

Analyse et prédiction de la dispersion des radioéléments dans l'environnement marin par la méthode de la réponse impulsionnelle

Réponse impulsionnelle
Traitement du signal
Séries temporelles
Radioéléments
Eau de mer

Pulse response
Signal processing
Time series
Radioelements
Seawater

Dominique BOUST ^a, Alain HAIRIE ^b, Albert FRAIZIER ^a et Yves BARON ^c

^a Laboratoire de Radioécologie Marine, Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, BP 10, rue Max Pol Fouchet, 50130 Octeville.

^b Laboratoire d'Études et de Recherches sur les Matériaux, Institut des Sciences de la Matière et du Rayonnement, Université de Caen, 14050 Caen Cedex.

^c Marine Nationale, Groupe d'Études Atomiques, BP 19, 50115 Cherbourg-Naval.

Reçu le 06/09/94, révisé le 06/04/95, accepté le 18/04/95.

RÉSUMÉ

Ce travail présente et discute l'analyse et la prédiction des caractéristiques de la dispersion des radioéléments dans l'environnement marin fondées sur l'utilisation de la méthode de la réponse impulsionnelle. Il s'appuie sur trois séries de données couvrant les années 1984-1988 : les quantités de radioéléments (¹²⁵Sb, ¹³⁷Cs, ¹⁰⁶Ru et ⁶⁰Co) contenus dans les rejets contrôlés de l'usine de retraitement de combustibles irradiés de La Hague (= signal d'émission) et les concentrations en ces radioéléments (= signaux de réception), dans les eaux de deux stations de mesure situées à 8 et 35 km du point de rejet.

Ces séries sont utilisées pour déterminer la réponse impulsionnelle propre à chaque station et chaque élément. On peut ainsi estimer le retard moyen du signal de réception par rapport au signal d'émission, son amplitude (c'est-à-dire, les concentrations dans l'eau de mer) et sa sensibilité au forçage par le vent. On montre alors que la convolution de la réponse impulsionnelle et des séries temporelles décrivant les rejets conduit à une bonne prédiction des concentrations à chacune des stations.

Les particularités du comportement de ¹³⁷Cs, ¹⁰⁶Ru et ⁶⁰Co sont mises en évidence par comparaison avec celui de ¹²⁵Sb dont on connaît la conservativité dans l'eau de mer : adsorption de ¹⁰⁶Ru et surtout de ⁶⁰Co sur les particules, existence de sources de ¹³⁷Cs autres que le rejet de l'usine de La Hague. Les retards moyens calculés pour ¹²⁵Sb aux deux stations d'observation sont du même ordre de grandeur (28-30 jours) malgré des distances très différentes au point de rejet et s'expliquent par l'hydrodynamique du domaine étudié.

ABSTRACT

Analysis and prediction of radioelement dispersion in the marine environment by the pulse response method.

This work presents analysis and prediction of the dispersion of radioelements in the marine environment based on the pulse response theory. The analysis is made on three data sets over the period 1984-1988 : the amounts of gamma-emitting radioelements contained in controlled releases from the nuclear reprocessing plant of La Hague (= signal emission point), and gamma-emitting

radionuclide concentrations in sea water at two stations (= signal reception points), situated at 8 and 35 km distance from the release point.

Using this data base, the pulse response is determined for each station and for each element. This allows us to estimate the mean delay and the amplitude of the reception signal (*i.e.* the concentrations of radioelements) and its sensitivity to wind forcing. We then demonstrate that the convolution of the pulse response and released radionuclide time-series is capable of yielding a fairly good prediction of the concentrations at each station.

Some particularities of the behaviour of ^{137}Cs , ^{106}Ru and ^{60}Co are evidenced by comparison with that of ^{125}Sb , assumed to be a conservative element in sea water: adsorption of ^{106}Ru and ^{60}Co on to particles, additional sources of ^{137}Cs . The mean delays calculated for ^{125}Sb at each station are close to each other (28-30 days) despite their different distances from the release point, and are explained by the specific hydrodynamics of the studied area.

Oceanologica Acta, 1995, **18**, 6, 517-629.

INTRODUCTION

Les études de dispersion en milieu marin de différentes substances qui y sont rejetées par l'homme se limitent souvent à une observation *a posteriori* de leur répartition au sein des constituants physiques (eau, particules sédimentaires) ou vivants : cartes d'isoteneurs dans l'eau, profils de concentrations dans les carottes sédimentaires, distribution géographique dans les espèces vivantes... Il est, en effet, impossible, sauf dans des cas simples, de prédire la dispersion, soit parce que les termes-sources sont mal connus, soit parce que les processus élémentaires pilotant cette dispersion ne sont pas tous identifiés ou qu'ils sont difficilement modélisables.

Dans le cas de la dispersion de substances restant à l'état dissous après leur rejet en mer, les modèles hydrodynamiques, résultant de la résolution numérique des équations de la mécanique des fluides (Salomon et Breton, 1991) peuvent théoriquement produire des champs de concentration, pour peu qu'y soient introduits des termes décrivant la diffusion (Prandle, 1984). Cette approche suppose l'utilisation d'importants moyens de calcul et une bonne connaissance *a priori* des processus mis en jeu. La métho-

de statistique prédictive que nous proposons ici suppose seulement que le milieu de dispersion ait un comportement linéaire et invariant. Le bien-fondé de cette hypothèse de départ est conforté par la cohérence des prédictions calculées. Elle s'appuie sur l'analyse de séries temporelles décrivant un terme-source et les concentrations que celui-ci induit dans le milieu, en différentes stations d'observation : la réponse impulsionnelle (R.I.) extraite des données, caractéristique du milieu de dispersion et d'une station d'observation, est utilisée pour prédire les concentrations observées à cette station. Les rejets contrôlés effectués en mer par l'usine de retraitement de combustibles irradiés de La Hague étant parfaitement connus, et la détection des radioéléments émis dans l'eau pouvant être réalisée à très bas niveau, nous avons choisi d'illustrer la méthode par l'analyse de trois séries de données obtenues de 1984 à 1988 : les quantités moyennes de quatre radioéléments émetteurs gamma rejetées chaque jour par l'usine de La Hague (^{125}Sb , ^{137}Cs , ^{106}Ru et ^{60}Co ; 1800 données), et les concentrations de ces mêmes radioéléments mesurées dans l'eau de mer en deux stations situées à 8 et 35 km du point de rejet : Goury (une fois par semaine ; 213 données) et Cherbourg (une fois par quinzaine ; 111 données ; fig. 1).

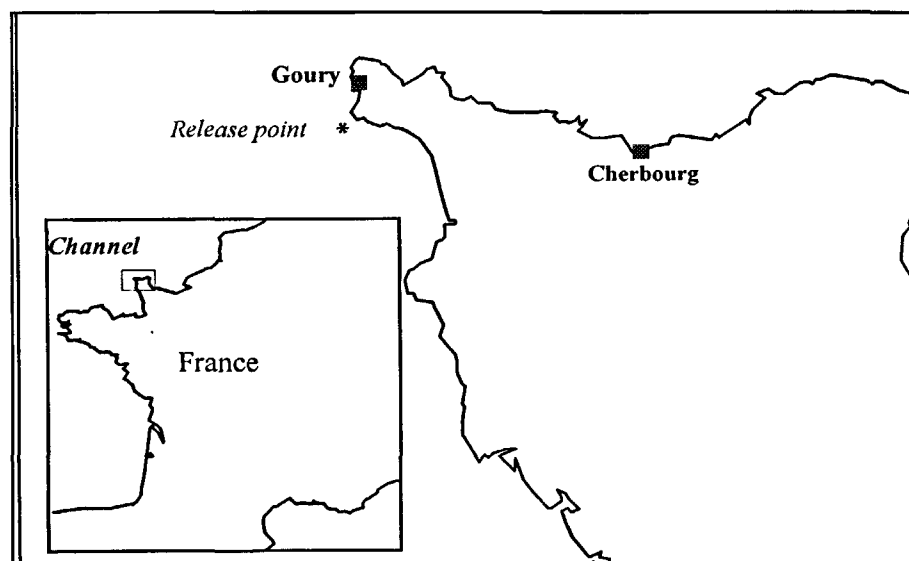


Figure 1

Carte de localisation des stations d'observation et du point de rejet.

Location map of the sampling stations and of the release point.

La théorie du traitement du signal nous conduit à les considérer comme des signaux représentatifs du point d'émission et des points de réception.

