

## Trajectoires des Radionucléides $^{40}\text{K}$ , $^{90}\text{Sr}$ , Tritium organiquement lié et chaines U/Th

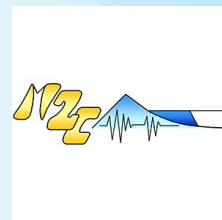
F. Eyrolle, D. Claval, et M. Zebracki (ASNR)

### Colloque final

11 juin 2025, Auditorium de l'ASNR de Fontenay-aux-Roses (92)

# ANR TRAJECTOIRE (2020-2025)

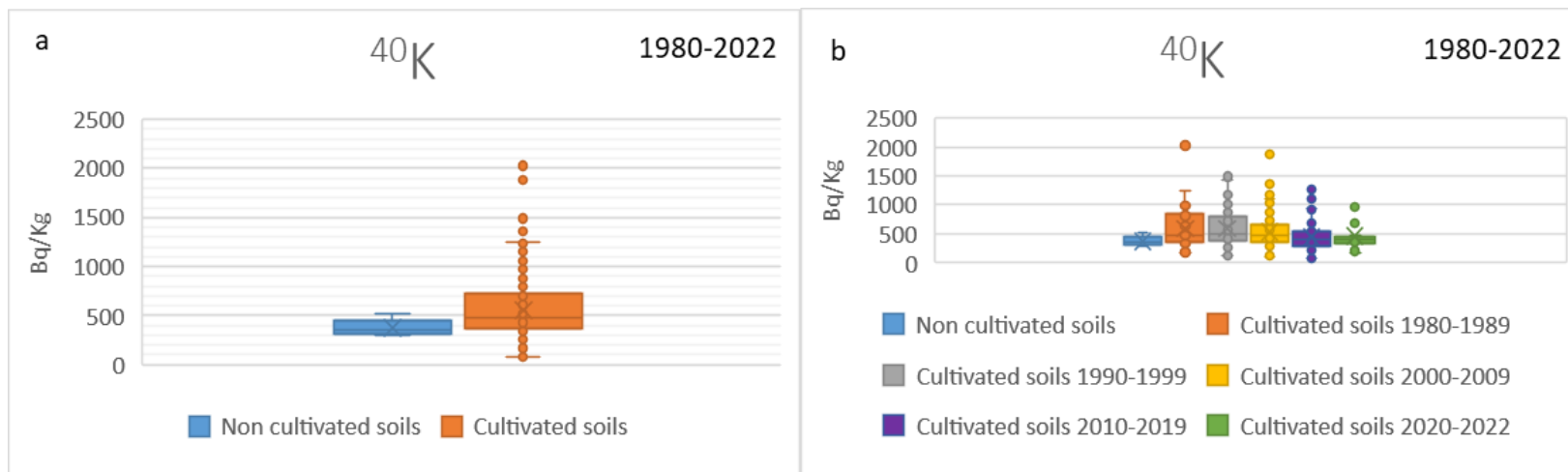
LE TÉMOIGNAGE DES ARCHIVES SÉDIMENTAIRES POUR MIEUX APPRÉHENDER  
L'IMPACT ENVIRONNEMENTAL DES NOUVELLES TECHNOLOGIES



# TRAJECTOIRES DES RADIONUCLÉIDES



## POTASSIUM 40 - $^{40}\text{K}$ Les traces de l'usage des engrais potassiques dans les sols



### Anthropogenic legacy of potassium-40 in French large rivers reconstructed from sediment cores

Frédérique Eyrolle<sup>a,\*</sup>, Amandine Morereau<sup>b</sup>, Mathilde Zebracki<sup>c</sup>, Valérie Nicoulaud Gouin<sup>a</sup>, Hugo Lepage<sup>a</sup>, Anne de Vismes<sup>d</sup>, Anne Meyer<sup>d</sup>, Emmanuelle Montarges-Pelletier<sup>e</sup>, François Chabaux<sup>f</sup>, Alexandra Coynel<sup>g</sup>, Maxime Debret<sup>h</sup>, Franck Giner<sup>a</sup>, Cécile Grosbois<sup>i</sup>, Rodolfo Gurriaran<sup>a</sup>, David Mourier<sup>a</sup>, Laurence Lestel<sup>b</sup>

<sup>a</sup> Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, FSE-ENV, STVAR/LRTA, BP 3, 13115, Saint Paul Les Durance, France

<sup>b</sup> METIS - Milieux environnementaux, transferts et interactions dans les hydrosystèmes et les sols, UMR 7619, Sorbonne Université, 75252 Paris, France

<sup>c</sup> Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, FSE-ENV/GPDR/LT2S, 13115 Saint-Paul-Les-Durance, France

<sup>d</sup> Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, FSE-ENV, SAME/LMRE, Bois des Ramas, 91400 Orsay, France

<sup>e</sup> Université de Lorraine CNRS Laboratoire interdisciplinaire des environnements continentaux (LIEC), Vandœuvre-lès-Nancy 54500, France

<sup>f</sup> Laboratoire d'Hydrologie et de Géochimie de Strasbourg (LHyGéS), UMR 7517, Ecole et Observatoire des Sciences de la Terre (EOST), Université de Strasbourg, France

<sup>g</sup> BPOC-TOM, UMR CNRS 5905, Pease, France

<sup>h</sup> CNRS-MSC lab. des Géosciences and Environnement, University of Rouen-Normandie, 76621 Mont Saint Aignan, France

<sup>i</sup> Université de Tours, UR 6293 Géohydrosciences Continentales (GéHCO), Parc de Grandmont, Cedex, Tours 37200, France

- **Sols cultivés\*** significativement enrichis en  $^{40}\text{K}$  / **sols non cultivés\*\*** (1980-2022 ; source : bdd SYRACUSE)
- **Diminution** progressive vers les valeurs de référence (sols NC) depuis les années 90

\* Sol maraîcher, Sol de verger, Sol de vigne, Sol de culture de plein-champs

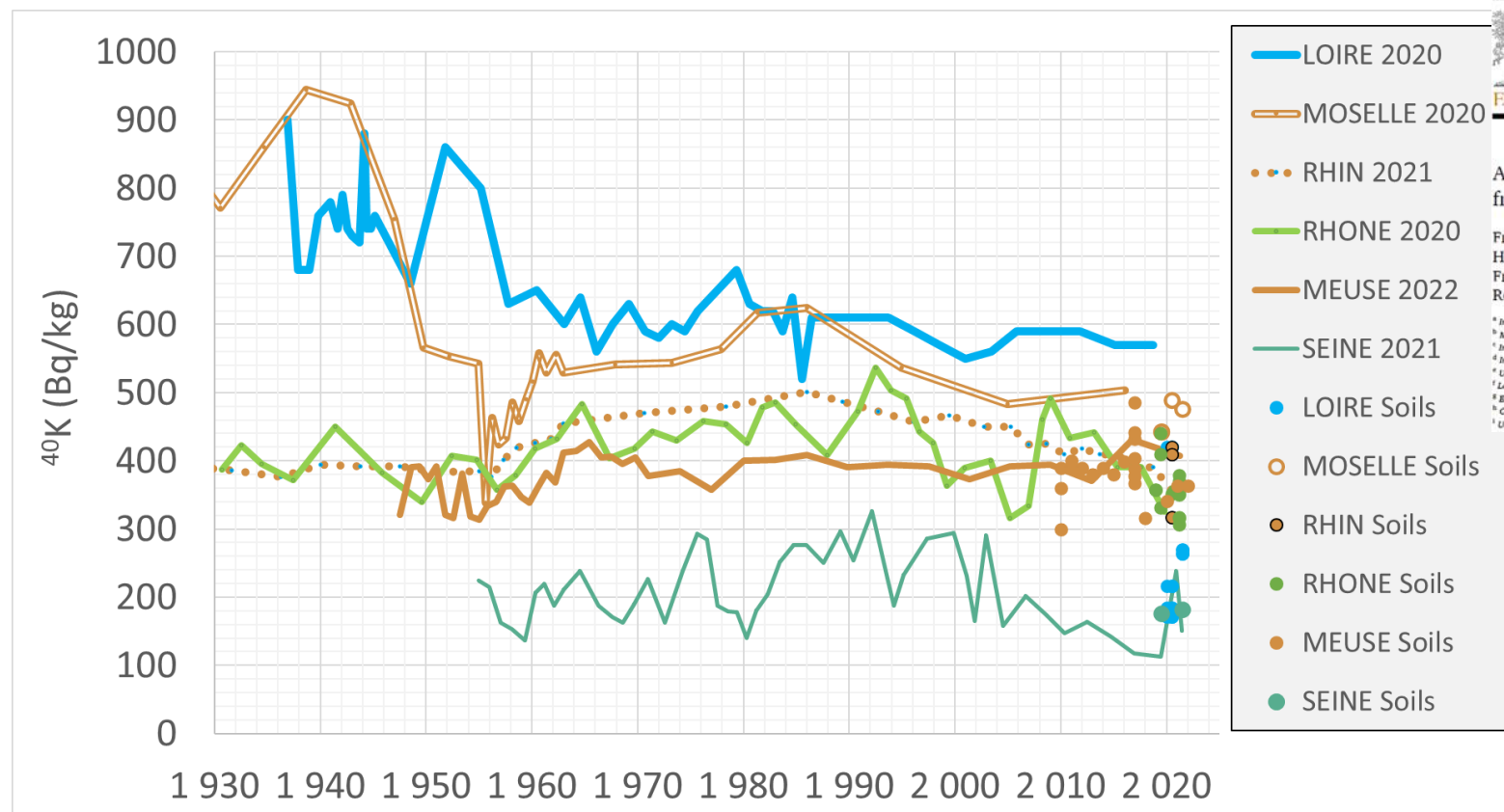
\*\* Sol de friche, Sol de marais, Sol de pâturage ou de prairie, Sol de pré salé, Sol de taillis, Sol de tourbière, Sol d'espace vert, Sol forestier



# TRAJECTOIRES DES RADIONUCLÉIDES



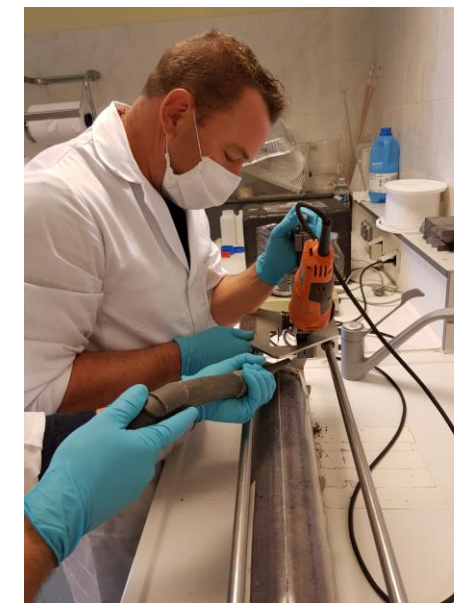
## POTASSIUM 40 - <sup>40</sup>K



### Anthropogenic legacy of potassium-40 in French large rivers reconstructed from sediment cores

Frédérique Eyrolle<sup>a,\*</sup>, Amandine Morereau<sup>b</sup>, Mathilde Zebracki<sup>c</sup>, Valérie Nicoulaud Gouin<sup>a</sup>, Hugo Lepage<sup>a</sup>, Anne de Vismes<sup>d</sup>, Anne Meyer<sup>d</sup>, Emmanuelle Montarges-Pelletier<sup>e</sup>, François Chabaux<sup>f</sup>, Alexandra Coynel<sup>g</sup>, Maxime Debret<sup>h</sup>, Franck Giner<sup>a</sup>, Cécile Grosbois<sup>i</sup>, Rodolfo Gurriaran<sup>a</sup>, David Mourier<sup>a</sup>, Laurence Lestel<sup>b</sup>

<sup>a</sup> Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, FSE-ENV, CEA-AR/LRTA, BP 3, 13115, Saint Paul Les Durance, France  
<sup>b</sup> METIS - Milieux Environnementaux, Transferts et Interactions dans les Hydrogènes et les sols, UMR 7619, Sorbonne Université, 75252 Paris, France  
<sup>c</sup> Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, FSE-ENV/SPDR/LT25, 13115 Saint-Paul-Les-Durance, France  
<sup>d</sup> Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, FSE-ENV, SAME/LMRE, Bois des Ramées, 91400 Orsay, France  
<sup>e</sup> Université de Lorraine CNRS Laboratoire Interdisciplinaire des Environnements Continentaux (LIEC), Vandœuvre-lès-Nancy 54500, France  
<sup>f</sup> Laboratoire d'Hydrologie et de Géochimie de Strasbourg (LHYGOS), UMR 7317, Ecole et Observatoire des Sciences de la Terre (EOST), Université de Strasbourg, France  
<sup>g</sup> IFOS-TOM, UMR CNRS 5005, France, France  
<sup>h</sup> CNRS-M2C lab. des Géosciences and Environment, University of Rouen-Normandie, 76621 Mont Saint Aignan, France  
<sup>i</sup> Université de Tours, UR 6293 Géohydrologie Continentale (GGHC), Parc de Grandmont, Cedex, Tours 37200, France



