

Les sédiments des fleuves (ici le Rhône) témoignent de leur histoire sur plusieurs décennies.

Révéler la mémoire enfouie dans les sédiments

CONTEXTE

La très grande majorité des contaminants émis par les installations industrielles le long des grands fleuves se disperse et rejoint la mer. En revanche, une partie se fixe sur les sédiments et s'accumule là où ceux-ci se déposent : sur les marges alluviales natu-

relles, dans les ports, les écluses, les barrages... À partir de carottes sédimentaires, les chercheurs remontent le temps en tenant compte de la vitesse de sédimentation, de la nature et de la quantité de matière déposée en un temps donné.

Cahier partenaire
réalisé avec

IRSN
www.irsnn.fr

Depuis les années 2000, l'IRSN constitue une carothèque de prélèvements de sédiments des fleuves nucléarisés français. Le but ? Identifier des anomalies de rejets de radionucléides, remonter à leurs origines et reconstruire l'histoire des flux qui ont transité où se rejoignent les eaux de ces grands bassins-versants. Ces archives sédimentaires permettent d'analyser les radionucléides mais aussi toute une série d'autres contaminants persistants comme les microplastiques ou les métaux rares. Elles ont également permis d'établir des liens inattendus...

« **C**ela m'a empêché de dormir pendant plusieurs semaines... pourtant quand j'ai compris le phénomène en jeu, c'était d'une simplicité enfantine », avoue Frédérique Eyrolle, géochimiste à l'IRSN, un des instituts de référence en France sur les mesures des radionucléides dans les sédiments. Dans les années 2000, comme ses collègues de la communauté scientifique, la chercheuse s'interrogeait sur une rémanence du tritium dans des poissons.

Le tritium est un isotope* de l'hydrogène, le seul radioactif. En 2016, 81 % du tritium présent dans l'environnement était dû aux essais aériens d'armes nucléaires menés entre 1945 et 1980, 15 % à l'industrie (essentiellement nucléaire, mais aussi horlogère) et 4 % d'origine naturelle. Bien que les impacts sanitaires et environnementaux des rejets tritiés des installations nucléaires soient limités - car le tritium fait partie des radionucléides peu radiotoxiques -, des interrogations avaient vu le jour car plusieurs études avaient fait état de taux de tritium anormalement élevés dans des espèces marines de la baie de Cardiff (Royaume-Uni).

UNE MYSTÉRIEUSE CONTAMINATION AU TRITIUM

On considérait jusque-là que cet élément ne risquait pas de se concentrer dans des organismes vivants. En effet, ce radionucléide existe surtout à l'état d'eau tritiée, de formule chimique HTO (un atome d'hydrogène, un de tritium et un d'oxygène) et il est très facilement

interchangeable avec les autres isotopes de l'hydrogène. Ainsi, 99 % du tritium se trouve dans l'eau des océans. Le reste est en majeure partie à l'état de « tritium organiquement lié » (TOL), sous-entendu lié aux matières organiques, aux tissus, dès lors qu'une plante ou un animal assimile de l'eau tritiée. Du fait du caractère ubiquiste de l'hydrogène et de ses cinétiques rapides d'échanges et d'incorporation, les concentrations de ses différents isotopes sont supposées être à l'équilibre dans toutes les composantes de l'environnement. C'est donc le cas du tritium, qu'il soit libre (eau tritiée) ou lié à la matière organique (TOL). Pourquoi donc les poissons de la baie de Cardiff étaient-ils plus contaminés en TOL que l'eau de mer ?

« L'énigme demeurait sans réponse claire, j'ai commencé à travailler sur le tritium en 2012, mais à reculons... se rappelle Frédérique Eyrolle. Car ce radionucléide n'avait aucune raison de s'accumuler ni dans les sédiments ni dans les organismes vivants. Quand je me suis plongée dans la littérature scientifique, j'ai découvert qu'il avait été beaucoup étudié dans le monde et notamment depuis les années 1950 par les biologistes en vue de suivre la croissance végétale. »

La suite de l'histoire montre que, comme souvent dans la recherche scientifique, les découvertes paraissent fortuites... alors qu'elles sont le fruit d'un long cheminement. « Un jour, pour rechercher les traces des rejets tritiés des installations nucléaires, nous avons eu l'idée de rechercher le tritium organiquement lié dans une » ➤

