

# Évolution de la radioactivité artificielle gamma dans des sédiments littoraux de la Manche pendant les années 1976-1977-1978

Migration des radionucléides  
Radioactivité artificielle gamma  
Déchets radioactifs  
Sédiments  
Manche  
Radionuclide migration  
Gamma artificial radioactivity  
Radioactive wastes  
Sediments  
English Channel

P. Guéguéniat<sup>a</sup>, J. P. Auffret<sup>b</sup>, Y. Baron<sup>c</sup>

<sup>a</sup>C.E.A. Laboratoire de Radioécologie marine, Département de Protection, B. P. n° 270, 50107 Cherbourg, France

<sup>b</sup>Laboratoire de Géologie marine, Université de Caen, France

<sup>c</sup>Groupe d'Études atomiques, Marine nationale, Cherbourg, France.

Reçu le 17/7/78, révisé le 13/12/78, accepté le 20/12/78.

## RÉSUMÉ

Pour étudier la distribution des radioproduits de fission, principaux radionucléides artificiels introduits dans le milieu marin, on a considéré les estuaires, baies et ports où s'accumulent les vases. Sur chaque site les prélèvements ont été répartis en fonction des environnements sédimentaires présents. Les échantillons ont été recueillis dans la couche superficielle 0-10 cm; la représentativité du mode de prélèvement a été vérifiée par des examens de profils verticaux de radioactivité. La portion du littoral étudiée qui va de Brest à Dunkerque englobe le Nord-Ouest Cotentin, où se trouve implantée l'usine de traitement de combustibles irradiés de La Hague. Quelques sites de référence choisis à l'intérieur du golfe du Morbihan et sur la fraction littorale comprise entre les estuaires de la Loire et de la Gironde ont apporté des éléments d'information précieux sur la contribution des retombées atmosphériques consécutives aux 18<sup>e</sup>, 19<sup>e</sup>, 20<sup>e</sup>, 21<sup>e</sup> et 22<sup>e</sup> tests nucléaires chinois qui se sont succédés pendant la période d'étude. Les taux de radioactivité moyens observés ne dépassent pas 10-15 pCi/g pour <sup>106</sup>Ru-<sup>144</sup>Ce; 2,3 pour <sup>137</sup>Cs; 1 pour <sup>95</sup>Zr; 0,8 pour <sup>125</sup>Sb. Dans ces résultats la part des retombées peut atteindre (pCi/g) : 4 : <sup>144</sup>Ce; 1 : <sup>106</sup>Ru et <sup>95</sup>Zr; 0.2-<sup>125</sup>Sb; 0.6 : <sup>137</sup>Cs.

Les investigations menées montrent en 1976-1977 l'obtention d'un état d'équilibre pour <sup>106</sup>Ru et <sup>144</sup>Ce notamment dans le Nord-Ouest Cotentin et dans le golfe Normand-Breton où l'on observe une reconcentration de ces deux radionucléides avec un enrichissement préférentiel du <sup>144</sup>Ce par rapport au <sup>106</sup>Ru. En ce qui concerne le <sup>125</sup>Sb et le <sup>137</sup>Cs il est difficile d'interpréter les données obtenues en raison d'un comportement physicochimique particulier pour <sup>125</sup>Sb et d'une longue période radioactive pour <sup>137</sup>Cs. Dans le cas des autres radionucléides <sup>103</sup>Ru, <sup>141</sup>Ce, <sup>95</sup>Zr les résultats s'expliquent par la seule contribution des retombées atmosphériques. Dans la mesure où les taux de <sup>144</sup>Ce et de <sup>106</sup>Ru du golfe Normand-Breton sont essentiellement imputables aux rejets de La Hague on peut caractériser la résultante de la dispersion des radionucléides à partir de l'émissaire par un transfert de la fraction soluble vers l'est et un dépôt de la fraction particulaire vers l'ouest. Dans ce cas la durée de transit pourrait atteindre 2 ans, la limite entre secteurs soumis au double impact retombées atmosphériques-rejets industriels et secteurs soumis uniquement aux retombées se situerait entre l'embouchure du Trieux et la baie de Morlaix. En étudiant graphiquement les relations entre radionucléides on a établi des lois empiriques de distribution pour <sup>106</sup>Ru et <sup>137</sup>Cs à partir des teneurs en <sup>144</sup>Ce en faisant intervenir des paramètres caractérisant les régions considérées (pour les années 1976-1977).

*Oceanol. Acta*, 1979, 2, 2, 165-180.

## ABSTRACT

Evolution of gamma artificial radioactivity in coastal sediments of the English Channel during the years 1976, 1977 and 1978.

In order to investigate the distribution of fission products, which are the main man-made radionuclides introduced into the marine environment, studies were carried

out in estuaries, bays and harbours where mud and silt accumulate. For each site, samplings were distributed to take account of various sedimentary environments. Samples were collected from the surface layer 0-10 cm; the representativity of the sampling procedure was checked by examination of vertical radioactivity profiles. The investigation covered the coast from Brest to Dunkirk, and included the North-West Cotentin, where the La Hague fuel reprocessing plant is situated. Some reference sites inside the Morbihan gulf and along the coastline between the Loire and Gironde estuaries provided valuable information on the contribution of atmospheric fallout following the 18th, 19th, 20th, 21st and 22nd Chinese nuclear tests conducted during the period of investigation. Activity levels did not exceed 10.15 pCi.g for  $^{106}\text{Ru}$  and  $^{144}\text{Ce}$ ; 2.3 for  $^{137}\text{Cs}$ ; 1 for  $^{95}\text{Zr}$ ; 0.8 for  $^{125}\text{Sb}$ . Fallout (in pCi.g) accounted for up to 4:  $^{144}\text{Ce}$ ; 1:  $^{106}\text{Ru}$  and  $^{95}\text{Zr}$ ; 0.2:  $^{125}\text{Sb}$ ; 0.6:  $^{137}\text{Cs}$ . During 1976-1977, a state of equilibrium was found to prevail for  $^{106}\text{Ru}$  and  $^{144}\text{Ce}$ , especially in the North-West Cotentin and the Norman-Breton gulf, where reconcentration of both radionuclides was observed with preferential enrichment of the latter over the former. Levels of  $^{125}\text{Sb}$  and  $^{137}\text{Cs}$  were found to be low but were difficult to interpret, because of the particular physico-chemical behaviour of  $^{125}\text{Sb}$  and the long half-life of  $^{137}\text{Cs}$ . The results obtained for  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{141}\text{Ce}$ ,  $^{95}\text{Zr}$  may be explained entirely by the contribution of atmospheric fallout.  $^{144}\text{Ce}$  and  $^{106}\text{Ru}$  levels in the Norman-Breton gulf may be for the most part ascribed to La Hague disposals, radionuclide dispersal from the emissary being characterized by an eastward transfer of the soluble fraction and a westward transfer of the particulate fraction, with transit times which may last up to 2 years. The boundary between the areas submitted respectively to the twofold impact of fallout and industrial waste, and to fallout alone would appear to lie between the mouth of the Trieux river and Morlaix Bay. From a graphic representation of the relationship between radionuclides, empiric distribution laws for  $^{106}\text{Ru}$  and  $^{137}\text{Cs}$  were established from  $^{144}\text{Ce}$  level parameters characteristic of the areas considered (years 1976-1977).

*Oceanol. Acta*, 1979, 2, 2, 165-180.

## INTRODUCTION

Les produits de fission — émetteurs gamma — de l'uranium constituent la fraction dominante de la radioactivité artificielle introduite dans le milieu naturel. Dans le présent travail on discutera de la teneur de ces radionucléides dans des sédiments vaseux littoraux recueillis de Brest à Dunkerque entre juin 1976 et juillet 1978. Ces échantillons ont été soumis à des degrés divers au double impact rejets industriels-retombées atmosphériques, consécutives aux 18<sup>e</sup>, 19<sup>e</sup>, 20<sup>e</sup>, 21<sup>e</sup> et 22<sup>e</sup> tests nucléaires chinois qui se sont succédés pendant la période d'étude. Quatre thèmes ont principalement retenu l'attention : bilan évolutif de la radioactivité artificielle; caractérisation des résultats obtenus et estimation des limites supérieures de l'impact des retombées; suivi du cheminement des radionucléides à partir de l'émissaire de La Hague; application des diverses données obtenues à des études plus fondamentales de sédimentologie et d'hydrologie.

## DONNÉES PRÉLIMINAIRES

Quelques paramètres régissant les transferts de radionucléides dans le milieu doivent être présentés avant d'aborder la discussion des résultats analytiques, en particulier les rejets industriels de Windscale (en mer d'Irlande) et La Hague (en Manche); les retombées atmosphériques; les propriétés physicochimiques des radionucléides; les transferts des radionucléides dans les sédiments.

## Rejets industriels

Nous nous bornerons à comparer les caractéristiques principales des rejets de La Hague et de Windscale empruntées à une étude bibliographique traitant de l'impact des rejets industriels sur le milieu marin (Ancellin *et al.* 1979).

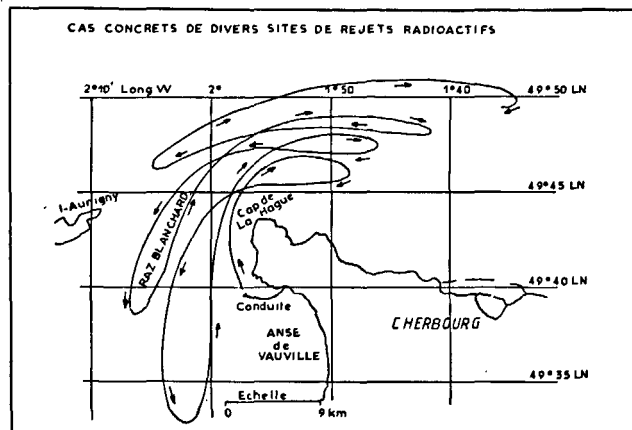
## Windscale

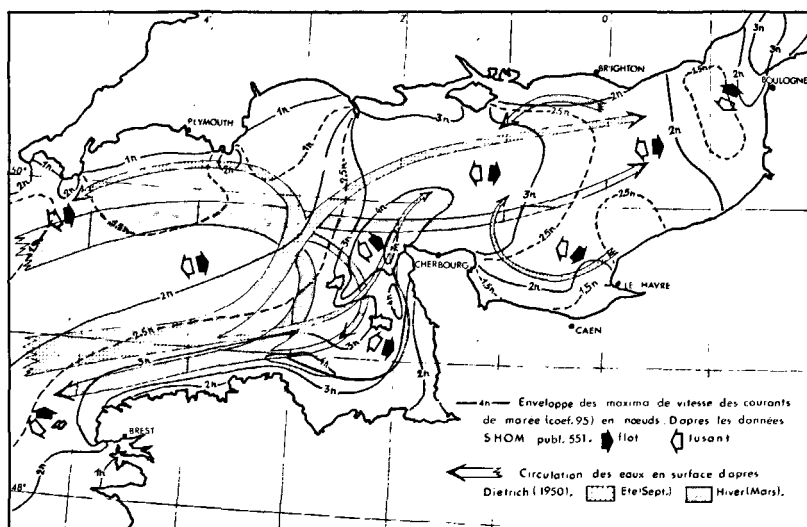
Les quantités de radionucléides rejetés par l'usine de Windscale en 1971 (Woodhead, 1973) ont été de 36 000 Ci pour le  $^{106}\text{Ru}$ ; 830 Ci pour le  $^{103}\text{Ru}$ , 12 300 Ci pour le  $^{90}\text{Sr}$ , 17 200 Ci pour le  $^{144}\text{Ce}$ , 35 800 Ci pour le  $^{137}\text{Cs}$ , 18 000 Ci pour le  $^{95}\text{Zr}$ , 17 300 Ci pour le  $^{95}\text{Nb}$ .

## Figure 1

Trajet d'une bouée lestée dans les eaux du Nord-Ouest Cotentin (d'après Ausset, 1969).

Track of a ballast buoy released off the North-West Cotentin (after Ausset, 1969).





La répartition à distance de la radioactivité due à l'introduction du <sup>137</sup>Cs du <sup>106</sup>Ru et du <sup>239</sup>Pu en mer d'Irlande a été étudiée par Hetherington *et al.* (1975). Ces auteurs indiquent que le ruthénium se trouve éliminé de la masse d'eau dans une proportion beaucoup plus importante que le césium, phénomène imputable à la fixation préférentielle du <sup>106</sup>Ru sur les sédiments au voisinage du point de rejet. Sur ces derniers sédiments les niveaux de radioactivité (pCi/g) seraient 4-29 (<sup>137</sup>Cs), 60-1 220 (<sup>144</sup>Ce), 86-1 990 (<sup>106</sup>Ru), 78-10 000 (<sup>95</sup>Zr). Le <sup>137</sup>Cs peu fixé au niveau des sédiments se trouverait entraîné vers la Mer du Nord en passant par le nord de l'Écosse avec un temps de transit de 1,1 à 1,8 an (Jefferies *et al.* 1973) caractérisé par un passage très lent en mer d'Irlande (Livingston, Bowen, 1977).

**La Hague**

Les rejets de l'usine de traitement de combustibles irradiés de La Hague sont reportés, depuis la mise en route (1966), dans le tableau 1. Pour l'année 1976 ils ont été de 15 000 Ci (<sup>106</sup>Ru), 940 Ci (<sup>137</sup>Cs), 160 Ci (<sup>144</sup>Ce), 92 Ci (<sup>95</sup>Zr), 971 Ci (<sup>125</sup>Sb). Les effluents sont émis dans une zone parcourue par de violents courants de marée de 6 à 8 nœuds, pouvant atteindre 10 nœuds en vive eau, orientés SN (flot) et NS (jusant). Au nord du Cotentin les courants deviennent moins forts (3 à 4 nœuds) et sont orientés OE (flot) et EO (jusant). Les rejets d'effluents radioactifs se font 2 heures avant la pleine mer (port de Dielette) et durent 3 heures. Grâce à des rejets de rhodamine, des largages de bouées lestées (Auset, 1969), on a pu suivre le trajet présumé (fig. 1). Les courants en Manche sont représentés figure 2.

