

**Mesures et expertise sur les radionucléides présents dans
les sédiments issus de l'approfondissement du chenal de
navigation du Grand Port Maritime de Rouen**

Rapport final

Rapport DEI/SECRE n° 09-022

O. Connan, M. Rozet, L. Solier (DEI/SECRE/LRC)

**DIRECTION DE L'ENVIRONNEMENT
ET DE L'INTERVENTION**

Service d'Études sur le Comportement des Radionucléides
dans les Écosystèmes

BP 3 Cadarache - 13115 Saint Paul Lez Durance

Télécopie : 04.42.19.91.43 - Téléphone : 04.42.19.96.00

Demandeur	Grand Port Maritime de Rouen				
Référence de la demande	111953				
Numéro de la fiche programme					
Processus de rattachement	R5				
<p>Mesures et expertise sur les radionucléides présents dans les sédiments issus de l'approfondissement du chenal de navigation du Grand Port Maritime de Rouen</p> <p>Rapport final</p> <p><i>O. Connan, M. Rozet, L. Solier (DEI/SECRE/LRC)</i></p> <p>Rapport DEI/SECRE n° 09-022</p>					
	Réservé à l'unité		Visas pour diffusion		
	Auteur	Vérificateur	Chef du SECRE		
Noms	O. CONNAN	D. BOUST	J. GARNIER-LAPLACE		
Dates	02/11/2009	03/11/2009			
Signatures					

DIFFUSION : Libre Interne Limitée

*si nécessaire

HISTORIQUE DES MODIFICATIONS

Version	Date	Auteur	Pages ou paragraphes modifiés	Description ou commentaires
V0	18/05/2009	Connan O.		Version initiale
V1	02/11/2009	Connan O.	Tout document	Corrections mineures

LISTE DE DIFFUSION

Nom	Organisme
Mme Sandrine SAMSON	GRAND PORT MARITIME DE ROUEN
CHAMPION Didier	IRSN/DEI
GARIEL Jean-Christophe	IRSN/DEI
BOULAUD Denis	IRSN/DEI
GAY Didier	IRSN/DEI/SARG
GARNIER-LAPLACE Jacqueline	IRSN/DEI/SECRE
DUBIAU Philippe	IRSN/DEI/SESUC
PERES Jean-Marc	IRSN/DEI/SESURE
LADSOUS David	IRSN/DEI/SIAR
ROBE Marie-Christine	IRSN/DEI/STEME
CALMON Philippe	IRSN/DEI/SECRE/LME
GILBIN Rodolphe	IRSN/DEI/SECRE/LRE
BOUST Dominique	IRSN/DEI/SECRE/LRC

RESUME

Le Grand Port Maritime de Rouen (GPMR) a sollicité le Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-Octeville (LRC) pour réaliser des mesures de radionucléides sur des sédiments de dragage du chenal d'accès au port de Rouen et expertiser les résultats des mesures. Les sédiments ont été prélevés en juillet et août 2008 en quatre points depuis l'embouchure de la Seine jusque Rouen. Les mesures de radionucléides ont été effectuées par plusieurs laboratoires de l'IRSN, qui ont quantifié des radionucléides d'origine artificielle (^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{137}Cs , ^{90}Sr , etc...) et naturelle (famille ^{238}U , ^{232}Th , etc...). Les résultats indiquent que les sédiments échantillonnés ne présentent aucune anomalie particulière et que, d'un point de vue réglementaire, ces sédiments ne sont pas considérés comme déchets radioactifs.

MOTS-CLES

Radioactivité, sédiments de dragage, Grand Port Maritime de Rouen.

SOMMAIRE

1 CONTEXTE	6
2 DESCRIPTIF DES SITES DE PRELEVEMENT	6
3 DESCRIPTIF DES SEDIMENTS RECUS, TRAITEMENT	7
4 RESULTATS EN RADIONUCLEIDES	10
5 ANALYSE DES RESULTATS	13
5.1 COMMENTAIRES SUR LA ZONE DE PRELEVEMENT	13
5.2 RAPPEL SUR L'ORIGINE DES PRINCIPAUX RADIONUCLEIDES MESURES DANS CETTE ETUDE.....	13
5.2.1 Radionucléides artificiels	13
5.2.2 Radionucléides naturels	15
5.3 DISCUSSION DES RESULTATS ACQUIS	16
5.3.1 Données brutes	16
5.3.1.1 Radionucléides à vie courte	16
5.3.1.2 Radionucléides artificiels.....	16
5.3.1.3 Radionucléides naturels	18
5.3.1.4 Tritium	18
5.3.2 Aspects réglementaires.....	19
6 CONCLUSION	19
7 REFERENCES	20

1 CONTEXTE

Le Service Environnement Maritime et du Chenal, du Grand Port Maritime de Rouen (GPMR) a sollicité le Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-Octeville (LRC) pour réaliser une expertise s'appuyant sur des mesures des radionucléides présents dans les sédiments issus de l'approfondissement du chenal de navigation, auquel s'ajoute un échantillon provenant des dragages d'entretien du chenal. Le GPMR souhaite connaître les teneurs en radionucléides dans les sédiments de dragage extraits dans le cadre du programme d'amélioration des accès au Port. Cette caractérisation est nécessaire afin de répondre aux questions éventuelles sur les impacts des sédiments de dragage dans le cadre du dossier d'enquête publique de l'opération.

Durant les travaux, le GPMR a réalisé, en juillet et août 2008, des prélèvements de matériaux de dragage en quatre points du chenal. Ce rapport présente et commente les résultats des mesures de radionucléides réalisées par l'IRSN sur ces sédiments, selon la proposition technique et financière 11953 de l'IRSN et le bon de commande 33.0801051 du GPMR.

2 DESCRIPTIF DES SITES DE PRELEVEMENT

Les prélèvements ont été réalisés par le GPMR en juillet et août 2008 ; 4 stations ont été échantillonnées. Les coordonnées sont fournies dans le tableau 1. La figure 1 indique la position des stations. Le point de prélèvement pK368 est situé à l'embouchure de la Seine, dans une zone fortement influencée par le domaine marin. Les trois autres points sont situés dans les boucles de la Seine jusqu'au port de Rouen.

