la datation par le  $^{137}\text{Cs}$  : quand les dépôts sont continus et non perturbés, les carottes sédimentaires montrent deux pics d'activité en  $^{137}\text{Cs}$  : l'un lié aux retombées de l'accident de Tchernobyl (1986) ; le second lié au maximum des retombées des essais nucléaires atmosphériques (1963). En l'absence d'autres marqueurs chronologiques, les pics d'activité sont datés à 1986 et 1963 ; les différents niveaux de la carotte sont datés par interpolation linéaire entre 1963 et 1986, et entre 1986 et la date du prélèvement.

Le  $^{137}\text{Cs}$  a été détecté jusqu'à 118 cm de profondeur, à des concentrations comprises entre  $1,6 \pm 0,7$  Bq/kg et  $56,2 \pm 2,4$  Bq/kg. Le profil de concentration en  $^{137}\text{Cs}$  (Fig. 3) met en évidence :

- un pic majeur à 92 cm de profondeur, attribuable au maximum des retombées atmosphériques globales des tirs nucléaires de surface (1963) ;
- un pic de plus faible amplitude, à 32,5 cm de profondeur, attribuable aux retombées de l'accident de Tchernobyl (1986). Une analyse détaillée des débits de la Loire après l'accident montre que le site n'a pas été inondé avant février 1988, ce qui permet de dater ce pic à 1988<sup>4</sup>.

Cette démarche a permis d'attribuer à chaque tranche échantillonnée un âge estimé et une incertitude associée liée à l'épaisseur des tranches et aux taux de sédimentation apparents<sup>5</sup>.

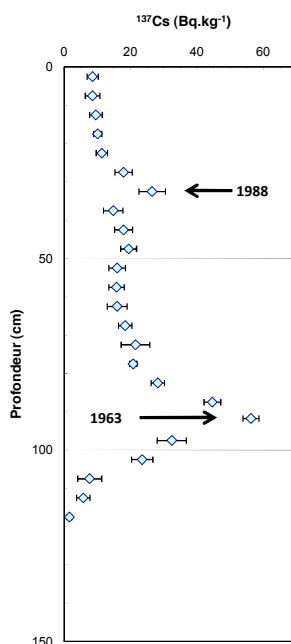


Figure 3. Profil des concentrations en  $^{137}\text{Cs}$  dans la carotte de Montjean-sur-Loire ; l'incertitude associée à la mesure du  $^{137}\text{Cs}$  correspond à  $\pm 2\sigma$ .

### Les isotopes de plutonium dans l'archive sédimentaire de Montjean-sur-Loire

L'évolution temporelle des concentrations en  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{239, 240}\text{Pu}$  est présentée sur les figures 4a et 4b, respectivement, ainsi que celle des rapports d'activité  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{239, 240}\text{Pu}$  (Fig. 4c). Les valeurs sont données en annexe. Les strates analysées correspondent aux niveaux entre 22,5 cm et 102,5 cm (dates de dépôt estimées entre  $1997 \pm 3$  et  $1958 \pm 2$ ).

<sup>3</sup> Les concentrations sont toutes exprimées en Bq ou mBq par kilogramme de sédiment sec.

<sup>4</sup> Le  $^{137}\text{Cs}$  déposé sur les sols des bassins versants à la suite de l'accident de Tchernobyl est progressivement transféré vers les cours d'eau durant plusieurs années.

<sup>5</sup> Un taux de sédimentation, grandeur physique, s'exprime en  $\text{g}/\text{cm}^2/\text{an}$  ; le taux de sédimentation apparent est celui observé, en  $\text{cm}/\text{an}$ .