Considérations théoriques

De nombreuses méthodes d'analyse peuvent être utilisées pour extraire les informations contenues dans les séries temporelles envisagées : calcul de coefficients de corrélation, techniques de traitement du signal, analyse de Fourier, méthodes d'identification de processus. Ces méthodes, développées dans des disciplines variées, ont été formalisées dans deux théories mathématiques : théorie des fonctions aléatoires et théorie de la réponse linéaire (Max, 1972 ; Picinbono, 1993). De la première, on peut utiliser la notion de récepteur optimal, permettant d'extraire de façon optimale un signal faible au milieu d'un bruit important. De la seconde, nous retenons deux principes auxquels doivent satisfaire les systèmes étudiés (Guizerix et Margrita, 1976) :

– *le principe de superposition* : si $r_1(t), r_2(t), \dots, r_n(t)$ sont les réponses d'un système à des signaux d'entrée $e_1(t), e_2(t), \dots, e_n(t)$ agissant séparément, la réponse du système à un signal constitué d'une combinaison linéaire des signaux d'entrée $\sum_i a_i e_i(t)$ est la même combinaison des signaux de sortie $\sum_i a_i r_i(t)$; en d'autres termes, la réponse du système varie linéairement en fonction des excitations qui lui sont appliquées ; le comportement du système est dit linéaire, condition généralement satisfaite lorsque les excitations restent petites ;

– *le principe de permanence* : si $r(t)$ est la réponse d'un système à un signal d'entrée $e(t)$ agissant à l'instant t , l'action de ce même signal à $t-\tau$ entraînera une réponse $r(t-\tau)$; autrement dit, les mêmes excitations produisent toujours les mêmes effets ; le comportement du système est dit invariant dans le temps.

Si le principe de superposition peut s'appliquer, au moins en première approximation, au cas étudié, l'invariance dans le temps du système doit être vérifiée. La méthode proposée permet de tourner en partie la difficulté.

Parmi les différentes méthodes envisageables pour traiter le problème posé, nous avons choisi celle qui était la plus prometteuse en terme de prédiction : elle consiste à extraire des données la réponse impulsionnelle du système qui permet, dans un second temps, de prédire le signal au point de réception (station de mesure de la radioactivité de l'eau de mer) connaissant le signal au point d'émission (émissaire de l'usine de La Hague).

La théorie de la réponse impulsionnelle a été mise en œuvre dans des domaines très variés : hydrologie (Corompt *et al.*, 1974 ; Guizerix et Margrita, 1976 ; Margrita *et al.*, 1983 ; Margrita, 1988), pollution (Barrat *et al.*, 1990 ; Sawaragi *et al.*, 1979), génie civil, industries mécanique, chimique, nucléaire (Froelicher, 1971). La réponse impulsionnelle $h(t)$ d'un système linéaire est la réponse de ce système à une excitation brève et intense (signal de Dirac) ; sa connaissance permet de déterminer la réponse $r(t)$ à un signal d'entrée quelconque $e(t)$:

$$r(t) = \int_{t=0}^{+\infty} e(t-\tau) \cdot h(\tau) \cdot d(\tau) \quad (1)$$

Cette intégrale de superposition ou intégrale de convolution est notée :

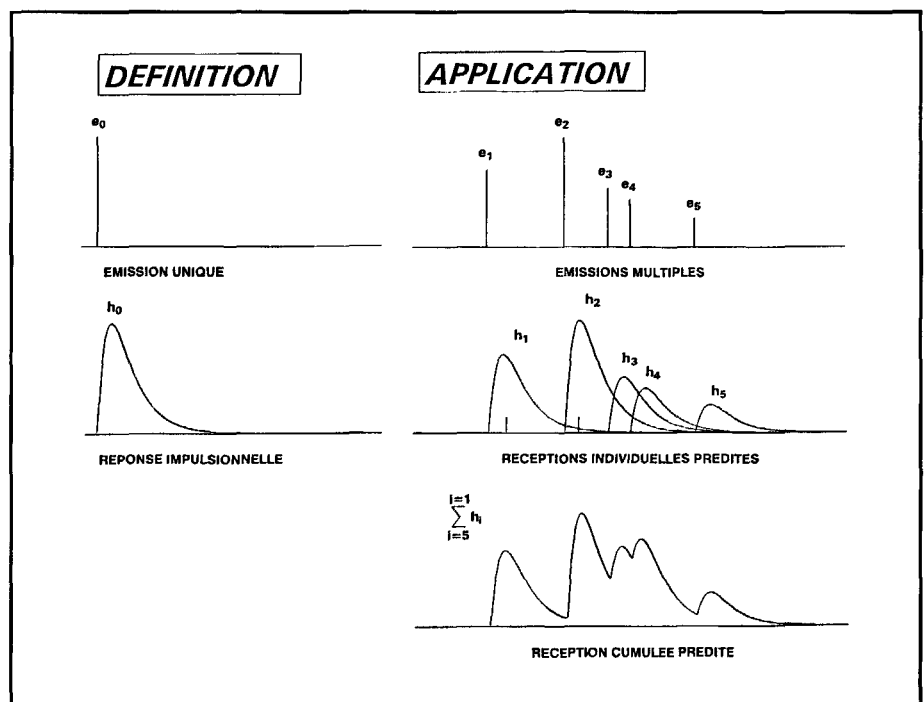
$$r(t) = e(t) * h(t) \quad (2)$$

Ces concepts sont illustrés par un exemple simple (fig. 2). Une émission unique e_0 permet de définir la réponse impulsionnelle h_0 . On peut appliquer la réponse impulsionnelle ainsi définie à un signal composé d'émissions multiples

Figure 2

Définition de la réponse impulsionnelle pour une émission simple e et application à un signal composé d'émissions multiples e_1 à e_5 donnant des réponses individuelles h_1 à h_5 ; le signal de réception calculé est la somme des réponses individuelles.

Definition of the pulse response for a single emission e and application to a complex signal comprising multiple emissions e_1 to e_5 yielding individual responses h_1 to h_5 ; the reception signal is the sum of the individual responses.



(e1 à e5). Chaque impulsion induit une réponse individuelle (h1 à h5). Le signal de réception est la somme des réponses individuelles. En d'autres termes, le signal de réception est le produit de convolution entre le signal d'émission et la réponse impulsionnelle.

Détermination de la réponse impulsionnelle

En principe, pour déterminer la réponse impulsionnelle, il suffit d'observer le signal reçu après une émission courte et assez intense pour qu'il ne reste pas noyé dans le bruit. Malheureusement, ce cas idéal ne se rencontre pas dans les données.

Dans certains cas (réacteurs chimiques, par exemple), on peut créer une émission aléatoire par des injections contrôlées d'un traceur : la réponse impulsionnelle est alors obtenue par calcul de la fonction d'intercorrélation du signal reçu et du signal émis (Calmet, 1986). Dans le cas présent, l'émission n'étant pas totalement aléatoire, cette méthode ne donne pas satisfaction, comme le démontre Max (1972).

Dans d'autres cas classiques, on peut utiliser les transformations de Fourier qui donnent également, ici, des résultats médiocres. En effet, étant uniquement issues de la théorie de la réponse linéaire, elles ne comportent aucun élément statistique et ne fonctionnent pas correctement en présence de bruit. L'émission n'étant pas aléatoire et la réception étant entachée de bruit, on est conduit à mettre en oeuvre une méthode analogue à celle utilisée par les automaticiens pour l'identification de processus.

Détermination de la réponse impulsionnelle par la méthode des moindres carrés

La réponse impulsionnelle étant inconnue, on cherche à déterminer un certain nombre de points de cette fonction. Pour cela, on recherche les valeurs de la réponse impulsionnelle selon un pas temporel T, aux instants $\tau_i = (i+1/2).T$ (T, entier positif ou nul) :

$$H_i = h(\tau_i) \tag{3}$$

Considérons des inconnues $H_0, H_1, H_2... H_n$ représentant les valeurs de la réponse impulsionnelle pour les différents retards $\tau_i : T/2, 3T/2, 5T/2, ..., (n+1/2)T$. Par convolution avec le signal émis, on en déduit une prédiction du signal reçu. L'intégrale de convolution se réduit à une somme :

$$r(t) = \sum_{j=0}^n e(t - \tau_j).H_j.T \tag{4}$$

On dispose d'une série de mesures du signal reçu à des instants $t_1, t_2, ..., t_k$ quelconques. L'écart quadratique E entre réception calculée, $r(t_k)$, et réception mesurée, $m(t_k)$:

$$E = \sum_k [r(t_k) - m(t_k)]^2 \tag{5}$$

est minimisé par la méthode des moindres carrés, ce qui détermine les valeurs des inconnues ; le minimum est atteint si, pour tout i :

$$\frac{\partial E}{\partial H_i} = 0 \tag{6}$$

soit :

$$\sum_k 2.[r(t_k) - m(t_k)].e(t_k - \tau_i).T = 0 \tag{7}$$

ou encore, si l'on remplace $r(t_k)$ par son expression :

$$\sum_k 2. \left[\sum_{j=0}^n e(t_k - \tau_j).H_j.T - m(t_k) \right].e(t_k - \tau_i).T = 0 \tag{8}$$

Cela conduit à un système linéaire de n+1 équations dont les n+1 inconnues sont $H_0, H_1, ..., H_n$. Ce système peut être résolu par la méthode du pivot.

La méthode des moindres carrés peut être considérée comme la meilleure possible puisqu'elle entre dans le cadre de la théorie du récepteur optimal (fig. 3).