Dans ce rapport, nous avons conservé la nomenclature adoptée par le PAR lors de la transmission des échantillons, à savoir que les points de prélèvement sont nommés pK368 (point le plus aval à dominante marine), pK303 (rive gauche), pK270 et BRQ (situé au niveau de la zone portuaire à Rouen ; ce dernier point correspond à un prélèvement de sédiments récents, déposés dans l'année, issus des dragages d'entretien du port).

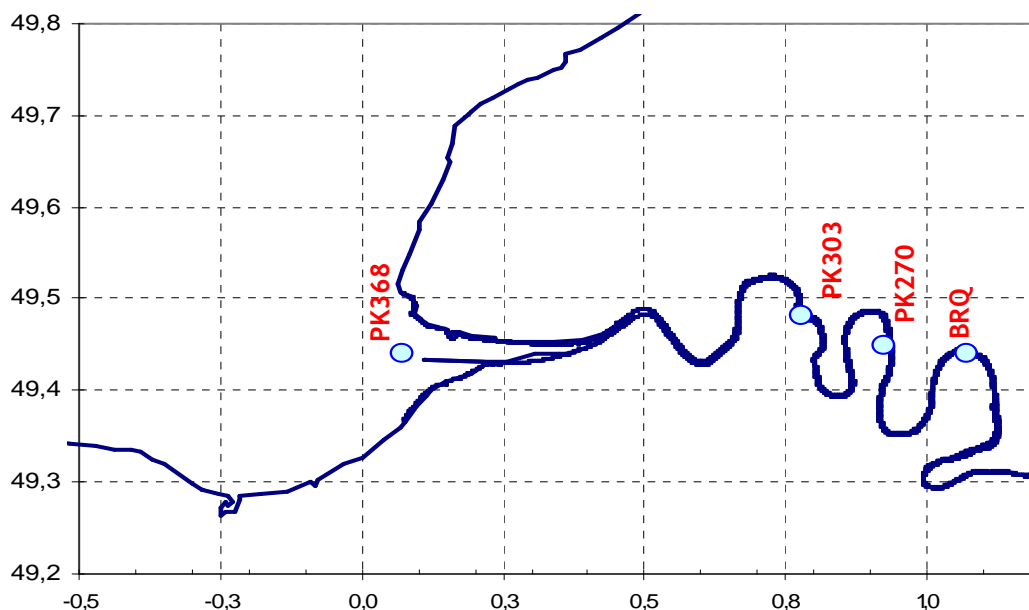


Figure 1. Localisation des points de prélèvement.

Tableau 1. Coordonnées géographiques des points de prélèvement (en coordonnées Lambert I et degrés décimaux WGS84).

station	Latitude (Lambert I)	Longitude (Lambert I)	Latitude (WGS84)	Longitude (WGS84)
BRQ	506000	1193653	49° 435 N	01° 04 E
pK270	498480	1195169	49° 44799 N	00° 92620 E
pK303	487007	1199235	49° 48240 N	00° 77674 E
pK368	435900	1195740	49° 43940 N	00° 07323 E

3 DESCRIPTIF DES SEDIMENTS RECUS, TRAITEMENT

Les sédiments ont été reçus au LRC quelques jours après les prélèvements. Ils ont été immédiatement séchés à 30°C, puis tamisés à 2 mm et mis en géométrie (380 mL) pour effectuer les mesures de radionucléides à vie courte ^{131}I et ^7Be dans les délais les plus courts possibles. La mesure de ces deux radionucléides a été effectuée durant le mois suivant les prélèvements. Dans un second temps, les sédiments ont été lyophilisés, tamisés et répartis en fonction des quantités nécessaires aux différents laboratoires pour la réalisation des mesures des autres radionucléides.

Des photos des différents sédiments reçus sont présentées sur les figures 2 à 5. Un rapide descriptif est proposé :

- Sédiment BRQ : sédiment de type vase, très foncé, particulièrement liquide (Fig. 5). La teneur en eau de l'échantillon reçu était de 66%.
- Sédiment pK270 : sédiment de type sable moyen et sable grossier, de couleur sombre, d'apparence homogène, avec présence de débris coquilliers (Fig. 2). La teneur en eau de l'échantillon reçu était de 32%.
- Sédiment pK303 : sédiment particulièrement collant de type vase flandrienne fossile, de couleur grise, très compact (Fig. 3). La teneur en eau de l'échantillon reçu était de 20%.
- Sédiment pK368 : sédiment vaseux, de couleur gris foncé, homogène, compact (Fig. 4). La teneur en eau de l'échantillon reçu était de 39%.

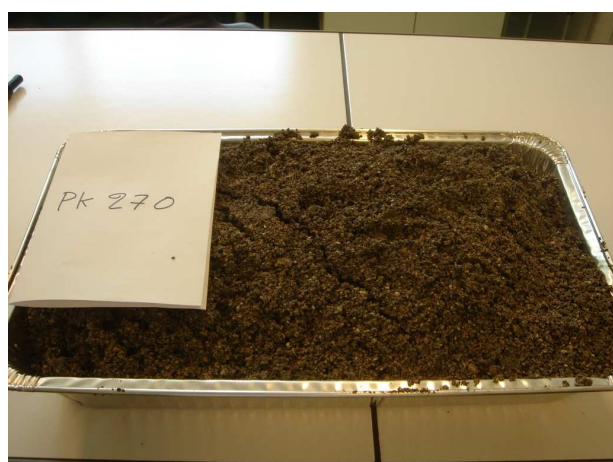


Fig 2. Sédiment pK 270



Fig 3. Sédiment pK 303



Fig 4. Sédiment pK 368

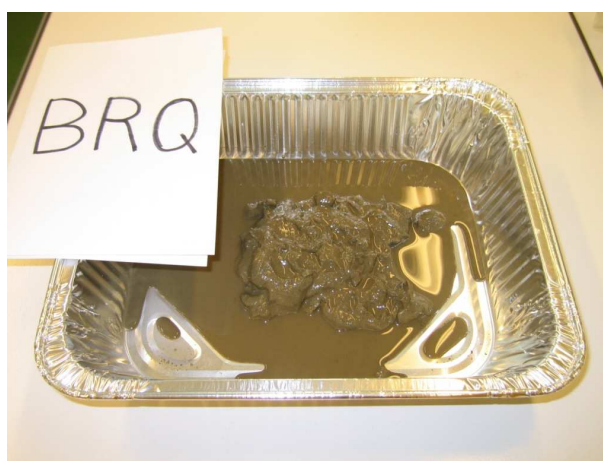


Fig 5. Sédiment BRQ

Les mesures ont fait l'objet de rapports d'essai pour chaque type d'analyse. Elles ont été effectuées dans différents laboratoires de l'IRSN (tableau 2). A ce jour, les mesures de tritium lié sont encore en cours, la mesure du tritium se faisant par la mesure de son

descendant l'hélium (^3He) et le temps de décroissance nécessaire à la mesure étant de plusieurs mois.