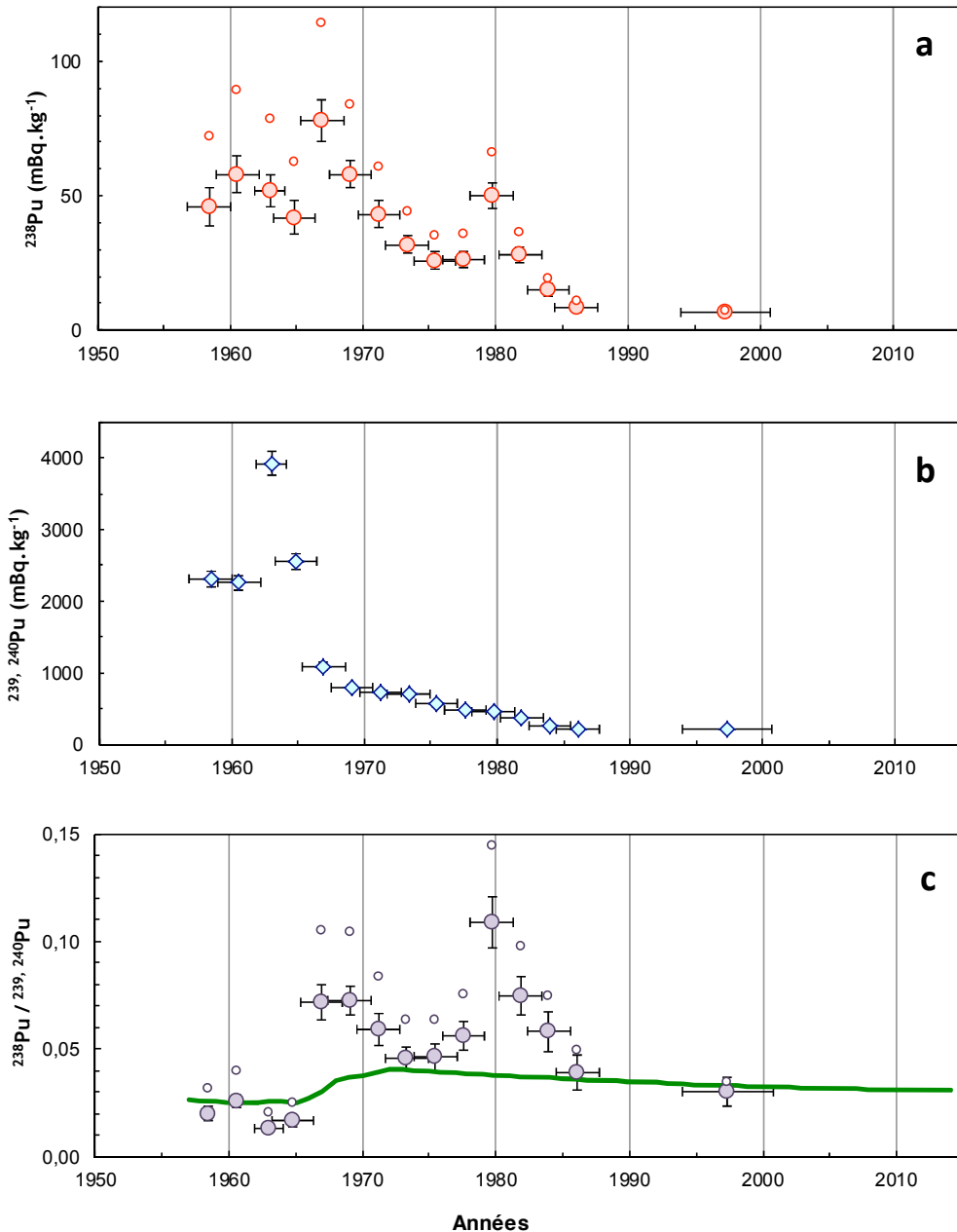


Figure 4. Evolution temporelle des concentrations en  $^{238}\text{Pu}$  (a) et  $^{239, 240}\text{Pu}$  (b) et du rapport d'activité  $^{238}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$  (c) dans la carotte de Montjean-sur-Loire ; pour chaque symbole, la barre horizontale représente l'incertitude sur la datation ; la barre verticale est celle de l'incertitude associée à la mesure des isotopes du plutonium correspondant à  $\pm 2\sigma$  ; les ronds ouverts correspondent aux concentrations en  $^{238}\text{Pu}$  et aux valeurs du rapport d'activité  $^{238}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$  corrigées de la décroissance radioactive pour la date du dépôt. Sur le graphe c, la courbe verte correspond aux valeurs attendues sous nos latitudes en prenant en compte les seules retombées atmosphériques consécutives aux essais nucléaires de surface et à l'explosion d'un satellite Transit 5BN-3 au-dessus de l'Océan indien en 1964 (d'après Duffa, 2001).

Les concentrations en  $^{239, 240}\text{Pu}$  passent par un maximum en 1963 ( $3900 \pm 170 \text{ mBq/kg}$ ) puis décroissent régulièrement pour atteindre  $258 \pm 14 \text{ mBq/kg}$  au milieu des années quatre-vingt. Dans le même intervalle, les concentrations en  $^{238}\text{Pu}$  sont en revanche beaucoup plus variables : de l'ordre de 40 à 60  $\text{mBq/kg}$  jusqu'au milieu des années soixante, elles augmentent jusqu'à des valeurs de 80

mBq/kg pour le niveau daté à  $1967 \pm 2$  ; après une décroissance progressive jusqu'aux alentours de 26 mBq/kg au cours des années soixante-dix, elles montrent un nouveau pic à  $50 \pm 5$  mBq/kg (soit  $66 \pm 7$  mBq/kg à la date du dépôt) en  $1980 \pm 2$ . Les concentrations en  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{239, 240}\text{Pu}$  observées dans cette dernière strate sont cohérentes avec les valeurs enregistrées par Thomas (1982) en octobre 1980 dans les particules en suspension de la Loire aval ( $900 \pm 100$  mBq/kg pour le  $^{239, 240}\text{Pu}$  et  $400 \pm 200$  mBq/kg pour le  $^{238}\text{Pu}$ ) compte tenu des différences granulométriques des matériaux étudiés<sup>6</sup> et de la décroissance radioactive.