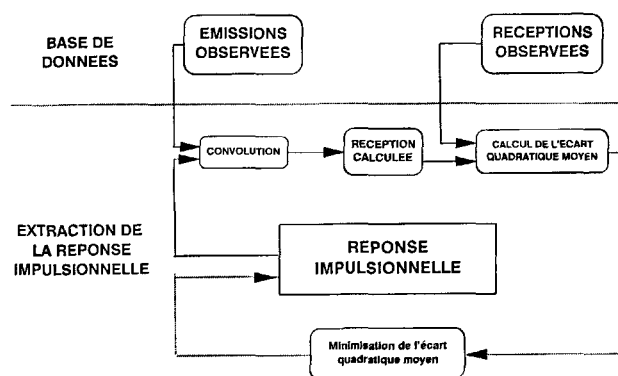


Figure 3

Schéma de principe de la détermination de la réponse impulsionnelle à partir de séries temporelles décrivant l'émission et la réception.

Flow diagram for the determination of the pulse response from observed emission and reception time-series.

De plus, on peut ainsi prendre en compte le principe de causalité en éliminant a priori les retards négatifs. Cette loi de causalité est une information ajoutée à celle contenue dans les données ; elle entraîne une amélioration du rapport signal sur bruit de la réponse impulsionnelle.

Il en va de même avec l'élimination des retards supérieurs à nT, mais à ce niveau un choix doit être fait sur la valeur de n.

Choix du retard maximal

Si on fait croître n, l'écart entre prédiction et réalité diminue et peut devenir nul, la prédiction semble parfaite et le bruit paraît éliminé du signal reçu. Cela est bien entendu complètement illusoire : on a réussi à « prévoir le bruit » de réception en allongeant et en compliquant la réponse impulsionnelle, mais on n'a fait que transférer du bruit vers celle-ci. C'est pourquoi seule est justifiée la recherche de réponses impulsionnelles beaucoup plus courtes que la durée sur laquelle s'étendent les données.

Par ailleurs, le retard maximal étudié doit être suffisamment grand pour inclure toute la région physiquement significative de la réponse impulsionnelle recherchée. Celle-ci n'étant

pas connue *a priori* on ne peut qu'essayer différentes valeurs de n et observer l'évolution des résultats obtenus, tant pour la réponse impulsionnelle que pour l'écart entre prédiction et réalité. Ici encore, on pourra justifier les hypothèses faites par la qualité de la prédiction obtenue.

L'évaluation du bruit qui affecte la réponse impulsionnelle peut être faite en étendant les retards vers des valeurs négatives. Le principe de causalité permet d'affirmer que la réponse est nulle pour un retard négatif ; on n'observe donc, dans ce domaine, que du bruit.

On peut aussi vérifier que l'écart entre prédiction et observation est aléatoire par calcul de sa fonction d'autocorrélation ; en effet, la fonction d'autocorrélation d'une fonction aléatoire est nulle sauf à l'origine.

Choix du pas temporel d'échantillonnage de la réponse impulsionnelle

Le retard étant choisi, il reste à déterminer le pas de temps avec lequel on souhaite échantillonner la réponse impulsionnelle. On peut choisir un pas large qui conduit à une réponse impulsionnelle peu détaillée ou un pas plus fin qui donne un profil plus sujet au bruit. La multiplication des points échantillonnés sur la réponse impulsionnelle améliore la qualité de la prédiction dans la période analysée mais augmente le bruit contenu dans la réponse impulsionnelle. En pratique, les données analysées limitent la valeur du pas à $1/3$ ou $1/4$ de celle du retard maximal ; on obtient ainsi un profil de la réponse impulsionnelle défini par trois ou quatre points. Cette résolution peut paraître médiocre ; elle se révèle pourtant bien adaptée pour la prédiction des concentrations à une station d'observation donnée.

Application à l'étude des modalités de la dispersion en mer des effluents de l'usine de retraitement

Extraction de la réponse impulsionnelle à partir des séries temporelles de concentrations en radioéléments dissous obtenues à Goury et à Cherbourg

L'émission est connue rejet par rejet (une ou deux valeurs par jour) ; nous l'utilisons sous forme de totaux journaliers, exprimés en Bq/jour. La réception, exprimée en mBq/l, est connue par des mesures réalisées à Goury, environ une fois par semaine (213 données) et à Cherbourg, environ une fois par quinzaine (111 données). Le traitement suppose que le pas choisi pour l'échantillonnage de la réponse impulsionnelle est supérieur à celui avec lequel est connue l'émission. Il est intéressant de noter que la méthode exploite toutes les observations à la réception quelles que soient leurs dates ou leur régularité.

L'application de la méthode de calcul décrite sur la figure 3 conduit aux réponses impulsionnelles présentées sur la figure 4, pour les quatre radioéléments considérés, à Goury et à Cherbourg. L'amplitude de la réponse impulsionnelle exprimée en $(10 \text{ km})^{-3}$ est portée en fonction du retard exprimé en mois dans chaque cas. On vérifie que, pour un retard négatif qui n'a évidemment aucun sens du point de vue physique, l'amplitude de la réponse impulsionnelle est peu différente de zéro. Dans tous les cas, l'amplitude maxi-

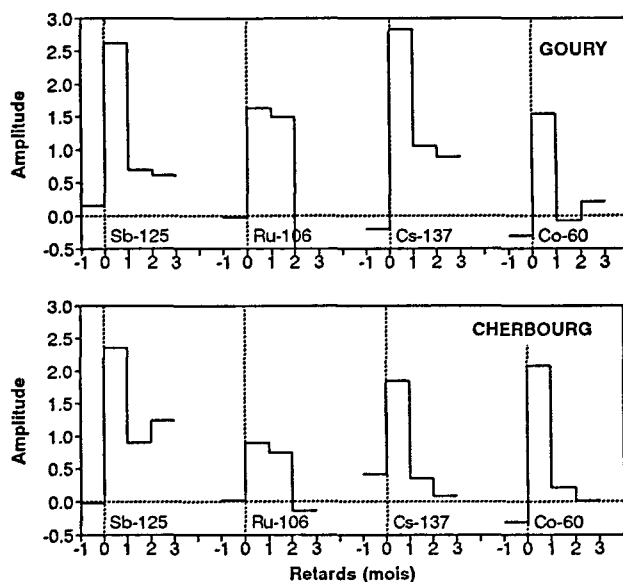


Figure 4

Profils des réponses impulsionnelles obtenues à Goury et à Cherbourg pour les quatre radioéléments étudiés ; les amplitudes sont exprimées en jour/km^3 divisées par 2 pour ^{106}Ru et ^{137}Cs .

Profiles of the pulse responses obtained at Goury and Cherbourg for the four radioelements studied ; amplitudes are expressed in day/km^3 divided by 2 for ^{106}Ru and ^{137}Cs .

male est observée dans le premier mois ; pour des retards supérieurs à un mois, l'amplitude décroît considérablement dans la plupart des cas. Affiner la résolution temporelle de la réponse impulsionnelle, par exemple, jusqu'à une semaine, ou augmenter la valeur du retard maximal, ne conduit qu'à injecter du bruit dans la réponse impulsionnelle sans pour autant améliorer la qualité de la prédiction.

L'amplitude de la réponse impulsionnelle peut fournir une indication du volume moyen d'eau de mer concerné par la dilution de la radioactivité rejetée au cours d'une période donnée. A Goury, dans le cas de ^{125}Sb , l'amplitude de la réponse impulsionnelle pour un retard de 1 mois vaut $2,63 (10 \text{ km})^{-3}$; cela signifie que tout se passe comme si la concentration observée résultait de la dilution de l'activité rejetée pendant un mois dans un volume moyen de $1000 \text{ km}^3/2,63$ soit quelque 380 km^3 ; pour un retard de deux mois, ce volume moyen atteint presque 1500 km^3 .

A partir des profils des réponses impulsionnelles présentés sur la figure 4 où $T = 30$ jours et où l'amplitude de la réponse impulsionnelle est prise égale à sa valeur échantillonnée à l'instant moyen $\tau_i = (i+1/2)T$, on peut calculer le retard moyen, τ_{moy} , c'est-à-dire le nombre de jours qu'un élément rejeté met, en moyenne, pour atteindre la station d'observation :

$$\tau_{\text{moy}} = \frac{\sum H_i \tau_i}{\sum H_i} \quad (9)$$

où H_i est l'amplitude de la réponse impulsionnelle dans un intervalle de 30 jours et τ_i , le retard moyen en jours afférent à l'intervalle i ($\tau_i = -15$ pour l'intervalle -1 à 0 mois). Notons que le retard moyen ainsi calculé (sur quatre intervalles de 30 jours) ne diffère pas de plus d'un jour de celui

qui serait obtenu avec une meilleure définition de la réponse impulsionnelle (90 intervalles d'un jour), même quand le profil de cette dernière est très dissymétrique. De façon inattendue, on obtient des retards moyens peu différents entre Goury et Cherbourg (tab. 1). Nous rechercherons l'explication de ce phénomène dans l'hydrodynamique locale.

Tableau 1

Retards moyens (jours) de l'impact d'un rejet, à Goury et à Cherbourg, calculés d'après les profils des réponses impulsionnelles (voir texte pour le mode de calcul).

Mean delays (days) of the impact of a release, at Goury and Cherbourg, computed from pulse response profiles (see text for explanation of the calculations).

