

**Comportement géochimique
des radionucléides
à l'amont de l'estuaire de la Loire**

Contrat CNEXO n° 82/6844

RAPPORT FINAL

**Alain J. THOMAS
Institut de Biogéochimie Marine
Ecole Normale Supérieure**

IFREMER Bibliothèque de BREST



0EL05663

Comportement géochimique des radionucléides à l'amont de l'estuaire de la Loire

Contrat CNEOX n° 82/6844
RAPPORT FINAL

Alain J. THOMAS
Institut de Biogéochimie Marine
Ecole Normale Supérieure

RESUME

La Loire fluviale reçoit des apports de radioéléments artificiels par le drainage de son bassin versant contaminé par les retombées des essais nucléaires atmosphériques (notamment le dernier essai chinois de 1980) et par les rejets liquides de routine ou accidentels des réacteurs électro-nucléaires. Les radioéléments de longue période proviennent largement de l'industrie nucléaire. Ils sont estimés (1982) à 1 (ou 3 ?) Ci/an pour le ^{137}Cs (le bassin versant apportant 0.4 Ci/an sous forme particulaire), et à 10-20 mCi/an pour le $^{239+240}\text{Pu}$ qui provient d'un accident (le bassin versant apporte 5 mCi/an sous forme particulaire). La proportion des émetteurs gamma de courte période (quelques mois à 5 ans) et du ^{137}Cs d'origine industrielle est estimée (1980-1983) à 100 % pour ^{58}Co , ^{60}Co , ^{134}Cs et $^{110\text{m}}\text{Ag}$, 50-80 % pour ^{106}Ru , ^{54}Mn , ^{144}Ce , 35 % pour ^{137}Cs , mais ^{95}Zr et ^{125}Sb ne proviennent que de la retombée.

Dans la zone estuarienne, le ^{137}Cs est partiellement remis en solution à partir des MES par échange ionique. Le ^{144}Ce des MES ne paraît pas s'échanger significativement avec la phase dissoute, mais sa courte période tend à réduire ses activités dans le bouchon vaseux. Le comportement du ^{60}Co , trop largement affecté par des variations des rejets des REP, n'a pas pu être étudié. Le cas du ^{54}Mn paraît complexe et les divers processus (apports récents mal mélangés, mobilisation, effet de décroissance) n'ont pu être distingués. Enfin, seul le ^{125}Sb est essentiellement d'origine marine et se fixe sur les MES du bas-estuaire.

Afin de tenter de quantifier le stock estuarien de particules géochimiquement réactives (avec les éléments dissous), on a établi un modèle en boîte basé sur le bilan d'un traceur radioactif naturel, le ^7Be . Ce stock serait de plusieurs Mt (en moyenne de 1.7 Mt) mais ses variations avec l'hydrologie n'ont pu être évaluées de façon très fiable. Le temps de résidence de ce stock particulaire réactif dans l'estuaire est estimé à quelques années (en moyenne 1.7 ans). La zone estuarienne retarde donc sensiblement le transit des micropolluants vers la mer, ce qui peut contribuer à une réduction de la contamination du flux particulaire vers la mer si la durée de vie du polluant est courte (radioéléments, polluants biodégradables).

1. INTRODUCTION	1
1.1 RAPPEL DES OBJECTIFS	1
1.2 ECHANTILLONNAGE ET ANALYSES	1
2. ORIGINE DES RADIOELEMENTS ARTIFICIELS DANS LA LOIRE .	1
2.1 EVALUATION DES APPORTS INDUSTRIELS	1
2.1.1 METHODOLOGIE	1
2.1.2 REJETS DE ¹³⁷ Cs	3
2.1.3 LE PROBLEME DES TRANSURANIENS	4
2.1.4 EMETTEURS GAMMA DE COURTE PERIODE	6
2.2 LA LOIRE DANS LE CONTEXTE FRANCAIS	7
3. COMPORTEMENT ESTUARIEN : COMPARAISON ELEMENTS STABLES ET RADIOACTIFS	7
3.1 ELEMENTS ALCALINS (Cs)	7
3.2 TERRES RARES (Ce)	8
3.3 METAUX (Co, Mn et Sb)	8
4. ZONE ESTUARIENNE : STOCKS SEDIMENTAIRES ET TEMPS DE RESIDENCE	10
4.1 PROBLEMATIQUE	10
4.2 METHODOLOGIE	11
4.2.1 CHOIX D'UN TRACEUR	11
4.2.2 MODELISATION	11
4.2.3 PARAMETRES UTILISES	12
4.3 RESULTATS	13
4.3.1 POUR DES CONDITIONS MOYENNES	13
4.3.2 CAS DES ETIAGES ET DES CRUES	14
4.4 COMPARAISON AVEC LES RADIOELEMENTS ARTIFICIELS .	15
5. REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	15
Tables 1 et 2	17-19
Figures 1 à 6	20-24

1. INTRODUCTION

1.1 RAPPEL DES OBJECTIFS

Il s'agit d'étudier le comportement des oligo-éléments associés à la phase particulaire dans l'estuaire de la Loire, en utilisant des traceurs radioactifs permettant de couvrir les échelles de temps qui caractérisent ce système et dont les origines sont à déterminer, en s'efforçant d'aboutir à une typologie de comportement géochimique.

1.2 ECHANTILLONNAGE ET ANALYSES

La Loire fluviale et son estuaire ont été échantillonnés dans des conditions hydrologiques contrastées :

étiage : Juin 1982 (300-350 m³/s)

débit moyen : Octobre 1980 (500-950 m³/s)

crues : Avril 1979 (2400-3600 m³/s) et Mai 1983 (3300-4300 m³/s)

Les matières en suspension (MES) ont été séparées par la centrifugation en continu de prélèvements de grand volume (100-200 l). Après séchage à 105°C, les MES ont été analysées en spectrométrie alpha et gamma à très bas niveau.

Les émetteurs gamma ont été mesurés de façon non destructive à l'aide d'un détecteur GeHP de 32 % d'efficacité relative et d'une résolution de 1.8 keV à 1.33 MeV, placé dans un château de plomb épais de 15 cm. La calibration du détecteur a été faite en utilisant des standards de l'AIEA.

Les isotopes du plutonium ont été mesurés par les méthodes classiques (Talvitie 1971, 1972; Wong, 1971; Ballestra et al., 1979) après dissolution dans un mélange HF + HCl + HClO₄, purification radiochimique à l'aide de résines Bio-Rad AG1X8 50-100 mesh, électro-dépôt et comptage avec un détecteur à barrière de surface Si-Au de 300 mm².