Le rapport d'activité  $^{238}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$  présente également deux maximums : le premier est enregistré en 1967-69 ( $0,11 \pm 0,01$  en valeur corrigée de la décroissance à la date du dépôt) ; le second en 1980 ( $0,14 \pm 0,02$  en valeur corrigée de la décroissance à la date du dépôt). Après 1980, ce rapport diminue, et semble se stabiliser à environ 0,03 dès le milieu des années quatre-vingt, soit une valeur caractéristique des retombées atmosphériques globales. Ces observations sont également en accord avec les travaux de Thomas (1982) qui indiquent des valeurs de rapport d'activité  $^{238}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$ , dans les particules en suspension collectées au début des années 80, variant de 0,15 à 0,42.

### *Interprétation des concentrations en plutonium dans l'archive sédimentaire de Montjean-sur-Loire*

En l'absence de source industrielle, les isotopes de plutonium sont issus des retombées atmosphériques des tirs nucléaires de surface (1945-1980) et des retombées atmosphériques liées à l'explosion du satellite Transit 5 BN-3 au-dessus de l'Océan Indien (1964). Les mesures réalisées à l'époque (en 1970 et 1971) dans les sols de l'hémisphère nord sous nos latitudes indiquent des teneurs moyennes de  $25 \pm 10$  mBq/kg en  $^{238}\text{Pu}$ , et de  $700 \pm 200$  mBq/kg pour le  $^{239, 240}\text{Pu}$  avec un rapport d'activité de  $0,036 \pm 0,006$  (Hardy et al., 1972).

A la fin des années soixante, l'archive sédimentaire enregistre des teneurs en  $^{239, 240}\text{Pu}$  de l'ordre de grandeur ( $1090 \pm 50$  mBq/kg) de celles attendues dans les sols à cette époque suite aux retombées atmosphériques précitées ; en revanche les concentrations en  $^{238}\text{Pu}$  ( $78 \pm 8$  mBq/kg, soit  $115 \pm 12$  mBq/kg à la date du dépôt), sont plus de quatre fois supérieures aux teneurs moyennes estimées dans les sols au cours de cette période. De même, les valeurs du rapport d'activité ( $0,105 \pm 0,010$  à la date du dépôt) sont significativement supérieures à la valeur de  $0,036 \pm 0,006$  caractérisant les sols de nos latitudes à cette époque (Fig. 4c). Le pic daté à 1967 pourrait correspondre à un rejet accidentel en octobre 1969, car il n'y a pas eu de crue (donc pas de dépôt) entre octobre 65 et mai 69.

---

<sup>6</sup> Les dépôts résiduels sur les marges alluviales sont des matières solides de granulométrie plus grossière en comparaison aux particules en suspension en transit dans la colonne d'eau collectées par Thomas (1982). Ainsi, ces dépôts présentent généralement des concentrations massiques plus faibles que celles des matières en suspension.

***Le pic de concentration en  $^{238}\text{Pu}$  (1967, mais plus probablement 1969) et les valeurs du rapport d'activité associées attestent sans équivoque d'apports additionnels en plutonium d'origine industrielle dans le bassin versant de la Loire. Ces observations pourraient correspondre à l'enregistrement des rejets en Loire consécutifs à l'accident du CNPE de Saint-Laurent-des-Eaux (SLA1) survenu en octobre 1969.***

En 1980, l'archive sédimentaire enregistre des teneurs en  $^{238}\text{Pu}$  de  $50\pm 5$  mBq/kg, soit  $66\pm 7$  mBq/kg à la date du dépôt, c'est-à-dire près de 4 fois les teneurs attendues en l'absence de toute influence industrielle<sup>7</sup>; cette même année, les valeurs du rapport d'activité ( $0,144\pm 0,016$  à la date du dépôt) sont très supérieures à la valeur de  $0,038\pm 0,006$  caractérisant les sols de nos latitudes à cette époque (Fig. 4c). La diminution progressive des concentrations et des rapports d'activité après le début des années 80 peut être interprétée comme la rémanence d'un rejet unique ou la trace de plusieurs rejets de moindre ampleur réalisés sur cette période. Notons que dans les échantillons de matières en suspension prélevées en juin 1982, avril et mai 1983 (Thomas, 1982), les rapports d'activité demeurent anormalement élevés (de l'ordre de  $0,10\pm 0,05$ ).