- Enrichissement sensible en <sup>40</sup>K entre 1970 et 2000 / sols de référence
- Maximum observé sur la période 1980-1990

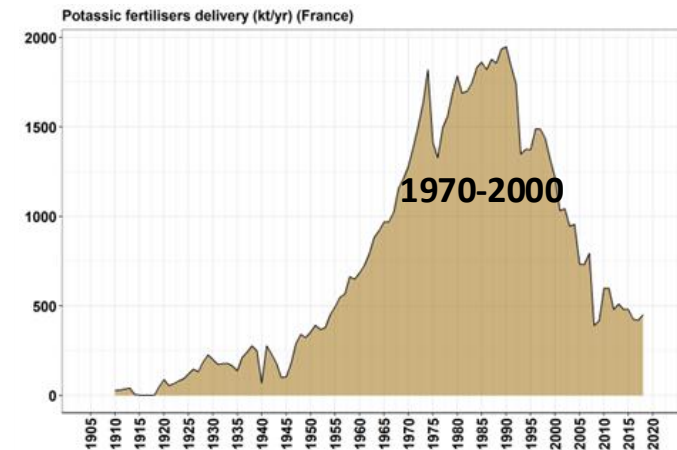
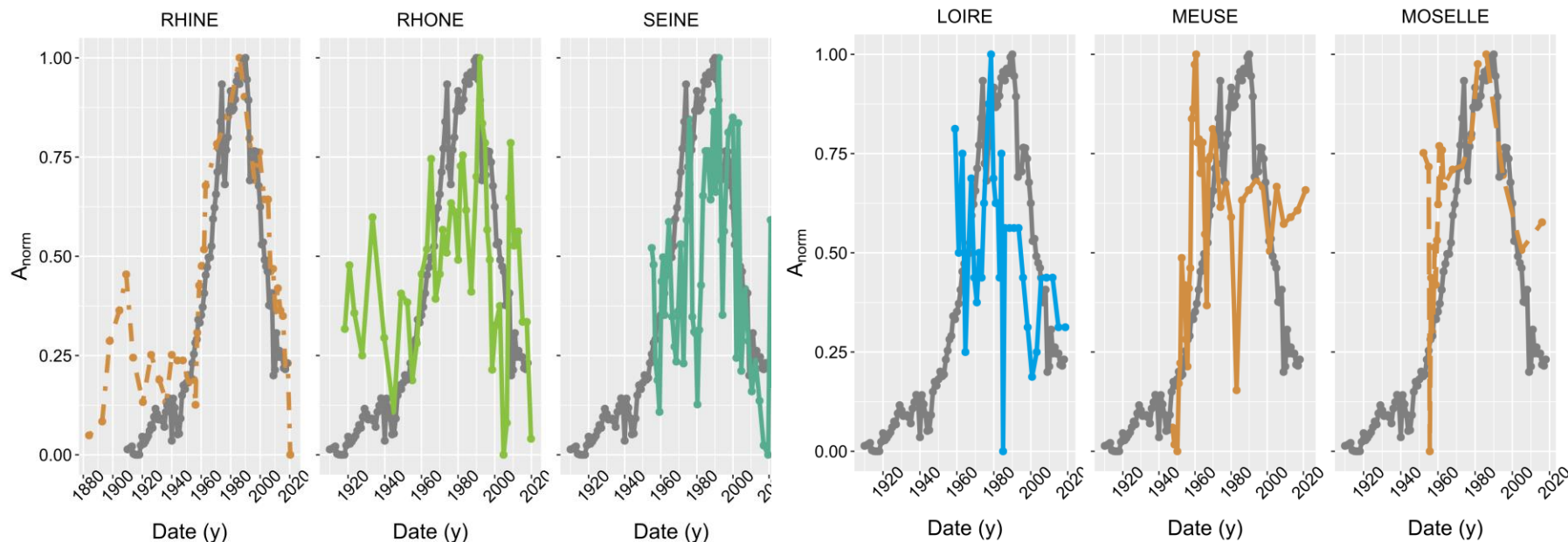


# TRAJECTOIRES DES RADIONUCLÉIDES

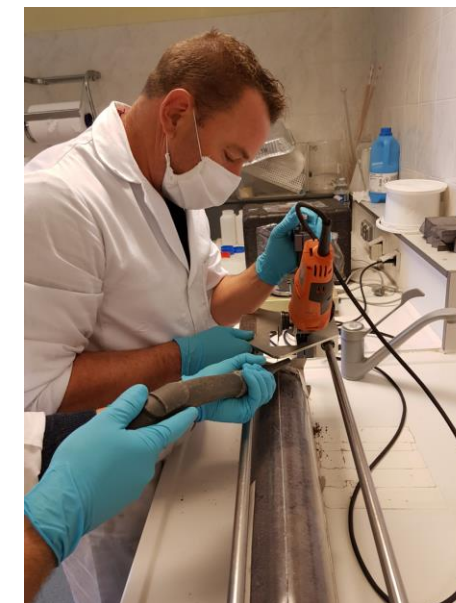


## POTASSIUM 40 - $^{40}\text{K}$

Un lien avec les livraisons d'oxyde de potassium en France



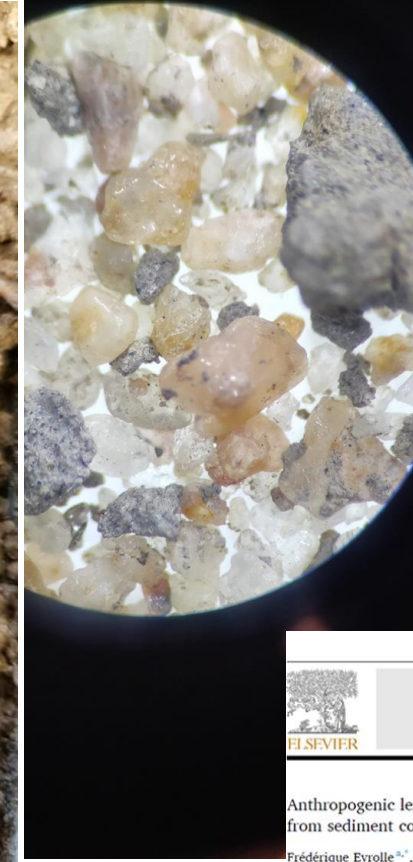
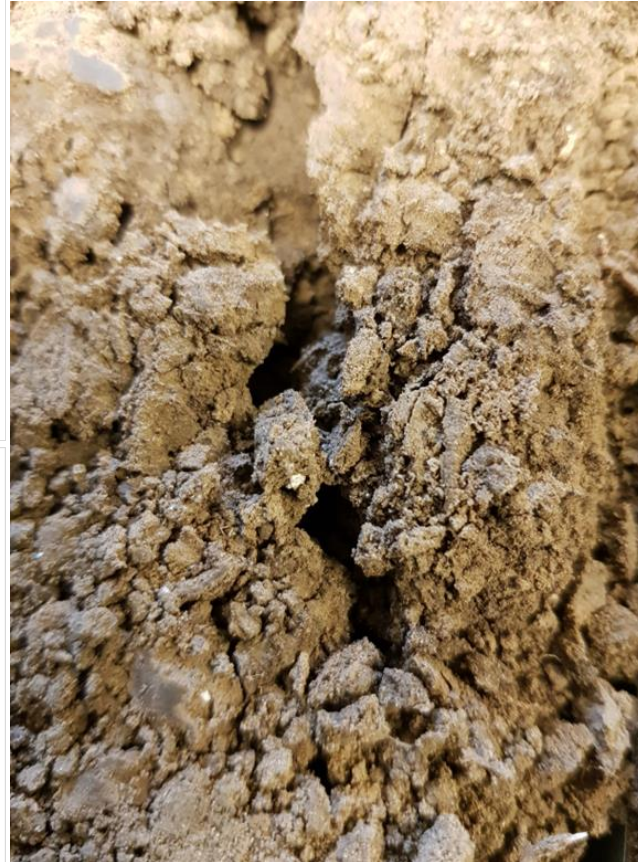
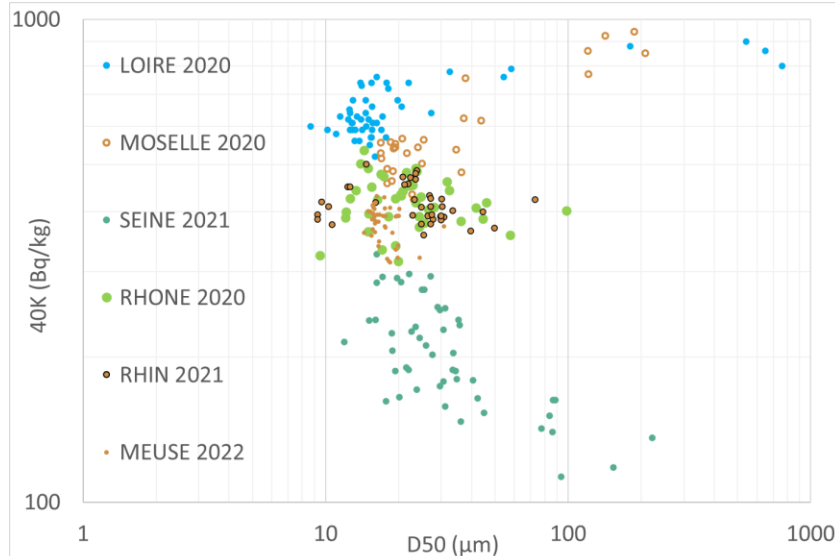
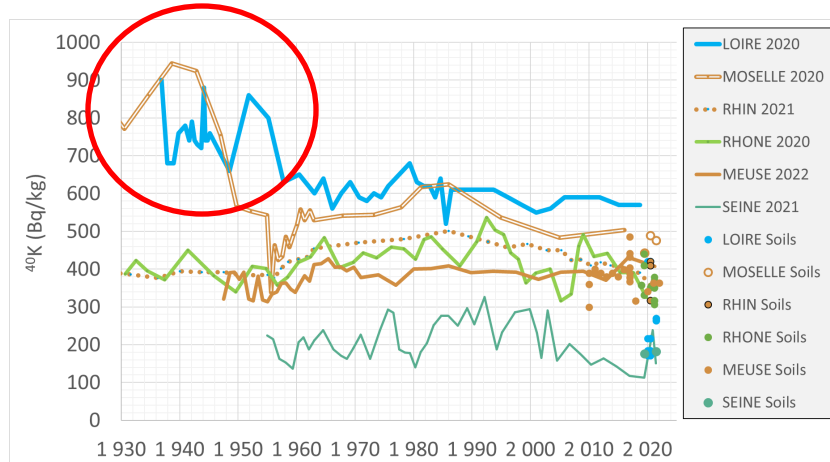
- Livraisons culminantes entre 1970 et 2000  
= Période des max observés dans les archives sédimentaires !!
- Diminution depuis les années 1990 = Résilience rapide



# TRAJECTOIRES DES RADIONUCLÉIDES



## POTASSIUM 40 - $^{40}\text{K}$ Sables et Feldspaths alcalins (Loire, Moselle)



Anthropogenic legacy of potassium-40 in French large rivers reconstructed from sediment cores

Frédérique Eyrolle<sup>a,\*</sup>, Amandine Morereau<sup>b</sup>, Mathilde Zebracki<sup>c</sup>, Valérie Nicoulaud Gouin<sup>d</sup>, Hugo Lepage<sup>e</sup>, Anne de Vismes<sup>f</sup>, Anne Meyer<sup>g</sup>, Emmanuelle Montarges-Pelletier<sup>h</sup>, François Chabaux<sup>i</sup>, Alexandra Coynel<sup>j</sup>, Maxime Debret<sup>k</sup>, Franck Giner<sup>l</sup>, Cécile Grosbois<sup>m</sup>, Rodolfo Gurriaran<sup>n</sup>, David Mourier<sup>o</sup>, Laurence Lestel<sup>p</sup>