Les éléments stables (Cs, Co, Sb) ont été mesurés par activation neutronique non destructive selon la méthode monostandard (Delcroix & Philippot, 1973). Le Mn stable a été mesuré en absorption atomique.

2. ORIGINE DES RADIOELEMENTS ARTIFICIELS DANS LA LOIRE

2.1 EVALUATION DES APPORTS INDUSTRIELS

2.1.1 METHODOLOGIE

L'activité des rejets annuels sera évaluée d'après la production électrique et les résultats confrontés avec ceux des mesures de la radioactivité des MES. On confrontera les activités dans la Loire à l'aval des centrales avec les niveaux d'activité dus aux seules retombées globales, définis d'une part par l'analyse des MES prélevées à Cosne-sur-Loire à l'amont de la centrale de Dampierre, et d'autre part à l'aide de données comparatives dans la Garonne. Les apports industriels seront ensuite comparés aux apports atmosphériques.

Les activités dues à la retombée seront caractérisées par les concentrations normalisées à l'aluminium ou par les rapports d'activité au ^7Be (radioélément cosmogénique naturel), ce qui est expliqué ci-dessous.

La simple comparaison des niveaux d'activité bruts entre une zone a priori non contaminée par des rejets et une autre est tout à fait insuffisante et parfois source d'erreurs, à moins que la contamination industrielle ne soit forte et évidente.

A bas niveau, ce qui est le cas en Loire, il est préférable de recourir à une procédure de normalisation à Al. On exprime dans ce cas les teneurs en pCi par gramme d'Al. Ce procédé a été discuté dans diverses publications (Jeandel et al., 1981a,b; Elbaz-Poulichet et al., 1982; Thomas et Martin, 1982). Ce n'est toutefois pas une panacée et en particulier la comparaison entre les activités mesurées dans des sédiments déposés grossiers et fins est souvent invalidée par la présence de minéraux alumineux mais non argileux dans les fractions sableuses, abondantes dans la Loire, d'où des concentrations normalisées anormalement faibles.

L'idéal est de disposer de rapports d'activité d'un même élément. Pour le plutonium, le meilleur critère est le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$. Il n'existe généralement pas pour les émetteurs gamma usuels de rapports d'activité du même élément, sauf pour le Cs et le Co. Malheureusement, il est rare que l'activité du ^{134}Cs puisse être mesurée avec une précision suffisante, et la période du ^{58}Co (70 jours) est trop courte.

Une autre difficulté résulte de l'aspect cyclique des apports des bombes, lié aux ouvertures de la tropopause. En un même lieu, l'activité d'un radioélément dans un sédiment récent peut montrer des fluctuations saisonnières. Enfin, l'intensité des précipitations intervient aussi puisque c'est le vecteur essentiel du dépôt atmosphérique.

Une autre solution consiste donc à utiliser un traceur naturel de cet apport atmosphérique. La mesure de l'excès de ^{210}Pb n'est pas simple et sa détermination sur de petites quantités de MES n'est guère faisable en spectrométrie gamma non destructive. Il reste donc le ^7Be , plus facile à mesurer, et qui n'est pas susceptible d'être mobilisé significativement à partir des particules sédimentaires.

On suppose tout d'abord que les radioéléments artificiels sont fixés sur les mêmes particules atmosphériques que le ^7Be , ce qui est généralement admis (Young & Silker, 1980), et que le rapport élément/ ^7Be reste constant au cours d'un cycle annuel.

Les rapports élément/ ^7Be sont déterminés par l'analyse de sédiments d'une zone non contaminée par les rejets industriels. Il est ensuite simple de déduire, en comparant les rapports élément/ ^7Be locaux avec ceux de sédiments non contaminés, quelle est la part de l'industrie dans les activités mesurées.

Dans la pratique, la difficulté de cette méthode réside dans la qualité de l'échantillonnage et la courte période du ^7Be (53 jours). Il est parfois délicat de s'assurer sur le terrain du

caractère "récent" d'un sédiment , et on peut être amené à exclure a posteriori des échantillons dont les teneurs en ^7Be tombent au-dessous de la fourchette habituelle. L'application aux MES est, elle, beaucoup plus sûre à cet égard.

La fraction F_i d'un élément E d'origine industrielle dans un échantillon peut s'estimer simplement par comparaison avec des MES de référence uniquement marquées par les retombées atmosphériques globales, soit en utilisant les concentrations normalisées à Al, soit en se référant au ^7Be . Si ces deux approches sont cohérentes, on obtient :

$$F_i = ((E/X)_{\text{éch}} - (E/X)_{\text{réf}}) / (E/X)_{\text{éch}}, \text{ où } X = \text{Al ou } ^7\text{Be}.$$

Dans le cas du plutonium, le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les effluents des réacteurs dépend de leur type et de l'âge du combustible, et il est utile de le reconstituer. Sous réserve que la fraction de Pu d'origine industrielle (F_i) puisse être déterminée par ailleurs, on peut calculer le rapport $R_i = ^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les rejets à partir du rapport mesuré dans l'échantillon R_m et du rapport atmosphérique dû aux retombées des bombes $R_f = 0.04$.

$$R_i = ((R_m - R_f) / F_i) + R_f$$

2.1.2 REJETS DE ^{137}Cs

En admettant pour les centrales de la Loire un coefficient de production global de 0.51 (données CEA), la production électrique nette peut être évaluée à 750 et 2820 MW.an pour les réacteurs UNGG et REP respectivement. A partir des rares données disponibles sur les rejets des centrales, on calcule un rejet de ^{137}Cs de $6 \cdot 10^{-4} \times 2820 = 1.7 \text{ Ci/an}$ pour les REP. En approximant la composition des rejets liquides des UNGG à 20 % de ^{137}Cs , et avec un rejet spécifique bêta total liquide d'environ 10 mCi/an, l'apport de ^{137}Cs est de $0.002 \times 750 = 1.5 \text{ Ci/an}$. L'apport total dû aux centrales serait donc voisin de $1.7 + 1.5 = 3.2 \text{ Ci/an}$ pour 1982.