Dans la région la plus proche du point de rejets, entre Goury au nord et Herquemoulin au sud, la côte est constituée de falaises rocheuses entrecoupées d'anses sableuses telle que l'anse d'Ecalgrain. Au large les fonds sont constitués de cailloutis, graviers ou sable graveleux (Auffret, Le Gall, 1972); ces fonds correspondent à des zones où les conditions hydrodynamiques empêchent la sédimentation. Les apports sédimentaires se localisent dans les zones calmes, il peut y avoir une accumulation de sables et même de fines dans les anses d'Ecalgrain et de Saint-Martin, la rade de Cherbourg et

▲ Figure 2 Courants de marée et circulation des eaux en Manche.

*Tidal currents and water circulation in the English Channel.*

Tableau 1 Rejets annuels en mer (Ci) de l'usine de traitement de combustibles irradiés de La Hague. Annual discharge into the sea (Ci) from the La Hague fuel reprocessing plant.

Année	<sup>3</sup> H	<sup>103</sup> Ru <sup>100</sup> Rh	<sup>106</sup> Ru <sup>100</sup> Rh	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>89</sup> Sr	<sup>90</sup> Sr <sup>90</sup> Y	<sup>144</sup> Pr <sup>144</sup> Ce	<sup>95</sup> Zr	<sup>95</sup> Nb	<sup>125</sup> Sb	<sup>60</sup> Co	<sup>110m</sup> Ag	<sup>65</sup> Zn	Autres radio-éléments	<sup>239</sup> Pu + <sup>241</sup> Pu	Uranium (kg)	Total en curies (uranium non compris)
1966			389		197	28	28									0,03	190	642,03
1967			1 326		443	17	11									0,32	280	1 797,32
1968			1 627		768	21	37									0,85	244	2 453,85
1969			1 434		545	7	19									0,36	126	2 005,36
1970	1 657	92	5 409	374	2 409	10	107	25	74		25					0,64	193	10 610,64
1971	2 113	187	7 712	1 298	6 556	21	447	355	72		68					3,91	205	20 038,91
1972	2 280	450	7 571	166	890	68	868	145	322		492					1,79	2 576	13 867,09
1973	2 967	116	7 104	227	1 872	33	510	177	23	39	1 789	11,3	0,3			2,19	1 346	16 158,79
1974	7 598	241	14 518	244	1 513	233	2 817	1 123	411	360	1 862	0,3	0,5	1,47		15,69	11,3 (*)	32 877,96
1975	11 120	410	22 425	115	931	235	2 029	566	309	270	1 943	5,9	0,5	0,04		7,07	6,2 (*)	43 050,51
1976	7 132	60	15 004	177	939	21	1 078	157	92	53	971	5,4	0,7	0,21		4,23	5,6 (*)	26 430,54

(\*) Uranium et autres émetteurs alpha (hormis le plutonium) en curies.

la baie du Becquet (Larsonneur, 1971). Sur la côte et le pré littoral français de la Manche, les sables fins et pelites se localisent dans les baies, les estuaires, les ports et sur la frange pré littorale sableuse vers -7 m (Auffret *et al.* 1975).

Dans le port de Fermanville — zone de sédimentation située à plus de 50 km à l'est du point de rejet — on a relevé une évolution des taux de radioactivité directement corrélable avec les rejets de La Hague et qui résume la situation de l'ensemble du Nord-Ouest Cotentin. Sur ce site — considéré comme un « témoin » — les taux de radioactivité les plus importants relevés entre 1971 et 1975 ont été (pCi/g) de 100 ( $^{144}\text{Ce}$ ); 26 ( $^{106}\text{Ru}$ ); 2,7 ( $^{95}\text{Zr}$ ); 0,72 ( $^{137}\text{Cs}$ ); 0,7 ( $^{95}\text{Zr}$ ); 0,2 ( $^{65}\text{Zn}$ ), au cours de la période décembre 1974-janvier 1975 (Guéguéniat *et al.* 1976).

Ces teneurs sont nettement inférieures à celles relevées à proximité de Windscale, elles-mêmes très en dessous des limites fixées par le CIPR Mitchell (1969-1971).

### Les retombées atmosphériques

Les radionucléides artificiels, qui ont fait leur apparition avec les premières explosions nucléaires, peuvent être introduits dans le milieu marin, soit directement par les retombées atmosphériques — celles-ci (en Atlantique et Méditerranée) sont toujours supérieures aux retombées continentales (en France) d'un facteur compris entre 2 et 3 (Chesselet, communication personnelle) — soit indirectement par les apports telluriques provenant des bassins drainés. Dans le cas du  $^{137}\text{Cs}$  la quasi-totalité des retombées continentales s'accumule dans les sols et n'est pas entraînée — tout du moins dans l'immédiat — par les fleuves dans les océans (Martin, 1970).

C'est au cours des années 1959 et 1963 que les tests nucléaires dans l'atmosphère ont été les plus fréquents; cette observation a été mise à profit pour estimer des vitesses de sédimentation en étudiant les distributions verticales d'éléments à longue période comme le  $^{137}\text{Cs}$  (Schreiber *et al.* 1968).

### Propriétés physicochimiques des radionucléides artificiels

Dans les conditions normales de l'eau de mer la forme

physicochimique d'un radionucléide dépend de l'origine (retombées, rejets industriels), du temps de contact avec le milieu et des réactions d'équilibre avec l'isotope stable naturellement présent. Dans le cas d'effluents industriels certains radionucléides comme le ruthénium présentent des propriétés différentes, non seulement d'une usine à une autre, mais également pour une même usine d'un type d'effluent à un autre (Guéguéniat, Gandon, 1977). Des modifications dans le traitement à l'usine, l'utilisation de nouveaux combustibles irradiés, l'amélioration dans le temps des techniques d'épuration avant rejet expliquent ce comportement.

Les propriétés physicochimiques des radionucléides introduits par les retombées atmosphériques ont été étudiées *in situ* (Chesselet, Lalou, 1965 a) et expérimentalement (Chesselet, Lalou, 1965 b). On trouvera dans le tableau 2 une description sommaire des caractéristiques physicochimiques dans l'eau de mer des principaux radionucléides artificiels rejetés par l'industrie nucléaire : le cérium et le zirconium sont très facilement hydrolysables, le césium et l'antimoine solubles existent respectivement sous formes cationique et anionique, le ruthénium se présente de son côté sous forme de complexes du nitrosyl-ruthénium ( $\text{RuNO}$ ) qui n'ont pas d'équivalent à l'état stable dans l'eau de mer.

### Processus de rétention. Évolution dans le temps

Il existe divers processus de rétention des radionucléides au niveau des sédiments par transfert à partir du milieu aqueux : fixation sur la matière en suspension dans l'eau de mer puis transport vers les zones à faible énergie où s'effectue la sédimentation; précipitation directe de formes colloïdales; fixation directe à l'interface mer-sédiment; dépôts d'organismes morts ayant préalablement fixé des radionucléides.

Les modalités de la fixation sont étroitement liées aux caractéristiques physicochimiques des éléments :

- adsorption directe pour des éléments qui sont hydrolysables dans l'eau de mer ( $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{106}\text{Ru}$  en partie);
- adsorption indirecte pour des éléments qui, solubles dans l'eau de mer, peuvent précipiter au contact du

Tableau 2

Période et propriétés physicochimiques dans l'eau de mer des principaux radionucléides étudiés.

*Radioactive period and physico-chemical properties of the main radionuclides studied.*

Radionucléide	Période	Propriétés physicochimiques
$^{144}\text{Ce}$	243 jours	Forte tendance à donner des formes particulières
$^{106}\text{Ru}$	1 an	Existe sous forme de complexes du nitrosylruthénium ( $\text{RuNO}$ ) dans lesquels le métal présente la coordinence 6. On distingue dans les effluents des proportions variables de composés nitrato (groupements $\text{NO}_3$ ) facilement hydrolysables et de composés nitro (groupements $\text{NO}_2$ ) peu hydrolysables
$^{103}\text{Ru}$	40 jours	Essentiellement introduit par les retombées, n'existe pas sous la forme $\text{RuNO}$
$^{125}\text{Sb}$	2,7 ans	Élément soluble anionique. Fraichement introduit dans le milieu il se présente sous une forme non adsorbable par les suspensions puis évolue très lentement vers une forme légèrement adsorbable
$^{137}\text{Cs}$	30,1 ans	Élément soluble cationique ( $\text{Cs}^+$ )
$^{95}\text{Zr}$	65 jours	Forte tendance à l'hydrolyse et à l'adsorption sur particules

sédiment. C'est le cas du cation  $Mn^{++}$  ( $Mn^{++} \rightarrow MnO_2$ ) lorsque le milieu est oxydant, de l'anion non adsorbable  $CrO_4^{--}$  ( $Cr^{6+} \rightarrow Cr^{3+}$ ) lorsque le milieu est réducteur; c) pour les cations la sorption met généralement en jeu des mécanismes plus complexes que ceux résultant d'un simple échange cationique. Le zinc par exemple serait essentiellement lié par des mécanismes impliquant la formation d'un complexe de coordination (Osterberg *et al.*, 1966); dans le cas du  $^{137}Cs$  la fixation se ferait sur des sites à « forte énergie de liaison » que l'on rencontre dans les argiles à 10 Å du type illite (Auffret *et al.*, 1971); les fixations par échange isotopique pourraient revêtir une certaine importance dans le cas du  $^{90}Sr$  (Duursma-Eisma, 1973);

d) pour les anions, en règle générale, la fixation est faible sauf pour  $Cr^{VI}$  en milieu réducteur ou lorsque le temps de contact est suffisamment important pour permettre à des réactions lentes de se manifester : destruction de complexes organiques du  $^{60}Co$ , destruction de l'équilibre entre les formes anioniques du  $^{106}Ru$  et leurs produits d'hydrolyse par exemple.

Le résultat combiné de ces actions qui dépend de l'interaction de facteurs propres au radionucléide, au milieu et au sédiment, est une localisation momentanée de la radioactivité à l'interface eau-sédiment. Par la suite le sort des radionucléides va dépendre de la décroissance radioactive, de l'enfouissement, de l'action de vers, de bactéries... et du phénomène de diffusion. En ce qui concerne l'action de cette dernière variable la résultante dépend : du degré de fixation sur le sédiment, la séquence des coefficients de diffusion est l'inverse de celle des coefficients de distribution (Duursma, Gross, 1971); des concentrations de l'élément dans l'eau libre et l'eau interstitielle; des phénomènes de compaction qui provoquent une migration vers l'eau libre (Duursma, Gross, 1971).

Les données relatives aux coefficients de diffusion résultent essentiellement de calculs mathématiques ou d'études expérimentales et nos connaissances à l'égard du phénomène *in situ* sont loin d'être précisées. Pour expliquer pratiquement les études de distribution verticale de radionucléides dans des carottes de sédiment, Bowen *et al.* (1976) distinguent 3 catégories de milieux sédimentaires :

- milieux abiotiques étudiés par Schreiber *et al.* (1969) dans le cas de la mer Ligure, par Krishnaswami *et al.*, (1973) dans celui du bassin de Santa Barbara;
- milieux biotiques où la vitesse de sédimentation est nettement inférieure à 1 cm/an. Dans de tels milieux étudiés par Bowen *et al.* (1976) et par Livingston-Bowen (1976), l'action des organismes fousseurs perturbant et favorisant une oxydation des couches revêt une grande importance. Les sillons creusés par les vers permettraient en particulier de favoriser un retour par diffusion verticale du plutonium vers l'eau de mer sus-jacente à la suite d'une dissolution de ces radionucléides sous forme de complexes organiques (Bowen *et al.*, 1976). Ce phénomène n'interviendrait pas pour le  $^{137}Cs$ ;
- milieux biotiques où la vitesse de sédimentation dépasse 1 cm/an. Les sédiments qui font l'objet de ce travail de même que ceux étudiés par Got (1972)

à l'embouchure du Rhône et par Hetherington *et al.* (1975) en mer d'Irlande appartiennent à cette troisième catégorie. Dans ce type de sédiment on ne peut exclure le phénomène de bioperturbation qui provoquerait un étalement des événements radioactifs relatifs à 1 année déterminée sur 3 ou 4 années de sédimentation (Bowen *et al.*, 1976). Les travaux récents d'Hetherington (1978) ne confirment pas la remobilisation éventuelle du plutonium sous l'effet d'une action biologique, le rôle des vers — s'il existe — serait limité aux premiers centimètres de la couche.

## RÉSULTATS

Pour étudier la distribution dans les sédiments littoraux des radioproduits de fission, principaux radionucléides artificiels introduits dans le milieu marin, l'attention a porté sur les estuaires, baies et ports où s'accumulent les vases. Sur chaque site les prélèvements ont été répartis selon les caractéristiques des environnements sédimentaires présents : vasières, sliques, schorres, piégeage accidentel. Les échantillons ont été recueillis dans la couche superficielle 0-10 cm; la représentativité du mode de prélèvement a été vérifiée par des carottes pouvant atteindre 2 m de profondeur.

La portion du littoral examinée, reportée figure 3, qui

Figure 3  
Répartition des sites étudiés de Brest à Dunkerque de 1976 à 1977.

Sampling stations established between Brest and Dunkirk, 1976-1977.