	¹²⁵ Sb	¹⁰⁶ Ru	¹³⁷ Cs	⁶⁰ Co
GOURY	28	19	35	29
CHERBOURG	30	24	29	23

Utilisation de la réponse impulsionnelle pour prédire les concentrations en radioéléments dissous dans une station d'observation

La réponse impulsionnelle extraite selon le principe illustré par la figure 3 peut maintenant être utilisée pour construire un signal de sortie (= prédire les concentrations observées) par convolution de la réponse impulsionnelle avec le signal d'entrée (quantité de radioéléments rejetée), en suivant le protocole décrit sur la figure 5. La partie variable du signal émis, caractérisée par une valeur moyenne nulle, convoluée par la réponse impulsionnelle, conduit à la prédiction de la composante variable (C1) du signal reçu. La partie constante du signal émis est convoluée par la réponse impulsionnelle et permet de calculer une composante constante (C2) du signal reçu. Ce faisant, et comme le profil de la réponse impulsionnelle est inconnu pour des retards supérieurs au retard maximal (trois mois, ici) retenu pour le calcul, on omet la composante à long terme (C3) du signal reçu. En pratique, on peut tourner la difficulté en calculant l'aire de la réponse impulsionnelle pour les retards supérieurs au retard maximal précédemment choisi ; la somme des composantes C1, C2 et C3 constitue le signal reçu calculé.

Le calcul de l'aire de la réponse impulsionnelle pour des retards supérieurs au retard maximal, qui permet de déterminer la composante à long terme C3 (tab. 2), est réalisé selon la méthode suivante.

L'aire de la réponse impulsionnelle S_{RI} pour les retards inférieurs au retard maximal est calculée par la formule :

$$S_{RI} = \sum_i H_i \cdot T \quad (10)$$

où H_i est l'amplitude de la réponse impulsionnelle pour chaque retard d'ordre i (-1 à 0, 0 à 1, 1 à 2, 2 à 3 mois) et T , le nombre de jours auquel elle s'applique (30 jours, pour chaque valeur d'amplitude). Ainsi définie, la surface de la réponse impulsionnelle, S_{RI} , s'exprime en jours/(10 km)³, et caractérise l'impact à court terme (moins de trois mois). Une estimation de l'impact global (retard maximal $\rightarrow \infty$) peut être réalisée par le rapport Q de la concentra-

tion moyenne mesurée en mBq/l au débit moyen rejeté exprimé en GBq/jour (Fraizier *et al.*, 1992). La différence entre le rapport Q (impact global) et la surface S_{RI} (impact à court terme) caractérise l'impact à long terme, c'est-à-dire se manifestant avec un retard supérieur à trois mois (tab. 2).

Tableau 2

Estimation de l'impact des rejets non pris en compte par la réponse impulsionnelle à court terme (< 3 mois), à Goury et Cherbourg ; cf. texte pour explication.

Estimation of the impact of releases not taken into account by the short term (< 3 months) pulse response, at Goury and Cherbourg ; see text for explanation.

	¹²⁵ Sb	¹⁰⁶ Ru	¹³⁷ Cs	⁶⁰ Co
Rejet moyen (GBq/jour)	366	2163	46	30
GOURY				
Concentration moyenne (mBq/l)	107	520	23	6,3
$Q^{(1)}$ (jours/(10 km) ³)	279	223	493	166
S_{RI} (retard < 3mois) (jours/(10 km) ³)	208	146	221	23
$Q-S_{RI}$	71	77	272	143
S_{RI}/Q	0,75	0,65	0,45	0,14
CHERBOURG				
Concentration moyenne (mBq/l)	81	368	13	2,2
$Q^{(1)}$ (jours/(10 km) ³)	221	172	401	79
S_{RI} (retard < 3mois) (jours/(10 km) ³)	144	112	196	66
$Q-S_{RI}$	77	60	205	13
S_{RI}/Q	0,65	0,65	0,49	0,84

(¹) La valeur Q est la moyenne des rapports annuels de la concentration moyenne (mBq/l) au rejet moyen journalier (GBq/jour).

Le rapport S/Q exprime la part du signal reçu qui peut être expliquée grâce aux calculs présentés par la figure 5 (composantes C1 et C2). Dans la plupart des cas considérés (tab. 2), 45 à 84 % de l'impact (S/Q) est ressenti dans les trois premiers mois suivant le rejet. Le cas du ⁶⁰Co, à Goury, est manifestement plus délicat à interpréter puisque près de 86 % de l'impact échappe à la prédiction à court terme ($S/Q = 0,14$).

Avant d'appliquer la méthode qui vient d'être présentée au calcul des concentrations en radioéléments dissous dans l'eau de mer, et de discuter de la validité des prédictions obtenues, nous allons tenter de mettre en évidence l'influence du vent sur les modalités de dispersion.

Mise en évidence de l'influence du vent sur la dispersion des radioéléments

On a jusqu'alors considéré le système étudié comme invariant ; cependant, les réponses impulsionnelles calculées correspondent à l'état moyen d'un système qui, en réalité, est

variable. En particulier, on sait que le vent est capable d'induire des courants dans les eaux de surface, modifiant ainsi les modalités de dispersion, et donc, la distribution spatiale des radioéléments dans l'eau, selon sa force et sa direction.

Pour mettre en évidence les modulations induites par le vent, nous avons comparé les parties variables des séries de concentrations observées et prédites, et tenté d'estimer la qualité de la prédiction pour différents régimes de vent. Pour ce faire, on a calculé le coefficient de corrélation entre séries prédites et séries observées. Les observations ont été séparées en deux classes en fonction du vecteur vitesse du vent, compté positivement vers l'est. Seule la composante sur l'axe est-ouest du vecteur vitesse est prise en compte ; soit V , sa valeur moyennée sur les quinze jours précédant la mesure à la station d'observation ; soit V_{moy} , sa valeur moyenne annuelle, c'est-à-dire $1,1 \text{ m s}^{-1}$ d'ouest :

– la classe 1 contient toutes les observations telles que $V < V_{\text{moy}}$, c'est-à-dire réalisées après une période de vents faibles ou d'est (107 observations à Goury et 55 à Cherbourg) ;

– la classe 2 contient toutes les observations telles que $V > V_{\text{moy}}$, c'est-à-dire réalisées après une période de vents d'ouest (106 observations à Goury et 56 à Cherbourg).

On extrait séparément la réponse impulsionnelle pour chacune des deux classes, que l'on utilise ensuite pour calculer le signal prédit (fig. 3) ; les coefficients de corrélation entre séries observées et séries prédites sont présentés sur la figure 6 pour chacune des deux classes (Est, Ouest) à Goury et Cherbourg ; les valeurs obtenues pour

Tableau 3

Retards moyens (jours) de l'impact d'un rejet, à Goury et à Cherbourg, pour différentes conditions de vent ; E: vents faibles ou d'est ; W: vents d'ouest.

Mean delays (days) of the impact of a release, at Goury and Cherbourg ; Est: weak or easterly winds ; Ouest: westerly winds.

	^{125}Sb		^{106}Ru		^{137}Cs		^{60}Co	
	E	W	E	W	E	W	E	W
GOURY	27	25	28	11	29	37	36	20
CHERBOURG	33	28	34	18	41	38	66	20

l'ensemble des observations (Tout) sont également portées sur le graphe. Sauf dans le cas du ^{60}Co , à Goury, la prédiction est systématiquement meilleure par vent d'ouest que par vent d'est. Cette méthode ne laisse donc aucun doute sur l'influence du vent dans les modalités de dispersion de l'effluent en mer. Lorsque les vents sont faibles ou d'est, l'impact du rejet à la côte se fait moins clairement sentir et est, de ce fait, un peu plus difficile à prévoir. Cela suggère que le retard de l'impact à la côte doit s'accroître dans ces mêmes conditions : c'est effectivement ce qui est observé dans un certain nombre de cas bien que cette approche soit plus délicate à mettre en œuvre (tab. 3).