La présence constante de ^{134}Cs dans les apports en suspension de la Loire à Montjean (table 1) témoigne de la constance de rejets de césium depuis au moins 1979. De fait, les activités en ^{137}Cs demeurent supérieures à celles dues aux retombées d'un facteur 5 en 1980. En évaluant le niveau d'activité dû à la retombée à 0.4 pCi/g, et avec un débit solide de l'ordre de 1 Mt/an, l'apport particulaire à Montjean serait de 0.4 Ci/an. L'activité moyenne de 1979 à 1983 est de 1.0 pCi/g, dont 0.6 pCi/g imputables aux rejets des centrales, soit 0.6 Ci/an d'apport particulaire.

Les concentrations en ^{137}Cs dissous à l'amont des centrales à Cosne/Loire étaient de $21 \pm 6 \text{ fCi/l}$ en 1983; cette valeur ne diffère pas significativement de celles mesurées à l'aval des centrales à Montjean en 1979 ($17 \pm 3 \text{ fCi/l}$) et en 1980 ($33 \pm 3 \text{ fCi/l}$), ni de celles mesurées dans la Garonne (fig. 1). Si les rejets industriels provoquent une augmentation du ^{137}Cs dissous, celle-ci n'est pas appréciable à partir des mesures réalisées. On peut cependant l'évaluer à partir des coefficients de distribution (K_d) mesurés à Montjean (en moyenne 44000) et du

rapport débit solide / débit liquide de la Loire d'environ 0.04 g/l. On trouve que l'apport particulaire représente 63 % de l'apport total en ^{137}Cs de la Loire. L'apport en ^{137}Cs dissous d'origine industrielle devrait être de 0.36 Ci/an, d'où un excès de concentration de 14 fCi/l effectivement mal discernable dans les mesures effectuées.

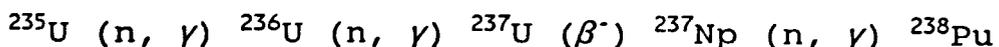
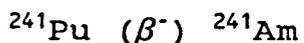
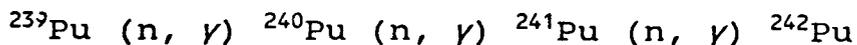
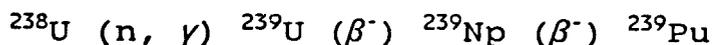
Finalement, l'apport total en ^{137}Cs dissous et particulaire dû aux centrales serait de donc de 0.6 + 0.36 soit environ 1 Ci/an. Si on considère les approximations qui ont permis le calcul par les rejets spécifiques (3.2 Ci/an), l'accord entre ces deux approches indépendantes est acceptable.

L'apport dû aux bombes en 1982 est de 0.07 à 0.14 mCi/km², ce qui fait pour le bassin de la Loire (110000 km²) un apport atmosphérique total de 7.7 à 15.4 Ci/an de ^{137}Cs , dont une partie seulement est acheminée depuis les sols jusqu'au fleuve lui-même.

Ces résultats montrent donc la modicité du surcroît d'activité imputable à l'industrie électro-nucléaire de la Loire dans le cas de l'un des constituants majeur et persistant des rejets liquides.

2.1.3 LE PROBLEME DES TRANSURANIENS

L'information sur l'existence ou la recherche de plutonium dans les rejets liquides des centrales est inexistante. Du point de vue légal, "les effluents ne doivent en aucun cas ajouter d'émetteurs alpha à l'environnement" (Bidard & Bardin, 1987). Si des rejets en Pu existent néanmoins, ils sont susceptibles de modifier les rapports d'activité. En effet, l'irradiation prolongée du combustible conduit à la formation progressive de transuraniens de masses croissantes par les réactions suivantes :



Dans la mesure où le ^{239}Pu est en partie consommé dans le réacteur, le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ croît au cours de l'utilisation du combustible.

Il n'existe pas, à notre connaissance, de publication mettant en évidence sans ambiguïté des rejets de ^{238}Pu par les réacteurs nucléaires sur la base d'études environnementales. Les quelques rapports $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ anormaux (0.11-0.30) mesurés dans l'Hudson en aval des réacteurs BWR sont dispersés et considérés comme des exceptions statistiquement non significatives (Linsalata et al., 1980). Les rapports de 0.11-0.17 dans les sédiments de la Savannah River, et de 0.2-0.3 dans les plantes sont imputés à un héritage du complexe nucléaire de Savannah (Goldberg et al., 1979) qui comporte une usine de retraitement. Des rapports de 0.16-0.21 ont été mesurés dans des byssus de moules et attribués aux rejets du réacteur REP de San Onofre en Californie (Koide et al., 1982). La seule information précise est la mention de rejets

de ^{238}Pu par la centrale REP de Borssele aux Pays-Bas (0.01-0.05 mCi/an; cf. Duursma et al., 1985).

Nous avons mesuré les activités en Pu dans les sédiments et MES de la Loire (table 1; fig. 2). Les résultats montrent que le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ dans les particules est conforme à celui de la retombée globale (environ 0.05) à l'amont des centrales ainsi que dans un unique échantillon sableux prélevé à l'aval de la centrale de Dampierre, mais ce rapport atteint 0.15-0.42 dès l'aval de St. Laurent. A l'entrée dans l'estuaire (Montjean) il est encore de 0.05-0.28.

Les concentrations en $^{239+240}\text{Pu}$ à l'amont des centrales sont voisines de 5 fCi/g et analogues à celles mesurées dans la Garonne dépourvue d'industrie nucléaire. Elles atteignent 10-50 fCi/g à l'aval des centrales, et les plus fortes concentrations correspondent aussi aux rapports d'activité les plus élevés (fig. 3).

Ces résultats indiquent sans ambiguïté qu'une partie du ^{238}Pu et du $^{239+240}\text{Pu}$ des sédiments de la Loire ne provient pas des retombées globales mais doit être imputé à des rejets industriels, notamment au niveau de la centrale de St. Laurent.

Nous avons donc essayé de déterminer dans quelle mesure ces rejets modifiaient les apports en Pu particulaire de la Loire (table 1). Une évolution de la contamination dans le temps est manifeste. Des rapports $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ systématiquement élevés (0.28) sont observés dès Octobre 1980. Ils correspondent aussi aux plus forts rapports Pu/Al et Pu/ ^7Be . Toutes ces valeurs décroissent en 1982 et 1983.

On a considéré que les rapports mesurés à l'amont des centrales à Cosne/Loire (table 1) caractérisaient les niveaux d'activité dus aux retombées atmosphériques, ce qui est confirmé par la comparaison avec la Garonne. On peut ainsi calculer qu'en 1980 la fraction F. de $^{239+240}\text{Pu}$ d'origine industrielle évaluée comme indiqué plus haut était de 50-80 %. En 1983, la fraction de $^{239+240}\text{Pu}$ due aux rejets serait d'environ 40 % en Avril (crue), et faible ou nulle en Mai (crue exceptionnelle).