Tableau 2. Code mesure, laboratoire de mesure et N° du rapport d'essai.

Code mesure*	Laboratoire de mesure	N° rapport essai
^7Be , ^{131}I	LRC Octeville	08G19
GAART	LRC Octeville	08G22
GANAT	LRC Octeville	08G22
ALART	STEME/LMRE Orsay	2008-326
ALNAT	LRC Octeville	08A06
STRO	STEME/LVRE Vésinet	09-076-VI
TRLIB	LRC Octeville	08B06
TRLIE	STEME/LMRE Orsay	LMRE-2009-330

* la correspondance code mesure - éléments analysés est en Annexe 1.

Le détail des radionucléides mesurés, correspondant au code mesure, est présenté en annexe 1 de ce rapport, et correspond à ce qui avait été proposé dans la proposition technique et financière.

4 RESULTATS EN RADIONUCLEIDES

Nous présentons ci après les résultats bruts, exprimés en $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$, et rapportés à la date de prélèvement, dans les tableaux 3 à 7.

Tableau 3. Activités en radionucléides émetteurs gamma à vie courte ^7Be et ^{131}I (en $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}} \pm 2\sigma$), valeurs rapportées à la date du prélèvement, dans les sédiments du port de Rouen.

Point	date prélèvement	date mesure	^7Be	^{131}I
BRQ	28/08/08	09/09/08	$45,6 \pm 3,2$	$0,9 \pm 0,6$
pK270	23/07/08	14/08/08	< 2,6	< 1,8
pK303	22/07/08	16/08/08	< 2,1	< 1,8
pK368	30/07/08	19/08/08	$9,4 \pm 1,2$	< 0,9

Tableau 4. Activités en radionucléides émetteurs gamma artificiels ($\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}} \pm 2\sigma$), valeurs rapportées à la date du prélèvement, dans les sédiments du port de Rouen.

Point	date prélèvement	date mesure	$^{110\text{m}}\text{Ag}$	^{241}Am	^{57}Co	^{58}Co	^{60}Co
BRQ	28/08/08	04/10/08	< 0,5	< 0,7	< 0,29	< 0,7	< 0,6
pK270	23/07/08	25/09/08	< 0,6	< 0,7	< 0,32	< 0,9	< 0,6
pK303	22/07/08	29/09/08	< 0,5	< 0,6	< 0,27	< 0,8	< 0,5
pK368	30/07/08	02/10/08	< 0,6	$0,9 \pm 0,3$	< 0,30	< 0,9	$0,7 \pm 0,5$

Tableau 4 (suite).

Point	date prélèvement	date mesure	^{134}Cs	^{137}Cs	^{154}Eu	^{54}Mn	^{106}Ru	^{124}Sb	^{125}Sb
BRQ	28/08/08	04/10/08	< 0,5	$5,1 \pm 0,6$	< 0,6	< 0,6	< 5	< 0,7	< 1,3
pK270	23/07/08	25/09/08	< 0,5	$0,75 \pm 0,23$	< 0,6	< 0,6	< 5	< 1,0	< 1,3
pK303	22/07/08	29/09/08	< 0,4	< 0,5	< 0,5	< 0,6	< 4	< 0,8	< 1,1
pK368	30/07/08	02/10/08	< 0,5	$3,7 \pm 0,4$	< 0,6	< 0,6	< 5	< 0,9	< 1,2

Tableau 5. Activités en radionucléides émetteurs gamma naturels ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}_{\text{sec}} \pm 2\sigma$), valeurs rapportées à la date du prélèvement dans les sédiments du port de Rouen (^{40}K , famille du ^{235}U , famille du ^{232}Th).

Point	date prélèvement	date mesure	^{40}K	^{235}U	^{227}Th	^{228}Ac	^{212}Pb	^{212}Bi	^{208}Tl
BRQ	28/08/08	04/10/08	279 ± 17	$1,7 \pm 1,4$	$< 2,9$	$27,6 \pm 2,3$	$29,1 \pm 1,7$	26 ± 5	$9,1 \pm 0,8$
pK270	23/07/08	25/09/08	67 ± 8	$2,8 \pm 1,3$	< 3	$6,7 \pm 1,5$	$7,8 \pm 0,7$	10 ± 4	$2,4 \pm 0,4$
pK303	22/07/08	29/09/08	254 ± 15	$1,9 \pm 1,4$	$< 2,2$	$20,1 \pm 1,7$	$23,0 \pm 1,4$	16 ± 4	$6,8 \pm 0,6$
pK368	30/07/08	02/10/08	326 ± 19	$< 2,4$	$< 2,4$	$17,5 \pm 1,7$	$23,5 \pm 1,5$	22 ± 4	$7,1 \pm 0,7$

Tableau 5 (suite).

Point	date prélèvement	date mesure	^{234}Th	$^{234\text{m}}\text{Pa}$	^{234}U	^{226}Ra	^{214}Pb	^{214}Bi	^{210}Pb
BRQ	28/08/08	04/10/08	15 ± 5	< 70	< 220	32 ± 18	$33,8 \pm 2,4$	$30,2 \pm 2,0$	63 ± 8
pK270	23/07/08	25/09/08	23 ± 6	50 ± 40	< 230	62 ± 19	62 ± 5	56 ± 4	68 ± 8
pK303	22/07/08	29/09/08	14 ± 5	50 ± 40	< 200	23 ± 18	$23,9 \pm 1,8$	$20,5 \pm 1,4$	16 ± 5
pK368	30/07/08	02/10/08	20 ± 6	< 60	< 230	< 11	$21,5 \pm 1,7$	$19,3 \pm 1,5$	33 ± 6

Tableau 6. Activités en radionucléides émetteurs alpha ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}_{\text{sec}} \pm 2\sigma$), valeurs rapportées à la date du prélèvement, dans les sédiments du port de Rouen.