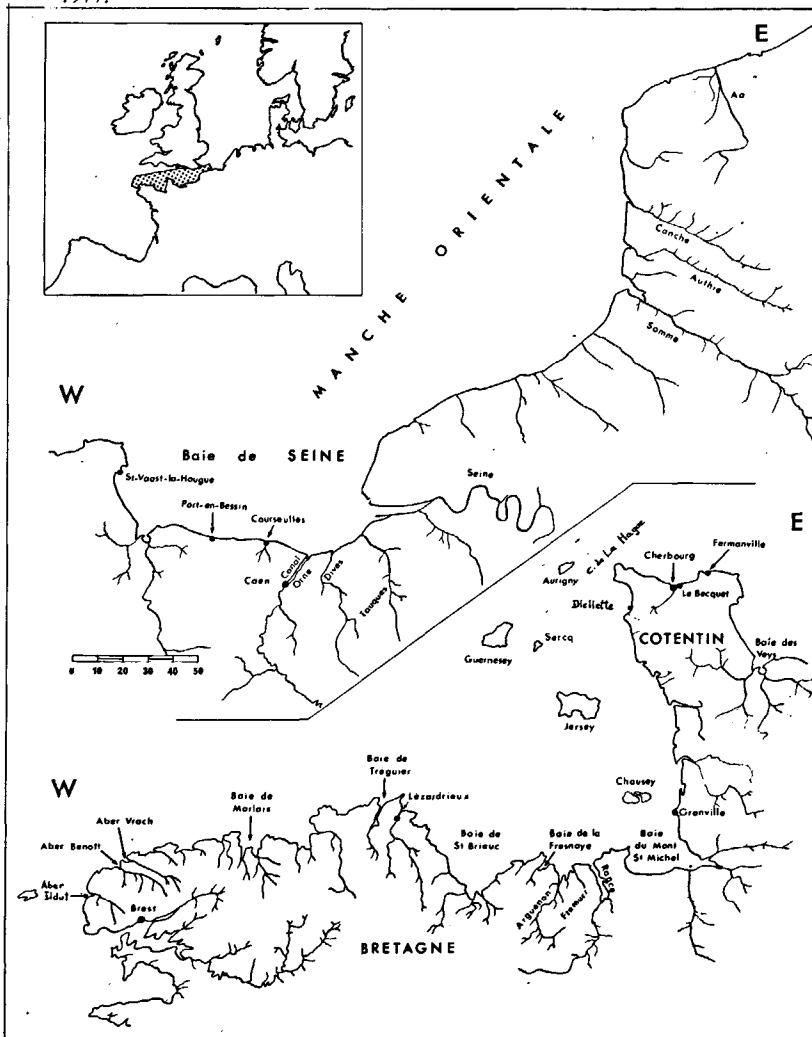


Tableau 3

Teneurs (valeurs moyennes et valeurs extrêmes en pCi/g) en <sup>144</sup>Ce + <sup>144</sup>Pr, <sup>125</sup>Sb, <sup>106</sup>Ru + <sup>106</sup>Rh, <sup>137</sup>Cs, <sup>95</sup>Zr de sédiments recueillis entre novembre 1976 et mai 1977.

Concentration (mean values and extreme values) of sediments collected between November 1976 and May 1977.

Lieu	Date	n	<sup>144</sup> Ce + <sup>144</sup> Pr	<sup>125</sup> Sb	<sup>106</sup> Ru + <sup>106</sup> Rh	<sup>137</sup> Cs	<sup>95</sup> Zr
<i>Nord - Pas-de-Calais</i>							
Aa { moyenne valeurs extrêmes }	30/11/76	9	{ 1,55 0,59-2,39	{ 0,22 0,09-0,33	{ 4,58 2,00-6,40	{ 0,92 0,64-1,31	{ 0,75 0,40-1,72
Canches	30/11/76	20	{ 0,93 T-2,03	{ 0,10 T-0,22	{ 2,42 T-5,79	{ 0,48 0,09-1,04	{ 0,44 T-1,03
Authie	30/11/76	5	{ 1,23 0,83-1,41	{ 0,16 0,09-0,18	{ 3,80 2,70-4,51	{ 0,77 0,58-0,97	{ 0,43 0,14-0,95
Somme	30/11/76	9	{ 1,00 0,34-2,28	{ 0,13 0,04-0,31	{ 2,93 1,00-5,62	{ 0,72 0,30-1,16	{ 0,33 T-0,88
<i>Baie de Seine</i>							
Honfleur	17/02/77	8	{ 1,36 T-1,64	{ 0,20 0,02-0,34	{ 4,01 0,54-5,33	{ 1,10 0,19-1,34	{ 0,38 0,33-0,43
Touques	17/02/77	6	{ 0,63 T-0,79	{ 0,08 T-0,13	{ 2,00 1,77-2,47	{ 0,66 0,57-0,81	{ - T-0,32
Dives	17/02/77	5	{ 0,62 0,25-1,04	{ 0,07 0,01-0,14	{ 1,70 0,75-3,13	{ 0,49 0,40-0,79	{ - T-0,29
Orne	17/02/77	7	{ 0,70 0,40-1,28	{ 0,08 T-0,13	{ 2,2 1,19-3,96	{ 0,73 0,43-1,19	{ - T-0,37
Canal Orne	17/02/77	2	{ 1,20 1,09-1,24	{ 0,16 0,16-0,17	{ 4,00 3,93-4,09	{ 1,52 1,45-1,60	{ - T-0,40
Courseulles	10/03/77	7	{ 0,8 0,41-1,36	{ 0,15 0,07-0,27	{ 3,30 2,37-4,67	{ 0,8 0,57-1,06	{ - T-0,36
Port-en-Bessin	10/03/77	10	{ 1,45 0,57-2,28	{ 0,15 0,07-0,23	{ 4,25 1,37-6,68	{ 0,89 0,55-1,17	{ 0,23 T-0,34
<i>Nord Cotentin</i>							
Saint-Vaast	08/03/77	4	{ 1,60 T-2,72	{ 0,23 0,10-0,33	{ 3,50 T-5,86	{ 1,12 0,63-1,57	{ 0,37 T-0,66
Fermanville	08/11/76	22	{ 9,1 2,02-30,1	{ 0,30 0,06-0,63	{ 7 1,53-25,8	{ 0,29 0,11-0,71	{ 0,30 T-0,60
Le Becquet	03/05/77	3	{ 4,9 2,2-7,5	{ 0,10 0,07-0,15	{ 12,8 5,6-21	{ 0,26 0,11-0,39	{ 0,22 T-0,22
Rade Cherbourg	{ 09/03/77 03/05/77 }	25	{ 5,97 1,1-15,2	{ 0,39 0,10-0,84	{ 11,5 2,9-33,8	{ 1,4 0,06-2,3	{ 0,28 T-0,5
Goury	06/05/77	4	{ 4,7 2,3-10	{ 0,16 T-0,23	{ 8,6 3,4-21	{ 0,31 0,18-0,66	{ 0,10 T-0,14
<i>Golfe Normand Breton</i>							
Granville { moyenne valeurs extrêmes }	18/02/77	4	{ 8,2 6,23-9,76	{ 0,24 0,5-0,31	{ 12,4 8,57-15,2	{ 0,77 0,58-0,91	{ 0,80 0,57-1,05
Le Vivier (haut estran seulement)	18/02/77	5	{ 5,53 4,03-7,10	{ 0,16 0,13-0,19	{ 7,92 6,05-10,3	{ 0,77 0,58-0,89	{ 0,60 0,42-0,98
<i>Côtes du Nord</i>							
Fremur	12/09/77	4	{ 2,30 T-4,96	{ 0,12 T-0,15	{ 3,83 0,39-7,82	{ 0,43 0,05-0,62	{ - T-0,45
Guildo	18/02/77	14	{ 3,03 -	{ 0,12 T-0,20	{ 5,48 2,18-13,6	{ 0,43 0,20-0,74	{ 0,35 T-0,98
Baie de la Fresnaie	18/02/77	4	{ 5,32 3,72-7,60	{ 0,17 0,10-0,24	{ 8,73 6,37-13,4	{ 0,54 0,38-0,75	{ 0,59 0,28-0,78
Baie de Saint-Brieuc	16/02/77	14	{ 0,33 T-0,65	{ - T-0,07	{ 0,79 T-1,25	{ 0,17 0,03-0,35	{ - T-0,21
Saint-Brieuc Illion	16/02/77	4	{ 1,47 0,63-2,30	{ 0,35 0,06-0,13	{ 3,15 1,77-4,37	{ 0,47 0,29-0,60	{ 0,28 0,19-0,34
Baie de Tréguier	18/02/77	12	{ - T-3,03	{ 0,077 T-0,14	{ 1,58 T-5,38	{ 0,46 T-0,73	{ - T-0,60
<i>Finistère nord</i>							
Lezardrieux	18/02/77	4	{ 1,36 1,14-1,58	{ 0,21 0,12-0,29	{ 3,05 2,51-3,59	{ 0,60 0,51-0,75	{ - T-0,28
Baie de Morlaix	18/02/77	9	{ 0,65 T-1,58	{ 0,03 T-0,06	{ - -	{ 0,21 0,12-0,44	{ 0,25 T-0,63
Aber Vrach	18/02/77	9	{ - T-1,30	{ - T-0,15	{ - T-0,52	{ 0,25 0,11-0,54	{ - T-0,29
Aber Benoît	18/02/77	3	{ - T-0,60	{ - T-0,03	{ - -	{ 0,27 0,20-0,41	{ 0,33 T-0,42
Rade de Brest	18/02/77	4	{ - -	{ - -	{ - -	{ 0,29 0,10-0,47	{ - -
<i>Bretagne sud</i>							
Baie de Bourgneuf, Lé Collet, Les Moutiers	28/01/77	17	{ - T-1	{ - T-0,8	{ - -	{ 0,23 0,06-0,53	{ - T-0,97

va de Brest à Dunkerque englobe le Nord-Ouest Cotentin directement affecté par les rejets d'effluents radioactifs de l'usine de traitement de combustibles irradiés de La Hague. Quelques sites témoins, choisis à l'intérieur du golfe du Morbihan et sur le littoral compris entre les estuaires de la Loire et de la Gironde, ont apporté des éléments d'information précieux sur la contribution des retombées atmosphériques consécutives aux 18<sup>e</sup> (septembre 1976), 19<sup>e</sup> (octobre 1976), 20<sup>e</sup> (non daté) 21<sup>e</sup> (novembre 1976) et 22<sup>e</sup> (septembre 1977) tests nucléaires chinois. Les effets de ces tests atmosphériques commencent à se faire sentir en France une dizaine de jours après l'explosion, puis à chaque passage du nuage radioactif (40 jours environ).

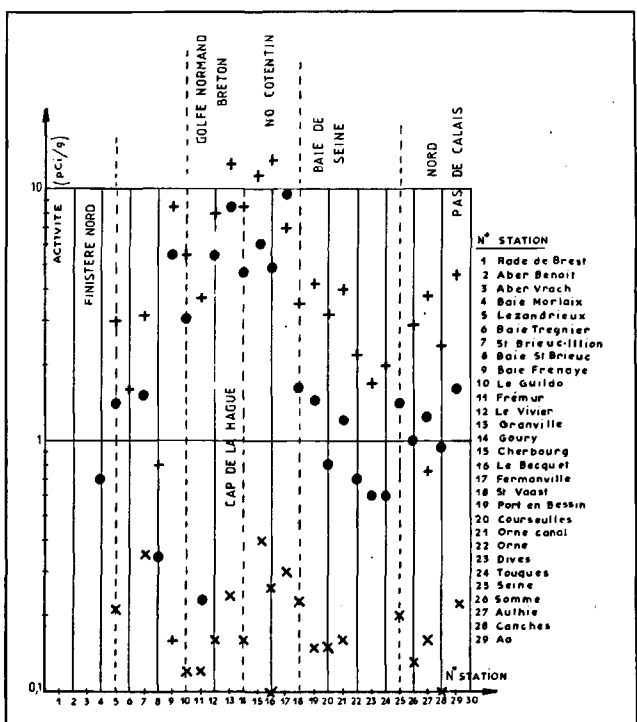
Les radioanalyses d'échantillons ont été effectués par comptage gamma sur sonde Ge-Li au Groupe d'Études atomiques de la Marine nationale de Cherbourg. Les concentrations qui seront présentées en <sup>144</sup>Ce prennent en compte également le descendant radioactif <sup>144</sup>Pr de même énergie; il en est de même pour <sup>106</sup>Ru et <sup>106</sup>Rh.

**Étude de la répartition des radionucléides dans des sédiments recueillis de Brest à Dunkerque entre novembre 1976 et mai 1977**

Pour dresser le bilan à un moment donné de la radioactivité de sédiments littoraux de la Mer du Nord, Manche, Atlantique nous avons été contraints d'étaler les prélèvements dans le temps afin de ne pas saturer les possibilités de comptage et de déceler les éléments à courte période comme <sup>141</sup>Ce et <sup>103</sup>Ru. Cette opération a été réalisée de Brest à Dunkerque entre novembre 1976 et mai 1977. Les taux de radioactivité moyens des sédiments bruts calculés sur chaque site — lorsque

Figure 4 a  
Évolution du taux de radioactivité moyen avec la position de la station par rapport à l'émissaire de La Hague-Goury (14). +, <sup>106</sup>Ru; ●, <sup>144</sup>Ce; ×, <sup>125</sup>Sb.

Evolution of radioactivity: average figures in the vicinity of the La Hague emissary. +, <sup>106</sup>Ru; ●, <sup>144</sup>Ce; ×, <sup>125</sup>Sb.