Il est difficile de déterminer si la diminution de l'influence industrielle de 1980 à 1983 provient d'une réduction des rejets ou d'un fort mélange lors des crues avec des sédiments remaniés.

Le rapport initial $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ (R_i) dans les effluents rejetés serait en moyenne d'environ 0.60 en 1980; le plus fort rapport trouvé en Loire est en effet de 0.59 ± 0.03 . Ce rapport aurait diminué les années suivantes (≤ 0.20). Ces résultats traduisent un enrichissement appréciable en ^{238}Pu du combustible nucléaire.

Le même calcul montre que le rapport $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ moyen des effluents est plus constant et égal à 0.19 ± 0.06 de 1979 à 1983. Ce résultat correspond également aux plus forts rapports mesurés dans certains sédiments (0.16).

L'origine des rejets de ^{238}Pu peut être précisée en examinant les dates de mise en service des réacteurs. Le premier REP qui a divergé en Loire est celui de Dampierre-1 en Mars 1980. Il n'a

été suivi par Dampierre-2 qu'en Décembre de la même année. Les rejets de ^{238}Pu peuvent donc provenir de Dampierre-1 ou des réacteurs UNGG à St. Laurent et Chinon. Or l'échantillon de sédiment prélevé en 1983 à l'aval de Dampierre où fonctionnent 4 REP a un rapport d'activité atmosphérique (≤ 0.034). De plus, s'il est exact que la contamination a diminué au niveau des apports à Montjean, cette évolution correspond au contraire à un accroissement du nombre des REP en fonctionnement (8, à la fin de Juin 1983). Il paraît donc plus probable que les rejets de Pu proviennent d'un réacteur UNGG. D'après la fig. 2, il s'agit certainement de la centrale de St. Laurent.

(Note : postérieurement à celle étude, il a été confirmé qu'un accident nucléaire est en effet survenu à l'un des réacteurs UNGG de la centrale de St. Laurent en Mars 1980, accident qui a conduit à la fusion de deux éléments de combustibles de la tranche 2 (Martin & Thomas, 1989).

Les apports industriels en $^{239+240}\text{Pu}$ particulière à l'estuaire de la Loire peuvent être estimés en admettant qu'ils correspondent à 50-80 % des activités moyennes à Montjean (23 fCi/g en Octobre 1980), et sur la base d'un apport solide annuel de l'ordre de 1 Mt. Il faut également supposer que ces concentrations se sont maintenues durant 1 an, ce que nous ne pouvons pas vérifier. On obtient un apport d'origine industrielle de 10 à 20 mCi de $^{239+240}\text{Pu}$, qui s'ajoute aux apports particuliers hérités de la retombée (5 mCi/an).

2.1.4 EMETTEURS GAMMA DE COURTE PERIODE

Dans la mesure où certains produits de fission et d'activation sont communs aux retombées des bombes et aux rejets industriels, la contribution relative des apports industriels et atmosphériques dans la Loire a été calculée en utilisant les rapports au ^7Be .

Les résultats obtenus à l'entrée de l'estuaire (Montjean) sont représentés sur la fig. 4 où les radioéléments inconnus dans la retombée sont a priori placés à 100 %. Bien qu'il y ait des rejets de ^{95}Zr à St. Laurent (Martin, 1978), il apparaît que les activités mesurées peuvent être totalement imputées aux retombées des bombes et, en l'occurrence, au dernier essai atmosphérique chinois du 16 Octobre 1980.

Il semblerait que les rejets d'antimoine radioactif par les centrales nucléaires se limitent au ^{124}Sb , produit d'activation de courte période. Nous n'avons, au contraire des usines de retraitement, trouvé aucune mention de rejets de ^{125}Sb (produit de fission de période 2.8 ans). De fait, durant la période étudiée, la totalité de ^{125}Sb dans les MES peut être attribuée à l'apport atmosphérique.

Pour d'autres radioéléments (^{54}Mn , ^{106}Ru , ^{144}Ce), l'origine industrielle est prédominante; ces radioéléments ont aussi été trouvés dans les rejets de la centrale de St. Laurent.

Les estimations ci-dessus ne peuvent évidemment pas être extrapolées aux années ultérieures qui ont vu augmenter les rejets consécutifs à la mise en service de nouveaux réacteurs et,

au contraire, diminuer la retombée atmosphérique à la suite de l'arrêt des tirs aériens.

2.2 LA LOIRE DANS LE CONTEXTE FRANCAIS

Il est utile de comparer la contamination de la Loire déterminée ci-dessus avec la situation à la même époque et déterminée par ailleurs dans d'autres fleuves français. Cette comparaison sera restreinte aux radioéléments persistants (isotopes du Cs et du Pu) et à la phase particulaire qui est largement responsable de l'essentiel des flux radioactifs vers la mer.

Les fig. 5 et 6 présentent les concentrations en ^{137}Cs et $^{239+240}\text{Pu}$ dans les sédiments et MES, normalisées à l'aluminium, ainsi que les rapports d'activités correspondants.

La comparaison de la Loire avec des milieux uniquement soumis à la retombée atmosphérique (Seine à l'amont de Paris, Garonne et Gironde) montre que l'implantation des réacteurs électronucléaires n'a pas introduit de changements très importants dans la radioactivité artificielle des particules fluviales.

Il n'en est pas de même lorsqu'on examine l'impact du maillon suivant du cycle de l'énergie nucléaire, c'est-à-dire les rejets des usines de retraitement de combustible. La radioactivité artificielle des sédiments contaminés par les rejets de La Hague (aval de la Seine) et plus encore de Marcoule (sur le Rhône) est supérieure d'un ordre de grandeur au moins aux activités mesurées dans la Loire fluviale et estuarienne.

3. COMPORTEMENT ESTUARIEN : COMPARAISON ELEMENTS STABLES ET RADIOACTIFS

La comparaison du comportement des radioéléments et de leurs homologues stables peut permettre de mieux comprendre les raisons de leurs variations dans le système estuarien, par exemple en distinguant ce qui est dû à l'effet des périodes radioactives.

Toutefois, la spéciation particulaire des éléments stables et radioactifs n'est a priori pas la même; les premiers comportent une fraction résiduelle non réactive dans le milieu aquatique, tandis que ce n'est pas le cas en principe pour les derniers.