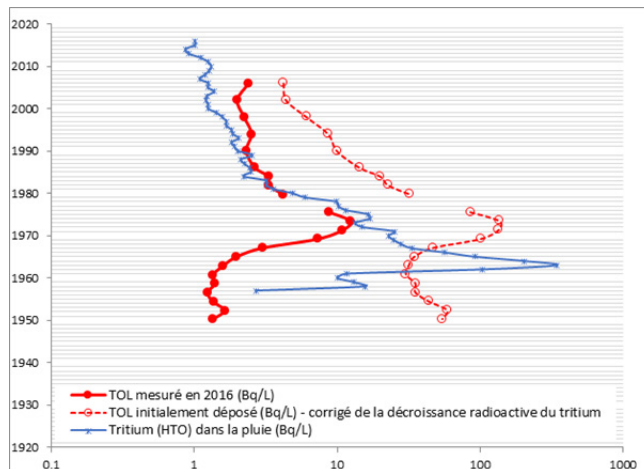
> de nos archives sédimentaires collectées sur les berges de la Loire, raconte-t-elle. Personne auparavant n'avait mesuré le TOL au sein d'une archive sédimentaire.»

Surprise! Au lieu de rejets tritiés en rapport avec l'activité de l'industrie nucléaire, les chercheurs observent un pic de TOL, parfait comme jamais, une superbe gaussienne culminant autour des années 1973. Ce qui leur saute aux yeux néanmoins, c'est le décalage observé avec le maximum des retombées atmosphériques des tirs nucléaires, dix ans plus tôt. Comment expliquer ce déphasage? Quel mécanisme aurait conduit ce tritium à s'accumuler dans les sédiments?

AU RYTHME DE LA NATURE

L'analyse de la littérature scientifique permet d'interpréter ces résultats: le transfert dans les sédiments a été différé de dix ans à cause du cycle biogéochimique du tritium dans les écosystèmes terrestres (voir infographie). Dix ans, c'est tout simplement le temps nécessaire pour que le tritium atmosphérique issu des tirs nucléaires soit assimilé par la végétation qui se développe sur le bassin-versant, restitué au sol sous forme de TOL, en particulier en automne, à la chute des feuilles, puis transféré par ruissellement et érosion vers les cours d'eau sous forme de matière organique non biodégradable. Ce sont ces composés organiques persistants, notamment ligneux et cellulotiques, que l'on retrouve dans la plupart des fleuves et au sein des archives sédimentaires. On parle de matière organique particulaire allochtone (par opposition à la matière organique autochtone, aquatique, comme le phytoplancton).

«Ce décalage est la preuve de la rémanence du tritium au sein de la matière organique pendant de nombreuses années, qu'elle soit vivante ou en cours de dégradation, explique la géochimiste: Indépendamment de la décroissance radioactive, cette rémanence dépend des taux de recyclage et des vitesses de dégradation de la matière organique.» Ainsi, le tritium libre sous forme d'eau tritiée transite très rapidement dans les masses d'eau alors que le TOL persiste dans les organismes vivants et détritués, tant que ceux-ci ne sont pas totalement dégradés. La plupart des contaminations en tritium organiquement lié ont pu être expliquées ainsi. Le cas de Cardiff était toutefois différent: les poissons avaient ingéré des molécules organiques (acides aminés) enrichies en tritium, très facilement bioassimilables, produites à des fins de recherche médicale par l'usine pharmaceutique locale, Nycomed Amersham plc.



On observe un déphasage de dix ans entre la radioactivité du tritium (en becquerel par litre, Bq/L) sous forme de HTO dans les gouttes de pluie, conséquence des essais nucléaires aériens (courbe bleue) et celle du TOL corrigée de la décroissance radioactive du tritium (courbe rouge et rouge pointillé).

«Cela dit, nous n'aurions pas pu mettre en évidence ce déphasage sans la toute nouvelle méthode de mesure du TOL, extrêmement précise, que notre Laboratoire de métrologie de la radioactivité dans l'environnement (LMRE) venait de mettre au point dans un tout autre contexte, pour un de mes doctorants», rappelle-t-elle. On ne peut comprendre que ce que l'on sait observer!