70% au moins des résultats étaient significatifs — accompagnés des valeurs extrêmes ont été rassemblés dans le tableau 3. En baie de Morlaix et pour les sites plus à l'ouest seules les limites supérieures ont été considérées, le nombre de résultats significatifs étant insuffisant.

Les taux de radioactivité dans les sédiments ne dépassent pas (pCi/g) 30 (<sup>144</sup>Ce); 34 (<sup>106</sup>Ru); 2,3 (<sup>137</sup>Cs); 1 (<sup>95</sup>Zr) et 0,8 (<sup>125</sup>Sb). Compte tenu des faibles niveaux d'activité la précision des résultats atteint dans les meilleurs cas 10 à 20% pour <sup>144</sup>Ce, <sup>106</sup>Ru, <sup>137</sup>Cs, 20 à 50% pour <sup>95</sup>Zr et <sup>125</sup>Sb, 50% pour <sup>103</sup>Ru, <sup>141</sup>Ce autres radionucléides également mesurés.

Après avoir examiné les principales caractéristiques des comportements du <sup>144</sup>Ce et du <sup>106</sup>Ru qui présentent de nombreuses analogies, on passera en revue successivement les comportements très différents du <sup>137</sup>Cs, du <sup>125</sup>Sb et du <sup>95</sup>Zr.

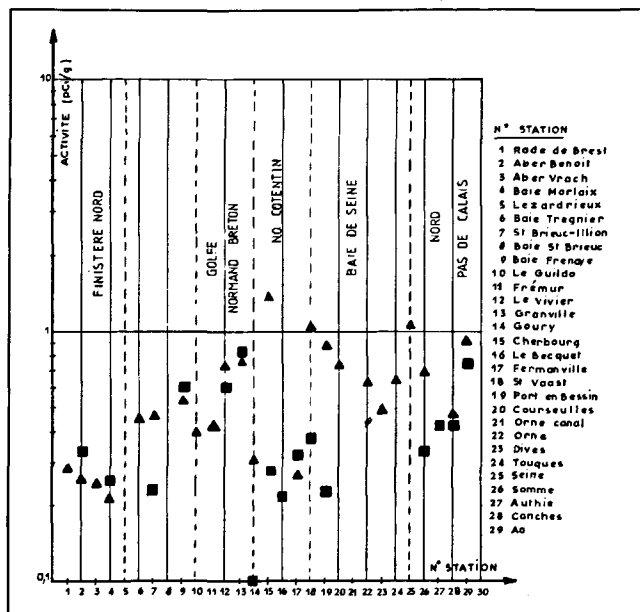
**<sup>144</sup>Ce-<sup>106</sup>Ru**

Les courbes de dispersion du <sup>144</sup>Ce et du <sup>106</sup>Ru — éléments hydrolysables qui constituent l'essentiel de la fraction radioactive des effluents rejetés depuis 1974 par l'usine de La Hague — ont à partir de l'émissaire de cette usine une allure dissymétrique en raison d'une reconcentration dans le golfe Normand-Breton par rapport à la baie de Seine, et de valeurs extrêmes vers l'ouest inférieures aux valeurs extrêmes vers l'est. Ces courbes reportées figure 4 a s'opposent à celles du <sup>125</sup>Sb (fig. 4 a), du <sup>95</sup>Zr et du <sup>137</sup>Cs (fig. 4 b) qui ne mettent pas en évidence de secteurs de reconcentration.

Dans le Nord-Ouest Cotentin c'est en rade de Cherbourg (6 pCi/g en <sup>144</sup>Ce; 11,5 pCi/g en <sup>106</sup>Ru) et dans les ports de Fermanville (9 pCi/g en <sup>144</sup>Ce; 7 pCi/g en <sup>106</sup>Ru), de Goury (4,7 pCi/g en <sup>144</sup>Ce; 8,6 pCi/g en <sup>106</sup>Ru) et du Becquet (4,9 pCi/g en <sup>144</sup>Ce; 12,8 pCi/g

Figure 4 b  
Évolution du taux de radioactivité moyen avec la position de la station par rapport à l'émissaire de La Hague-Goury (14). ■, <sup>95</sup>Zr; ▲, <sup>137</sup>Cs.

Evolution of radioactivity: average figures in the vicinity of the La Hague emissary. ■, <sup>95</sup>Zr; ▲, <sup>137</sup>Cs.



en <sup>106</sup>Ru) que l'on observe les valeurs moyennes les plus élevées.

Dans le golfe Normand-Breton les teneurs dépassent celles observées en baie de Seine, Mer du Nord et Pas-de-Calais, atteignant des niveaux moyens identiques à ceux du Nord-Ouest Cotentin. La zone affectée va de la baie de la Frenaye (5,3 pCi/g en <sup>144</sup>Ce, 8,7 pCi/g en <sup>106</sup>Ru), au port de Granville (8,2 pCi/g en <sup>144</sup>Ce, 12,4 pCi/g en <sup>106</sup>Ru).

A l'extrême ouest les résultats ne dépassent pas 1,6 pCi/g dans le cas du <sup>144</sup>Ce et 0,5 pCi/g dans celui du <sup>106</sup>Ru.

A l'est en baie de Seine - mer du Nord les taux de radioactivité sont caractérisés par des valeurs faibles pour <sup>144</sup>Ce (2,3 seuil supérieur) et comparativement élevées en <sup>106</sup>Ru (6,4 seuil supérieur).

Les résultats dans la couche 0-10 cm sont — en dehors du golfe Normand-Breton — généralement pour <sup>144</sup>Ce et <sup>106</sup>Ru représentatifs de l'activité réellement présente dans l'ensemble de la couche sédimentaire déposée : ainsi pour les sites étudiés aux embouchures de l'Orne, Seine, Aa, l'activité se trouve concentrée à 100 % dans la couche considérée. Par contre dans le golfe Normand-Breton, en raison de la vitesse de sédimentation particulièrement élevée, on trouve la présence de radionucléides à courte période à des profondeurs pouvant atteindre 1 ou 2 m. Cette observation renforce la notion de reconcentration de la radioactivité dans le golfe Normand-Breton.

<sup>137</sup>Cs

Les taux moyens du <sup>137</sup>Cs dans les sédiments sont généralement compris entre 0,2 et 1 pCi/g. Ils sont un peu plus élevés à la sortie du canal de l'Orne (1,5) en rade de Cherbourg (1,4), dans le port de Honfleur, la région de Saint-Vaast (1,1). On ne retrouve pas dans ces résultats la décroissance observée par Kautsky (1973) de <sup>137</sup>Cs dans les eaux de la Manche avec l'éloignement par rapport au cap de La Hague.

Dans le Nord-Ouest Cotentin on constate une certaine opposition entre le comportement du <sup>137</sup>Cs et celui du <sup>106</sup>Ru et <sup>144</sup>Ce : c'est dans le cas de sites où <sup>106</sup>Ru et <sup>144</sup>Ce se concentrent (ports de Fermanville, de Goury et du Becquet) que l'on relève les teneurs les plus faibles en <sup>137</sup>Cs de l'ordre de 0,3 pCi/g, à peine supérieures à celles de l'extrême ouest de la Bretagne dans la région des abers. Inversement c'est dans la région de Saint-Vaast — caractérisée par des valeurs relativement faibles en <sup>106</sup>Ru et <sup>144</sup>Ce — que le <sup>137</sup>Cs se concentre (1,1).

On retrouve cette opposition en considérant d'une part le golfe Normand-Breton et d'autre part la baie de Seine et la Mer du Nord (cf. tableau 4) : les échantillons de l'ouest sont caractérisés par des rapports A (<sup>144</sup>Ce/<sup>137</sup>Cs) de 5 à 10 et des rapports B (<sup>106</sup>Ru/<sup>137</sup>Cs) de 9 à 16 nettement plus élevés que ceux de l'est où A reste compris entre 0,8 et 1,9 et B entre 2,5 et 5. L'ensemble de la rade de Cherbourg présente des résultats homogènes au double impact <sup>106</sup>Ru-<sup>144</sup>Ce. En ce qui concerne le <sup>137</sup>Cs on est obligé de dissocier les

réponses de la grande et de la petite rade; cette dernière présente en effet des teneurs comprises entre 1 et 2,3 pCi/g, supérieures à celles de la grande rade qui restent inférieures à 1 pCi/g. Il est raisonnable de penser que la cinétique de fixation du <sup>137</sup>Cs sur les sédiments fait appel à des réactions lentes que le faible taux de renouvellement des eaux de la petite rade de Cherbourg semble permettre.

Les résultats exposés ci-dessus, relatifs aux couches superficielles (0-10 cm), doivent être complétés par des analyses de profils verticaux de la radioactivité car on peut donner plusieurs interprétations contradictoires selon l'épaisseur de la couche sédimentaire recueillie. Ainsi dans le golfe Normand-Breton les teneurs en <sup>137</sup>Cs constatées dans la Rance en amont du barrage (890 pCi/kg), nettement supérieures à celles relevées sur le site voisin de l'Arguenon (180 pCi/kg) dans la couche 0-2,5 cm, sont en réalité très inférieures si l'on considère la couche 0-150 cm. On observe en effet dans cette dernière des teneurs moyennes en <sup>137</sup>Cs de 40 pCi/kg pour la Rance et de 380 pCi/kg pour l'Arguenon. Ajoutons que les activités en <sup>137</sup>Cs sur les deux sites paraissent égales (270 pCi/kg) si l'on prélève la couche 0-30 cm.

Pour l'Arguenon la teneur maximale observée à une profondeur de 120 cm, correspond vraisemblablement aux retombées atmosphériques de 1959-1963 consécutives aux nombreuses explosions nucléaires qui ont marqué ces années; pour la Rance la couche qui correspond à ces retombées 1959-1963 se trouve localisée dans les 20 premiers centimètres. Cet effet n'est visible que pour des éléments à longue période comme le <sup>137</sup>Cs.

Dans le tableau 5 on a reporté les teneurs en <sup>137</sup>Cs sur divers sites en fonction de l'épaisseur de la couche sédimentaire recueillie en un point donné.

Les données obtenues en profondeur qui complètent les résultats superficiels illustrent la difficulté de traiter du <sup>137</sup>Cs : en se limitant aux dix premiers centimètres on sous-estime une fraction importante de la radio-

Tableau 4  
Évolution des rapports <sup>144</sup>Ce/<sup>137</sup>Cs et <sup>106</sup>Ru/<sup>137</sup>Cs en fonction de la position géographique des stations.  
*Evolution of relations <sup>144</sup>Ce/<sup>137</sup>Cs and <sup>106</sup>Ru/<sup>137</sup>Cs at the different stations included in the study.*

	<sup>144</sup> Ce / <sup>137</sup> Cs	<sup>106</sup> Ru / <sup>137</sup> Cs	
Aa	1,7	5	} Nord - Pas-de-Calais
Canches	1,9	5	
Authie	1,6	4,9	
Somme	1,4	4,1	
Seine	1,2	3,6	
Touques	0,95	3	} Baie de Seine
Dives	1,3	3,5	
Orne	1	3	
Canal Orne	0,8	2,6	
Courseulles	1	4,1	
Port-en-Bessin	1,6	4,8	} Nord-Ouest Cotentin
Fermanville	31,4	24,1	
Granville	10,6	16,0	
Le Vivier	7,2	10,3	
Frémur	5,3	8,9	
Le Guildo	7,8	12,7	} Golfe Normand-Breton
Baie Fresnaye	10	16,2	



activité pouvant aller de 20 à 90 %; en tenant compte de l'activité réellement présente on intègre dans les résultats les effets des retombées atmosphériques de 1959 et 1963 déjà évoqués précédemment. La figure 5 représente un profil classique de distribution verticale du  $^{137}\text{Cs}$  : on retrouve semble-t-il à 55-70 cm l'effet des retombées atmosphériques 1959-1963 qui provoquent encore une activité (pCi/g) supérieure (1-1,4) à celle de la couche superficielle (0,8) révélatrice d'événements récents.

### $^{125}\text{Sb}$

En considérant les teneurs en  $^{125}\text{Sb}$  présentes dans les sédiments et eaux de la Manche il apparaît que le facteur de concentration du radionucléide dans ces sédiments est faible au point de rejet — de l'ordre de 100 à 500 — puis augmente au fur et à mesure que l'on s'éloigne de La Hague. En se basant sur un suivi régulier de l'antimoine stable dans les eaux et sédiments du Nord-Ouest Cotentin on peut, à partir des valeurs obtenues  $0,6 \pm 0,4 \mu\text{g}/\text{l}$  pour les eaux et de 2 ppm pour les sédiments, estimer un « facteur de concentration » de l'ordre de 3 300 très proche du « facteur d'enrichissement » de 3 000 obtenu par Robertson (1967) au large de la Columbia River.