Nous n'avons pu faire dans cette étude que des comparaisons très limitées car il est apparu que, dès les zones turbides de l'estuaire, les activités des radioéléments dans les MES devenaient trop faibles pour permettre des mesures fiables et bien souvent il s'est avéré impossible de suivre l'évolution de leurs activités le long de profils longitudinaux complets. Malgré ce handicap, on tentera cependant quelques comparaisons, dont la représentativité est très limitée, et les conclusions obtenues devront être considérées avec réserve.

3.1 ELEMENTS ALCALINS (Cs)

Les concentrations brutes en ^{137}Cs diminuent systématiquement du fleuve vers la mer (typiquement de 1.0-1.5 à 0.5 pCi/g), cette

décroissance étant cependant peu marquée en crue. Elle ne résulte pas d'effets granulométriques puisqu'on l'observe aussi pour les rapports $^{137}\text{Cs}/\text{Al}$, qui décroissent de 50-80 % en étiage et débit moyen et de 20-50 % en crue.

Le Cs stable semble décroître aussi, mais moins nettement. Par conséquent, le rapport $^{137}\text{Cs}/\text{Cs}$ tend à diminuer dans l'estuaire, par exemple de 36 à 22 pCi/ μg .

Ce comportement plus accentué du ^{137}Cs pourrait résulter de sa décroissance radioactive (période 30 ans) si le temps de résidence du bouchon vaseux de l'estuaire était très grand; on verra plus loin que ce n'est pas le cas. Il s'agit plus vraisemblablement d'une mobilisation du Cs par échange ionique dans les eaux salées. La plus forte mobilisation du radiocésium est probablement à mettre en relation avec une fraction labile plus importante.

3.2 TERRES RARES (Ce)

La distribution du ^{144}Ce (période 285 jours) reste mal connue en raison de ses trop faibles activités, souvent inférieures aux limites de détection. Les activités à l'entrée de l'estuaire sont dans une fourchette d'environ 0.1-0.4 pCi/g. Les rapports $^{144}\text{Ce}/\text{Al}$ sembleraient indiquer une certaine diminution dans l'estuaire.

Le rapport $^{144}\text{Ce}/\text{Ce}$ reste mal connu et voisin de 2-3 pCi/ μg .

Les éléments de cette famille sont le plus souvent non-conservatifs avec déficit, sans que les concentrations particulières soient significativement affectées par l'insolubilisation des terres rares, trop peu abondantes en phase dissoute. S'il y a vraiment une diminution des activités normalisées en ^{144}Ce , c'est vraisemblablement le résultat de sa décroissance radioactive dans les zones où les MES sont accumulées. On verra plus loin que le temps de résidence des particules devrait en effet jouer dans ce sens.

3.3 METAUX (Co, Mn et Sb)

Cobalt :

Les concentrations en ^{60}Co (période 5 ans) à l'entrée de l'estuaire sont extrêmement variables (0.04-4.0 pCi/g), et sans relation avec l'hydrologie. Ce radioélément est absent des retombées atmosphériques et constitue un traceur des rejets des réacteurs REP, dont les fluctuations sont certainement responsables des variations mesurées. En effet, les radiocobalts ne sont détectés que depuis 1980, date de la mise en service du réacteur de Dampierre-1. Dans l'estuaire, la diminution des activités est très prononcée en débit d'étiage et moyen (on atteint $\leq 0.04-0.15$ pCi/g à la limite aval), tandis que les apports fluviaux en forte crue (4000 m^3/s) ont des activités très faibles (0.04-0.08 pCi/g) qui diffèrent peu de celles de la zone turbide aval. Les rapports $^{60}\text{Co}/\text{Al}$ diminuent de la même façon que les activités brutes car Al varie beaucoup moins.

Les concentrations en Co paraissent très stables (15.5-18.7 $\mu\text{g}/\text{g}$). Les rapports $^{60}\text{Co}/\text{Co}$ n'ont pu être déterminés.

Il est peu probable que les activités en ^{60}Co aient pu diminuer dans l'estuaire d'un facteur 100 (observation en débit moyen en 1980) à la suite d'un processus de mobilisation. Un effet de la décroissance radioactive est tout aussi improbable; il faudrait un stockage des MES durant 33 ans. Par conséquent, une large fraction de la diminution observée doit résulter du mélange d'un apport de MES fluviales récemment contaminées avec un stock sédimentaire estuarien plus ancien. Cette observation s'étant répétée lors de l'étiage prononcé de Juin 1982, il faut admettre que les MES du bouchon vaseux comportaient encore un stock non ou peu contaminé datant de 1979 ou antérieur. Une rétention des sédiments dans les zones turbides à une échelle de temps de quelques années sera effectivement démontrée plus loin.

La faible différence des concentrations fluviales et estuariennes en forte crue peut indiquer une homogénéisation sédimentaire de l'ensemble du système, ou bien simplement une remise en suspension de dépôts anciens et peu contaminés dans la zone fluviale.

Manganèse :

Le ^{54}Mn (période 312 jours) est présent à l'amont avec de faibles activités (0.035-0.20 pCi/g); il n'a généralement pas pu être suivi jusqu'à l'aval de l'estuaire. Cependant, les rapports $^{54}\text{Mn}/\text{Al}$ montrent une décroissance d'un facteur 10-30 dès la zone amont de l'estuaire.

Le ^{54}Mn des MES fluviales ne présente pas les mêmes variations que le ^{60}Co , et il n'est pas en principe un composant essentiel des rejets des REP. Vu sa courte période, un effet de décroissance est cette fois envisageable. Toutefois, le rapport Mn/Al décroît aussi un peu (de 0.025 à 0.012 en débit moyen), ce qui peut indiquer une mobilisation partielle du Mn stable (dont généralement la fraction labile est abondante). Si c'est exact, il doit en être de même pour le Mn radioactif.

Les données sur le manganèse sont trop fragmentaires pour conclure. Des apports fluviaux enrichis dans un système non à l'équilibre, la décroissance radioactive et une certaine mobilisation peuvent tous concourir à la probable diminution du ^{54}Mn du fleuve vers la mer.

Antimoine :

Le ^{125}Sb (période 2.7 ans) a rarement pu être détecté avec précision. Au contraire des métaux précédents, on croit constater une tendance croissante (d'un facteur 2-6 pour $^{125}\text{Sb}/\text{Al}$) vers la zone marine de l'estuaire où ses activités, malheureusement déterminées avec une grosse incertitude (de l'ordre de $\pm 50\%$) atteignent 0.1-0.4 pCi/g.