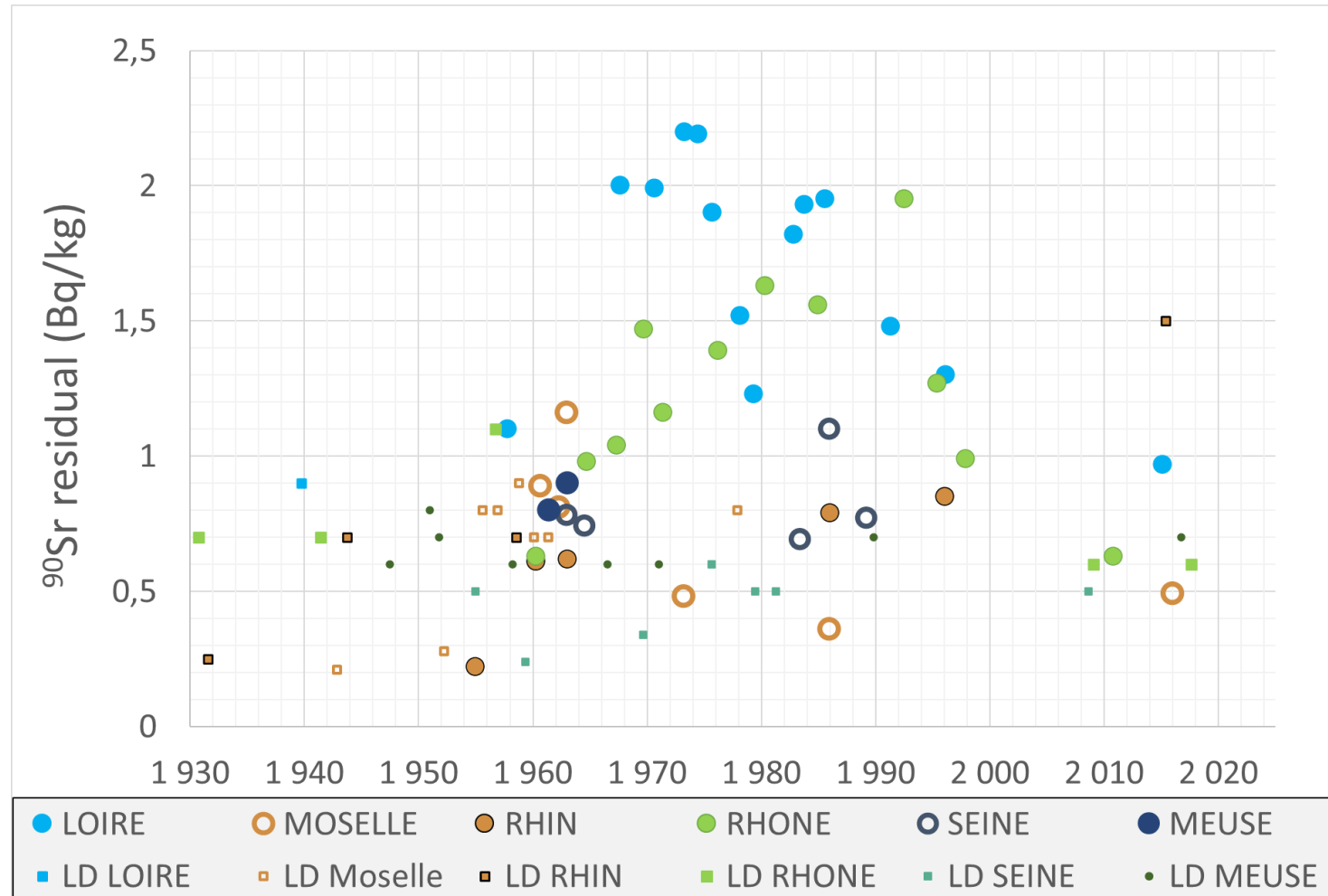
<sup>a</sup> Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, IRSB-ENV, STANAR/LRTA, BP 3, 13115, Saint Paul Les Dardennes, France  
<sup>b</sup> MITEI - Mieux environnementaux, transports et interactions dans les hydrosystèmes et les sols, UMR 7619, Sorbonne Université, 75252 Paris, France  
<sup>c</sup> Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, IRSB-ENV/STANAR/LRTA, 13115 Saint Paul Les Dardennes, France  
<sup>d</sup> Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, IRSB-ENV, SAME/LMRE, Bois des Ramas, 91400 Orsay, France  
<sup>e</sup> Université de Lorraine, CNRS Laboratoire Interdisciplinaire des Environnements Continentaux (LIREC), Vandœuvre-lès-Nancy 54500, France  
<sup>f</sup> Laboratoire d'Hydrologie et de géochimie de Strasbourg (LHG), UMR 7517, Boite et Observatoire des Sciences de la Terre (BOST), Université de Strasbourg, France  
<sup>g</sup> EPIC-TOM, UMR CNRS 5085, France, France  
<sup>h</sup> CNRS-MCZ-ISA, Institut Géochimie et Environnement, Université of Rouen-Normandie, 76021 Mont Saint Aignan, France  
<sup>i</sup> Université de Tours, UMR 6259 Géochimie des Contaminants (GEOCOC), Parc de Grandmont, Cedex, Tours 37200, France

- $^{40}\text{K}$  Hérité (Loire, Moselle), supporté (Seine), mixte (Rhône, Rhin)

# TRAJECTOIRES DES RADIONUCLÉIDES



**STRONTIUM 90 – <sup>90</sup>Sr** Des activités **résiduelles** proches des limites de détection ...



x2 DPUI du <sup>137</sup>Cs

KD du <sup>90</sup>Sr = 550 L/kg

Bcp plus soluble que le <sup>137</sup>Cs

85 résultats d'analyse  
52 % > LD

Unc moy = 26%

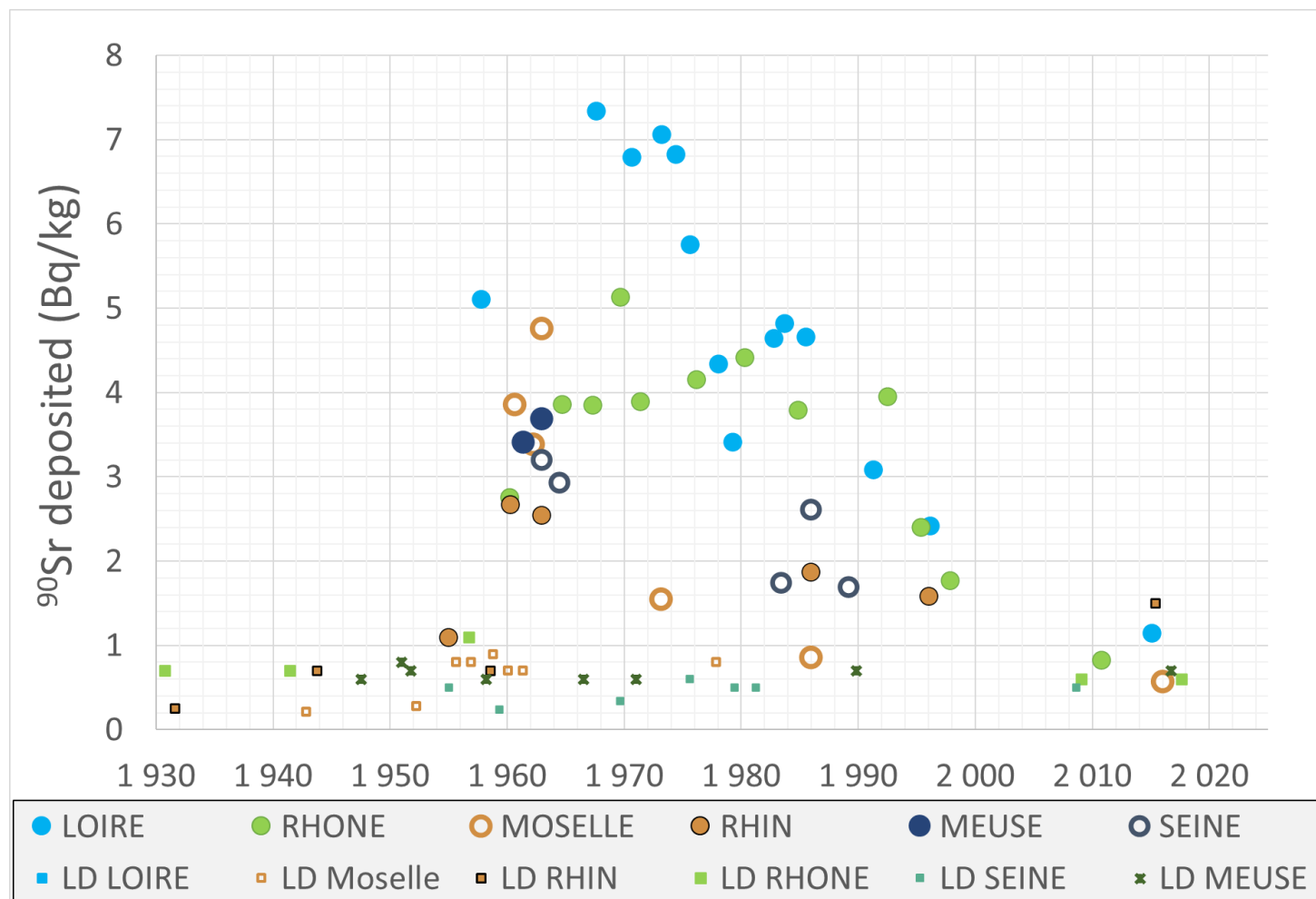
- Des activités résiduelles **5 à 50 fois plus faibles** que celles du <sup>137</sup>Cs
- **La Loire et le Rhône se distinguent**



# TRAJECTOIRES DES RADIONUCLÉIDES



**STRONTIUM 90 –  $^{90}\text{Sr}$**  Des activités initialement déposées qui retracent l'histoire



- **Retombées atmosphériques globales** (tous les fleuves)
- **Centre de retraitement du combustible irradié sur le Rhône** (-1990)
- **UNGG sur la Loire** (Chinon A1-A3, 1965-1984) **et Meuse** (Chooz A, 1967-1984)

\* Pourquoi les sédiments de la **Loire** sont-ils plus marqués que ceux du **Rhône** ???

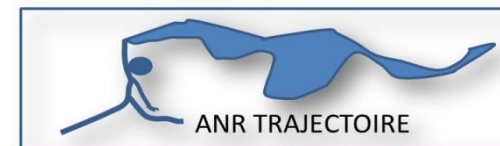
*Loire : 5 GBq/an*

*Rhône : 1000 GBq/an*

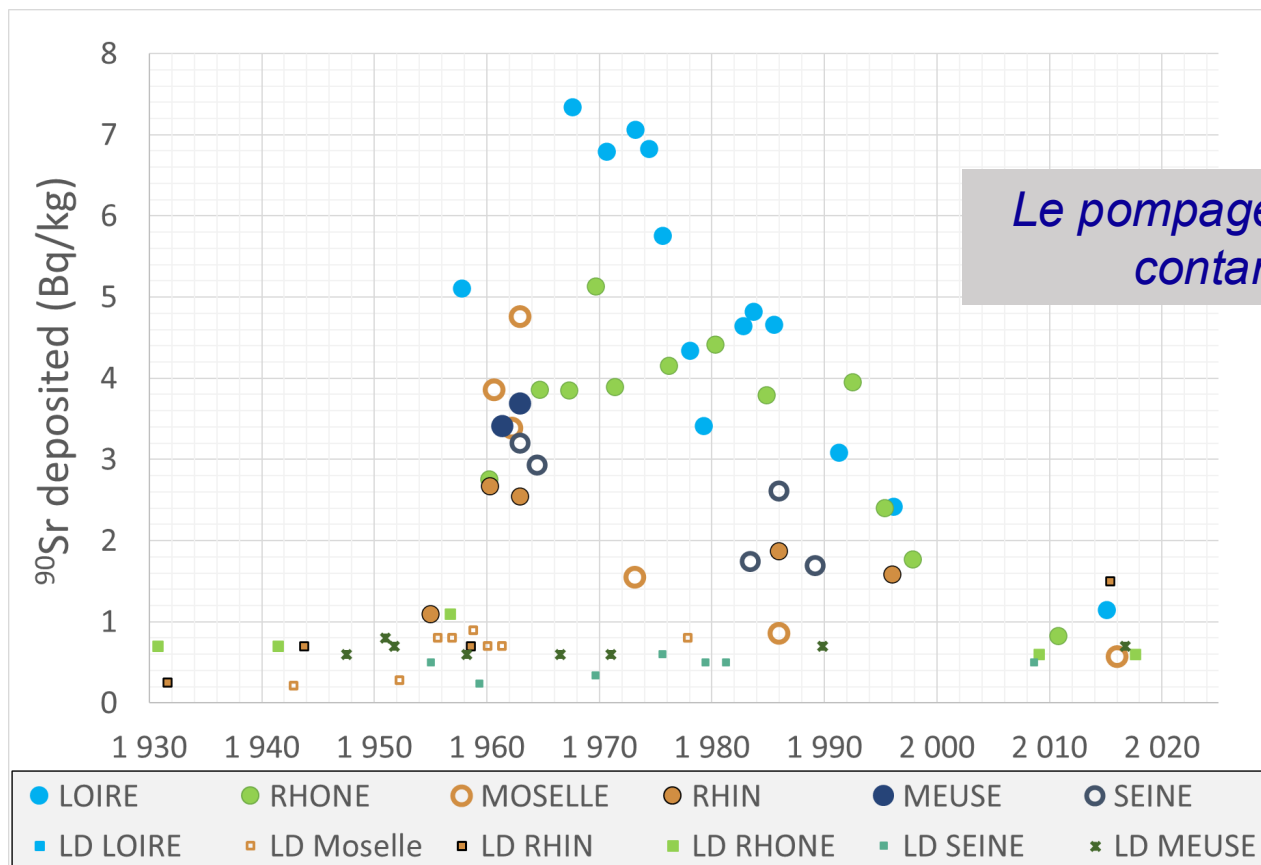
\* Pourquoi ne retrouvons pas de traces dans les sédiments de la **Meuse** ???