Point	^{238}Pu	$^{239,240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu} / ^{239,240}\text{Pu}$	^{241}Am	$^{241}\text{Am} / ^{239,240}\text{Pu}$	^{244}Cm	^{210}Po
BRQ	$0,016 \pm 0,002$	$0,136 \pm 0,007$	$0,12 \pm 0,01$	$0,050 \pm 0,006$	$0,37 \pm 0,05$	$< 0,0009$	91 ± 5
pK270	$0,039 \pm 0,003$	$0,049 \pm 0,003$	$0,79 \pm 0,08$	$0,028 \pm 0,004$	$0,57 \pm 0,09$	$0,002 \pm 0,001$	156 ± 12
pK303	$< 0,0003$	$0,0004 \pm 0,0003$	-	$< 0,0015$	-	$< 0,0017$	39 ± 3
pK368	$0,180 \pm 0,008$	$0,559 \pm 0,022$	$0,32 \pm 0,02$	$0,703 \pm 0,059$	$1,26 \pm 0,12$	$0,028 \pm 0,006$	65 ± 4

Tableau 7. Activités en radionucléides émetteurs bêta, valeurs rapportées à la date du prélèvement, dans les sédiments du Port de Rouen.

Point	^3H lié ⁽¹⁾ Bq.L ⁻¹	^3H lié ⁽²⁾ Bq.Kg ⁻¹ _{sec}	^3H libre ⁽³⁾ Bq.L ⁻¹	^{90}Sr Bq.kg ⁻¹ _{sec}
BRQ	25,9 ± 1,1	1,58 ± 0,08	3,42 ± 1,17	< 0,81
pK270	56,7 ± 2,8	1,58 ± 0,08	< 2	< 3,58
pK303	1,9 ± 0,1	0,05 ± 0,01	3,76 ± 1,17	< 0,59
pK368	17,8 ± 0,9	0,58 ± 0,03	4,13 ± 1,18	< 0,87

⁽¹⁾ mesuré dans l'eau de combustion, ⁽²⁾ calculé fonction du % de H dans l'échantillon et de (1), ⁽³⁾ mesuré dans l'eau de lyophilisation

5 ANALYSE DES RESULTATS

5.1 COMMENTAIRES SUR LA ZONE DE PRELEVEMENT

Les sédiments ont été prélevés en Seine entre les points kilométriques 244 environ (port de Rouen) et le point kilométrique 368 à l'embouchure (Fig. 1) et fournis par le GPMR au LRC. Le point BRQ, au niveau du port de Rouen, se situe dans une zone potentielle de piégeage de vases (sédiment issu des dragages d'entretien du port). Les points pK270 et pK303 sont situés dans les méandres de la Seine, où différents faciès sédimentaires sont susceptibles d'être observés (Lesueur et al, 1999). Le point pK368 se trouve à l'aval du pont de Normandie, dans l'estuaire salé, au droit du cap de la Hève, où le fond est constitué de sables et de vases.

5.2 RAPPEL SUR L'ORIGINE DES PRINCIPAUX RADIONUCLÉIDES MESURES DANS CETTE ETUDE

5.2.1 RADIONUCLÉIDES ARTIFICIELS

Les principaux radionucléides émetteurs gamma d'origine artificielle qui peuvent être quantifiés actuellement dans les sédiments sont le cobalt 60 (^{60}Co), le césium 137 (^{137}Cs) et l'américium 241 (^{241}Am) de période radioactive 5,27 ans, 30,15 ans et 432 ans respectivement. Ils sont introduits en baie de Seine depuis le bassin versant de la Seine et les fleuves côtiers. ^{137}Cs provient des retombées atmosphériques des essais d'armes nucléaires et, dans une moindre mesure, des retombées de l'accident de Tchernobyl ainsi que des rejets liquides de la centrale EDF de Nogent (CNPE Nogent). ^{60}Co est introduit dans la Seine par la centrale EDF de Nogent et par les apports marins de la Manche (^{60}Co , ^{137}Cs et ^{241}Am sont rejetés en mer par l'usine de traitement des combustibles usés AREVA NC de La Hague et le site nucléaire de Winfrith maintenant en arrêt, et les retombées de ^{137}Cs des essais atmosphériques d'armes nucléaires alimentent également le domaine marin). Le tableau 8 donne, à titre indicatif, les valeurs des rejets liquides respectifs de l'usine de retraitement de combustible AREVA NC La Hague et du CNPE de Nogent sur Seine pour l'année 2005 ; on remarquera les rejets beaucoup plus importants de l'usine de La Hague. Il faut noter que les teneurs en ^{137}Cs dans les sédiments en amont et en aval du CNPE de Nogent montrent peu de différences, et que l'impact des rejets de ^{137}Cs de la centrale n'est pas détectable même à proximité immédiate de l'installation (Boust *et al.*, 2007). Il est donc logique d'en conclure qu'il ne le sera pas non plus à plus grande distance après mélange du stock sédimentaire avec les autres apports sédimentaires du bassin versant. De même, l'impact des rejets de ^{60}Co par le CNPE Nogent n'est décelable qu'à très courte distance en aval de l'installation ; le ^{60}Co n'est pas détectable plus en aval dans la Seine (Boust, 2002 ; Boust *et al.*, 2007). Les concentrations de ces différents radionucléides sont variables et dépendent fortement de l'abondance de la fraction fine des sédiments.

Le tritium (^3H) et l'antimoine (^{125}Sb), de période radioactive 12,35 ans et 2,73 ans respectivement, sont rejetés en milieu marin par l'usine de traitement des combustibles usés AREVA NC de La Hague. Le tritium est également rejeté par les centrales nucléaires en moindre quantité (Tab. 8) et est aussi produit dans la haute atmosphère sous l'effet du rayonnement cosmique. Ces deux radionucléides sont parfaitement solubles dans l'eau et ne s'associent pas ou très peu avec les particules. Le cobalt 58 (^{58}Co) est rejeté dans les effluents liquides par les centrales nucléaires et l'usine de traitement de combustibles nucléaires de La Hague. Sa période radioactive est très courte (7,1 jours) et sa présence ne peut témoigner que de rejets très récents.

Tableau 8. Rejets liquides de l'usine AREVA NC La Hague et du CNPE Nogent sur Seine en GBq pour l'année 2005 en ^3H , ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{125}Sb , ^{241}Am .