Au contraire, le rapport Sb/Al est constant ou légèrement décroissant (0.57-0.30 10^{-4}).

Cette opposition entre le comportement du radioélément et de son homologue stable ne peut guère être le reflet de propriétés géochimiques. Si cette augmentation vers la mer est exacte (la même observation a été faite à l'aval de la Gironde en 1984),

elle peut résulter d'une fixation du ^{125}Sb dissous dans l'eau de mer et dont l'origine est probablement les retombées des bombes. On constate de même que le ^{125}Sb dissous de la Baie de Seine, qui provient des rejets de La Hague, se fixe sur les MES marines qui sont ensuite introduites dans l'estuaire de la Seine. Ce processus n'affecte pas le Sb stable des MES car les teneurs marines sont cette fois certainement plus faibles que dans les fleuves.

Cette partie de l'étude a donc partiellement abouti à la mise en évidence d'une certaine typologie du comportement des éléments-trace dans l'estuaire de la Loire, mais les interprétations demeurent fragiles, notamment dans la mesure où les traceurs radioactifs n'ont pas toujours pu être suivis dans le bas-estuaire turbide. Mais les difficultés d'interprétation ont mis en lumière la nécessité de quantifier les processus de mélange entre les apports particuliers fluviaux et le stock de MES du bouchon vaseux, dont en particulier il serait utile de connaître le temps de résidence.

Ce dernier point a donc fait l'objet d'une étude complémentaire qui est détaillée ci-dessous.

4. ZONE ESTUARIEENNE : STOCKS SEDIMENTAIRES ET TEMPS DE RESIDENCE

4.1 PROBLEMATIQUE

Les résultats exposés ci-dessus montrent que l'interprétation des variations au cours du temps de la radioactivité artificielle des particules dans la Loire fluviale peut s'avérer délicate en raison de phénomènes de mélange avec des stocks sédimentaires anciens, contaminés au non. Tout processus de stockage ou de rétention des apports sédimentaires est susceptible d'une part de réduire la contamination à la suite de la décroissance radioactive et d'autre part de provoquer des échanges entre les phases labiles adsorbées et la phase dissoute (par exemple à la suite de cinétiques lentes de dégradation d'un support organique, etc). Plus généralement, ceci affecte certainement aussi la fraction labile des micro-polluants stables à forte affinité particulaire.

Ces problèmes peuvent se rencontrer dans la Loire fluviale, mais sont probablement d'une intensité accrue dans la zone estuarienne, et ceci dès la "zone dynamique amont" (la zone d'eau douce à l'amont du front salin). La zone estuarienne se comporte comme un filtre potentiel entre le fleuve et la mer, susceptible de ralentir le transit des polluants et de modifier leur distribution et leur réactivité. Il est donc important de tenter d'estimer les temps de résidence des matériaux sédimentaires, ce qui passe par l'estimation préalable des stocks massiques accumulés ou retenus.

Si les stocks sédimentaires en suspension peuvent être évalués par les méthodes sédimentologiques classiques, les quantités réelles de particules susceptibles d'interagir avec la colonne d'eau (qui incluent l'interface eau-sédiment) sont beaucoup plus difficiles à connaître. On présente ci-dessous une méthodologie

nouvelle, basée sur l'usage de traceurs radioactifs, qui peut s'avérer fructueuse dans ce type d'études.

4.2 METHODOLOGIE

4.2.1 CHOIX D'UN TRACEUR

L'idée de base est d'utiliser un radioélément comme marqueur chronologique grâce à sa période connue. Il faut aussi que ce traceur ne s'échange pas entre les phases particulières et dissoutes dans le système étudié. Le choix dépend tout d'abord du rapport entre sa période et l'échelle de temps à laquelle on veut travailler. Si on veut mettre en évidence des durées de l'ordre de l'année, la période doit être plus courte. Il faut en outre pouvoir déterminer les flux d'apports.

L'utilisation de certains émetteurs gamma artificiels introduits dans la Loire par les retombées des bombes pourrait être envisagée. Mais leur apport est un signal relativement "ponctuel" dont la propagation dans un estuaire à long temps de résidence est difficile à exploiter en raison d'un manque très probable d'équilibre du système. Il est beaucoup plus simple d'envisager l'utilisation d'un apport radioactif raisonnablement constant dans le temps (à l'échelle annuelle), de sorte qu'on pourra modéliser le système à l'équilibre (steady state). Ces contraintes imposent le choix d'un radioélément naturel, le ^7Be , comme traceur des transports sédimentaires estuariens. A la suite d'une modélisation prometteuse dans un autre estuaire macrotidal, la Gironde (Martin et al., 1986), cette méthode est appliquée ici au cas de la Loire.

4.2.2 MODELISATION

L'estuaire de la Loire est traité par un modèle en boîte unique bien mélangée et à l'équilibre, que l'on obtient en bouclant le bilan massique des sédiments et celui du ^7Be .

Le flux d'entrée des sédiments F_{e_s} , qui est l'apport solide fluvial, doit être égal au flux de sortie F_{s_s} , lequel représente la somme des pertes par sédimentation dans le système et du flux net d'échange à la limite aval de l'estuaire. Il n'est pas nécessaire de connaître la contribution relative de ces deux derniers termes de sortie.

Le bilan du marqueur, le ^7Be , est caractérisé par des concentrations fortes à l'entrée et plus faibles à la sortie en raison de sa courte période. Le flux d'entrée F_{e_m} est égal au flux de sortie F_{s_m} . F_{e_m} est la somme des apports fluviaux en ^7Be (dissous et particulaires) et de la retombée atmosphérique directe sur le système. F_{s_m} est le produit de la concentrations moyenne en ^7Be dans la zone turbide de l'estuaire (C_{t_m}) par le débit solide fluvial Q_s (on admet que le flux de sortie dissous est négligeable devant le flux de sortie particulaire). On doit donc supposer qu'il n'existe pas de flux net significatif de la mer vers l'estuaire. Dans ce cas, les pertes de ^7Be dans le système ne sont attribuées qu'à la décroissance radioactive :

$$F_{e_m} - F_{s_m} = \lambda M_m$$

où M_m est l'activité totale du marqueur (^7Be) présente dans la boîte et λ la constante radioactive. On calcule alors le stock (masse) de sédiment M_s dans la boîte :

$$M_s = M_m / Ct_m$$

Le temps de résidence des MES est alors :

$$\tau = M_s / Qs$$

En résumé, le modèle fournit :

$$\text{Le stock } M_s = (1/\lambda) \times ((Fe_m - Ct_m Qs) / Ct_m)$$

$$\text{Le temps de résidence } \tau = (1/\lambda) \times ((Fe_m / Ct_m Qs) - 1)$$

On peut remarquer que si, dans l'ensemble, une forte diminution des concentrations en ^7Be particulaire entre le fleuve et la zone turbide traduisent un temps de résidence élevé, celui-ci n'est pas pour autant nul si ces concentrations sont égales, en raison de la décroissance des apports dissous et atmosphériques.