*Meuse = Loire + pic de rejet à 98 GBq/an en 1971*

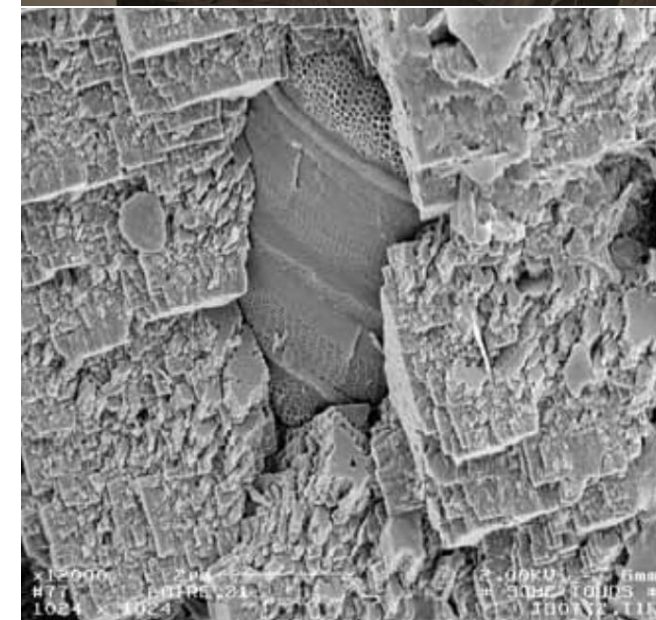
# TRAJECTOIRES DES RADIONUCLÉIDES



## STRONTIUM 90 – $^{90}\text{Sr}$ La calcite endogène impliquée ...



## La Loire, usine à carbonates



Frustule de diatomée servant de nucléus à la formation d'un agrégat de cristaux de calcite (basses eaux 1997 à l'aval de Tours).  
From : C. Grosbois, J. G. Bréhéret, F. Moatar, P. Négrel. *La Loire, usine à carbonates*. Géosciences, 2010.

- Une conséquence des **blooms phytoplanctoniques** nombreux et denses en période estivale dans la Loire moyenne jusqu'à la fin des années 1990 ....

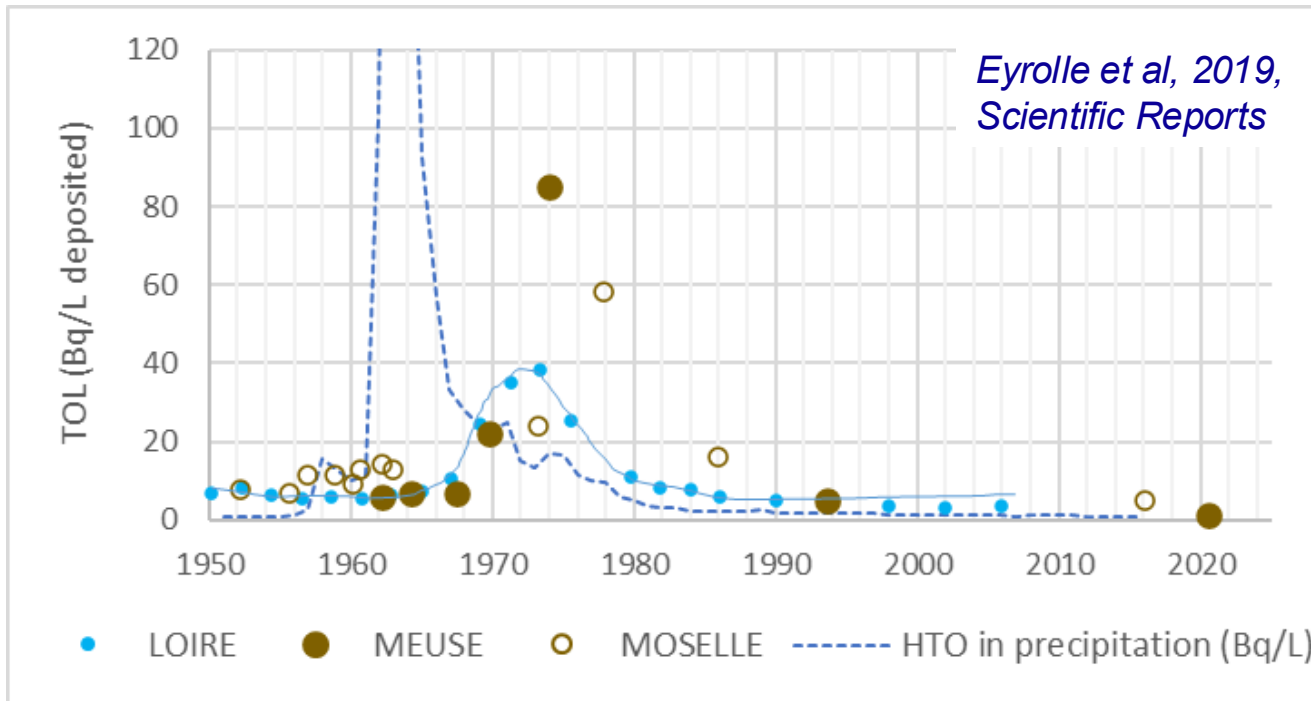


# TRAJECTOIRES DES RADIONUCLÉIDES



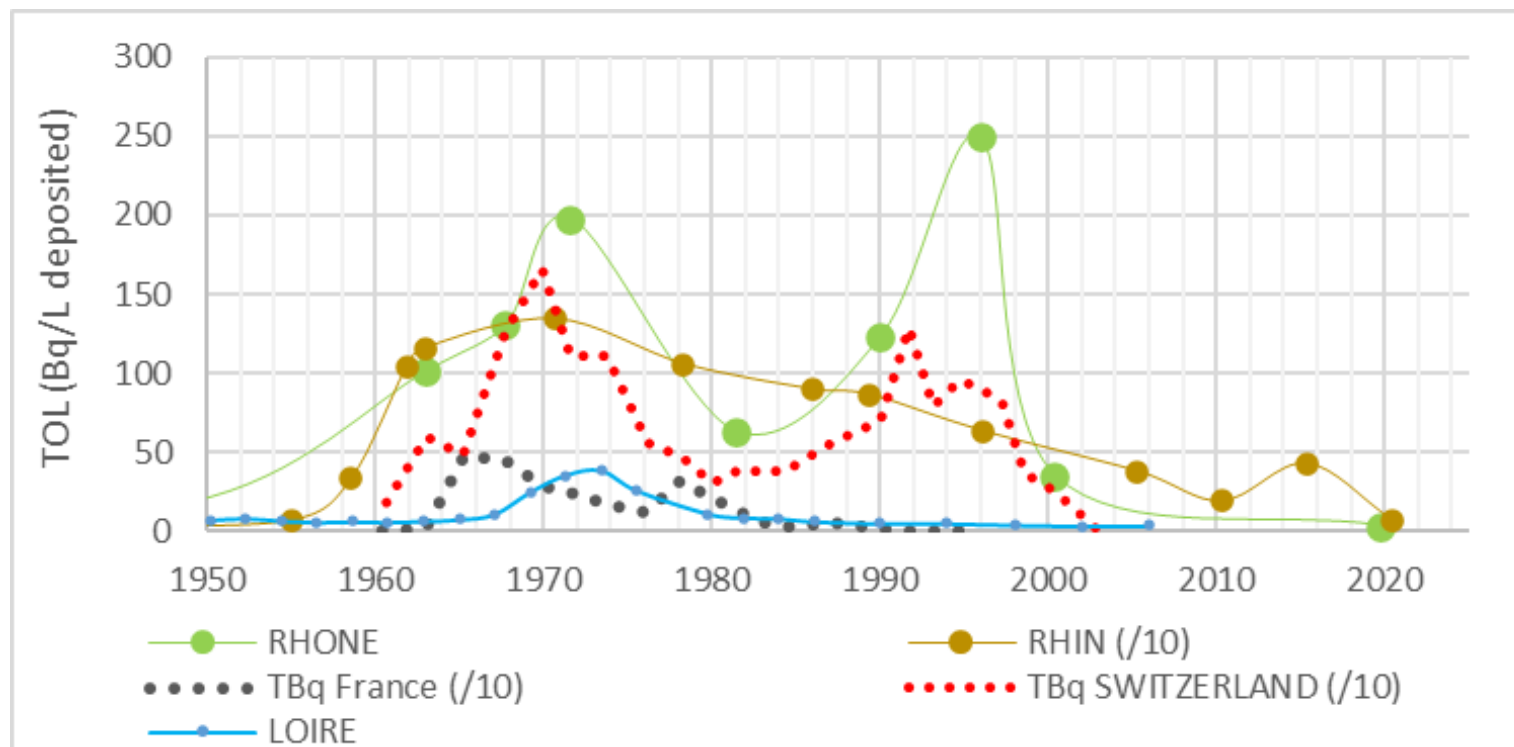
## TRITIUM ORGANIQUEMENT LIÉ - TOL

L'empreinte du tritium des retombées atmosphériques globales des essais nucléaires – **Loire, Moselle et Meuse**



- **Un décalage en TOL d'une dizaine d'années** par rapport à la contamination apportées par les pluies ;
- Confirme les premiers résultats acquis en 2019 sur la Loire

## TRITIUM ORGANIQUEMENT LIÉ - TOL Du tritium « horloger » - Rhône et Rhin



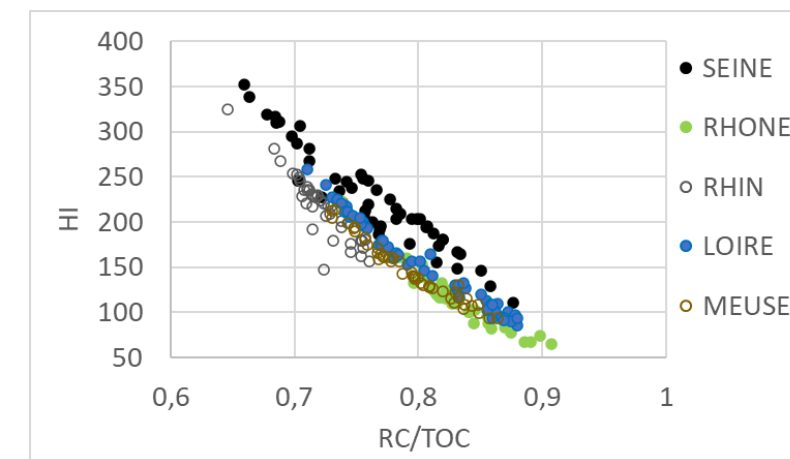
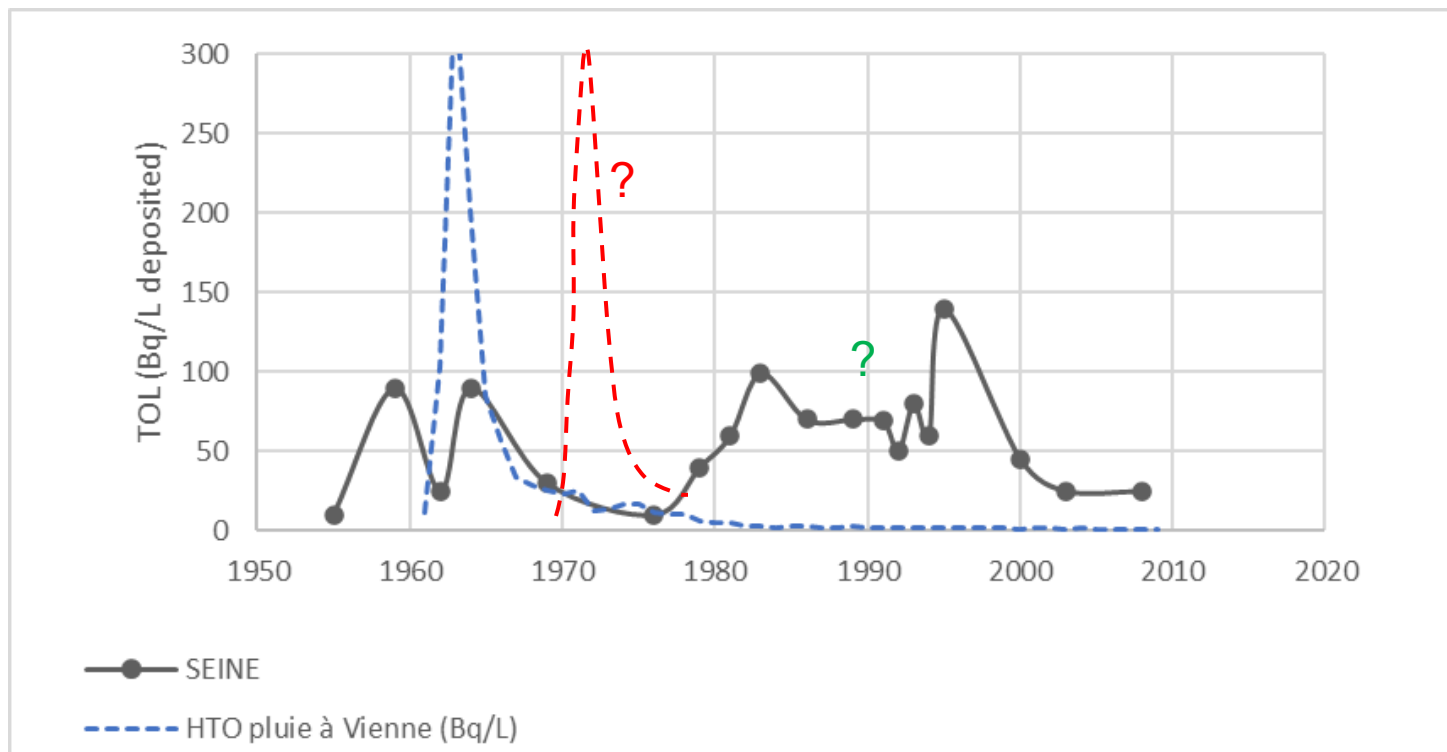
.... Ces femmes qui faisaient luire montres et réveils ...