	^3H	^{137}Cs	^{60}Co	^{125}Sb	^{241}Am
Rejet liquide AREVA NC : 2005	$1,35 \cdot 10^7$	710	230	96	3
Rejet liquide EDF Nogent : 2005	$5,41 \cdot 10^4$	0,04	0,138	0,039	-

Le ^{90}Sr , élément d'origine artificielle (émetteur bêta ; période 28,5 ans) est rejeté dans le milieu marin depuis plusieurs décennies par l'industrie nucléaire. Il peut, de par les mouvements des masses d'eau, pénétrer dans l'estuaire salé en Seine. Il était aussi présent dans les retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires. Cet élément est cependant parfaitement conservatif et soluble dans l'eau de mer, et s'adsorbe peu sur les particules en suspension.

^{131}I (période 8 jours) est notamment utilisé en médecine nucléaire pour des radiodiagnostic et des radiothérapies. Malgré les précautions prises par les établissements hospitaliers et le passage des eaux usées par les STEP, ^{131}I peut potentiellement se retrouver dans l'environnement du fait de l'élimination du radionucléide par les patients (urines, selles, etc...). Sa présence témoigne de rejets et dépôts récents.

Les isotopes du plutonium ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu ont aussi été recherchés dans cette étude. Ces radionucléides sont issus de l'utilisation civile ou militaire de l'énergie nucléaire. Ils sont produits dans les centrales nucléaires et dans les usines de retraitement de combustibles usés. Les plutoniums étaient aussi présents dans les retombées atmosphériques provenant des essais d'armes nucléaires, et pour une faible part, dans des accidents comme celui de Tchernobyl. La connaissance de certains rapports isotopiques ($^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$, par exemple) peut permettre d'identifier l'origine des radionucléides mesurés ; ainsi le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ lié aux essais d'armes nucléaires est de l'ordre de 0,04. Le rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ issus des procédés de l'usine de retraitement de combustibles de La Hague était de l'ordre de 0,04 dans les années 60 et a augmenté jusqu'à 2 dans les années 1990; la rémanence de ces radionucléides dans les sédiments et la forte diminution des rejets depuis

la fin des années 1980 conduit à un rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ de l'ordre de 0,7 actuellement en Manche. Ces rapports isotopiques du plutonium ont été utilisés pour évaluer les temps de transit des stocks sédimentaires en Manche (Boust *et al.*, 1997), qui ont été estimés à 10 ans entre le secteur de Cherbourg (à proximité de l'usine de retraitement AREVA NC La Hague) et l'embouchure de la Seine.

Le ^{54}Mn (période 312 jours) est produit dans les réacteurs nucléaires et dans les usines de retraitement de combustibles ; il est rejeté sous forme liquide dans l'environnement et peut s'adsorber sur le sédiment.

5.2.2 RADIONUCLÉIDES NATURELS

Le ^{214}Pb , le ^{214}Bi et le ^{210}Pb font partie de la chaîne de l' ^{238}U avec lequel ils ont atteint l'équilibre séculaire (activités égales). Les activités en ^{214}Bi et ^{214}Pb sont donc normalement identiques. Dans les sédiments marins, le ^{210}Pb (période de 22,2 ans) est produit par décroissance de l' ^{238}U . Il peut aussi provenir des retombées d'aérosols sur les milieux terrestres et marins après avoir été produit par le radon ^{222}Rn émis par les continents. Enfin, le ^{210}Pb dans les sédiments marins peut aussi être issu des processus industriels, comme l'industrie des phosphates (phosphogypses), qui entraînent des modifications de la chaîne de ^{238}U . Un excès de ^{210}Pb est généralement observé dans les sédiments marins en conséquence de son introduction dans la colonne d'eau par des retombées atmosphériques d'origine tellurique. L'excès de ^{210}Pb peut aussi être lié à la présence dans le milieu de particules dans lesquels l'équilibre entre les descendants de l'uranium a été perturbé par un traitement industriel, comme c'est le cas des phosphogypses. Le ^{40}K est un radionucléide naturel de longue période ($1,26 \times 10^9$ ans) qui a le même comportement et les mêmes phases porteuses que son isotope stable, le ^{39}K .

Le ^{210}Po fait partie de la chaîne radioactive de ^{238}U dont il est un descendant, et peut donc être alimenté par ses ascendants à vie longue. Le ^{210}Po peut aussi avoir une origine industrielle et a déjà été trouvé en quantité importante dans les sédiments de la baie de Seine lorsque l'industrie des phosphogypses était implantée en Seine.

Les radionucléides ^{228}Ac , ^{212}Pb , ^{212}Bi , ^{208}Tl , radionucléides à vie courte, sont issus de la décroissance radioactive de ^{232}Th .

5.3 DISCUSSION DES RESULTATS ACQUIS

5.3.1 DONNEES BRUTES

Les teneurs en ^{40}K varient de $67 \pm 8 \text{ Bq.kg}^{-1}$ au pK270 à $326 \pm 19 \text{ Bq.kg}^{-1}$ au pK368. Globalement, ces activités sont faibles (Tab. 5), à l'exception du pK368, et indiquent des sédiments avec une composante argileuse modérée. Le sédiment pK270, constitué principalement de silice et ne comportant pas d'argile présente l'activité en ^{40}K la plus faible. Le sédiment pK368, de type vase et comportant donc plus de particules fine renferme lui l'activité en ^{40}K la plus élevée, les deux sédiments BRQ et pK303 présentant des activités intermédiaires.

5.3.1.1 Radionucléides à vie courte

Pour ^7Be et ^{131}I , dont les périodes radioactives sont respectivement de 53 et 8 jours, les analyses par spectrométrie gamma ont été effectuées entre 10 et 25 jours après le prélèvement. Le ^7Be présente des activités plus importantes dans le sédiment BRQ ($45,6 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$) comparé aux autres sédiments, notamment pK270 et pK303 (respectivement $< 2,6$ et $< 2,1 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$). Ceci indique des dépôts plus récents de particules au point BRQ (sédiment issu des dragages d'entretien) et, dans une moindre mesure, au point pK368 ($9,4 \pm 1,2 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$). Pour ^{131}I , pour la seule valeur quantifiée de manière significative au point BRQ, l'activité dans le sédiment est faible ($0,9 \pm 0,6 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$) mais détectable, témoignant d'un très léger marquage et donc, du fait de la très courte période de ^{131}I , de l'influence d'apport très récent. A titre de comparaison, des mesures sur les matières en suspension collectées à l'île Lacroix à Rouen, de décembre 1997 à avril 1999, ont permis de mesurer régulièrement des activités variant de quelques Bq.kg^{-1} à quelques dizaines de Bq.kg^{-1} (Debayle *et al.*, 2008). Pour les deux autres sédiments pK270 et pK303, qui sont des sédiments plus anciens (sédiments fossiles), il est logique de ne pas détecter ces deux radionucléides.