La signification réelle du stock M_s n'est pas aussi simple qu'il le paraît. Ce stock (et le temps de résidence qui en découle) peut s'avérer supérieur à la masse de sédiment en suspension. Il peut y avoir deux raisons à un tel excès.

Tout d'abord, l'excès de masse (la différence entre le stock évalué par le ^7Be et celui évalué par les méthodes sédimentologiques classiques) peut résulter d'une insuffisance des estimations sédimentologiques qui ne peuvent que très difficilement quantifier le bilan sédimentaire à l'interface eau-sédiment. On constate souvent par exemple qu'un tel excès, une fois distribué sur toute la surface de l'estuaire, ne constitue qu'une couche dont l'épaisseur est d'ordre millimétrique, qui n'est évidemment pas échantillonnable. Dans ce cas, la modélisation par un radioélément présente le gros avantage d'intégrer les phénomènes de resuspension. Une autre source d'excès peut provenir de la fixation de ^7Be par les sédiments déposés eux-mêmes, de sorte que le stock sédimentaire obtenu est supérieur à la masse des sédiments physiquement en suspension.

Cet inconvénient apparent est en réalité un avantage dans le cadre d'une étude à finalité géochimique, car c'est précisément ce stock largo sensu qui est impliqué dans les échanges chimiques de polluants avec les particules présentes dans le système estuarien. Pour éviter des ambiguïtés, on le qualifiera de "stock réactif".

4.2.3 PARAMETRES UTILISES

Le système estuarien étant traité à l'équilibre, on admettra que les moyennes inter-annuelles utilisées sont représentatives de cet équilibre. Le système est défini comme la partie de l'estuaire où la fixation du ^7Be par les MES est maximale; c'est en principe la zone de résidence du bouchon vaseux. Pratiquement, au vu des observations in-situ, on admettra qu'il s'agit approximativement de la zone où la charge en MES dépasse 50-100 mg/l.

Les mesures du ^7Be en solution étant moins nombreuses que celles dans la phase particulaire, on estimera de préférence les concentrations dissoutes en fonction des concentrations dans les MES et du K_d de cet élément.

En l'absence de stations de mesure des retombées radioactives sur le bassin versant de la Loire, les apports atmosphériques seront évalués à partir des moyennes françaises. Une correction pluviométrique sera appliquée aux retombées à partir de comparaisons entre plusieurs stations pluviométriques du bassin versant durant la période d'étude.

Les débits solides de la Loire de 1953 à 1966 vont de 0.5 à 1.8 Mt/an, et pour 1980-1982 de 1.1 à 2.0 Mt/an. Pour un module de $26 \text{ km}^3/\text{an}$, la fourchette est de 0.7-1.2 Mt/an (CSEEL, 1984). Nous avons donc retenu la valeur de 1.0 Mt/an pour cette étude.

Dans les MES fluviales, les activités en ^7Be sont en moyenne de 5.4 pCi/g (de 4.9 en crue à 6.6 en étiage). Dans les zones turbides ($> 100 \text{ mg/l}$), elles sont en moyenne de 1.3 pCi/g, avec un net contraste entre les étiages (0.4 pCi/g, 5 mesures) et les crues (2.2 pCi/g, 7 mesures). Dans ce dernier cas, on constate une grande homogénéité des activités en ^7Be dans tout l'estuaire (à l'amont comme à l'aval du front salin), ce qui paraît cohérent avec le constat qu'une seule crue avec un débit autour de $5000 \text{ m}^3/\text{s}$ maintenu pendant une dizaine de jours peut apporter jusqu'à 0.5 Mt de sédiment (CSEEL, 1984).

Si on admet pour l'extension de la zone turbide une situation intermédiaire entre une extension minimale de Nantes à St. Nazaire en étiage (soit 60 km^2) et une extension maximale incluant une zone externe atteignant une ligne St. Gildas - Chemoulin (150 km^2), la surface de la zone turbide est d'environ 100 km^2 en moyenne.

On a adopté pour le K_d du ^7Be une valeur moyenne de 40000, dont on ignore les variations éventuelles entre crue et étiage.

Le dépôt atmosphérique est calculé à partir des précipitations moyennes qui avoisinent 846 mm/an et de la concentration totale moyenne en ^7Be dans les précipitations françaises de 36 pCi/l.

4.3 RESULTATS

Ils sont reportés table 2. L'interprétation à l'équilibre est délicate en raison de la disparité des concentrations en ^7Be particulaire entre crue et étiage. En crue (Avril 1979 et Mai 1983), les turbidités sont assez constantes dans tout l'estuaire ($30-100 \text{ mg/l}$), tandis qu'en étiage (Juin 1982) et pour des débits moyens (Octobre 1980) un bouchon vaseux atteignant $200-1400 \text{ mg/l}$ en surface est bien individualisé dans le bas-estuaire (il manque des données pour la crème de vase).

4.3.1 POUR DES CONDITIONS MOYENNES

Pour une situation "moyenne", le stock de sédiments réactifs serait de 1.7 Mt d'où, avec un apport solide de 1 Mt, un temps de résidence moyen de 1.7 ans.

Les évaluations de la quantité de vase en suspension obtenues par le Port Autonome de Nantes oscillent entre 0.5 et 1.0 Mt entre les pK 0 (St. Nazaire) et 45 (CSEEL, 1984), et ne varieraient que peu avec le débit (B. Galenne, comm. pers.); les MES plus à l'amont ne sont pas prises en compte et le rôle des vasières latérales reste mal défini.

Les dragages se répartissent entre la zone amont (20-25 % à Nantes au pK 55) et la zone aval (20 % au pK 15-10 et 50-55 % au pK 10-0). Ils comprennent $2.2 \cdot 10^6 \text{ m}^3$ enlevés par des dragues à godets, et $2.3 \cdot 10^6 \text{ m}^3$ dragués "à l'américaine" et donc en partie recyclés. Ceci équivaut à 1.1 Mt réellement ôtées du système, sans compter les dragages à l'américaine dont la contribution effective est difficile à évaluer.