- Des activités massives en TOL jusqu'à 100 à 1000 fois plus élevés que le « référentiel géochimique » en TOL (qqqs 0,1 Bq/kg), sur le Rhône et le Rhin, respectivement
- Rejets de l'horlogerie Suisse principalement en cause ?
- Résilience rapide sur le Rhône, beaucoup plus lente sur le Rhin

# TRAJECTOIRES DES RADIONUCLÉIDES

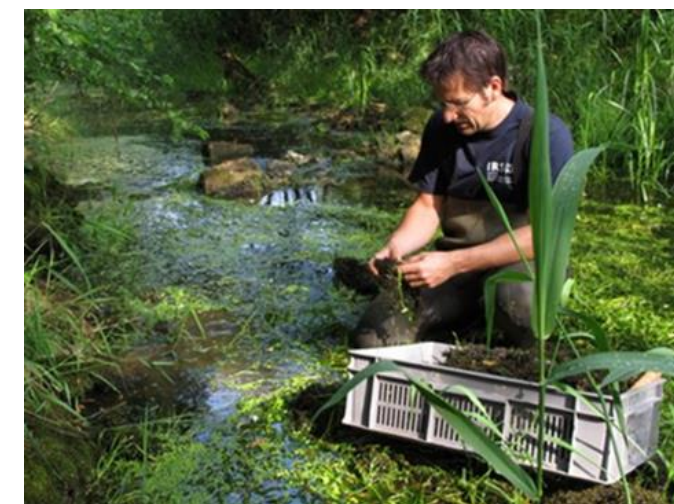


## TRITIUM ORGANIQUEMENT LIÉ - TOL Une énigme résiduelle - SEINE



- Où est l'**empreinte des essais aériens** ?
- Des passées sableuses masquent une partie des dépôts
- Une archive plus riche que les autres en **MOP** aquatique

=> Enregistrement **d'autres contributeurs** ?

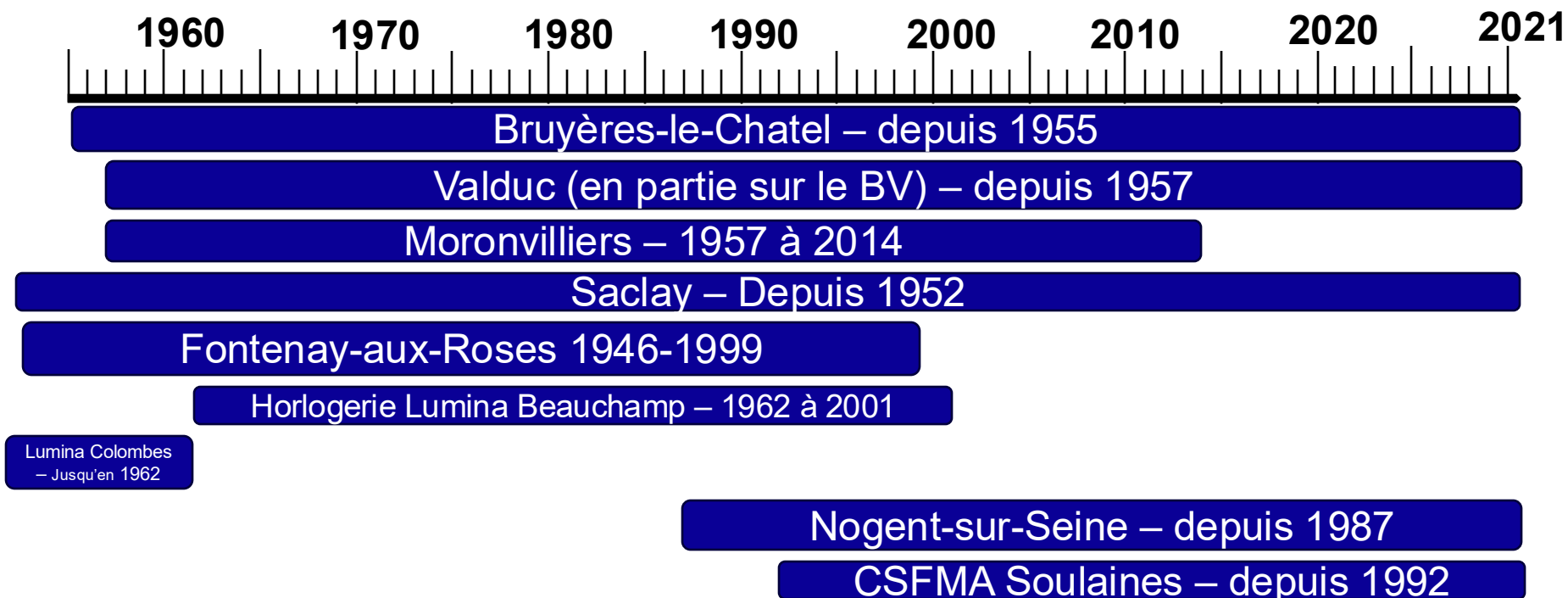




# TRAJECTOIRES DES RADIONUCLÉIDES



**TRITIUM ORGANIQUEMENT LIÉ - TOL**    Contributeurs potentiels sur le bassin versant de la Seine



Autres usages du tritium

- Militaires – amplificateur de vision nocturne / signalétique
- panneau de signalisation SNCF
- Ascenseur

# TRAJECTOIRES DES RADIONUCLÉIDES



## TRITIUM ORGANIQUEMENT LIÉ - TOL Localisation spatiale et hiérarchisation

DRIVERS **sur** le bassin versant de la Seine

### Intérêt principal

- Horlogerie
- Bruyères-le-Châtel
- Nogent-sur-Seine

Et d'autres moins documentées

- SNCF, etc.

Valduc **hors** bassin versant mais  
via le milieu terrestre (Sous les vents  
dominants)