5.3.1.2 Radionucléides artificiels

Les valeurs de ^{60}Co sont toutes proches de la limite de détection avec une seule valeur quantifiée de $0,7 \pm 0,5 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$ au point pK368 et des valeurs inférieures à $0,6 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$ aux trois autres points. Ces activités sont dans la gamme de celles rencontrées dans des sédiments de la Manche. Le principal apport de ^{60}Co dans cette zone géographique est dû aux rejets de l'usine AREVA NC la Hague, et on notera que la valeur la plus élevée a été observé au pK368, au point le plus aval. Des mesures effectuées en Seine, pour des points kilométriques proches variaient de $< 0,9$ à $2,7 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$ (Boust *et al.*, 2007).

^{125}Sb et ^{58}Co présentent des valeurs systématiquement inférieures aux limites de détection aux 4 points, respectivement inférieures à $1,3 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$, et inférieures à $0,9 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$.

Les valeurs de ^{137}Cs varient de $< 0,5$ à $5,1 \pm 0,6 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$. Les valeurs les plus élevées sont observées aux points BRQ ($5,1 \pm 0,6 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$) et pK368 ($3,7 \pm 0,4 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$). Les valeurs les plus faibles ($< 0,5$ et $0,75 \pm 0,23 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$) sont observées respectivement aux points pK303 et pK270, sur des sédiments fossiles anciens. Ces différences d'activité s'expliquent donc par la nature et l'ancienneté du sédiment ; les sédiments BRQ et pK368 sont des sédiments vaseux, plus fins que les sédiments pK303 et pK270, et donc plus à même de fixer les radionucléides comme le ^{137}Cs , et de plus sont plus récents (confirmé par l'activité de ^7Be pour le point BRQ notamment) ou plus influencés du fait de sa position par les rejets marins de l'usine AREVA NC La Hague pour le point pK368. Les activités mesurées sont dans la gamme de celles obtenues dans des sédiments de la Seine par Boust *et al.* (2007) pour des prélèvements effectués à des points kilométriques proches (valeurs variant de 3 à $9 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$).

Les activités en ^{241}Am varient de $< 0,0015$ à $0,703 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$ (Tab. 6). La valeur la plus élevée est mesurée sur le site le plus marin au pK368, traduisant l'influence plus marquée des rejets de l'usine AREVA NC La Hague. Cette valeur est similaire aux teneurs déjà mesurées en 2005 dans la même zone (de 0,8 à $1,2 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$ entre les pK361 et pK368, Boust *et al.*, 2007) et signe le marquage des sédiments par les rejets de l'usine AREVA NC La Hague. Une valeur très faible est observée au point pK303, comparée aux valeurs pK270 et BRQ, traduisant le caractère très ancien de ce sédiment, peu marqué par ce radionucléide.

Les mesures de ^{244}Cm indiquent des activités faibles aux trois points BRQ, pK270 et pK303 ($< 0,002 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$), et une activité légèrement plus élevée au pK368 ($0,028 \pm 0,006 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$) traduisant pour ce radionucléide aussi l'influence de l'usine de retraitement AREVA NC de la Hague.

Les teneurs en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ sont présentés dans le tableau 6. Comme pour ^{241}Am , les teneurs les plus élevées sont mesurées au point pK368 (respectivement $0,180$ et $0,559 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$ en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$), le plus influencé par les rejets marins de l'usine AREVA NC La Hague. Les trois autres points présentent des activités beaucoup plus faibles ($< 0,039$ et $< 0,136 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$ en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$). Le point pK303, comme pour les autres radionucléides artificiels présente l'activité la plus faible. Les rapports isotopiques (RI) $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ varient de 0,12 au point BRQ à 0,32 au point pK368 d'amont en aval, avec une valeur plus élevée de 0,79 au point pK270. Ces rapports isotopiques sont conformes avec ceux mesurés par Boust *et al.* (2007) à l'exception du RI=0,79 calculé pour le pK270, qui paraît élevé, sans que l'on dispose d'éléments pouvant l'expliquer. Ces rapports indiquent des sédiments qui portent à des degrés divers l'empreinte de particules marines marquées par les rejets de l'usine AREVA NC La Hague. Les rapports $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ ont aussi été calculés (Tab. 6). Ils sont également

cohérents avec les rapports obtenus par Boust *et al.* (2007), compris entre 1 et 2,3 pour des stations de l'embouchure (correspondant au point pK368).

Les activités de ^{90}Sr sont présentées dans le tableau 7 et sont toutes inférieures aux limites de détection. L'échantillon de sédiment pK270 contenant probablement des traces d'hydrocarbures, la radiochimie s'est avérée délicate et la LD pour cet échantillon est plus élevée ($< 3,58 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$) que pour les autres sédiments ($< 0,59$ à $< 0,87 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$).

5.3.1.3 Radionucléides naturels

Les activités en radionucléides des chaînes naturelles de ^{232}Th , ^{235}U et ^{238}U sont présentées dans le tableau 5.

On notera pour les éléments de la chaîne de ^{232}Th une différence marquée entre le point pK270 et les trois autres points avec des activités en ^{228}Ac , ^{212}Pb , ^{212}Bi , ^{208}Tl plus faibles au pK270 ; ceci est lié à la composition du sédiment présentant une part plus faible de fraction fine (valeur de ^{40}K également plus faible). Excepté cette remarque, les éléments ^{228}Ac , ^{212}Pb , ^{212}Bi sont à l'équilibre dans les sédiments étudiés.