Une vitesse de transformation très lente de l'antimoine, évoluant d'une forme non adsorbable vers une forme partiellement adsorbable, expliquerait la discrimination apparente entre isotope stable et radioisotope : l'élément stable, présent à l'échelle géologique dans l'eau de mer, se trouverait plus facilement fixé que le  $^{125}\text{Sb}$  fraîchement introduit. Cette hypothèse est confirmée par

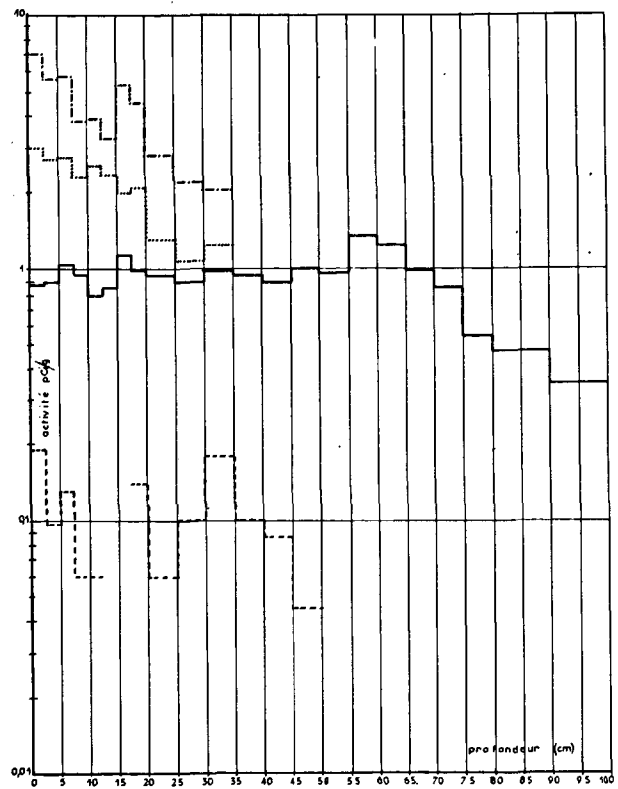


Figure 5

Distribution verticale de la radioactivité sur une carotte du port de Granville (1977). —,  $^{137}\text{Cs}$ ; ..... ,  $^{144}\text{Ce}$ ; - - - ,  $^{106}\text{Ru}$ ; - - - ,  $^{125}\text{Sb}$ .

Vertical radioactivity profile of a sediment core taken at Granville (1977). —,  $^{137}\text{Cs}$ ; ..... ,  $^{144}\text{Ce}$ ; - - - ,  $^{106}\text{Ru}$ ; - - - ,  $^{125}\text{Sb}$ .

Tableau 5

Évolution du taux de  $^{137}\text{Cs}$  en fonction de l'épaisseur de la couche sédimentaire recueillie (pCi/kg).  
Evolution of  $^{137}\text{Cs}$  concentration at different levels of the sediment layer (pCi/kg).

	Date	0-2,5	0-10	0-20	0-100(cm)	Activité (%) dans 0-10 cm
<i>Finistère</i>						
Estuaire Penzé	28/07/76	300	258	258	67	39
<i>Côtes du Nord</i>						
Tréguier	18/02/77	627	591	540	168	35
Le Legué	18/02/77	317	217	194	112	19
Port-Nieuc	28/07/76	255	325	365	203	16
Port-à-la-Duc	28/07/76	124	138	159	155	9
Estuaire Arguenon		279	285	297	375	8
<i>Baie du Mont-Saint-Michel</i>						
Le Vivier	24/03/78	878	931	943	828	9
Le Couesnon	28/07/76	347	243	183	137	18
Genêt	28/07/76	244	237	217	173	14
Granville	21/02/77	602	620	700	696	9
Baie de Siennes	08/07/76	280	355	316	319	11
<i>Nord-Ouest Cotentin</i>						
Fermanville	08/03/77	545	551	605	244	23
Saint-Vaast	08/03/77	857	795	495	99	80
<i>Baie de Seine</i>						
Orne		853	923	819	266	35
Seine-Hode	28/04/76	161	235	277	428	6
<i>Somme</i>						
Le Hourdel	30/11/76	580	750	650	312	24
Cap Hornu	30/11/76	517	596	565	308	19
Crottoy	30/11/76	751	851	879	376	23
<i>Nord</i>						
Embouchure Aa	30/11/76	1 183	1 226	1 044	534	23

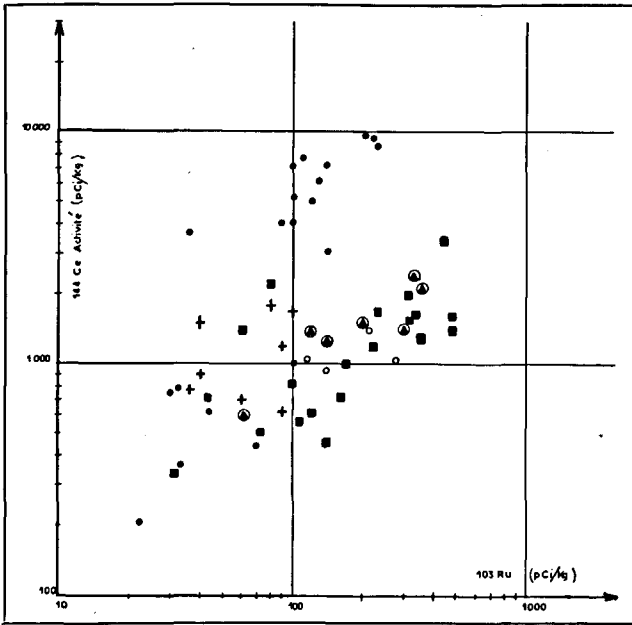


Figure 6 a  
Étude des relations  $^{144}\text{Ce}$ - $^{103}\text{Ru}$ . *Study of relations  $^{144}\text{Ce}$ - $^{103}\text{Ru}$ .*

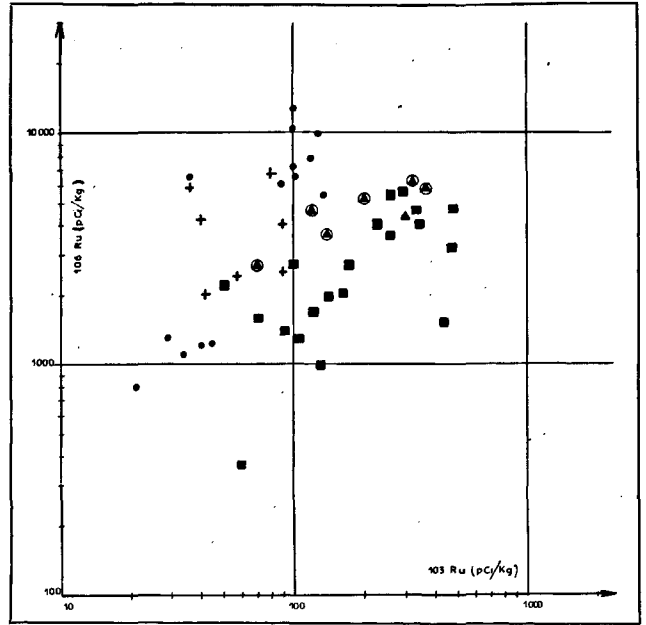


Figure 6 b  
Étude des relations  $^{106}\text{Ru}$ - $^{103}\text{Ru}$ . *Study of relations  $^{106}\text{Ru}$ - $^{103}\text{Ru}$ .*

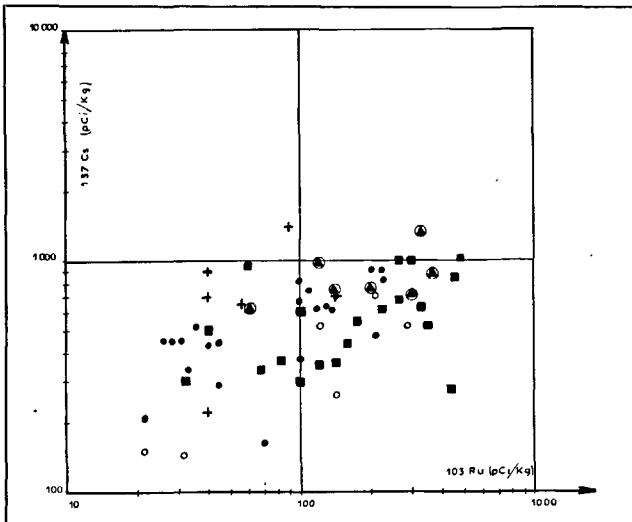


Figure 6 c  
Étude des relations  $^{137}\text{Cs}$ - $^{103}\text{Ru}$ . *Study of relations  $^{137}\text{Cs}$ - $^{103}\text{Ru}$ .*

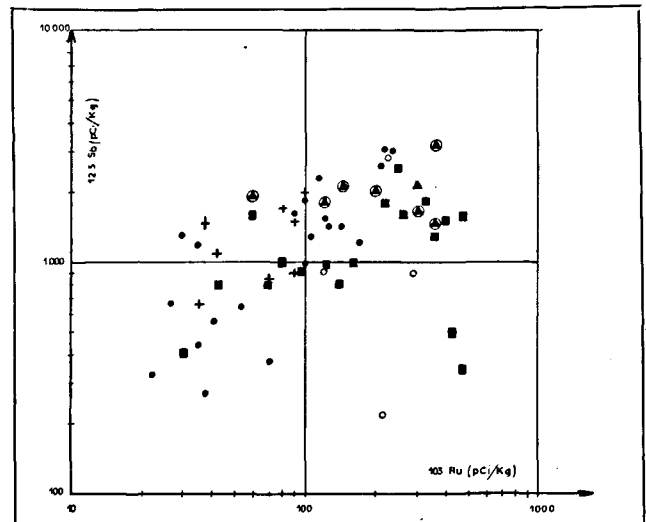


Figure 6 d  
Étude des relations  $^{125}\text{Sb}$ - $^{103}\text{Ru}$ . *Study of relations  $^{125}\text{Sb}$ - $^{103}\text{Ru}$ .*

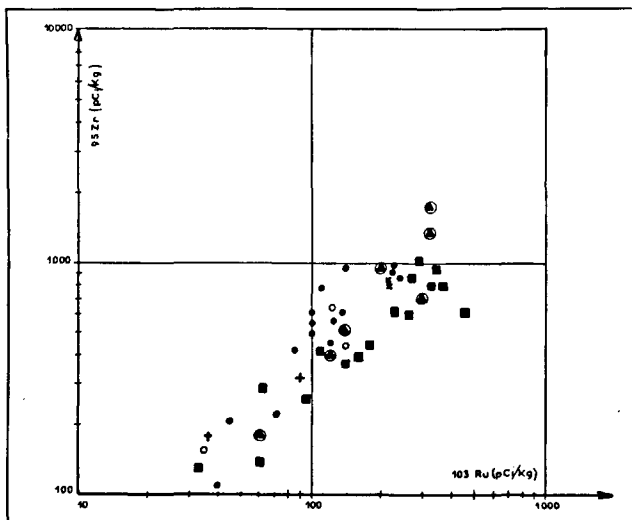


Figure 6 e  
Étude des relations  $^{95}\text{Zr}$ - $^{103}\text{Ru}$ . *Study of relations  $^{95}\text{Zr}$ - $^{103}\text{Ru}$ .*

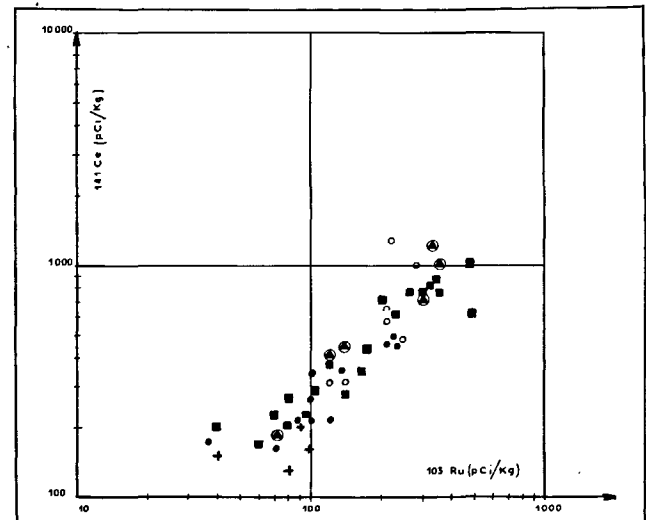


Figure 6 f  
Étude des relations  $^{141}\text{Ce}$ - $^{103}\text{Ru}$ . *Study of relations  $^{141}\text{Ce}$ - $^{103}\text{Ru}$ .*

○, Baie de Bourgneuf. *Bourgneuf Bay.*  
●, Ouest. *West.*  
+, Baie de Seine. *Seine Bay.*

■, Nord. *North.*  
▲, Aa embouchure. *Aa mouth.*

les résultats obtenus dans le milieu fermé de la petite rade de Cherbourg et par le comportement du  $^{125}\text{Sb}$  dans le milieu biologique : on constate (Germain, Masson, sous presse) une augmentation en valeur absolue des teneurs du  $^{125}\text{Sb}$  dans l'algue *Pelvetia* avec l'éloignement par rapport à La Hague.

$^{95}\text{Zr}$

Les teneurs moyennes en  $^{95}\text{Zr}$  sont généralement comprises entre 0,2 et 0,6 pCi/g. Des résultats un peu plus élevés ont pu être mis en évidence à Granville (0,8) à l'embouchure de l'Aa (0,75) ainsi que dans la baie de Bourgneuf.