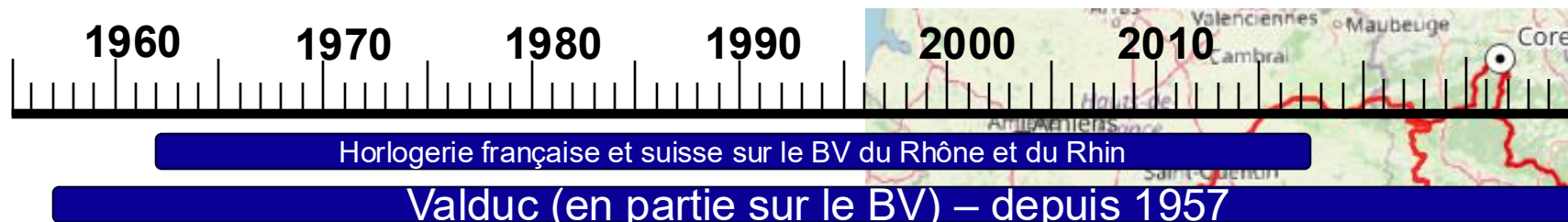




# TRAJECTOIRES DES RADIONUCLÉIDES

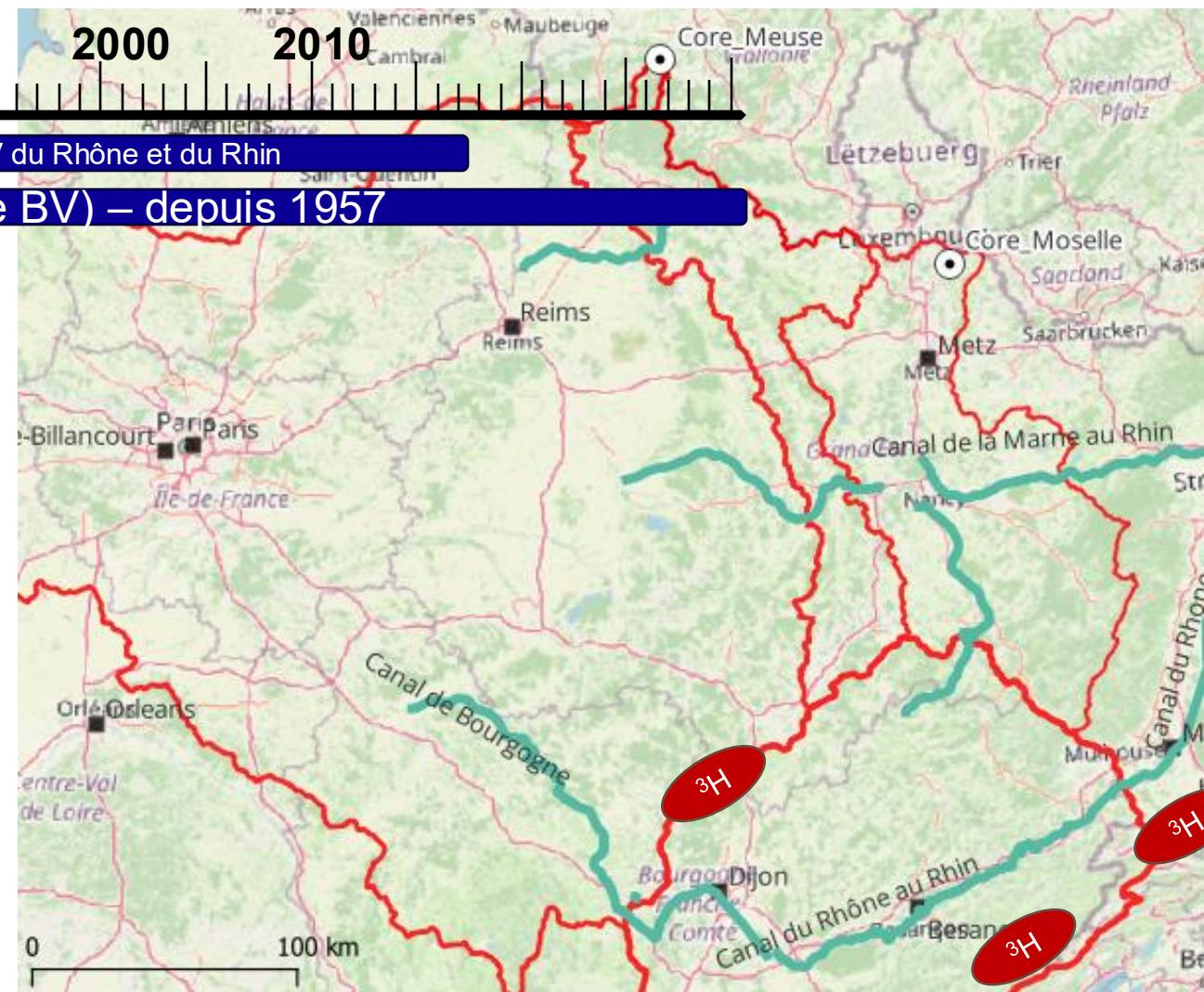


## TRITIUM ORGANIQUEMENT LIÉ - TOL Contributeurs hors du bassin versant



### Transit vers la Seine via les canaux traversants les limites des bassins versants

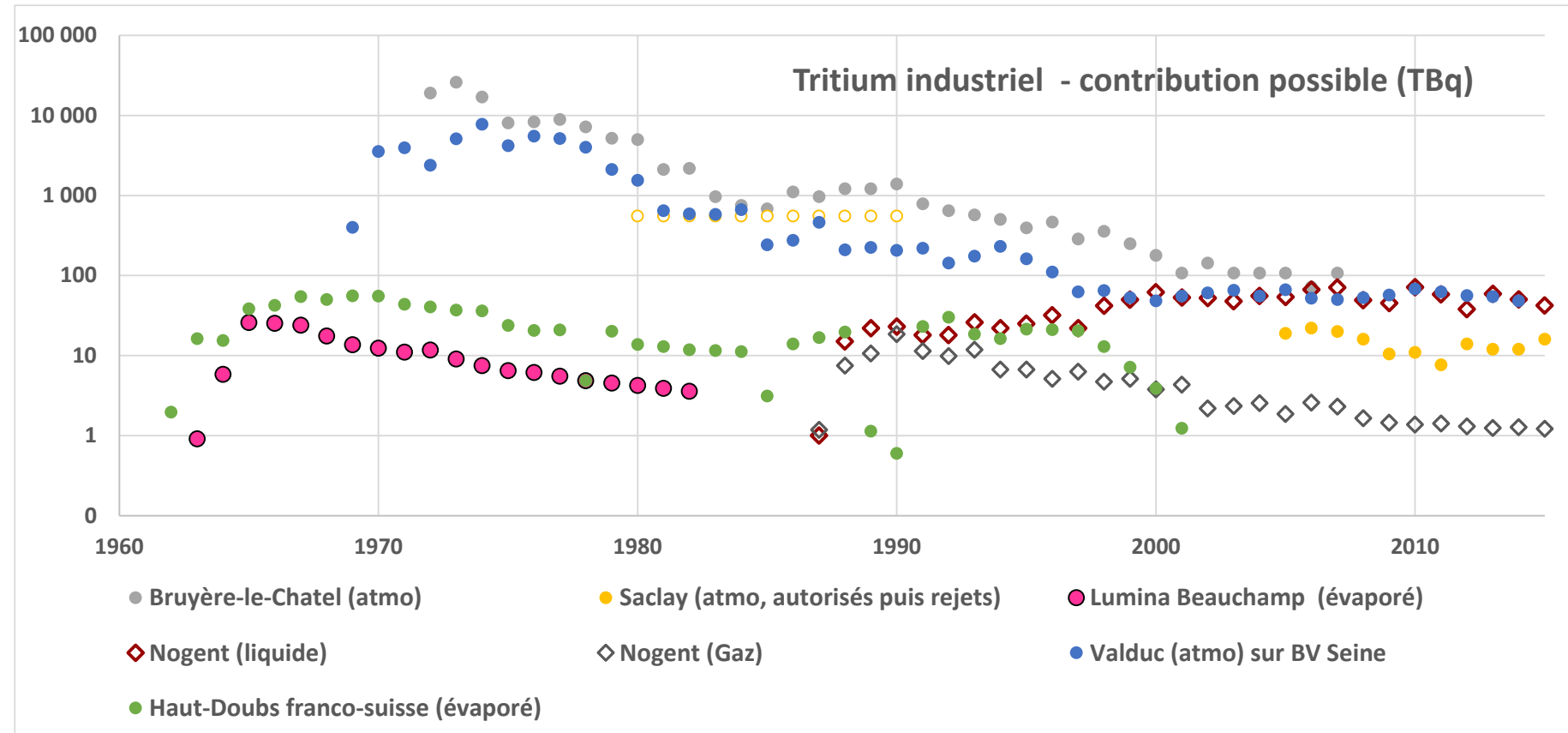
- Valduc via le canal de Bourgogne
- Industrie sur le Rhin via le canal de Marne au Rhin ?  
A explorer
- Horlogerie du Haut-Doubs les apports ne peuvent franchir le bassin versant de la Seine





## TRITIUM ORGANIQUEMENT LIÉ - TOL Pressions – rejets (déclarés ou estimation)

Évaluation des contributions possibles sur le BV de la Seine



Valduc :

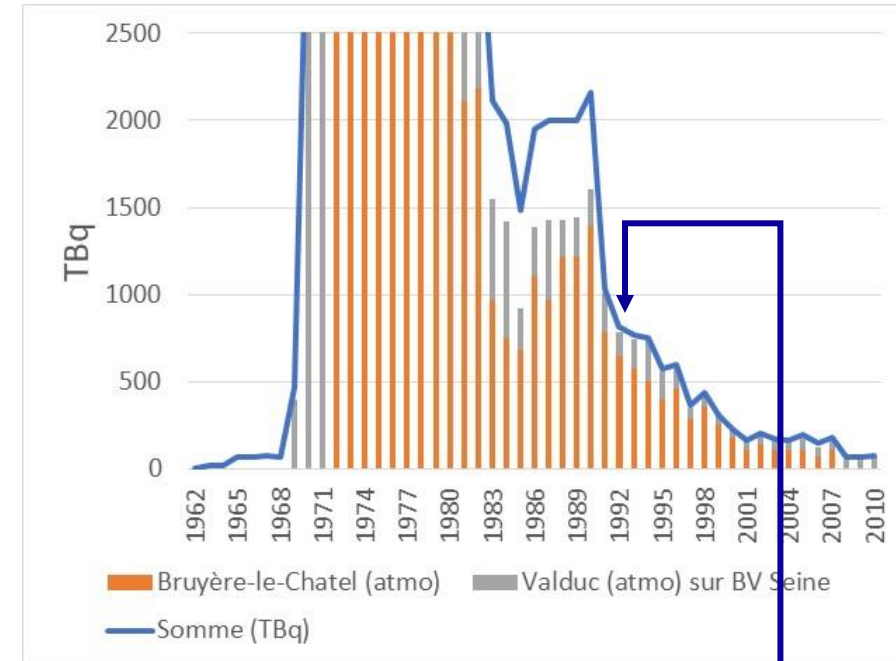
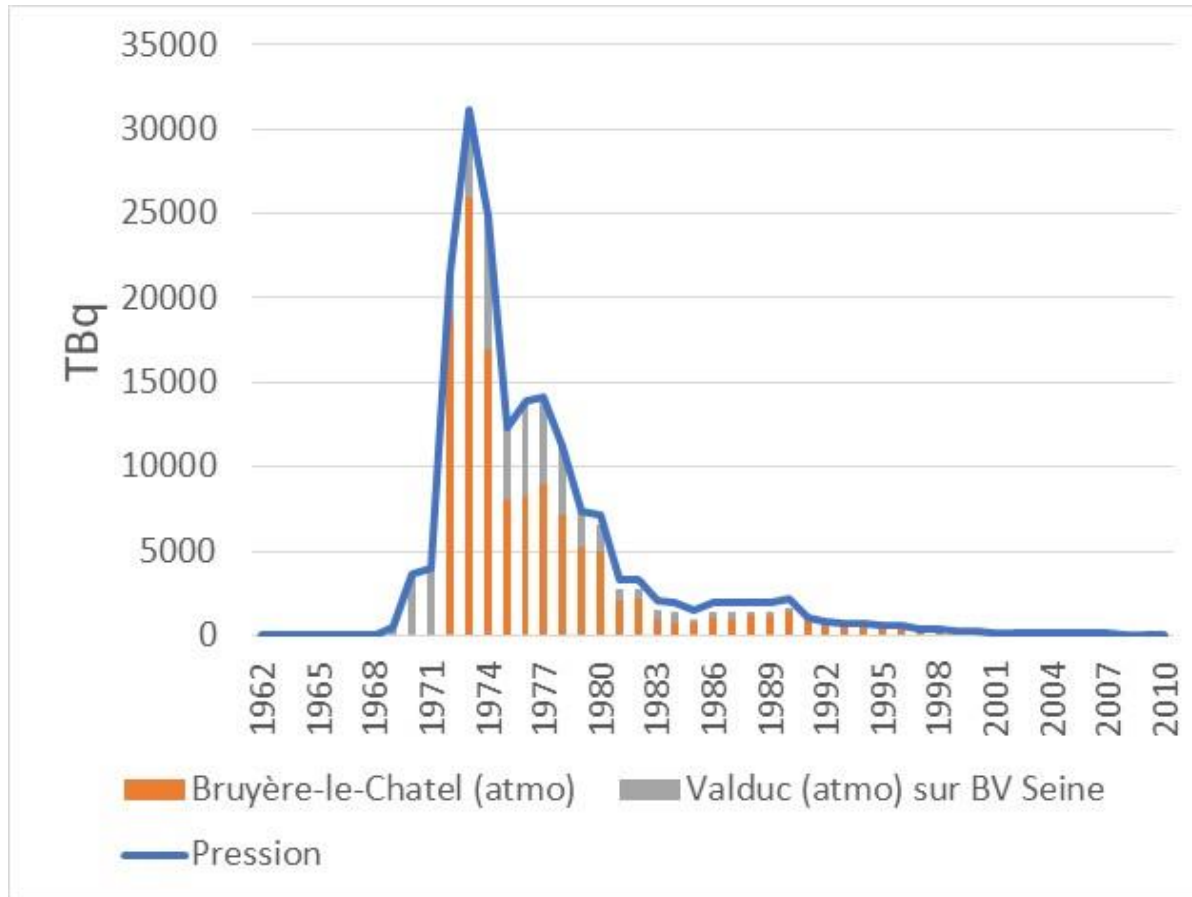
- interception des rejets à l'atmosphère par le BV de la Seine (estimation 20%)
- Contribution via le canal de Bourgogne à estimer

# TRAJECTOIRES DES RADIONUCLÉIDES



## TRITIUM ORGANIQUEMENT LIÉ - TOL Pressions – rejets (déclarés ou estimation)

Bruyères-le-Chatel principal contributeur  
Valduc en second, mais vérifier la réalité du marquage

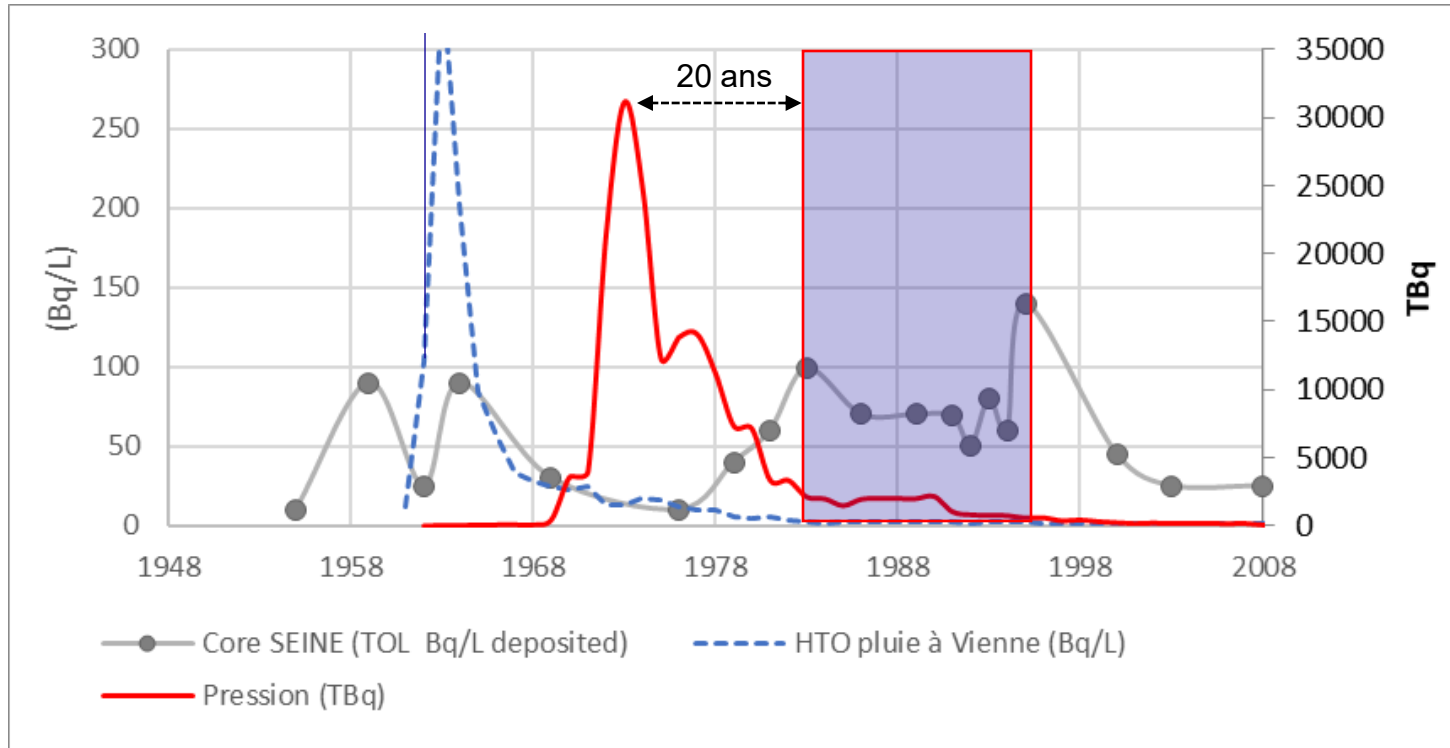


Nogent : contribution invisible.  
Même si la carotte est riche en MO autochtone

# TRAJECTOIRES DES RADIONUCLÉIDES



## TRITIUM ORGANIQUEMENT LIÉ - TOL Pressions vs archive sédimentaire



### Limites :

Manque de données sur les rejets dans les années 1960

Pressions ponctuelles : temps de transit de la MO depuis rejet jusqu'à l'archive ?