Les éléments de la famille de ^{238}U (^{234}Th , ^{226}Ra , ^{214}Pb , ^{214}Bi) indiquent un équilibre entre ^{226}Ra , ^{214}Pb , ^{214}Bi pour les 4 sédiments prélevés, mais ces trois éléments ne sont pas à l'équilibre avec leur ascendant ^{234}Th , qui présente des activités plus faibles, à l'exception du point pK368 le plus marin. Dans le fleuve, un déséquilibre est donc mis en évidence, avec même un excès significatif de ^{210}Pb au point BRQ notamment. Ce déséquilibre est le plus flagrant au point pK270. Ce déséquilibre dans la chaîne de ^{238}U pourrait signer l'influence des rejets anciens de phosphogypses. Les valeurs de ^{210}Po (Tab. 6) indiquent des valeurs variant de 39 à $156 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$ avec les valeurs les plus élevées correspondant aux sédiments comprenant les fortes activités de ^{210}Pb , ascendant du ^{210}Po . Ces valeurs de ^{210}Po peuvent être comparées avec des teneurs comprises entre 75 et $85 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$ mesurées à Grand Couronne dans des sédiments de la Seine en 1990 (Germain *et al.*, 1995). En comparaison, à proximité de rejet de phosphogypses en 1990, des teneurs de $1050 \text{ Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$ étaient mesurées (Germain *et al.*, 1995).

5.3.1.4 Tritium

Les activités de ^3H libre (eaux de lyophilisation du sédiment) sont données dans le tableau 7. Les activités sont significatives sur 3 des échantillons et de l'ordre de 3 à 4 Bq.L^{-1} , valeurs caractéristiques pour un bassin versant soumis aux retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires. Les activités de ^3H libre dans l'eau de pluie avant ces essais étaient nettement inférieures à 1 Bq.L^{-1} .

Les activités en ^3H lié à la matière organique du sédiment sont données dans le tableau 7, et sont exprimées en Bq.L^{-1} (activité rapportée à un litre d'eau de combustion de la matière

organique) et en $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$ (valeurs déduites de la mesure dans l'eau de combustion). Globalement, on remarque que les activités en ^3H lié (eau de combustion) sont nettement plus élevées que celles mesurées dans les eaux libres sauf pour le sédiment pk303 (argile fossile).

Les sédiments BRQ et pk270 (points les plus amont de l'étude) présentent des activités de tritium lié plus élevées ($25,9 \pm 1,3$ et $56,7 \pm 2,8 \text{ Bq.L}^{-1}$, respectivement) que celles mesurées dans les sédiments pk303 et pk368 (respectivement $1,9 \pm 0,1$ et $17,8 \pm 0,9 \text{ Bq.L}^{-1}$). Les activités dans les sédiments pk270, BRQ et, à un degré moindre, pk368, témoignent d'un marquage de la matière organique (plus ou moins ancien) par le tritium. En 1981, les activités en ^3H libre dans l'eau de Seine, à l'amont de Paris étaient encore de l'ordre de 10 à 30 Bq.L^{-1} (Pally et Lambrechts, 1997).

La Seine étant le réceptacle d'un bassin versant fortement anthropisé, d'autres sources de tritium peuvent s'ajouter à la contribution des retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires : l'utilisation de molécules marquées (laboratoires de recherche, industries), l'utilisation de peintures tritiées (interdites aujourd'hui mais qui utilisées par le passé ont pu marquer le sédiment), sans exclure les rejets des CNPE (Nogent sur Seine, en amont).

5.3.2 ASPECTS REGLEMENTAIRES

En termes de réglementation, il n'existe pas à l'heure actuelle de document officiel concernant les activités limites et/ou autorisées en radionucléides dans des sédiments. Actuellement, selon l'ANDRA (Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs) et l'Autorité de Sûreté Nucléaire (ASN, 2006 ; rapport annuel), les déchets radioactifs dits de très faible activité (TFA) ont des activités comprises entre 1000 et 100 000 $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$. Les sédiments prélevés lors du dragage du chenal d'accès au port de Rouen n'entrent pas dans cette catégorie.

6 CONCLUSION

Les résultats des mesures en radionucléides obtenus dans 4 sédiments de dragage du chenal d'accès au Grand Port Maritime de Rouen ont été présentés et discutés dans ce rapport. Sur la base des résultats obtenus, il n'apparaît pas d'anomalies dans les valeurs mesurées, qui sont faibles pour l'ensemble des radionucléides mesurés. Les sédiments pk368 et BRQ présentent généralement les valeurs les plus élevées en radionucléides artificiels, liées en partie à leurs granulométries plus fines (sédiments vaseux), pour le sédiment pk368 au fait qu'il est le plus soumis à l'impact des rejets de l'usine AREVA NC La Hague de par sa position aval, et pour le sédiment BRQ car il apparaît comme le sédiment le plus récent des 4 échantillonnés. Pour les radionucléides naturels, le sédiment pk270 semble présenter une certaine particularité par rapport aux autres sédiments, avec des valeurs plus faibles pour les éléments de la chaîne du ^{232}Th (^{228}Ac , ^{212}Pb , ^{212}Bi , ^{208}Tl), et plus élevées pour les éléments de

la chaîne de ^{238}U (^{214}Pb , ^{241}Bi , ^{210}Pb) avec un déséquilibre marqué, qui pourrait être lié à l'influence des rejets anciens de phosphogypses. Le sédiment pK303, qui présente les activités les plus faibles en radionucléides artificiels, présente les caractéristiques d'un sédiment fossile. En conclusion, cette étude, qui avait pour but de mesurer des radionucléides artificiels et naturels dans des sédiments de dragage afin d'appuyer une expertise radioécologique, ne montre aucune anomalie particulière ; d'un point de vue réglementaire, ces sédiments ne peuvent pas être considérés comme des déchets radioactifs. Il convient d'insister sur le fait que ce document ne constitue pas une évaluation du risque environnemental lié à la présence dans le lit de la Seine des matériaux étudiés, à leur déplacement, à leur entreposage ou à leur utilisation finale.

7 REFERENCES

ASN, 2006. Autorité de Sûreté Nucléaire, rapport annuel 2006. Disponible sur <http://www.asn.fr/>

Boust D., Colin C., Leclerc G., Baron Y., 1997. Distribution and transit times of plutonium-bearing particles throughout the Channel. Radioprotection 32, special issue "Radionuclides in the Ocean's", 123-128.

Boust D., Lesueur P., Rozet M., Solier L., Ficht A., 2002. The dynamics of ^{60}Co -labelled sediment particles in the Seine estuary. Radioprotection, colloques, 37, C1, 749-754.