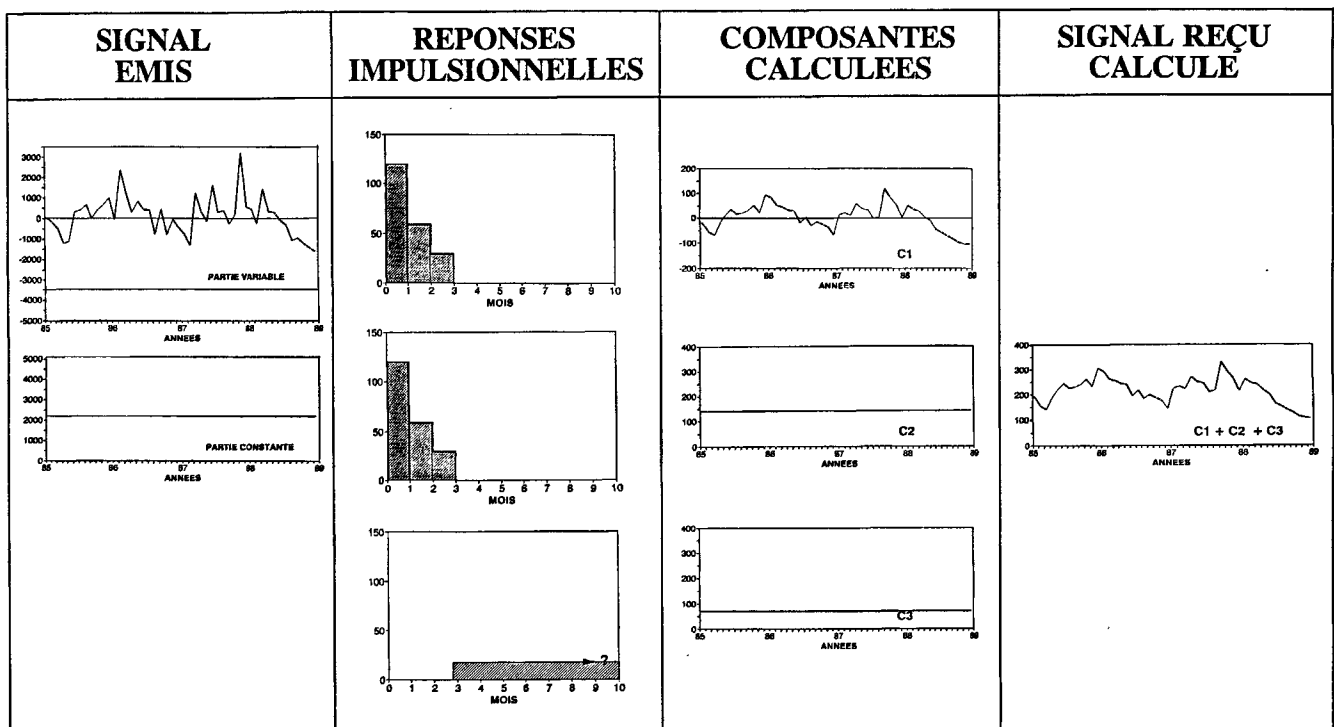


Figure 5

Principe de calcul du signal reçu (concentrations prédites) à partir du signal émis (quantités rejetées) ; les flèches 1, 2 et 3 indiquent des opérations de convolution ; les convolutions 2 et 3 sont réductibles à de simples multiplications (composantes constantes).

Principle of reception signal computation (predicted concentrations) from the emission signal (released amounts) ; arrows 1, 2 and 3 indicate convolution operations ; convolutions 2 and 3 are simple multiplications (constant components).

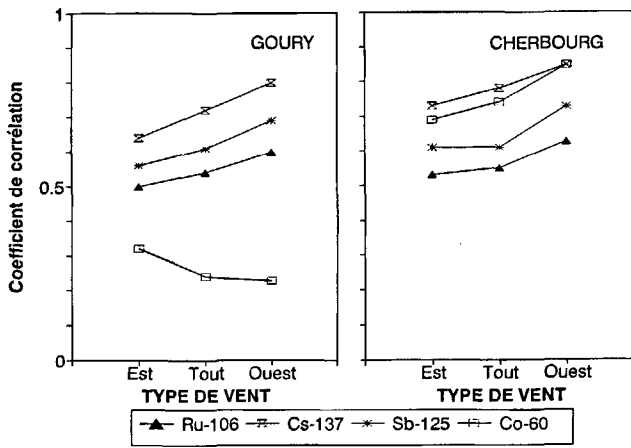


Figure 6

Coefficients de corrélation entre séries calculées et séries observées pour différentes classes de vent ; Est: vents faibles ou d'est ; Ouest: vents d'ouest ; Tout: tous vents confondus.

Correlation coefficients between observed and computed time-series ; Est: weak or easterly winds ; Ouest: westerly winds ; Tout: all winds together.

Prédiction des concentrations dans l'eau de mer en deux stations

Les activités calculées selon le principe exposé sur la figure 5 ne constituent évidemment pas une véritable prédiction puisque les séries temporelles choisies pour l'extraction de la réponse impulsionnelle, et pour le calcul des activités, couvrent la même période. Dans ce chapitre, nous rapportons les résultats obtenus en pratiquant une

extraction de la réponse impulsionnelle sur une période de 2,5 ans (1984,0 à 1986,5), utilisée ensuite pour prédire les concentrations dans l'eau de mer sur les 2,5 années suivantes (1986,5 à 1989,0) ; les concentrations sont également calculées sur la période d'analyse des données (1984,0 à 1986,5). La façon la plus immédiate de juger de la qualité de la prédiction obtenue est de comparer visuellement les séries calculées aux séries observées ou de calculer un coefficient de corrélation entre les deux séries.

Deux exemples sont présentés sur la figure 7 : ¹⁰⁶Ru à Goury, ¹²⁵Sb à Cherbourg. Dans les deux cas, la comparaison des séries calculées avec les séries observées, non seulement sur la période d'analyse (1984,0 - 1986,5) mais aussi sur la période de prédiction (1986,5 - 1989,0) montre que la méthode conduit à une prévision correcte à la fois des concentrations en radioéléments et de leur évolution dans le temps. La figure 7 montre deux exemples de prédictions pour ¹⁰⁶Ru et ¹²⁵Sb, à Goury et à Cherbourg, respectivement. Pour chaque cas, on présente l'évolution des rejets entre 1984 et 1988, les résultats des mesures effectuées dans l'eau de mer (réception observée) ; seule la période 1984,0 et 1986,5 est utilisée pour déterminer la réponse impulsionnelle qui sert à calculer les concentrations prédites dans l'eau de mer sur l'ensemble des cinq années étudiées (réception calculée). L'analyse des coefficients de corrélation entre les séries calculées et observées montre que même pour la période 1986,5 - 1989,0 non prise en compte pour la détermination de la réponse impulsionnelle, la prédiction reste de bonne qualité (fig. 7).

Comme la gamme des concentrations, observées ou calculées, est relativement étroite (l'écart-type relatif est de l'ordre de 30 % pour le ¹⁰⁶Ru à Goury et de 35 % pour ¹²⁵Sb à Cherbourg), la qualité de la prédiction peut être évaluée

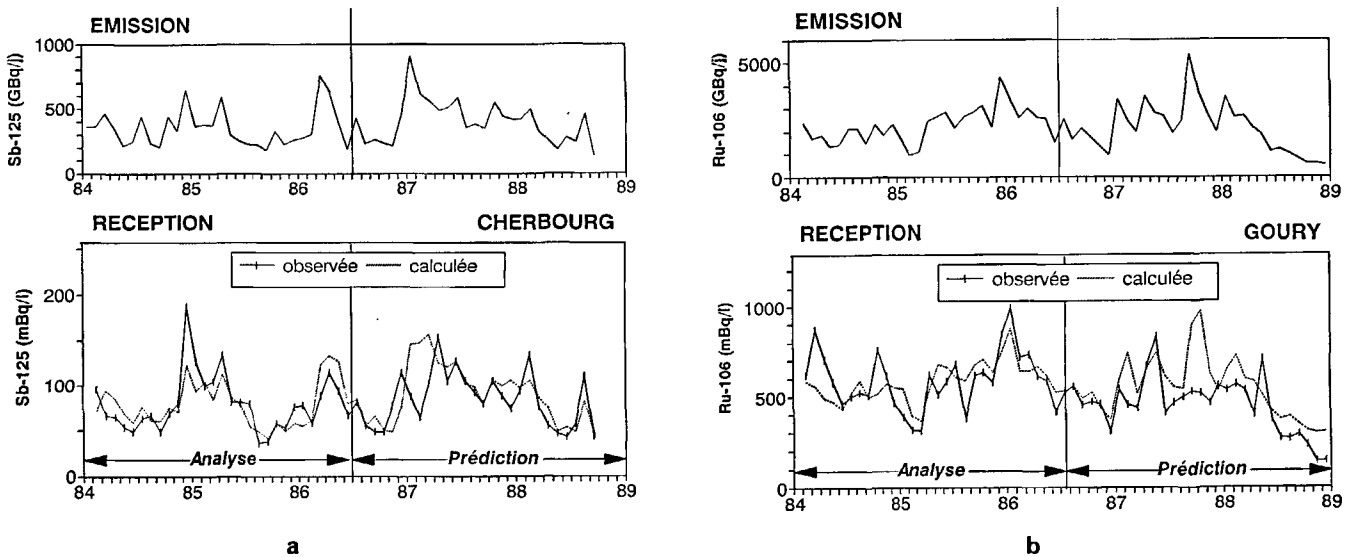


Figure 7

Comparaison des réceptions calculées et des réceptions observées ; a: cas de ¹⁰⁶Ru à Goury ; b: cas de ¹²⁵Sb à Cherbourg ; la période prise en compte pour l'analyse des données s'étend de 84,0 à 86,5 (le coefficient de corrélation série calculée/série observée est de 0,62 pour ¹⁰⁶Ru et de 0,65 pour ¹²⁵Sb) ; la prédiction est réalisée pour une période complètement indépendante: 86,5 à 89,0 (le coefficient de corrélation série calculée/série observée est de 0,74 pour ¹⁰⁶Ru et 0,60 pour ¹²⁵Sb).

Comparison of computed and observed reception time-series ; a: ¹⁰⁶Ru at Goury ; b: ¹²⁵Sb at Cherbourg ; the data are analysed over the 84.0 to 86.5 time interval (the correlation coefficients between prediction and observation are 0.62 and 0.65 for ¹⁰⁶Ru and ¹²⁵Sb, respectively) ; the prediction is calculated over an independent time interval: 86.5 à 89.0 (the correlation coefficients between prediction and observation are 0.74 and 0.60 for ¹⁰⁶Ru and ¹²⁵Sb, respectively).