Pas de signature des **essais aériens** à + 10 ans

Signature des **pressions sur le BV**

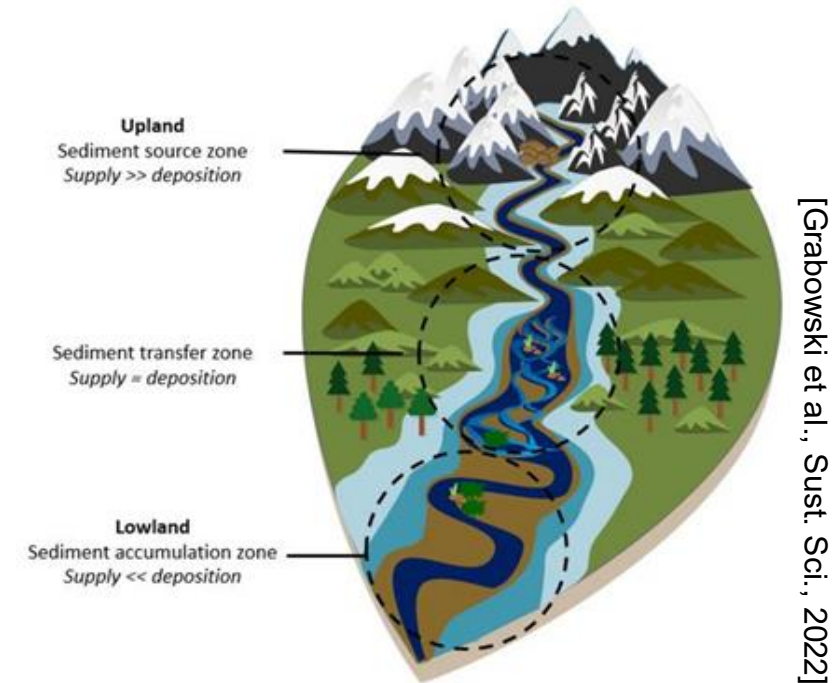
Signal complexe

Avec un décalage de 20 ans ?



## RADIOÉLÉMENTS NATURELLEMENT PRÉSENTS : URANIUM ET THORIUM

- Les **accumulations sédimentaires** à l'aval des grands fleuves constituent des **archives** permettant de tracer **l'évolution** de la **chimie** des apports particuliers
- Les apports particuliers sont issus de **l'érosion** du bassin versant auxquels peuvent s'ajouter des **contaminants** particuliers issus des activités humaines
- Dans la littérature, peu de données disponibles pour **U et Th**



Quel est le **fond géochimique** supposé ?

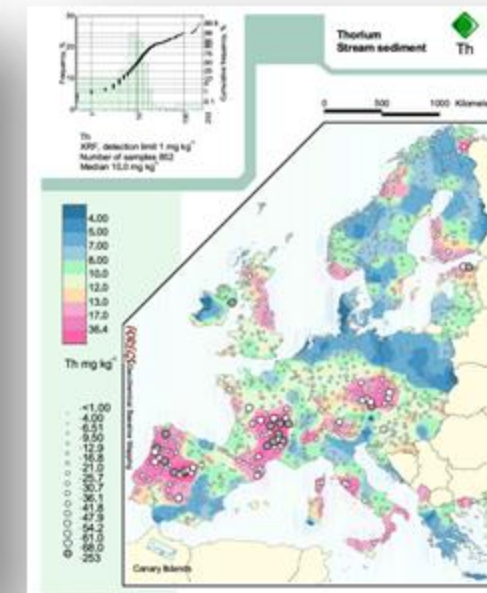
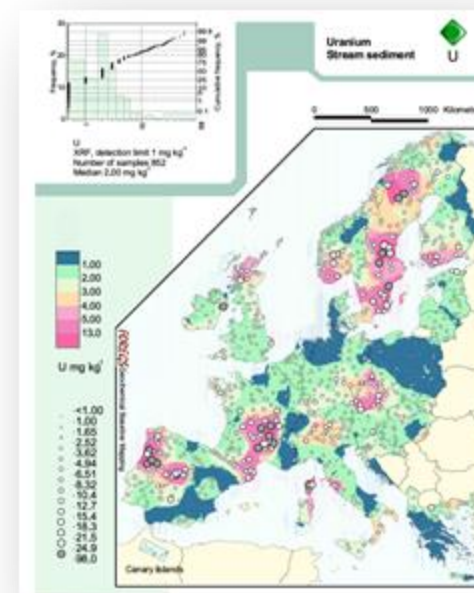
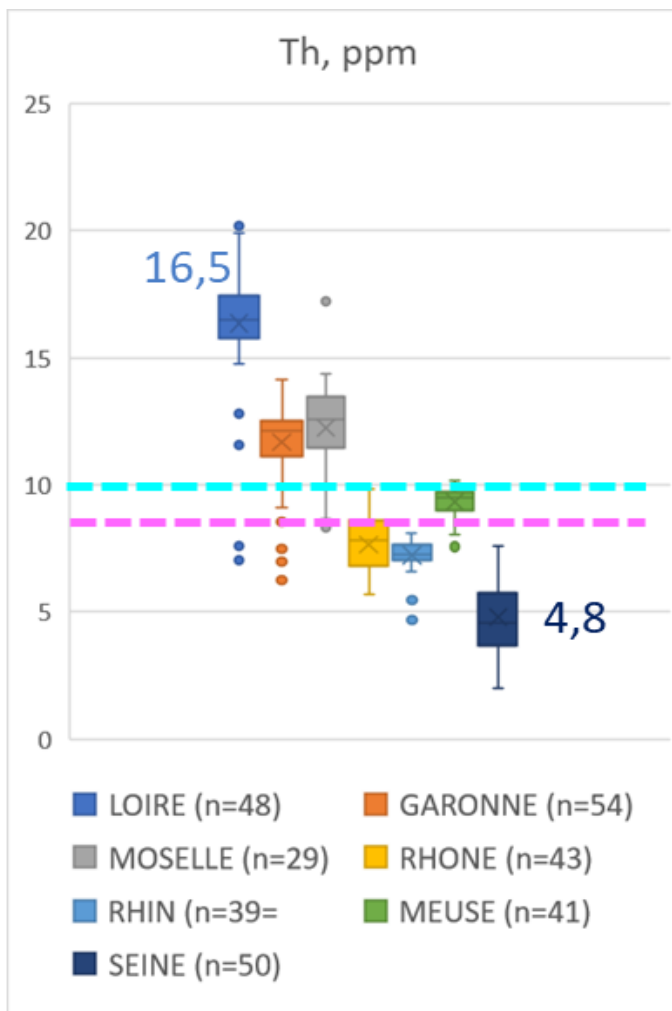
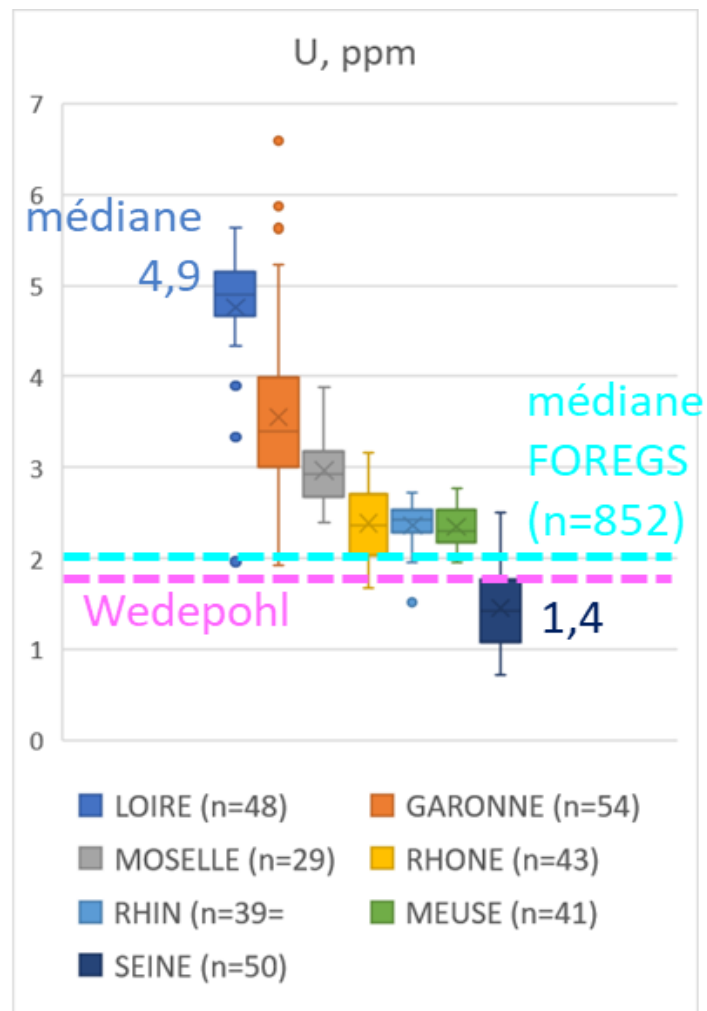
A l'échelle de la France métropolitaine :  
Quel est le rôle de la **géologie** dans les variations des teneurs entre les bassins versants ?

A l'échelle d'un bassin versant :  
Quelles **activités humaines** ont contribué à contaminer les sédiments ?

# TRAJECTOIRES DES RADIONUCLÉIDES



Quel est le fond géochimique supposé issu d'autres référentiels ?



[Geochemical atlas of Europe FOREGS, data 2006]