Frédérique Eyrolle publie ses résultats en 2019. Depuis, ces derniers sont consolidés à partir d'archives sédimentaires de la Seine, de la Moselle, de la Garonne et de la Meuse. Par ailleurs, avec un groupe d'experts internationaux, elle participe à la rédaction d'un ouvrage de synthèse des connaissances sur le comportement du tritium dans l'environnement pour le compte de l'Agence internationale de l'énergie atomique.

UN PRÉCIEUX ÉTAT DES LIEUX

«C'est la première fois qu'un déphasage dans le temps était mis en évidence entre une contamination de sédiments et l'événement qui en est à l'origine», fait-elle remarquer. Le tritium est-il atypique? Y a-t-il systématiquement concomitance entre la survenue d'une contamination et son enregistrement dans les sédiments? Connaissions-nous toutes les sources de contamination? Quelles ont été réellement les trajectoires des différents radionucléides qui ont transité dans les grands fleuves français nucléarisés durant l'ère nucléaire, soit les cent dernières années?



UNE COMMUNAUTÉ DE « CAROTTEURS » QUI PARTAGE SES PRATIQUES



Carottage sédimentaire sur les bords du Rhône.



Analyse en laboratoire des carottes sédimentaires.

« Depuis environ 2010, en France, nous travaillons tous de la même façon pour pouvoir comparer nos résultats, explique Frédérique Eyrolle. Nous partageons nos échantillons, nos méthodes et nos savoirs. » Par exemple, les analyses de succession de strates sédimentaires sont menées à partir d'imagerie hyperspectrale (caractérisant les constituants de l'archive à très haute résolution) et de spectrométrie de fluorescence des rayons X (XRF). Nous utilisons également les mêmes méthodes de datation : les deux pics de césium 137 (1963, maximum des retombées atmosphériques des essais nucléaires et 1986 pour celles liées à l'accident de Tchernobyl), les variations de plomb 210 en excès pour dater les strates entre ces 2 pics, mais aussi les grandes crues qui ont laissé des « passées sableuses ». La chronologie est ainsi reconstituée avec une précision de deux ou trois ans. Chacun mène par ailleurs ses propres analyses. À l'IRSN, elles s'effectuent au LMRE avec des techniques comme la spectrométrie alpha, bêta, gamma ou la spectrométrie de masse ICPMS. La chercheuse précise : *« Nos échantillons sont ensuite archivés sous vide, et les carottes, recouvertes d'un film, rejoignent notre carothèque à Cadarache, où elles sont conservées en chambre froide. »* Unique au monde, celle-ci réunit aujourd'hui près d'un millier d'échantillons provenant des différents fleuves français, certains préalables au développement de l'industrie nucléaire.

Pour le savoir, l'IRSN coordonne un ambitieux projet de recherche baptisé Trajectoire (2020-2024), financé par l'Agence nationale de la recherche : une analyse des contaminations en radionucléides à partir de carottes sédimentaires prélevées sur les sept grands bassins-versants français (Loire, Rhône, Rhin, Moselle, Seine, Meuse et Garonne), parfois sur une centaine d'années.

Parallèlement, sur la base de ces mêmes archives, deux partenaires, l'Institut méditerranéen d'océanologie d'Aix-Marseille-Université et le laboratoire Epoc (Environnements et paléoenvironnements océaniques et continentaux) de l'université de Bordeaux étudient les contaminations respectivement en microplastiques et en métaux rares tels que le platine et le gadolinium, utilisés à grande échelle dans de nombreuses technologies comme les smartphones, l'industrie éolienne ou photovoltaïque. *« Il est important de réunir des données dès que possible, souligne-t-elle. Car même si ces métaux ne sont qu'à l'état de traces comme dans nos smartphones, on peut s'attendre à une contamination croissante des sédiments au cours des prochaines décennies. De même, concernant les microplastiques, nous observons d'ores et déjà une croissance exponentielle de la contamination de tous les fleuves français. Sans savoir quand le pic sera atteint. »*

Quelle que soit la contamination, l'objectif est d'abord d'établir un état des lieux. Exemple avec les radionucléides : *« Pour tous ceux pour lesquels nous disposons d'une méthode de mesure (potassium, radio-carbone, descendants de l'uranium ou du thorium, etc.), nous déterminons les concentrations au fil du temps pour reconstruire l'histoire de la contamination, explique la chercheuse. Puis, en analysant la rapidité avec laquelle la contamination s'estompe, nous évaluons la capacité de résilience du milieu, le temps nécessaire pour qu'il retrouve l'état préalable à cette perturbation, à défaut, un état acceptable par la société. »* Et au fil de l'évolution des techniques de

mesure, cette carothèque permettra d'élucider des contaminations encore non documentées.