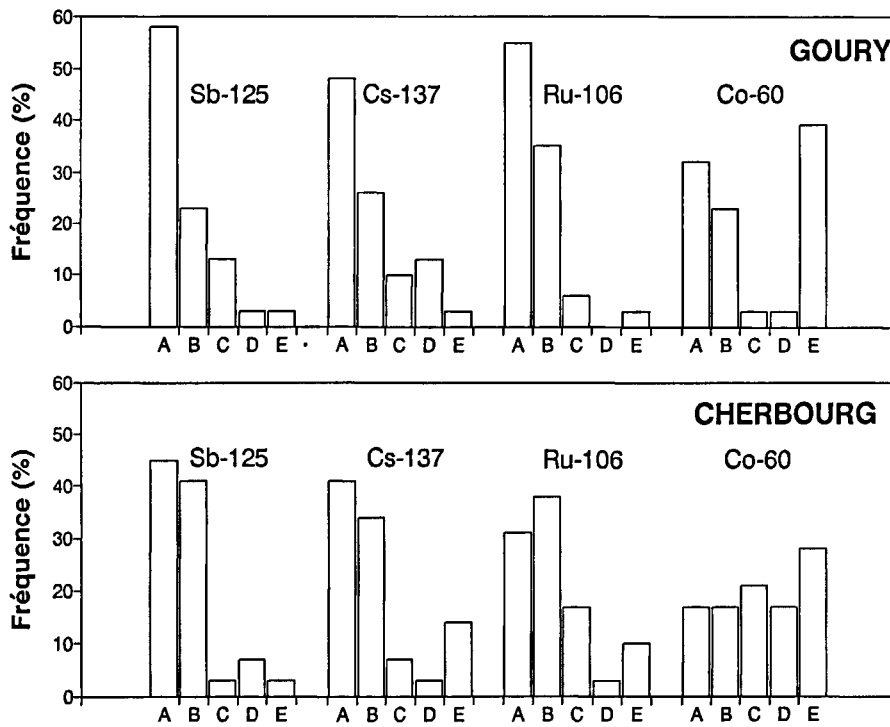


Figure 8

Histogrammes de fréquence permettant de juger de la qualité des prédictions calculées dans les deux sites étudiés.

A : écart entre prédiction et observation compris entre 0 et 20 %

B : écart entre prédiction et observation compris entre 20 et 40 %

C : écart entre prédiction et observation compris entre 40 et 60 %

D : écart entre prédiction et observation compris entre 60 et 80 %

E : écart entre prédiction et observation supérieur à 100 %.

Frequency histograms for the evaluation of the prediction quality in both sites.

A : Prediction-observation discrepancy in the range 0-20 %

B : Prediction-observation discrepancy in the range 20-40 %

C : Prediction-observation discrepancy in the range 40-60 %

D : Prediction-observation discrepancy in the range 60-80 %

E : Prediction-observation discrepancy higher than 100 %.

plus finement en calculant pour chaque valeur calculée, E_c , l'écart relatif à la valeur observée E_o , selon la formule :

$$\Delta \% = 100(E_o - E_c)/E_c \quad (11)$$

La valeur absolue de $\Delta\%$ est d'autant plus faible que la valeur calculée s'approche de la valeur mesurée. Sur la figure 8, on a représenté la distribution des valeurs absolues de $\Delta\%$ en cinq classes sous forme d'histogrammes pour les quatre éléments dans les deux sites. La prédiction est généralement de qualité acceptable : écarts inférieurs à 40 % dans 70 à 90 % des cas pour ^{125}Sb , ^{137}Cs et ^{106}Ru dans les deux sites. Le cas du ^{60}Co est manifestement plus complexe. A Goury, il apparaît de nombreux écarts supérieurs à 80 %, tandis qu'à Cherbourg, la prédiction est uniformément médiocre.

DISCUSSION

Interprétation des variations du rapport Q

Si l'on considère que le retard moyen à Goury est de l'ordre d'un mois, les rapports Q (cf. tab. 2) calculés pour Sb et Ru, de période respective 2,7 et 1 an, doivent être corrigés d'un facteur 1,022 et 1,059 respectivement, pour tenir compte de la décroissance radioactive de ces éléments. Cela conduit aux valeurs suivantes : $Q_{\text{Sb}} = 285$ et $Q_{\text{Ru}} = 236$. Si l'on considère que la différence entre Q_{Sb} et Q_{Ru} est due à une adsorption sur les particules sédimentaires, on peut exprimer les fractions sorbées, F , de ces deux éléments comme suit :

$$F_{\text{Sb}} = \frac{Q_c - Q_{\text{Sb}}}{Q_c} \quad (12)$$

$$F_{\text{Ru}} = \frac{Q_c - Q_{\text{Ru}}}{Q_c} \quad (13)$$

où Q_c est le rapport concentration moyenne/rejet journalier moyen représentatif d'un élément strictement conservatif. Le rapport $F_{\text{Ru}}/F_{\text{Sb}}$ doit être compatible avec les rapports Ru/Sb observés dans les particules sédimentaires, de l'ordre de 20. Dans ces conditions, Q_c prend une valeur de 290, conduisant à des fractions sorbées d'environ 1 % et 20 % pour l'antimoine et le ruthénium, respectivement. Un calcul analogue donne une valeur Q_c de 230 pour Cherbourg.

Si l'on considère que les écarts observés entre Q_{Sb} et Q_{Ru} ne sont dus qu'à la simple décroissance radioactive de chacun de ces éléments, le rapport $Q_{\text{Sb}}/Q_{\text{Ru}}$ (égal à 1,21 à Goury et 1,24 à Cherbourg) conduit à des retards moyens de l'ordre de cinq à six mois, ce qui est incompatible avec les observations.

De cette première étape de la discussion, nous retiendrons que le rapport Q , corrigé de la décroissance radioactive et calculé pour un élément strictement conservatif, c'est-à-dire dont la dispersion est commandée par la seule dynamique des masses d'eau, doit être d'environ 290 à Goury et 230 à Cherbourg. Pour Goury, cette estimation est très cohérente avec la valeur du rapport Q calculée pour le ^{99}Tc ($Q = 287$), pour la même période (Masson, données non publiées) ; ce radioélément dont l'excellente conservativité a été démontrée a une période radioactive de $2,1 \times 10^5$ ans. En d'autres termes, cela signifie qu'un rejet de 1 GBq/jour d'un radioélément n'interagissant pas avec les constituants particulières, vivants ou inertes, du milieu, induit des activités respectives de 290 et 230 mBq/l à Goury et à Cherbourg. On ne peut, cependant, exclure des variations de ces valeurs dans le temps, en réponse à des changements dans la physico-chimie des radioéléments ou dans les modalités du rejet.

Dans le cas de ^{137}Cs , les valeurs du rapport Q sont très supérieures à Q_c , valeur théorique pour un élément strictement conservatif ; cela signifie qu'il y a un excès de ^{137}Cs dans les échantillons d'eau analysés, dont on peut donner une estimation par la formule suivante :

$$^{137}\text{Cs}_{ex} = C_{obs} - (R \times Q_c / 1000) \quad (14)$$

où C_{obs} est la concentration moyenne mesurée en ^{137}Cs (mBq/l), R , le rejet moyen journalier (GBq/j) et, où Q_c prend la valeur 290 à Goury et 230 à Cherbourg ; le facteur 1/1000 est appliqué pour conserver la cohérence des unités avec le tableau 2.

On doit ainsi rendre compte d'un excès moyen de 6 mBq/l à Goury et 3 mBq/l à Cherbourg. Les valeurs anormalement élevées obtenues pour l'année 1986 (respectivement 15 et 7 mBq/l, à Goury et à Cherbourg) ont été écartées pour le calcul de l'excès moyen ; elles correspondent, en effet, à une période de diminution des rejets d'un facteur 3 ; cette évolution rapide des activités rejetées, alliée à la rémanence dans le golfe normand-breton d'eaux marquées par les rejets de l'année précédente, conduit à une surestimation des excès calculés. Comme les échantillons d'eau de mer ne sont pas filtrés, il faut d'abord évaluer quelle peut y être la contribution de la phase particulaire. En prenant une activité de 20 Bq/kg, caractéristique de la fraction fine des sédiments déposés, et une concentration en matières en suspension de 1 à 10 mg/l, les activités en ^{137}Cs induites par les particules ne seraient que de 0,02 mBq/l à 0,2 mBq/l. Si, de plus, on considère que la fraction minérale des suspensions est diluée dans un stock important de particules biogènes, on voit que les excès observés sont bien dus à un stock de ^{137}Cs dissous, et non pas lié aux particules.