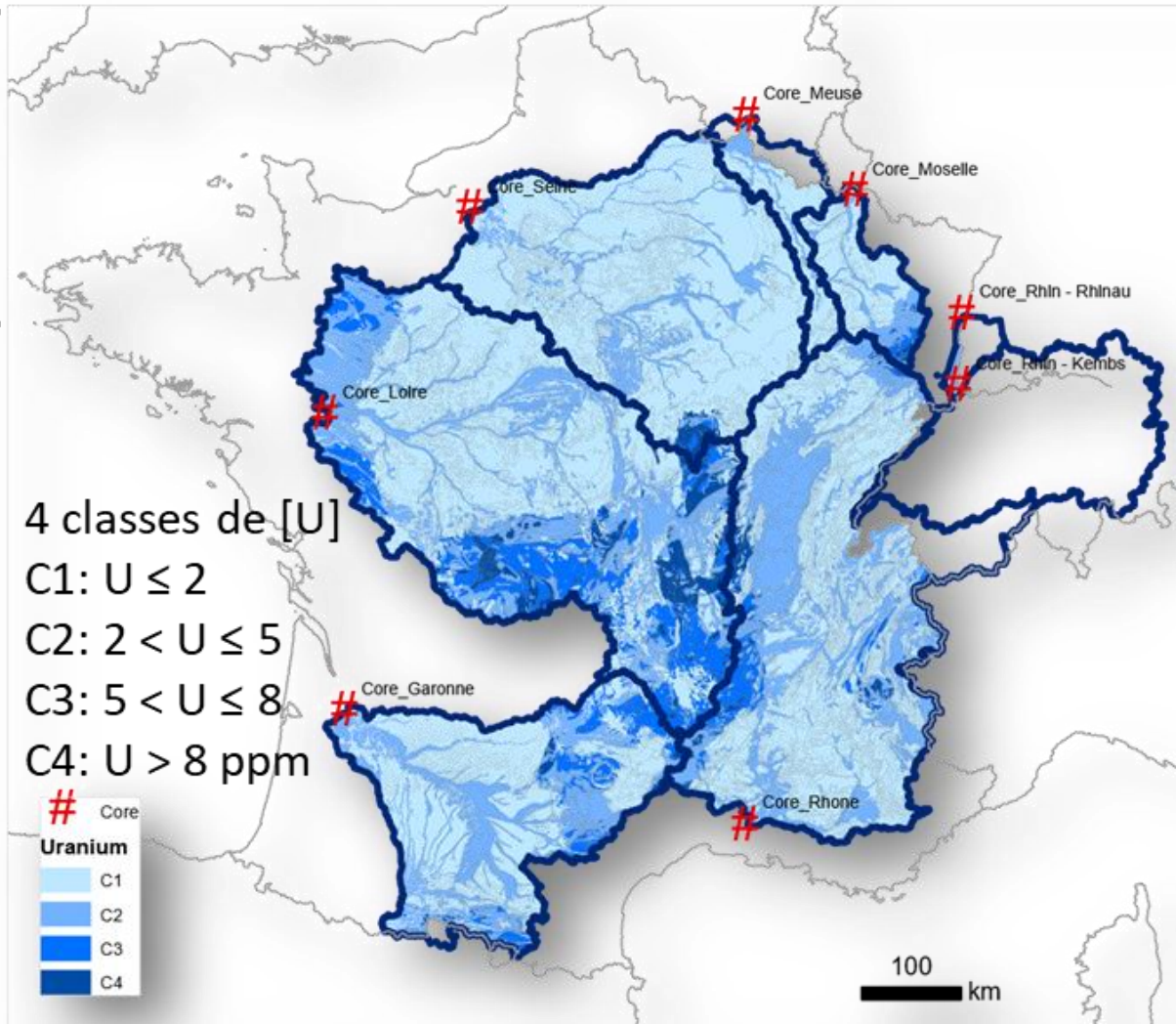


# TRAJECTOIRES DES RADIONUCLÉIDES

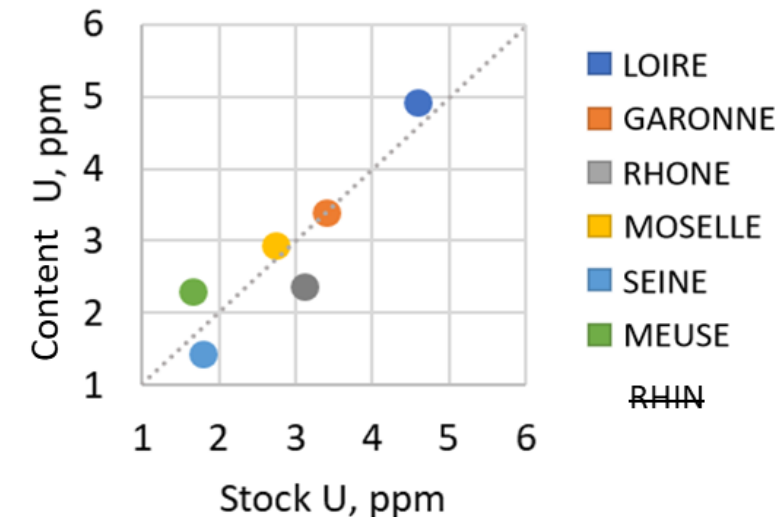


Quel est le rôle de la géologie dans les variations des teneurs en U et Th entre les bassins versants ?

[Jelsh et al., JER, 2017]



- La distribution des teneurs en U supposée des roches couvre **72 à 100% de la surface totale** des BVs étudiés (sauf le Rhin, < 3%)
- Calcul du **stock d'U** dans les **sédiments** (ppm) = valeur médiane de la teneur en U (ppm)
- Calcul du **stock d'U** disponible pour **l'érosion** par bassin versant (ppm) = teneur U x surface pour **une classe C** (C1 à C4) / surface totale du BV





# TRAJECTOIRES DES RADIONUCLÉIDES

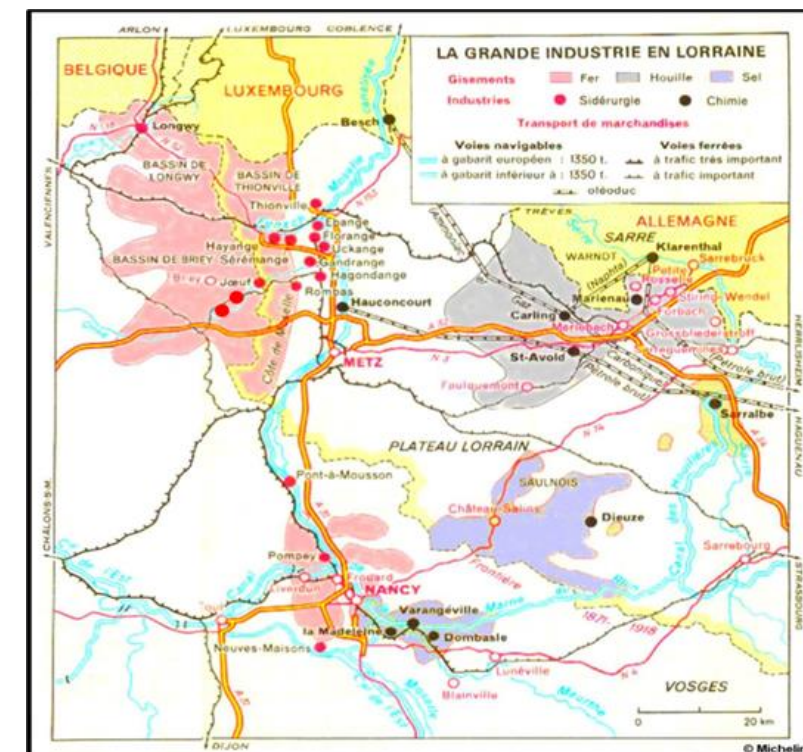


Quelles activités humaines ont contribué à contaminer les sédiments ? Cas de la Moselle



*Vallée de la Fensch*

Vallée marquée par l'industrie sidérurgique (hauts-fourneaux)  
A partir de mi-XIX<sup>e</sup> siècle, jusqu'à la crise de la sidérurgie (1990')

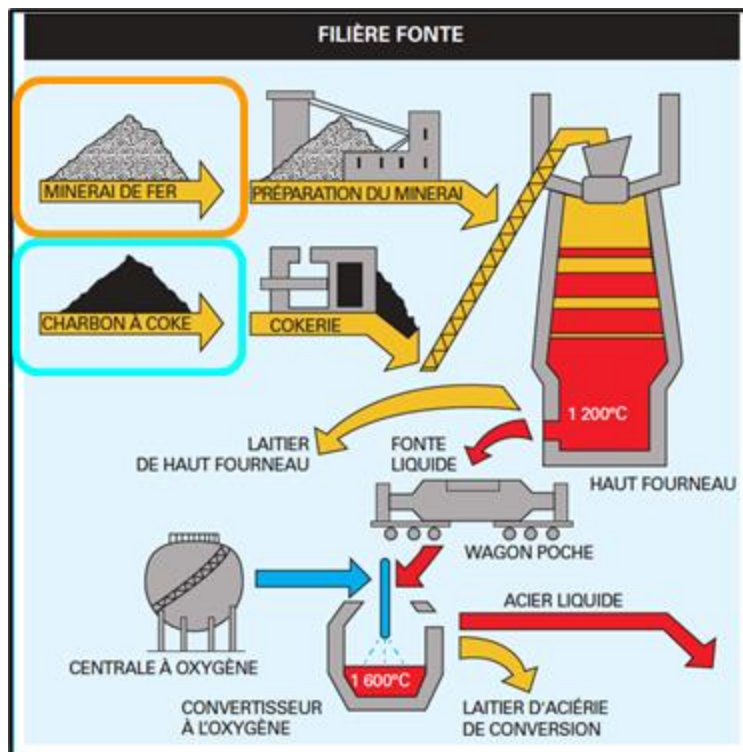


55 mines  
60 000 km galeries creusées

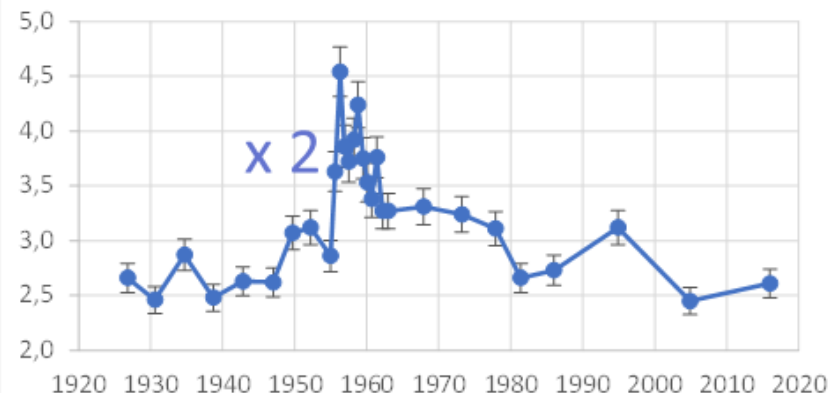
# TRAJECTOIRES DES RADIONUCLÉIDES



Quelles activités humaines ont contribué à contaminer les sédiments ? Cas de la Moselle



U (mg/kg)



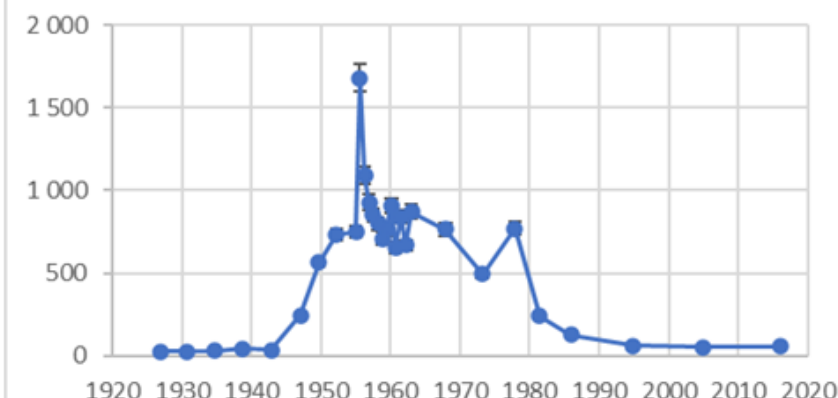
Fe, %



As (mg/kg)



Pb (mg/kg)





# REMERCIEMENTS

Alexandra Coynel (alexandra.coynel@u-bordeaux.fr); amandine Morereau <a.morereau@yahoo.fr>; benjamin.coursel@mio.osupytheas.fr; BOULET Beatrice <beatrice.boulet@irsn.fr>; BOYER Patrick <patrick.boyer@irsn.fr>; Brice.MOURIER@entpe.fr; Cale Eric <eric.cale@irsn.fr>; Chastanet Maxime <maxime.chastanet@u-bordeaux.fr>; christian.grenz@mio.osupytheas.fr; CLAVAL David <david.claval@irsn.fr>; DE VISMES Anne <anne.de-vismes@irsn.fr>; DEBAYLE Christophe <christophe.debayle@irsn.fr>; DIDIER Damien <damien.didier@irsn.fr>; ELISEE Veronique <veronique.elisee@irsn.fr>; Gabrielle Seignemartin <gabrielle.seignemartin@entpe.fr>; GARDES Thomas <tgardes@acmg.asso.fr>; gerard.blanc@u-bordeaux.fr; GINER Franck <franck.giner@irsn.fr>; GOURGIOTIS Alkiviadis <alkiviadis.gourgiotis@irsn.fr>; GURRIARAN Rodolfo <rodolfo.gurriaran@irsn.fr>; Jorg Schafer <jorg.schafer@u-bordeaux.fr>; laure.papillon@mio.osupytheas.fr; Laurence Lestel (laurence.lestel@sorbonne-universite.fr); Laurence MILLOT <laurence.millot@sorbonne-universite.fr>; Layglon Nicolas <nicolas.layglon@u-bordeaux.fr>; LE CORRE Cedric <cedric.le-corre@irsn.fr>; LEPAGE Hugo <hugo.lepage@irsn.fr>; MANGERET Arnaud <arnaud.mangeret@irsn.fr>; maxime debret (maxime.debret@univ-rouen.fr); MORIN Maxime <maxime.morin@irsn.fr>; MOURIER David <david.mourier@irsn.fr>; NICOULAUD GOUIN Valerie <valerie.nicoulaudgouin@irsn.fr>; Olivier Evrard (Olivier.Evrard@lsce.ipsl.fr); PELE Kathleen <kathleen.pele@gmail.com>; 'PELE Kathleen' <kathleen.pele@irsn.fr>; 'PICOLO Jean Louis' <jean-louis.picolo@irsn.fr>; Pierre Alexis CHABOCHE <p.chaboché@protonmail.com>; richard.sempere@mio.osupytheas.fr; Thierry.WINIARSKI@entpe.fr; VIDAL Alice <alice.vidal@mio.osupytheas.fr>; yoann copard (yoann.copard@univ-rouen.fr); ZEBRACKI Mathilde <mathilde.zebracki@irsn.fr>