Boust D., Brunaud C., Lesueur P., Tessier B., Sorrel P., Dugué O., Poupinet N., Thouroude C., Lafite R., Laignel B., Durand A., Raux J., Deloffre J., Simon M., Rozet M., Solier L., 2007. Projet MEDIUM - Etude du mélange et de la dispersion des sédiments par l'utilisation de marqueurs particuliers dans l'estuaire de la Seine. Rapport Seine Aval, contrat I-2004-005, 125pp.

Boust D., Brunaud C., Lesueur P., Tessier B., Sorrel P., Dugué O., Poupinet N., Thouroude C., Lafite R., Laignel B., Durand A., Raux J., Deloffre J., Simon M., Rozet M., Solier L., 2008. Synthèse Projet MEDIUM 2007 - Etude du mélange et de la dispersion des sédiments par l'utilisation de marqueurs particuliers dans l'estuaire de la Seine. Rapport Seine Aval, contrat I-2007-001, 74pp.

Debayle C., Boust D., Adam C., Beaugelin-Seiller K., Garnier Laplace J., Manificat G., 2008. Les radionucléides de la classe des radiopharmaceutiques dans les stations d'épuration de grandes agglomérations françaises. Congrès "Les effluents liquides des établissements de santé : Etat des lieux et perspectives de gestion", Chambéry ,26-27 novembre 2008.

Germain, P., Leclerc, G., Simon, S., 1995. Transfer of polonium-210 into *Mytilus edulis* (L.) and *Fucus vesiculosus* (L.) from the baie de Seine (Channel coast of France). *Sci. Tot. Environ.*, 164, 109-123.

Lesueur P., Lesourd S., Auffret J.P., Avoine J., Bassoulet P., Brun-Cottan J.C., Dupond J.P., Guézennec L., Lafite R., Poupinet N., 1999. Fascicule Seine aval 3 : Sables, Chenaux et vasières, 40pp.

Pally M. et Lambrechts A., 1997. Bilan radioécologique décennal du Centre Nucléaire de Production d'Electricité de Nogent-sur-Seine. Rapport SERE 98/022, 193pp.

LISTE DES FIGURES

Figure 1. Localisation des points de prélèvement.	7
--	---

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1. Coordonnées géographiques des points de prélèvement (en coordonnées Lambert I et degrés décimaux WGS84).	7
Tableau 2. Code mesure, laboratoire de mesure et N° du rapport d'essai.	9
Tableau 3. Activités en radionucléides émetteurs gamma à vie courte (^7Be et ^{131}I) (en $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}} \pm 2\sigma$), valeurs rapportées à la date du prélèvement) dans les sédiments du port de Rouen.	10
Tableau 4. Activités en radionucléides émetteurs gamma artificiels ($\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}} \pm 2\sigma$), valeurs rapportées à la date du prélèvement) dans les sédiments du port de Rouen.	10
Tableau 5. Activités en radionucléides émetteurs gamma naturels ($\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}} \pm 2\sigma$), valeurs rapportées à la date du prélèvement) dans les sédiments du port de Rouen (^{40}K , famille du ^{235}U , famille du ^{232}Th).	11
Tableau 6. Activités en radionucléides émetteurs alpha ($\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}} \pm 2\sigma$), valeurs rapportées à la date du prélèvement) dans les sédiments du port de Rouen.	11
Tableau 7. Activités en radionucléides émetteurs bêta ($\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}} \pm 2\sigma$), valeurs rapportées à la date du prélèvement) dans les sédiments du port de Rouen.	12

ANNEXE 1: RADIONUCLÉIDES MESURÉS DURANT CETTE ÉTUDE

Tableau A1. Code mesure GAART ; radionucléides émetteurs gamma artificiels.

Symbole	Nom	Période
^{110m} Ag	Argent	249,8 jours
²⁴¹ Am	Américium	432,7 ans
⁵⁷ Co	Cobalt	271,8 jours
⁶⁰ Co	Cobalt	5,27 ans
¹³⁴ Cs	Césium	2,07 ans
¹³⁷ Cs	Césium	30,2 ans
¹⁵⁴ Eu	Europium	8,6 ans
¹³¹ I	Iode	8,0 jours
⁵⁴ Mn	Manganèse	312,2 jours
¹⁰⁶ Ru- ¹⁰⁶ Rh	Ruthénium - Rhodium	372,6 jours
¹²⁴ Sb	Antimoine	60,2 jours
¹²⁵ Sb	Antimoine	2,8 ans

Tableau A2. Code mesure GANAT ; radionucléides émetteurs gamma naturels

Symbole	Nom	Période
<i>Radionucléides de faible masse</i>		
⁷ Be	Béryllium	53,2 jours
⁴⁰ K	Potassium	1,3 10 ⁹ ans
<i>Famille ²³²Th</i>		
²²⁸ Ac	Actinium	6,2 heures
²¹² Pb	Plomb	10,6 heures
²¹² Bi	Bismuth	60,6 min
²⁰⁸ Tl	Thallium	3,1 min
<i>Famille ²³⁸U</i>		
²³⁴ Th	Thorium	24,1 jours
^{234m} Pa	Proactinium	1,2 min
²³⁴ U	Uranium	2,5 10 ⁵ ans
²²⁶ Ra	Radium	1600 ans
²¹⁴ Pb	Plomb	26,8 min
²¹² Bi	Bismuth	19,9 min
²¹⁰ Pb	Plomb	22,2 ans
<i>Famille ²³⁵U</i>		
²³⁵ U	Uranium	7,0 10 ⁸ ans
²²⁷ Th	Thorium	24,1 jours

Tableau A3. Code mesure ALART, ALNAT (^{210}Po) ; radionucléides émetteurs alpha.

Symbole	Nom	Période
^{238}Pu	Plutonium	87,7 ans
^{239}Pu	Plutonium	24400 ans
^{240}Pu	Plutonium	6537 ans
^{241}Pu	Plutonium	14,4 ans
^{210}Po	Polonium	138,4 jours
^{241}Am	Américium	432,7 ans

Tableau A4. Code mesure STRO, TRLIB, TRLIE ; radionucléides émetteurs bêta.

Symbole	Nom	Période
^{90}Sr	Strontium	28,5 ans
^3H libre	Tritium	12 ans
^3H lié	Tritium	12 ans