Une part de l'excès observé peut être attribuée aux retombées atmosphériques ; des mesures réalisées en 1986 à l'entrée occidentale de la Manche (Guéguéniat *et al.*, 1987) montrent que les eaux atlantiques pénétrant en Manche contiennent environ 2 mBq/l de ^{137}Cs ; de plus, dans certaines conditions, dont il reste à définir la fréquence, des eaux marquées par l'usine de Sellafield ($^{137}\text{Cs} = 4$ mBq/l en 1986) peuvent pénétrer en Manche occidentale, par le sud de la Cornouaille. Ces valeurs et leurs probables fluctuations semblent donc tout à fait capables d'expliquer le léger excès en ^{137}Cs observé à Cherbourg. Il resterait alors un excès de 2 à 4 mBq/l de ^{137}Cs à Goury dont l'origine ne pourrait s'interpréter que par un stockage du ^{137}Cs dans les sédiments suivi d'une désorption. Pour une hauteur d'eau moyenne de 30 m, chaque dm^2 de sédiment doit pouvoir fournir 0,9 Bq (3 mBq/l \times 300 l). L'activité désorbée exprimée en Bq à partir du sédiment peut s'écrire :

$$A_d = A_0 \times e \times \rho \times s \times F \quad (15)$$

où A_0 est l'activité du sédiment source exprimée en Bq/kg, e l'épaisseur de sédiment concernée par la désorption en dm, ρ la densité sèche *in situ* exprimée en kg/dm^3 , s la surface de sédiment concernée en dm^2 et F , la fraction désorbée.

On peut, à titre d'exemple, paramétrer cette équation en prenant $A_0 = 10$, $e = 1$, $\rho = 1$, $s = 1$ et $F = 0,1$; dans ce cas, $A_d = 1$ Bq. Ces valeurs, quoique plausibles, ne permettent

cependant pas de statuer définitivement sur la contribution des sédiments de fond à l'excès de ^{137}Cs observé à Goury. En effet, une désorption aussi active conduirait à brève échéance à un épuisement du stock de ^{137}Cs , ce qui est infirmé par les observations.

Le tableau 2 montre que, comme pour le ^{106}Ru , le rapport Q calculé pour le ^{60}Co est très inférieur à ce qu'on attendrait d'un élément de longue période strictement conservatif. Comme la période du ^{60}Co est de 5,27 ans, la décroissance radioactive intervenant entre le rejet et sa détection aux stations d'observation est évidemment négligeable, et ne peut rendre compte du déficit en ^{60}Co . Le déficit en ^{60}Co est calculé, par analogie avec le calcul de l'excès de ^{137}Cs ; la formule suivante qui fournit pour $^{60}\text{Co}_{ex}$ des valeurs négatives, c'est-à-dire caractéristiques d'un déficit :

$$^{60}\text{Co} = C_{obs} - (R \times Q_c / 1000) \quad (16)$$

où C_{obs} est la concentration moyenne mesurée en ^{60}Co (mBq/l), R , le rejet moyen journalier (GBq/j) et, où Q_c prend la valeur 290 à Goury et 230 à Cherbourg ; le facteur 1/1000 est appliqué pour conserver la cohérence des unités avec le tableau 2.

Les résultats obtenus pour les cinq années d'étude sont portés, en valeurs relatives par rapport aux activités calculées, sur la figure 9 pour les deux sites. A Goury, les déficits ne sont significatifs qu'en 1984 et 1985 : 7 et 5 mBq/l, respectivement, soit 60 et 40 % des valeurs calculées sur la base d'un comportement conservatif. Pour Cherbourg, le déficit en ^{60}Co varie entre 3 et 7 mBq/l, ce qui représente un déficit à peu près constant compris entre 60 et 70 %, selon les années.

Ces résultats montrent que, parmi les éléments considérés, le ^{60}Co est celui qui interagit le plus efficacement avec les constituants du milieu, les particules sédimentaires notamment. Le calcul des rapports (K_p) des activités mesurées dans les sédiments ($A_{séd}$) et dans l'eau (A_{eau}) conforte cette interprétation :

$$K_p = A_{séd} / A_{eau} \quad (17)$$

où $A_{séd}$ et A_{eau} sont exprimées dans les mêmes unités, en mBq/kg par exemple. Le rapport K_p n'excède pas 500 pour ^{125}Sb et 2500, pour ^{106}Ru ; il est de l'ordre de 5000 à 10 000 pour ^{137}Cs , tandis qu'il peut atteindre 100 000 pour ^{60}Co .

Les différences de comportement du ^{60}Co entre Goury et Cherbourg, et, selon les années à la station de Goury, sont plus délicates à expliquer. Le ^{60}Co est rejeté sous forme de Co^{++} cationique et sous forme de complexes, en proportion variable ; le cobalt cationique peut interagir avec les particules, tandis que le cobalt engagé dans des complexes ne peut le faire qu'après dégradation de ces derniers. La combinaison de ces deux processus conduit à un déficit de 70 % à Cherbourg. Dans le cas de Goury, le déficit observé en 1984 et 1985 est probablement dû au fait que la méthode de préconcentration utilisée pour mesurer le ^{60}Co dans l'eau de mer ne permet de détecter que le cobalt cationique ou engagé dans des complexes faibles, espèces chimiques dont on est amené à penser qu'elles deviennent dominantes à partir de 1986.

Dans ce contexte, le ^{60}Co aurait, en première approximation, un comportement conservatif à Goury et pas à Cherbourg. Si les processus d'interaction avec les supports particuliers sont identiques, notamment en terme de cinétique, on pourrait rendre compte des observations par des temps de séjour très différents: les retards moyens, du même ordre de grandeur pour les deux sites, figurant dans le tableau 1, infirment cette hypothèse. On doit donc considérer que les masses d'eau parvenant à Goury et à Cherbourg ont subi, sur leurs parcours respectifs, des échanges particulaire-dissous différents. Une simple variation de charge particulaire pourrait rendre compte des observations: les coefficients de distribution (Kd) entre phases particulaire et dissoutes sont en effet très sensibles à la charge solide. Duursma et Bosch (1970) ont, par exemple, montré que le Kd peut augmenter d'un facteur 3 quand la charge solide passe de 100 à 10 mg/l. Il s'agit des toutes premières investigations sur le ^{60}Co , élément ayant une spéciation chimique complexe dans l'effluent de l'usine de la Hague et interagissant fortement avec les particules. Les travaux en cours sur les modalités et la composition chimique des rejets doivent permettre d'élucider certains aspects du comportement de ce radioélément dans le milieu marin.

La discussion qui vient d'être menée sur le rapport Q permet de comprendre pourquoi les profils des réponses impulsionnelles obtenus en chacun des deux sites étudiés ne sont pas rigoureusement identiques, comme on pourrait le croire *a priori* d'éléments strictement conservatifs. La nature physico-chimique des radioéléments au moment de leur émission dans le milieu et la diversité des interactions avec les constituants du milieu qui en résulte (^{106}Ru , ^{60}Co), l'existence de sources additionnelles, variables dans le temps (^{137}Cs) altèrent la qualité de la réponse impulsionnelle extraite des données. Malgré cela, la prédiction donne généralement une description correcte de la réalité.

Explication des écarts entre observation et prédiction dans le cas du ^{106}Ru

Dans l'exemple de la figure 7a, on remarque, notamment en 1987 et début 1988, que certains pics d'activité prédits en ^{106}Ru ne sont pas observés dans les mesures; cela pourrait être dû à des rejets contenant une importante proportion de formes complexes du ^{106}Ru , qui de ce fait, ne seraient pas pris en compte par la méthode de préconcentration de l'eau de mer (Gandon *et al.*, 1994). De plus, pendant l'année 1988 au cours de laquelle le rejet en ^{106}Ru décroît considérablement, les concentrations prédites sont systématiquement surestimées de 50 à 150 mBq/l. Ce phénomène s'explique de la façon suivante: rappelons d'abord que la composante constante du signal de réception est calculée à partir de la moyenne du rejet journalier (émission) sur la période de prédiction (fig. 5). Comme les rejets diminuent, la valeur moyenne du rejet sur la période 86,5 - 89,0 est inférieure à celle calculée pour la seule année 1988. La composante constante est donc surestimée. A ce stade du travail, nous n'avons pas choisi de calculer la composante constante de la réception à partir de la moyenne de l'année en cours (au lieu de la moyenne calculée sur la totalité de la période de prédiction) car cela ne conduit pas à une amélioration sensible de la qualité de la prédiction pour l'ensemble des cas étudiés.

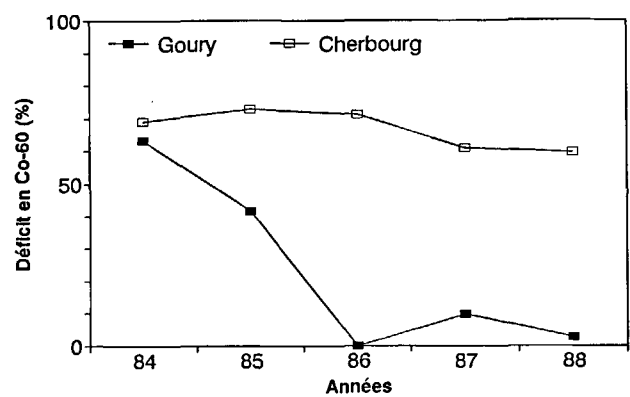


Figure 9

Déficits en ^{60}Co observés à Goury et Cherbourg de 84 à 88.

^{60}Co deficits observed at Goury and Cherbourg from 84 to 88.