Un pic de potassium (^{40}K) sur le Rhin retient d'ores et déjà l'attention des chercheurs. *« Nous observons une augmentation du ^{40}K au milieu des années 1970, avec un pic vers 1986 puis une diminution pour atteindre aujourd'hui des niveaux très proches de ceux observés il y a un siècle, précise Frédérique Eyrolle. Nous cherchons à comprendre la cause exacte de ce pic et surtout ce qui a conduit à la résilience du fleuve. Le pic est très probablement lié à l'exploitation des grandes mines de potasse d'Alsace entre 1910 et 2002 pour produire des engrais pour l'agriculture. »*

UN OUTIL POUR PRÉVOIR LES CONSÉQUENCES DE NOS ACTES

Grâce à l'analyse du passé, dans le cadre de ce même projet, l'équipe se tourne vers le futur : elle développe des modèles prédictifs qui décriront l'influence de l'installation de nouvelles infrastructures, de nouveaux comportements sociétaux, ou encore de législations sur les concentrations des polluants dans l'environnement auxquelles il faudra s'attendre. *« Nous développons des analyses mathématiques basées sur des réseaux de neurones, précise Frédérique Eyrolle. Ces algorithmes d'apprentissage automatique (machine learning) seront entraînés à partir de nos données quantitatives de contaminations et de données tirées d'archives documentaires, susceptibles de renseigner sur l'historique des émissions polluantes (chroniques de rejets, évolution de production, aménagements industriels ou urbains, changements de réglementation, etc.). »*

Pour traiter ensemble ces données hétérogènes, le recours à l'intelligence artificielle s'avère précieux. *« Il permettra de rechercher les liens et les déphasages entre l'émission d'une contamination dans l'environnement et son archivage dans des sédiments, pour un certain nombre de polluants, résume la chercheuse. Grâce à ce modèle, nous serons capables de simuler, à l'échelle de plusieurs décennies, la contamination des fleuves selon différents scénarios de rejets en considérant aussi les changements climatiques et sociétaux attendus, autrement dit selon l'évolution de notre société et de nos comportements collectifs. »*

De quoi répondre à des questions : quelle sera l'influence de la variation de débits ou de la fréquence des crues de tel fleuve sur telle contamination ? Celle d'incendies d'ampleur, de politique de collecte et de recyclage de tel plastique, d'installation ou de démantèlement de tel type d'infrastructure, d'une législation, etc. *« Avec cet outil d'aide à la décision, nous serons en mesure d'interpréter de nouvelles contaminations et de renseigner les décideurs pour leur permettre d'anticiper les conséquences de leurs choix », conclut Frédérique Eyrolle ■*

*** Les isotopes sont des atomes ayant le même nombre d'électrons mais un nombre différent de neutrons. L'hydrogène a trois isotopes ayant respectivement 0,1 et 2 neutrons : le protium (composant de l'eau « légère », H_2O , stable), le deutérium (composant de l'eau « lourde », D_2O , stable) et le tritium (radioactif).**

RÉFÉRENCES

- > F. Eyrolle et al., Evidence for tritium persistence as organically bound forms in river sediments since the past nuclear weapon tests, *Scientific reports*, 2019. <https://doi.org/10.1038/s41598-019-47821-1>
- > A. Morereau et al., Trajectories of technogenic tritium in the Rhône River (France), *Journal of Environmental Radioactivity*, 2020. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2020.106370>
- > N. Ngoc Phuong et al., Highlights from a review of microplastics in marine sediments, *ScienceDirect*, 2021. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.146225>
- > S. Vauclin et al., Temporal trends of legacy and novel brominated flame retardants in sediments along the Rhône River corridor in France, *Chemosphere*, 2021. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2021.129889>