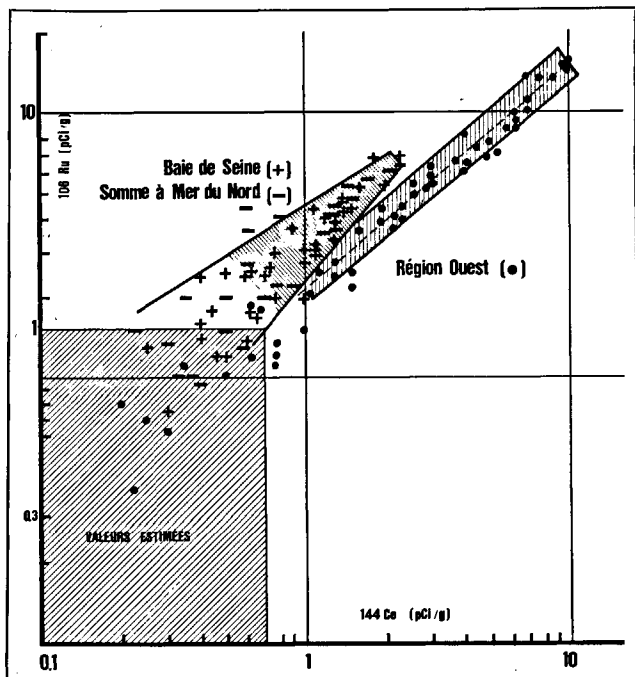
Caractérisation des résultats

La sensibilité des méthodes de détection nous permettant maintenant d'estimer des teneurs (pCi/g) aussi faibles que 0,02 ( $^{103}\text{Ru}$ ); 0,01 ( $^{125}\text{Sb}$ ); 0,1 ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{141}\text{Ce}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ ); 0,4 ( $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ) il convient d'explicitier les résultats et notamment de différencier les divers apports (rejets industriels, retombées) dans le taux global de radioactivité d'un sédiment. Les premiers travaux réalisés dans cette optique ont consisté à étudier graphiquement, en coordonnées logarithmiques, les relations entre radionucléides en choisissant deux variables le  $^{103}\text{Ru}$  et le  $^{144}\text{Ce}$ . Le premier élément pratiquement absent des rejets industriels (période 30 jours) constitue un excellent marqueur des retombées, le second — quoique présent en quantité non négligeable dans les retombées — permet de caractériser au cours des années 1975-1977 les rejets de La Hague.

Figure 7 a

Étude des relations  $^{106}\text{Ru}$ - $^{144}\text{Ce}$  dans les sédiments recueillis entre novembre 1976 et juin 1977. Baie de Seine (+), Mer du Nord (-), région Ouest (●).

Study of relations  $^{106}\text{Ru}$ - $^{144}\text{Ce}$  in sediments collected between November 1976 and June 1977.



Les graphes 6 a, 6 b, 6 c, 6 d, 6 e, 6 f traitent respectivement des relations  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{141}\text{Ce}$  avec  $^{103}\text{Ru}$ , les graphes 7 a, 7 b se limitent aux relations  $^{106}\text{Ru}$ - $^{144}\text{Ce}$  et  $^{137}\text{Cs}$ - $^{144}\text{Ce}$ . Le graphe 8, relatif au port de Fermanville, résume la distribution  $^{106}\text{Ru}$  et  $^{137}\text{Cs}$  par rapport au  $^{144}\text{Ce}$  dans le Nord-Ouest Cotentin.

Étude des relations avec  $^{103}\text{Ru}$

Les divers graphes reportés de la figure 6 a à la figure 6 f révèlent pour le  $^{141}\text{Ce}$  (fig. 6 f) et  $^{95}\text{Zr}$  (fig. 6 e) en fonction du  $^{103}\text{Ru}$  une distribution ordonnée des points représentatifs de chaque échantillon autour d'une droite de pente 1 ce qui implique pour ces deux radionucléides une origine essentiellement imputable aux retombées : les valeurs absolues en  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{141}\text{Ce}$  et  $^{95}\text{Zr}$  peuvent varier en fonction du lieu de prélèvement mais les rapports entre radionucléides restent constants.

Étude des relations avec  $^{144}\text{Ce}$

Les distributions entre  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{144}\text{Ce}$  et le  $^{103}\text{Ru}$  sont anarchiques (fig. 6 a, 6 b, 6 c, 6 d) ce qui laisse supposer pour ces radionucléides une origine industrielle qui doit apparaître dans les graphes 7 a ( $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ) et 7 b ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ). Le cas du  $^{125}\text{Sb}$  sera délaissé en raison de son comportement spécifique déjà décrit.

Graphe  $^{106}\text{Ru}$ - $^{144}\text{Ce}$ .

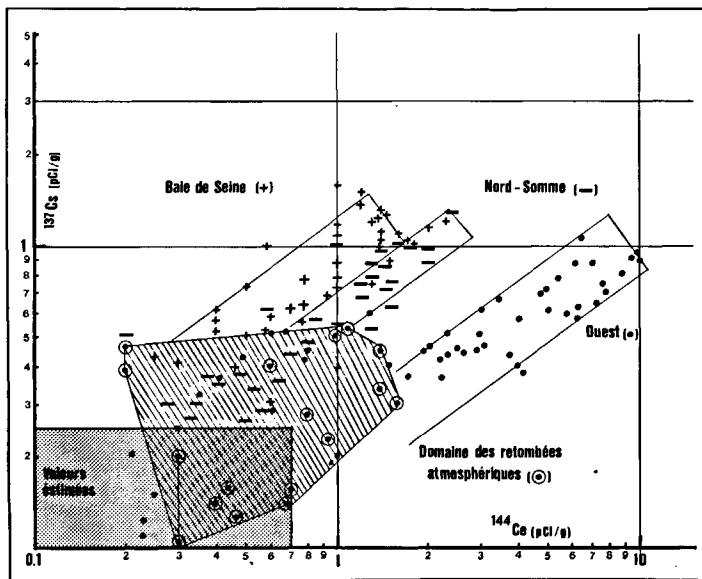
Les points représentatifs des échantillons recueillis à l'ouest et à l'est de l'émissaire s'organisent en deux nuages disjoints :

— à l'ouest tous les points de l'embouchure du Trieux au port de Granville se répartissent indiscutablement autour d'une droite de pente 1 (fig. 7 a) que l'on peut caractériser par un coefficient constant (rapport  $^{106}\text{Ru}/^{144}\text{Ce}$ ) de l'ordre de 1,5 à 1,8. Il semble que

Figure 7 b

Étude des relations  $^{137}\text{Cs}$ - $^{144}\text{Ce}$  entre novembre 1976 et février 1977.

Study of relations  $^{137}\text{Cs}$ - $^{144}\text{Ce}$  in sediments collected between November 1976 and February 1977.



la limite vers l'ouest de l'incidence des rejets de La Hague se situe entre l'estuaire du Trieux et la baie de Morlaix. Les points représentatifs de cette zone et des secteurs situés plus à l'ouest sont caractérisés par un rapport  $^{106}\text{Ru}/^{144}\text{Ce}$  nettement inférieur à 1 et des résultats en valeur absolue nettement en dessous des précédents surtout en ce qui concerne  $^{106}\text{Ru}$  non mesurable dans la plupart des cas.

— à l'est la répartition est moins ordonnée que la précédente.

Le décalage entre les nuages caractérisant région est et région ouest illustre la reconcentration de la radioactivité dans le golfe Normand-Breton et révèle en outre, pour cette dernière région, un enrichissement préférentiel du  $^{144}\text{Ce}$  par rapport au  $^{106}\text{Ru}$ . Une « exploration » de la baie du Mont-Saint-Michel plus détaillée que la précédente confirme en juin 1977 (fig. 9) la relation linéaire entre  $^{144}\text{Ce}$  et  $^{106}\text{Ru}$ .

Graphes  $^{137}\text{Cs}$ - $^{144}\text{Ce}$ .

Le graphe  $^{137}\text{Cs}$ - $^{144}\text{Ce}$  présente également une répartition ordonnée mais en 3 nuages (région ouest, baie de Seine, Nord - Pas-de-Calais) au lieu de 2 dans le cas précédent. Cette distribution ne permet pas de remonter à l'origine du  $^{137}\text{Cs}$ , elle établit cependant une loi empirique qui servira de base pour de futures observations.

Étude du Nord-Ouest Cotentin - Port de Fermanville

Le port de Fermanville choisi comme « site témoin » du Nord-Ouest Cotentin présente des taux de radio-

activité équivalents à ceux des autres sites de cette région et offre l'avantage de constituer une zone relativement homogène, de surface réduite, qui permet avec 22 points d'échantillonnage d'établir un quadrillage serré. A la date du 8/11/76 le graphe  $^{106}\text{Ru}$ - $^{144}\text{Ce}$  de la figure 8 montre une répartition des points autour d'une droite de pente 1, caractérisée par un rapport  $^{106}\text{Ru}/^{144}\text{Ce}$  de 0,7 inférieur à celui du golfe Normand-Breton compris entre 1,5 et 1,8. Le graphe  $^{137}\text{Cs}$ - $^{144}\text{Ce}$  révèle également une distribution linéaire, en coordonnées logarithmiques, mais la pente de la droite est différente de 1. En résumé la distribution du  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{144}\text{Ce}$  répond aux lois

$$C. \text{Ru} = \frac{1}{0,7} \cdot C. \text{Ce},$$

$$C \log \text{Cs} = a \log C. \text{Ce},$$

C. Ru, concentration  $^{106}\text{Ru}$ ; C. Cs, concentration  $^{137}\text{Cs}$ ; C. Ce, concentration  $^{144}\text{Ce}$ ; a, constante

Bilan évolutif

Les investigations menées depuis 1974 permettent de dresser un bilan évolutif de la radioactivité en concentrant l'attention sur quelques sites témoins.

Retombées atmosphériques

Nous avons considéré que les secteurs étudiés entre la baie de Morlaix et l'estuaire de la Gironde étaient uniquement soumis à la contribution des retombées

Figure 8

Étude des relations  $^{106}\text{Ru}$ - $^{144}\text{Ce}$  en juin 1977 pour les sédiments du littoral de la baie du Mont-Saint-Michel en septembre 1977 pour les points de l'île Chausey.

Study of relations  $^{106}\text{Ru}$ - $^{144}\text{Ce}$  in June 1977 for the littoral sediments of Saint-Michel Bay; in September 1977 for Chausey Island.

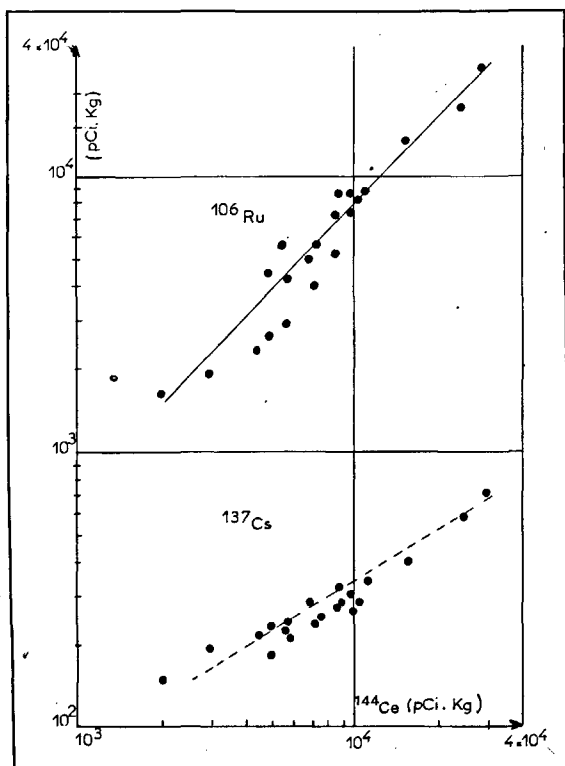


Figure 9

Étude des relations  $^{106}\text{Ru}$ - $^{144}\text{Ce}$  and  $^{137}\text{Cs}$ - $^{144}\text{Ce}$  dans les sédiments de Fermanville (novembre 1976).

Study of relations  $^{106}\text{Ru}$ - $^{144}\text{Ce}$  and  $^{137}\text{Cs}$ - $^{144}\text{Ce}$  in Fermanville sediments (November 1976).

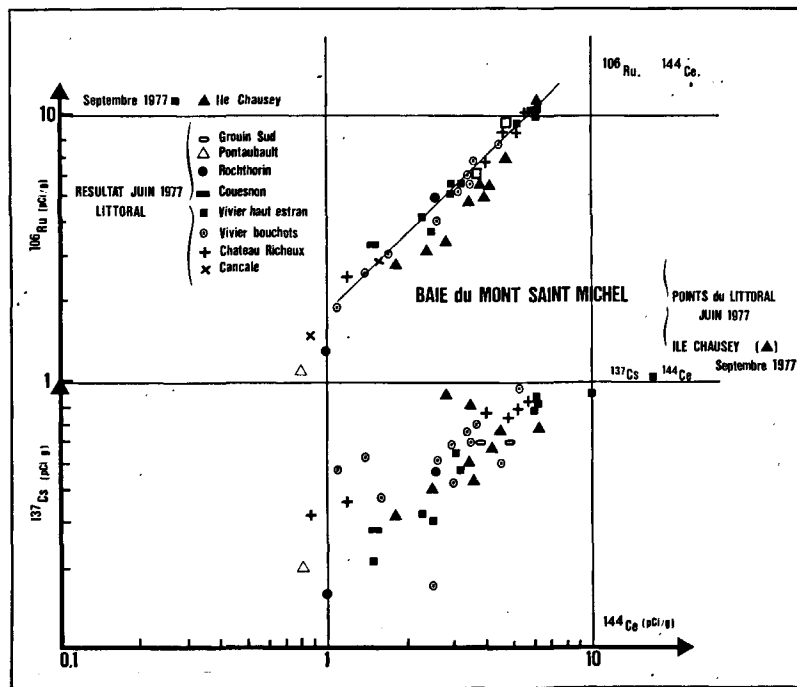


Tableau 6

Limites supérieures de l'impact des retombées atmosphériques sur des sédiments marins (pCi/g).

Upper limits of atmospheric fallout impact on marine sediments (pCi/g).