Retards moyens et hydrodynamique locale

Les retards moyens calculés pour Goury et Cherbourg sont du même ordre de grandeur, 28 et 30 jours respectivement pour ^{125}Sb . Cette particularité, surprenante *a priori*, au vu des distances respectives des deux stations au point de rejet peut s'expliquer par le fait que 82 % des eaux marquées par le rejet transitent directement vers l'est, donc vers Cherbourg (Salomon, comm. pers.), les 18 % restant étant entraînés dans le tourbillon de Flamanville dont ces auteurs estiment le temps de rotation à environ trois semaines.

Ces particularités de la dispersion de l'effluent à courte distance peuvent aussi rendre compte du fait que les retards moyens observés à Cherbourg sont relativement homogènes (24-30) pour les quatre radioéléments étudiés, tandis qu'à Goury, les valeurs sont plus dispersées (19-35). Le tourbillon de Flamanville favorise les interactions des radioéléments avec les constituants du milieu (supports minéraux et organiques) et constitue, de plus, une structure sensible au forçage par le vent. Ces caractéristiques d'instabilité font que l'hypothèse d'invariance peut être moins bien vérifiée à cette station d'observation.

CONCLUSION

La méthode statistique prédictive qui vient d'être exposée s'appuie sur la théorie du traitement du signal. Elle consiste à déterminer la réponse impulsionnelle (réponse à une excitation brève et intense) caractéristique d'un système à partir de données d'observation puis à l'utiliser pour prédire les réponses dudit système. Elle a été testée dans un environnement difficile (la Manche centrale, mer mégatidale à haute énergie) pour étudier la dispersion en mer de radionucléides de période radioactive et de comportement physico-chimique variés (^{125}Sb , ^{106}Ru , ^{137}Cs , ^{60}Co), après leur émission à partir d'un terme source unique et parfaitement connu: les rejets contrôlés de l'usine de retraitement de combustibles irradiés de La Hague; elle comporte plusieurs étapes bien distinctes qui ont été décrites en détail.

La première étape consiste à extraire la réponse impulsionnelle à partir de séries de données décrivant les quantités de radioéléments émises au point source (émission) et les

concentrations induites dans l'eau de mer en deux stations d'observation (réception) ; la routine proposée consiste à minimiser l'écart quadratique moyen entre séries observées et séries calculées ; elle permet d'utiliser toutes les données disponibles même si leur pas de temps est variable et différent, et ne pose aucun *a priori* sur la forme de la réponse impulsionnelle. On fait, à ce stade, l'hypothèse que le système a un comportement linéaire et invariant. Le choix du retard maximal et du pas d'échantillonnage a fait l'objet d'une attention particulière et constitue un compromis, dans le cas étudié : retard maximal suffisamment petit par rapport à la période par les données ; pas d'échantillonnage suffisamment grand pour minimiser l'effet du bruit dans la réponse impulsionnelle.

Dans un second temps, on utilise la réponse impulsionnelle pour prédire les concentrations en radioéléments dans les stations d'observation par convolution de la réponse impulsionnelle avec le signal d'entrée (quantités de radioélément rejetées). La comparaison entre observation et prédiction est généralement bonne sauf dans le cas du ^{60}Co .

En séparant les données d'observation en deux classes en fonction de la composante est-ouest du vecteur vitesse du vent, on met clairement en évidence l'influence du vent sur les modalités de dispersion des radioéléments en mer ; par vent d'ouest, les prédictions sont meilleures et le retard de l'impact à la côte tend à diminuer.

Des modifications qui permettraient d'améliorer, à l'avenir, la qualité de la prédiction pourraient être apportées dans le mode de calcul de la partie constante du signal émis et la prise en compte du vent :

– la partie constante du signal émis est déterminée en moyennant les données sur l'ensemble de la période d'observation ; cette option est valable tant que le signal émis ne présente pas de tendances évolutives à long terme. C'est pré-

cisément ce qui est observé à partir de 1988 (décroissance des rejets) ; il conviendra donc de moyenniser les données sur un intervalle de temps plus court de façon à prendre en compte cette caractéristique nouvelle des données ;

– l'influence du vent a été clairement mise en évidence mais n'est pas prise en compte dans le calcul de la réponse impulsionnelle ; cela pourra être réalisé en considérant le vent comme une source de modulation secondaire, au même titre que l'effluent lui-même, accélérant ou retardant la propagation du signal sans altérer son amplitude moyenne.

Dans son état actuel, cette méthode de calcul constitue déjà un outil opérationnel adapté aux études d'impact de rejets industriels.

Remerciements

Les auteurs expriment leurs remerciements à Mme A.M. Beau (Bureau de Documentation en Sécurité Nucléaire, CE-Fontenay-aux-Roses), M.R. Margrita (Direction des Techniques Avancées, CE-Grenoble), M.R. Gandon (IPSN/DPEI LRM), M.Y. Lecluse (Laboratoire d'Automatique et de Commande des Processus, ISMRA - Caen) pour leur aide documentaire et scientifique, et au personnel technique du Laboratoire de Radioécologie Marine de Cherbourg et du Groupe d'Etudes Atomiques pour leur assistance dans le domaine des prélèvements et des mesures de radioactivité dans l'eau de mer. Les données concernant les rejets contrôlés de l'usine de La Hague ont été aimablement fournies par le Service Prévention et Radioprotection de cet établissement. Ce travail a été partiellement financé sous contrat IPSN/COGEMA.

RÉFÉRENCES

- Barrat M., Y. Lecluse, Y. Slamani (1990). Étude comparative de différents modèles mathématiques pour la prédiction des niveaux de pollution atmosphérique - Analyse univariante. *APII*, **24**, 283-298.
- Calmet D. (1986). Synthèse radioécologique des différents compartiments de l'environnement marin du Cotentin. *Thèse de Doctorat d'État*, Univ. Aix-Marseille, 254 p.
- Corompt P., B. Gaillard, J. Guizerix, R. Margrita, J. Molinari, R. Corda, N. Crampon, D. Olivier (1974). Méthode pour la détermination de caractéristiques de transfert de substances polluantes dans les nappes aquifères. In: *Isotope techniques in groundwater hydrology*, I.A.E.A. Vienne, SM-182, 405-424.
- Duursma E.K., C.J. Bosch (1970). Theoretical, experimental and field studies concerning diffusion of radioisotopes in sediments and suspended particles of the sea - Part B: Methods and experiments. *Neth. J. Sea Res.* **4**, 395-469.
- Frazier A., P. Guéguéniat, J.C. Salomon (1992). Aspects temporels de l'impact de rejets radioactifs effectués en mer, sur des eaux d'une station littorale de la Manche. *Oceanologica Acta* **15**, 75-85.
- Froelicher B. (1971). Contribution à la mesure de la réponse impulsionnelle d'un réacteur nucléaire par excitation pseudo-aléatoire de la source. *Thèse de Doctorat d'État*, Grenoble.
- Gandon R., Y. Baron, A. Frazier, D. Boust, P. Germain, P. Guéguéniat (1994). Incidences des procédés d'épuration appliqués aux effluents industriels sur le comportement chimique du ruthénium 106 dans l'environnement marin. Cas des rejets de l'usine de retraitement des combustibles irradiés de La Hague. *Radioprotection* **29**, 339-361.
- Guéguéniat P., R. Gandon, Y. Baron, J.C. Salomon, J. Pentreath, J.M. Brylinski, L. Cabioch (1987). Utilisation des radioéléments artificiels (^{125}Sb - ^{137}Cs - ^{134}Cs) pour l'observation (1983-1986) des déplacements de masses d'eau en Manche. In: *Radionuclides in the study of marine processes*, P.J. Kershaw, D.S. Woodhead, éd. Elsevier Science Publishing Co., Inc., New-York, 260-270.
- Guizerix J., R. Margrita (1976). Méthodologie d'étude par traceurs des transferts de masse. *La Houille Blanche*, **3/4**, 187-196.
- Margrita R. (1988). Tracer theory. In: *Proceedings of the 4th conference "Radioisotope Application and radiation processing in Industry"*, Leipzig, 19-23 sept. 1988.
- Margrita R., J. Guizerix, P. Corompt, B. Gaillard, P. Calmels, A. Mangin, M. Bakalowicz (1983). Réflexions sur la théorie des traceurs - Applications en hydrologie isotopique. In: *Colloque international sur l'hydrologie isotopique et la mise en valeur des ressources en eau*, I.A.E.A. Vienne, SM-270, 653-678.
- Max J. (1972). Méthodes et techniques du traitement du signal et applications aux mesures physiques. Masson éd., Paris, 331 p.

Picinbono B. (1993). *Théorie des signaux et systèmes*. Dunod éd. Paris, 260 p.

Prandle D. (1984). A modelling study of the mixing of ^{137}Cs in the seas of the European continental shelf. *Phil. Trans.Roy. Soc. London* A310, 407-436.

Salomon J.C., M. Breton (1991). Courants résiduels de marée dans la Manche. *Oceanologica Acta*, vol. spe., 11, 47-53.

Sawaragi Y., T. Saeda, T. Yoshimura, S. Ohé, Y. Cluijo, H. Ishihara (1979). Statistical prediction of air pollution levels using non physical models. *Automatica* 15, 441-448.