***Les pics de concentration en  $^{238}\text{Pu}$  en  $1980\pm 2$  et les valeurs du rapport d'activité observés entre 1980 et 1983 attestent sans équivoque d'apports additionnels en plutonium d'origine industrielle dans le bassin versant de la Loire aux environs du début des années 80. Ces observations pourraient correspondre à l'enregistrement de rejets effectués en Loire par le CNPE de Saint-Laurent-des-Eaux (SLA2) en 1980, voire ultérieurement dans de moindres proportions.***

### **En bref...**

***Les concentrations en  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{239, 240}\text{Pu}$  et les rapports d'activité  $^{238}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$  mesurés dans l'archive sédimentaire collectée le 21 juillet 2015 à Montjean-sur-Loire attestent de rejets d'origine industrielle dans la Loire, qui pourraient avoir pour origine les accidents survenus en 1969 et 1980 sur les unités SLA1 et SLA2 du CNPE de Saint-Laurent-des-Eaux.***

---

<sup>7</sup> Le rapport d'activité  $^{238}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$  des retombées atmosphériques est de 0,038 en 1980 ; si l'on considère que les rejets industriels de  $^{239, 240}\text{Pu}$  sont nuls ou négligeables, la concentration attendue en  $^{238}\text{Pu}$  peut être déduite de la concentration en  $^{239, 240}\text{Pu}$  à cette date (460 mBq/kg), soit 17 mBq/kg ; la concentration en  $^{238}\text{Pu}$  effectivement mesurée est près de 4 fois supérieure.

## Références

Duffa C. (2001). Répartition du plutonium et de l'américium dans l'environnement terrestre de la basse vallée du Rhône. Thèse Univ. Marseille, 171pp.

Grosbois C., Meybeck M., Lestel L., Moatar F., Lefèvre I. (2012). Severe and contrasted polymetallic contamination patterns (1900-2009) in the Loire River sediments (France), Science of the Total Environment, 435-436, 290-305.

Hardy E. P., Krey P. W., Volchok H. L. (1972). Global inventory and distribution of Pu-238 from SNAP-9A, health and safety laboratory, United States Atomic Energy Commission, New York. N. Y. 10014.

Thomas A. (1982). Comportement géochimique des radionucléides à l'amont de l'estuaire de la Loire. Contrat CNEXO n° 82/6844, 24pp.

**Annexe. Concentrations en  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{239, 240}\text{Pu}$  (mBq/kg) et rapport d'activité  $^{238}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$  dans l'archive sédimentaire de Montjean-sur-Loire ; les concentrations sont données à la date du prélèvement (21 juillet 2015).**

Profondeur (cm)	Date de dépôt estimée	$^{238}\text{Pu}$ (mBq/kg)	$^{239, 240}\text{Pu}$ (mBq/kg)	$^{238}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$
22,5	1997,3 ± 3,4	6,5 ± 1,4	217 ± 13	0,030 ± 0,008
37,5	1986,1 ± 1,6	8,5 ± 1,4	218 ± 13	0,039 ± 0,010
42,5	1984,0 ± 1,6	15,0 ± 1,4	258 ± 14	0,058 ± 0,012
47,5	1981,8 ± 1,6	27,9 ± 3,1	373 ± 19	0,075 ± 0,012
52,5	1979,7 ± 1,6	50,0 ± 5,0	460 ± 22	0,109 ± 0,016
57,5	1977,6 ± 1,6	26,4 ± 2,9	472 ± 23	0,056 ± 0,009
62,5	1975,4 ± 1,6	25,8 ± 3,2	559 ± 28	0,046 ± 0,008
67,5	1973,3 ± 1,6	31,8 ± 3,3	695 ± 32	0,046 ± 0,007
72,5	1971,2 ± 1,6	43 ± 5	730 ± 40	0,059 ± 0,010
77,5	1969,1 ± 1,6	58 ± 5	801 ± 33	0,072 ± 0,009
82,50	1966,9 ± 1,6	78 ± 8	1090 ± 50	0,072 ± 0,008
87,50	1964,8 ± 1,6	42 ± 6	2550 ± 110	0,016 ± 0,002
91,75	1963,0 ± 1,1	52 ± 6	3920 ± 170	0,013 ± 0,002
97,50	1960,6 ± 1,6	58 ± 7	2260 ± 100	0,026 ± 0,003
102,50	1958,4 ± 1,6	46 ± 7	2310 ± 120	0,020 ± 0,003