	<sup>144</sup> Ce + Pr	<sup>106</sup> Ru + Rh	<sup>125</sup> Sb	<sup>137</sup> Cs	<sup>95</sup> Zr
Baie de Morlaix					
18/02/77	1,6	-	0,03	0,44	-
Aber Vrach					
18/02/77	1,3	0,5	0,15	0,5	0,29
Aber Benoît					
18/02/77	1,4	-	0,17	0,42	0,66
15/11/77	2,0	0,5	-	0,28	0,31
Aber Benoît					
15/11/77	2,3	0,3	0,05	0,35	0,35
Aber Ildut					
15/11/77	1,3	0,6	-	0,5	0,23
Golfe du Morbihan					
10/07/78	3,5	1,7	0,15	0,64	-
Baie de Bourgneuf					
28/01/77	1,3	-	0,1	0,54	0,97
02/04/78	1,8	1,2	0,09	0,50	-
Littoral vendéen					
03/04/78	2,9	0,61	0,17	0,61	-

atmosphériques. Pour comparer l'évolution des taux de radioactivité sur ces sites, en fonction des explosions nucléaires chinoises dans l'atmosphère, nous avons été contraints de considérer les valeurs les plus élevées; pour certains échantillons on se trouve en effet aux limites de détection des appareils de mesure. Les éléments d'une telle comparaison, rassemblés dans le tableau 6, montrent, semble-t-il, une augmentation dans le temps des taux de <sup>144</sup>Ce et <sup>106</sup>Ru et révèlent une incidence relativement importante de l'effet des retombées. Les données de ce tableau sont cependant trop incomplètes pour tirer des conclusions sur l'incidence des tests nucléaires dans l'atmosphère, notamment en ce qui concerne l'estimation du seuil supérieur de radioactivité artificielle dans les sédiments :

- la région des abers, la baie de Morlaix qui constituaient la base même de nos informations sur la contribution des retombées ont vu leur équilibre écologique profondément perturbé après l'échouage de l'« Amoco-Cadiz ». L'incidence de la pollution par hydrocarbures sur la distribution des radionucléides dans les sédiments fera l'objet d'un développement particulier en collabo-

ration avec la Direction des Études et Recherches de l'EDF;

- pour retrouver les zones non polluées par les hydrocarbures et non soumises à des rejets industriels nous avons recueilli par la suite des échantillons en Bretagne Sud et entre les estuaires de la Loire et de la Gironde; il en a résulté des données difficilement comparables avec les précédentes;

- les apports telluriques; les interactions directes eau de pluie-sédiments découverts seront étudiés ultérieurement.

Malgré les restrictions exposées ci-dessus il convient de faire ressortir du tableau 6 les taux de radioactivité (pCi/g) de 1,8 pour <sup>106</sup>Ru et de 3,5 pour <sup>144</sup>Ce, observés sur quelques rares échantillons recueillis dans le golfe du Morbihan en juillet 1978. En ce qui concerne le <sup>144</sup>Ce ces valeurs sont supérieures à celles relevées à Fermanville en août 1978.

#### Nord-Ouest Cotentin

A Fermanville — secteur témoin du Nord-Ouest Cotentin — l'impact des rejets industriels n'a pu être mis clairement en évidence dans les sédiments qu'à partir de 1971, soit 5 années après l'entrée en fonctionnement de l'usine de traitement de La Hague. Par la suite le taux de radioactivité a augmenté pour atteindre, entre décembre 1974 et avril 1975, un maximum suivi d'une phase de décroissance plus prononcée pour <sup>144</sup>Ce et <sup>95</sup>Zr que pour les autres radionucléides. Pour ces derniers un état d'équilibre (tableau 7) est maintenant atteint : 6-10 pCi/g (<sup>106</sup>Ru), 0,3 pCi/g (<sup>137</sup>Cs-<sup>125</sup>Sb). Dans le cas du <sup>144</sup>Ce, éliminé progressivement des rejets industriels, les teneurs (pCi/g) sont passées de 100 à 2,4 entre décembre 1974 et avril 1978 ce qui représente à l'heure actuelle des résultats comparables à ceux provoqués par les seules retombées atmosphériques dans d'autres régions : on peut considérer que dans la Nord-Ouest Cotentin il a fallu attendre environ 3 ans pour voir disparaître l'effet de rejets en <sup>144</sup>Ce (période radioactive 243 jours) effectués fin 1974.

Tableau 7

Évolution de la radioactivité sur le site de Fermanville entre décembre 1974 et novembre 1976 (pCi/g). T = traces.

Evolution of radioactivity at the Fermanville station between December 1974 and November 1976 (pCi/g). T = traces.

	<sup>144</sup> Ce	<sup>106</sup> Ru	<sup>125</sup> Sb	<sup>137</sup> Cs	<sup>95</sup> Zr
11/12/74 ( 1 échantillon)	102	30	0,8	0,9	4,6
27/01/75 ( 8 échantillons)	38	11,7	0,4	0,4	1
23/07/75 (16 » )	31	11,6	0,4	0,4	0,4
03/12/75 (21 » )	27	10,9	0,4	0,4	0,3
15/04/76 (22 » )	18	9,8	0,4	0,4	T
06/07/76 (22 » )	14	8,4	0,37	0,36	T
08/11/76 (22 » )	9	7	0,3	0,28	T
03/02/77 (22 » )	8,5	10,4	0,3	0,37	T
11/01/78 (22 » )	3,3	6,1	0,3	0,30	T
27/04/78 (22 » )	2,4	7,6	0,3	0,28	T
17/08/78 (22 » )	1,7	9,2	0,2	0,30	-

L'évolution de la situation en rade de Cherbourg est la même que celle observée à Fermanville pour <sup>144</sup>Ce et <sup>106</sup>Ru. Par contre pour <sup>137</sup>Cs et surtout <sup>125</sup>Sb, peu retenus au niveau des sédiments, l'équilibre n'est pas atteint : ainsi les teneurs moyennes en <sup>125</sup>Sb sont passées de 0,4 à 0,9 entre mai 1977 et août 1978 (cf. tableau 8).

*Golfe Normand-Breton*

Les relations linéaires entre <sup>106</sup>Ru-<sup>144</sup>Ce dans les sédiments du golfe Normand-Breton se sont conservées dans le temps avec une modification du rapport <sup>106</sup>Ru/<sup>144</sup>Ce qui est passé de 1.1 (juillet 1976) à 2 (juin 1978). Sur l'ensemble des zones subissant uniquement l'effet des retombées ce rapport est homogène, très différent du précédent : 0,5 dans le golfe du Morbihan (juillet 1978) et la baie de Bourgneuf (avril 1978); 0,7 sur le littoral vendéen (avril 1978). Il en résulte dans le golfe Normand-Breton pour le <sup>106</sup>Ru, dont les teneurs se détachent nettement de celles des secteurs « retombées », une origine industrielle. Les relations linéaires <sup>106</sup>Ru-<sup>144</sup>Ce (droite de pente 1 en coordonnées logarithmiques) permettent semble-t-il d'attribuer au <sup>144</sup>Ce dans cette région la même origine industrielle que celle du <sup>106</sup>Ru et d'étendre au <sup>106</sup>Ru les propriétés particulières du <sup>144</sup>Ce. En valeur absolue la diminution du taux de <sup>144</sup>Ce, entamée à Fermanville dès le début 1975, n'a pu être décelée (cf. tableau 8) dans le golfe Normand-Breton que 3 ans après. Il apparaît ainsi que les effets d'une « bouffée » de rejet en <sup>144</sup>Ce (période 285 jours) ont été immédiats, relativement élevés (100 pCi/g en décembre 1974) mais brefs

Tableau 8

Bilan évolutif des teneurs moyennes en <sup>144</sup>Ce, <sup>106</sup>Ru, <sup>137</sup>Cs, <sup>125</sup>Sb dans les sédiments du golfe Normand-Breton, de la rade de Cherbourg et de la baie de Seine (pCi/g).

*Evolution of the mean values of <sup>144</sup>Ce, <sup>106</sup>Ru, <sup>137</sup>Cs, <sup>125</sup>Sb in Normand-Breton Gulf, Cherbourg Roads and Seine bay sediments. (pCi/g).*

	<sup>144</sup> Ce (+ <sup>144</sup> Pr)	<sup>106</sup> Ru (+ <sup>106</sup> Rh)	<sup>137</sup> Cs	<sup>125</sup> Sb
<b>1. Golfe Normand-Breton</b>				
<b>Cancale</b>				
02/06/77	2,2	3,8	0,49	0,12
23/03/78	6,2	12,9	1,05	0,31
20/06/78	3,2	6,4	0,64	0,75
<b>Le Vivier</b>				
18/02/77	5,5	7,9	0,16	0,16
02/06/77	4,2	7,2	0,18	0,18
23/03/78	4,4	8,8	0,28	0,28
20/06/78	4,9	9,9	0,28	0,28
<b>Granville</b>				
08/07/76	9,8	11,0	0,69	0,26
18/02/77	8,2	12,4	0,77	0,24
20/03/78	4,7	9,6	0,62	0,25
21/06/78	4,4	8,8	0,65	0,23
<b>2. Nord-Ouest Cotentin</b>				
<b>Rade de Cherbourg</b>				
07/77	6,0	11,5	1,4	0,39
24/04/78	3,3	9,3	1,5	0,63
18/08/78	2,8	8,8	1,7	0,93
<b>3. Baie de Seine</b>				
<b>Honfleur</b>				
17/02/77	1,4	4,0	1,1	0,2
16/10/78	1,5	5,2	1,3	0,26

dans le Nord-Ouest Cotentin, atténués (10 pCi/g seuil supérieur) et prolongés dans le golfe Normand-Breton. La diminution dans le temps du rapport <sup>144</sup>Ce/<sup>106</sup>Ru serait conforme à l'élimination croissante du <sup>144</sup>Ce dans les effluents. A partir de juin 1978 la contribution du <sup>144</sup>Ce des retombées l'emporte — tout du moins dans la couche 0-10 cm tout le long du littoral français — sur celle du <sup>144</sup>Ce industriel.

*Baie de Seine-Mer du Nord*

Sur l'ensemble du littoral baie de Seine, Manche, Mer du Nord, on ne retrouve pas trace, semble-t-il, de <sup>144</sup>Ce industriel : les teneurs se maintiennent à un niveau qui est inférieur à celui des retombées (comparaison des tableaux 3, 6 et 8).

Par contre les teneurs en <sup>106</sup>Ru sont relativement élevées, le rapport <sup>106</sup>Ru/<sup>144</sup>Ce est de l'ordre de 3. Comme ce radionucléide existe à la fois sous forme soluble et particulaire on peut admettre pour ces deux fractions une résultante globale inverse : l'essentiel de la fraction soluble se déplace vers l'est, l'essentiel de la fraction particulaire se dépose à l'ouest. On aboutit à une même conclusion si on examine les rapports

$$\frac{^{144}\text{Ce (élément particulaire)}}{^{137}\text{Cs (élément soluble)}}$$

qui sont de 5 à 10 à l'ouest et de 0,8 à 1,9 à l'est.

DISCUSSION

Les résultats présentés appellent deux sortes de commentaires selon que l'on considère l'aspect purement radioactivité artificielle ou les applications à caractère scientifique qui en découlent.

**Transfert des radionucléides**

Une zone soumise à des rejets radioactifs réguliers atteint un état d'équilibre décrit par Duursma (1973) obtenu à 99,95 et 90 % après 6,64; 4,32; 3,32 périodes de l'élément considéré. Après le début des rejets le temps mis pour arriver à 95 % de l'état d'équilibre est de 129,6 ans (<sup>137</sup>Cs); 11,7 ans (<sup>125</sup>Sb); 4,3 ans (<sup>106</sup>Ru); 3,4 ans (<sup>144</sup>Ce); 0,77 an (<sup>95</sup>Zr).

A l'équilibre l'activité (A) présente dans les divers compartiments du milieu est liée au taux de radioactivité (P) rejeté chaque année par la relation

$$A = \frac{P \times T \ 1/2}{0,693}, \quad T \ 1/2 = \text{période radioactive (ans)}$$

Ce mode de calcul a été mis en application dans le cadre du présent travail en tenant compte des éléments et des remarques suivants :

- a) nous nous sommes limités à ne traiter que les deux principaux radionucléides <sup>106</sup>Ru, <sup>144</sup>Ce; pour les autres la contribution des retombées masque celle des rejets industriels;
- b) les rejets ont été irréguliers dans le temps. Nous avons fait intervenir la moyenne observée sur les années

1973, 1974, 1975, 1976, soit 14 763 Ci en  $^{106}\text{Ru}$ , 506 en  $^{144}\text{Ce}$ . Pour les sédiments on a tenu compte de valeurs relevées entre novembre 1976 et février 1977;

c) à l'équilibre la radioactivité totale présente dans tous les compartiments du milieu est de 21 000 pour  $^{106}\text{Ru}$ , 560 pour  $^{144}\text{Ce}$ ;

d) trois sites ont été sélectionnés : la baie du Mont-Saint-Michel où la superficie de la zone sablo-vaseuse intertidale a été estimée à 114 km<sup>2</sup>, et les sites du Nord-Ouest Cotentin de Fermanville et de la rade de Cherbourg (surfaces respectives de 10 et 1 km<sup>2</sup>);

e) la masse de sédiment correspondant à la couche 0-10 cm a été évaluée à 16.10<sup>10</sup> g par km<sup>2</sup> (16 g/cm<sup>2</sup>). A l'équilibre l'activité fraîchement déposée est égale à celle qui disparaît par décroissance radioactive ou par enfouissement. Les activités retenues (pCi/g) ont été pour la rade de Cherbourg 6 ( $^{144}\text{Ce}$ ), 12 ( $^{106}\text{Ru}$ ) et pour Fermanville 9 ( $^{144}\text{Ce}$ ) et 7 ( $^{106}\text{Ru}$ ). En ce qui concerne la baie du Mont-Saint-Michel les valeurs retenues : 3 pour  $^{144}\text{Ce}$  et 6,5 pour  $^{106}\text{Ru}$ , ont été établies en tenant compte des résultats du haut et bas estran.

L'intégration des teneurs en  $^{144}\text{Ce}$  et  $^{106}\text{Ru}$  sur la surface des sites considérés conduit à estimer que l'activité stockée en baie du Mont-Saint-Michel dans la couche 0-10 cm représente sensiblement 10 % de l'activité rejetée par La Hague en  $^{144}\text{Ce}$ , 0,6 % en  $^{106}\text{Ru}$ . Par rapport à ces activités rejetées les chiffres obtenus dans la rade de Cherbourg 1,7 % ( $^{144}\text{Ce}$ ), 0,1 % ( $^{106}\text{Ru}$ ) de même que ceux du port de Fermanville 0,25 % ( $^{144}\text{Ce}$ ) et 0,06 % ( $^{106}\text{Ru}$ ) sont peu élevés.

- On observe dans le milieu une bonne dispersion des principaux radionucléides rejetés par l'usine de La Hague à l'exception du  $^{144}\text{Ce}$  piégé dans les sédiments du golfe Normand-Breton. Bien que les calculs relatifs à ce radionucléide doivent être considérés avec une certaine prudence — rayonnement gamma de basse énergie et faibles concentrations entraînant des erreurs dans les radioanalyses, marge étroite entre les effets provoqués par les rejets industriels et ceux des retombées atmosphériques — on est amené à considérer que l'activité totale en  $^{144}\text{Ce}$  piégée dans les sédiments du golfe Normand-Breton représente une fraction importante des rejets industriels. En effet les calculs précédents ne tiennent pas compte des couches enfouies sous les 10 premiers centimètres, des sables intertidaux, des zones subtidales, des sites à l'ouest de la baie du Mont-Saint-Michel, de la correction de décroissance due au temps de transit. Ce phénomène, caractéristique du comportement du  $^{144}\text{Ce}$ , est imputable à la nature particulière de ce radionucléide.

- Relativement au  $^{144}\text{Ce}$  les teneurs en  $^{106}\text{Ru}$  dans les sédiments, bien que deux fois plus élevées, paraissent faibles si l'on considère l'évolution dans la composition radioactive des effluents de l'usine de La Hague reportée dans le tableau 1. En tenant compte des activités à l'équilibre dans l'environnement déjà calculées, on est amené pour expliquer ces résultats à émettre l'hypothèse d'une fraction particulière du  $^{106}\text{Ru}$  ne dépassant pas 5 à 10 % dans l'eau de mer, tout du moins pendant la période d'étude. Nous reviendrons ultérieurement sur cette question car la physicochimie du ruthénium,

caractérisée par des réactions d'équilibre à faibles constantes de vitesse entre formes solubles et insolubles, mérite un développement particulier.

- Les études biologiques menées parallèlement aux études géochimiques permettront de suivre les transferts de radioactivité entre sédiments et constituants du milieu; il apparaît déjà (Germain, Masson, sous presse) que les activités des algues, huîtres et moules du golfe Normand-Breton sont faibles.

#### Application des analyses de radioactivité à des études fondamentales

Les divers résultats de radioactivité peuvent apporter des éléments d'information sur divers problèmes d'hydrologie, sédimentologie, géochimie :

- un élément important du cycle des éléments hydrolysables comme le  $^{106}\text{Ru}$  et le  $^{144}\text{Ce}$  réside dans le piégeage dans le golfe Normand-Breton. Cette observation met en évidence l'existence d'une cellule de circulation résiduelle cyclonique des masses d'eau du golfe Normand-Breton entre La Hague et le Penthièvre, qui ne semble pas avoir été perçue lors de l'étude de site ayant précédé la mise en route de l'usine, l'accent ayant été mis principalement sur une dérive du panache d'effluent vers la Manche orientale.

Une meilleure interprétation nécessiterait la connaissance des bilans saisonniers du déplacement des masses d'eau de la Manche en surface et au fond. Le schéma très général proposé par Dietrich (1950) met en évidence un courant résiduel hivernal du Cotentin vers la Bretagne (fig. 2) qui est également montré par l'étude du modèle mathématique de Lomer (1978);

- vers l'ouest la limite du retour à la côte de l'incidence des rejets de l'usine de La Hague se situerait dans la partie est de la baie de Saint-Brieuc et même jusqu'à l'embouchure du Trieux mais ceci reste à prouver;

- si l'on considère la forte décroissance de  $^{144}\text{Ce}$  dans les rejets à La Hague entre 1975 et 1977-1978, la légère augmentation du taux de  $^{144}\text{Ce}$  entre 1975 et 1977 dans les sédiments du golfe Normand-Breton nous conduit à admettre un décalage de temps important (pouvant atteindre et dépasser 2 ans) entre le rejet à l'émissaire et l'observation de l'effet sur le littoral. Ceci laisse supposer l'existence d'une aire de stockage intermédiaire non localisée actuellement. Des conditions météorologiques particulières (tempêtes) pourraient ensuite provoquer le transfert vers la zone intertidale : l'exemple de dépôt d'une couche de vase en baie de Cancale en mars 1978 — caractérisée d'une part par des teneurs très homogènes en  $^{144}\text{Ce}$  (6 pCi/g) et  $^{106}\text{Ru}$  (12 pCi/g) et d'autre part par un rapport  $^{106}\text{Ru}/^{144}\text{Ce}$  de 2 identique à celui des échantillons du port de Granville — est probablement un phénomène accidentel de transfert de vases remises en suspension sur l'estran de la baie;

- les déterminations de profils verticaux de radioactivité — détaillées dans un travail ultérieur — serviront de base à des études sédimentologiques;

- des dosages de radionucléides dans l'eau permettraient de suivre le déplacement des éléments solubles

vers la Mer du Nord. Dans ce transfert on ne peut exclure la présence d'éléments particuliers mais les taux de sédimentation sur le littoral resteraient faibles.

## CONCLUSION

Les sédiments jouent un rôle essentiel dans le cycle d'éléments hydrolysables comme  $^{144}\text{Ce}$  ou partiellement hydrolysables comme  $^{106}\text{Ru}$ , rejetés par l'industrie nucléaire. Le piégeage de ces radionucléides dans le golfe Normand-Breton constitue *a priori* un élément favorable au point de vue protection dans la mesure où il n'y a pas remobilisation sous l'effet de processus biologiques. Ce phénomène constituera le thème essentiel des futures activités du Laboratoire qui seront étendues au plutonium et autres transuraniens. En ce qui concerne la poursuite des études de déplacements de matières en suspension seul le  $^{106}\text{Ru}$  pourra encore être utilisé comme marqueur émetteur gamma des rejets industriels; les transferts du  $^{144}\text{Ce}$ , élément de base des observations 1974, 1975, 1976 et 1977, ne peuvent plus être suivis à l'heure actuelle : sur l'ensemble du littoral français la contribution des retombées atmosphériques l'emporte maintenant, pour ce radionucléide, sur celle des rejets industriels.

## Remerciements

Nous remercions vivement le Dr Duursma pour l'aide précieuse qu'il nous a apportée dans la rédaction de ce manuscrit.

Ce travail a été réalisé avec la collaboration technique de MM. Renouf, Hervieu, Léon et M<sup>me</sup> Leconte.

## REFERENCES

- Ancellin J., Guéguéniat P., Germain P., 1979. *Radioécologie Marine*, Eyrolles, Paris (sous presse).
- Auffret J. P., Germain P., Guéguéniat P., Lemosquet Y., 1971. Étude expérimentale de la fixation du caesium 137 par certains sédiments de la Manche, *Cah. Océanogr.*, **23**, 935-955.
- Auffret J. P., Le Gall J., 1972. Étude sédimentologique de la baie d'Ecalgrain (Nord-Ouest du Cotentin), *Bull. Soc. Limn. Normandie*, **103**, 9-25.
- Auffret J. P., Hommeril P., Larsonneur C., 1975. La mer de la Manche, modèle de bassin sédimentaire épicontinental sous climat tempéré, IX<sup>e</sup> Congr. Sédim. Int., Nice, **5**, 25-32.
- Ausset R., 1969. Rejets en mer des eaux résiduaires faiblement radioactives du Centre de La Hague, *Houille blanche*, **4**, 381-394.
- Bowen V. T., Livingston H. D., Burke J. C., 1976. Distribution of transuranium nuclides in sediment and biota of the North Atlantic Ocean. Transuranium Nuclides in the environment. International Atomic Energy, Vienna.
- Chesselet R., Lalou C., 1965 a. Étude de l'évolution dans le milieu marin des particules radioactives ayant pour origine les aérosols de la retombée atmosphérique, *Rapp. P. V. Réun. Comm. Int. Explor. Sci. Mer Méditerran.*, **18**, 3, 851-856.
- Chesselet R., Lalou C., 1965 b. Expérimentalement study of dispersion of fallout nuclear debris in sea water, *Radioact. Sea*, **1965**, **13**, 1-14.
- Dietrich G., 1950. Die anomale Jahressch wankung des Wärmeinhalts im Englischen Kanal, ihre Ursachen und Auswirkungen, *Dtsch. Hydrogr. Z.*, **3**, 184-201.
- Duursma E., Gross M., 1971. Marine sediments and radioactivity, in: *Radioactivity in the marine environment*, National Academy of Sciences, Washington, 147-160.
- Duursma E., Eisma D., 1973. Theoretical experimental and field studies concerning reaction of radioisotopes with sediments and suspended particles of the sea. Application to field studies, *Neth. J. Sea Res.*, **6**, 3, 265-324.
- Germain P., Masson M., Baron Y. Étude de la répartition de radionucléides émetteurs gamma chez des indicateurs biologiques littoraux des côtes de la Manche et de la Mer du Nord de février 1976 à février 1978 (sous presse).
- Got H., 1972. La radioactivité des sédiments au large de l'embouchure du Grand Rhône, *Rapp. P. V. Réun. Comm. Int. Explor. Sci. Mer Méditerr.*, **21**, 6, 281-285.
- Guéguéniat P., Baron Y., Auffret J. P., 1976. Note sur l'évolution de la radioactivité artificielle dans les sédiments de la Manche pendant les années 1971-1975, Rapport Commiss. Energie Atom. R-4739.
- Guéguéniat P., Gandon R., 1977. Le ruthénium. Cas particulier du devenir d'un radionucléide dans le milieu marin, Recueil des communications du 4<sup>e</sup> congr. intern. Assoc. Intern. Radiopr. Paris, avril 1977, 255-258.
- Hetherington J., 1975. "Behavior of plutonium nuclides in the Irish Sea", Presented at the Eighth Rochester International Conference on Environmental Toxicology "Radioisotopes in the Aquatic Environment", University of Rochester, New York, June 2-4 (1975).
- Hetherington J., 1978. The uptake of plutonium nuclides by marine sediments, *Mar. Sci. Comm.*, **4**, 3, 239-274.
- Hetherington J., Jefferies D., Lovett M., 1975. Some investigations into the behaviour of plutonium in the environment, in: Impact of nuclear releases into the aquatic environment, Proceedings of a symp. Otaniemi, July 1975, 193-212, Vienne: IAEA
- Jefferies D., Preston A., Steele A., 1973. Distribution of caesium 137 in British coastal waters, *Mar. Pollut. Bull.*, **4**, 8, 118-122.
- Kautsky M., 1973. The distribution of the radionuclide caesium 137 in British coastal waters, *Mar. Pollut. Bull.*, **4**, 8, port, *Dtsch. Hydrogr. Z.*, **26**, 6, 241-246.
- Krishnaswami S., Lal D., Amin B., 1973. Geochronological studies in Santa Barbara Basin: Fe-55 as an unique tracer for particulate settling, *Limnol. Oceanogr.*, **18**, 763.
- Larsonneur C., 1971. Manche centrale et baie de Seine : géologie du substratum et des dépôts meubles, thèse doc. état Univ. Caen.
- Livingston H., Bowen V., 1976. Americium in the marine environment-relationships to plutonium, in: Environmental Toxicity of Aquatic Radionuclides-Models and Mechanisms, edited by M. N. N. Miller, J. N. Stannard, Ann Arbor Science Publisher, Ann Arbor, Michigan, 107-130.
- Livingston H., Bowen V., 1977. Windscale effluent in the waters and sediments of the Minch, *Nature*, **269**, 586-588.
- Lomer F., 1978. La dérive en mers à marées. Thèse I.N.G. Université de Paris-VI.
- Martin J-L., 1970. Variations saisonnières de la radioactivité de la matière en suspension dans les fleuves, *C. R. Acad. Sci.*, Paris, **271**, 1934-1937.
- Mitchell N., 1969. Radioactivity in surface and coastal waters of the British isles. Technical Report FRL 7.
- Mitchell N., 1971. Radioactivity in surface and coastal waters of the British isles. Technical Report FRL 9.
- Osterberg C., Cutshall N., Johnson V., Cronin J., Jennings D., Frederick L., 1966. Some non biological aspects of Columbia River radioactivity. Disposal of radioactive waste into sea ocean and surface waters, International Atomic Energy Agency, Vienna 1966.
- Robertson D., 1967. Trace elements in marine sediments, BNWL-481 2.
- Schreiber B., Tassi Pelati L., Mezzadri M., 1968. Gross beta radioactivity in sediments of North Adriatic Sea: a possibility of evaluating the sedimentation rate, *Arch. oceanogr. Limnol.*, **16**, 45-62.
- Schreiber B., Cerrai E., Triulzi C., Tassi Pelati L., Mezzadri M., 1969. Ricerche sulla distribuzione verticale della radioattività nei sedimenti del Mar Ligure, *G. Fis. Sanit. Prot. Radiaz.*, **13**, 1.
- Woodhead D., 1973. Levels of radioactivity in the marine environment and the dose commitment to marine organisms, in: Radioactive contamination of the marine environment. Proceedings of a symp. Seattle, July 1972, Vienna IAEA. 499-525.