Les masses draguées sont donc sensiblement supérieures aux estimations sédimentologiques, mais se rapprochent du stock réactif estimé par le ^7Be .

Les principales erreurs d'estimation du modèle ne proviennent pas de l'apport atmosphérique (3.0 Ci/an) qui reste faible devant les apports fluviaux (5.4 et 3.5 Ci/an pour les apports particuliers et dissous respectivement) en raison de la surface modeste de l'estuaire. Cependant, une erreur de $\pm 30 \%$ sur la concentration particulaire fluviale ne ferait varier le temps de résidence que de 1.3 à 2.1 ans, au lieu de 1.7, avec un stock de 2.1 à 1.3 Mt. Toutefois, un apport de ^7Be marin ne peut être écarté; faute de mesures ad hoc, ce point ne peut être précisé. Il en résulterait un temps de résidence plus élevé; à titre d'exemple, une estimation assez arbitraire d'un apport de 10 Ci/an donnerait un temps de résidence de 3.3 ans.

L'incertitude qui résulte du débit solide moyen n'est pas considérable; pour une variation de 0.7 à 1.2 Mt/an, le temps de résidence ne varie que de 2.2 à 1.5 ans (et le stock réactif de 1.9 à 1.5 Mt).

4.3.2 CAS DES ETIAGES ET DES CRUES

La principale erreur d'estimation provient de l'activité en ^7Be dans la zone turbide dont on a vu ci-dessus qu'elle variait sensiblement entre crue et étiage. Il faudrait analyser séparément ces conditions hydrologiques, mais cela pose le problème de l'établissement de l'équilibre (sur lequel le modèle est basé) dans ces conditions. A titre d'essai, on a traité séparément les données de 4 campagnes d'échantillonnage. Les apports solides ont été évalués d'après les débits liquides moyens durant chaque campagne. La surface de la zone turbide en étiage a été limitée à l'estuaire interne; le panache turbide externe a été ajouté dans les autres cas. Les précipitations ont été ajustées d'après celles des deux mois précédant les campagnes.

Les stocks réactifs ainsi estimés sont de 1.0-3.3 Mt en étiage et débit moyen, et de 3.0-4.1 Mt lors des fortes crues. Les temps de résidence correspondants seraient de 3-6 ans en étiage et débit moyen, mais seulement de 0.3-0.6 ans en crue.

A première vue, ces résultats paraissent concevables, mais en fait ils invalident dans ce cas la méthode puisque les "temps de résidence" obtenus restent supérieurs aux durées des événements hydrologiques qu'ils sont censés caractériser. En d'autres termes, chaque épisode hydrologique hérite quelque chose des cycles qui l'ont précédé.

4.4 COMPARAISON AVEC LES RADIOELEMENTS ARTIFICIELS

Les rejets liquides des centrales à l'amont de l'estuaire peuvent à leur tour fournir quelques indications sur le renouvellement des sédiments dans l'estuaire.

Les rapports d'activité $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ et $^{58}\text{Co}/^{60}\text{Co}$ dans les MES à l'entrée de l'estuaire à Montjean sont respectivement de 0.05-0.15 et 0.3-4.0. A part le ^{137}Cs , on ne peut pas suivre ces radioéléments plus en aval dans les zones turbides. Encore qu'un calcul précis soit impossible, cette diminution d'activité des radioéléments de courte période (^{134}Cs : 2 ans; ^{58}Co : 71 jours) est cohérente avec un temps de résidence se chiffrant en mois ou plutôt en années.

En Mars 1980, du ^{238}Pu est parvenu dans la Loire fluviale à la suite d'un accident nucléaire (cf. ci-dessus). Sept mois après (Octobre 1980), les MES prélevées à l'amont de l'estuaire (à Montjean et Mauves) présentent des rapports $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ nettement anormaux (0.28 et 0.59) hérités de cet accident. Dans le bouchon vaseux bien marqué dans la zone de l'embouchure, ces rapports sont de 0.02-0.08, c'est-à-dire dans la fourchette des rapports atmosphériques, sans qu'un impact industriel soit surement décelable. Il en est de même en 1982 et 1983. Donc, si des apports sédimentaires "enrichis" en ^{238}Pu (qui ont probablement duré plusieurs mois) n'ont pas laissé de traces mesurables dans le bouchon vaseux de la Loire, c'est qu'ils s'y sont mélangée avec un stock important et plus ancien, donc non contaminé.

Ces quelques remarques, si elles ne permettent pas de quantifier directement les temps de résidence des sédiments, paraissent toutefois bien cohérentes avec les résultats du modèle du ^7Be et un temps de résidence des MES effectivement long.

5. REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

Ballestra S., Holm E. & Fukai R., 1979. Low-level determination of transuranic elements in marine environmental samples. In : "Radioactivity in the sea Series, n° 66, IAEA, Vienna, 1-8.

Bidard F. & Bardin B., 1987. Exploitation des centrales nucléaires et environnement : le secteur eau. Rev. Générale Nucl., 1, 24-32.

CSEEL, 1973. Rapport final du Comité Scientifique pour l'Environnement de l'Estuaire de la Loire. Rapp. Sci. Techn. CNEXO n° 55, 1-158.

Delcroix G. & Philippot J.C., 1973. Neutron activation analysis by the monostandard method. J. Radioanal. Chem., 15, 87-101.

Duursma E.K., Frissel M.J., Guary J.C., Martin J.M., Nieuwenhuize J., Pennders R.M.J. & Thomas A.J., 1985. Plutonium in sediments and mussels of the Rhine-Meuse-Scheldt estuary. Proc. seminar "On the behaviour of radionuclides in estuaries", Renesse, Netherlands, 17-21 Sept. 1984, (CEC Luxembourg n° XII/380/85-EN) p. 71-106.

Elbaz-Poulichet F., Huang W.W., Jednacak-Biskan J., Martin J.M. & Thimas A.J., 1982. Trace metals behaviour in the Gironde estuary : the problem revisited. *Thalassia Jugoslavica*, 18, 61-95.

Jeandel C., Martin J.M. & Thomas A.J., 1981a. Les radionucléides artificiels dns les estuaires français. In : "Impact of radionuclides releases into the marine environment", IAEA, Vienna, SM-248/123, p. 15-32

Jeandel C., Martin J.M. & Thomas A.J., 1981b. Plutonium and other artificial radionuclides in the Seine estuary and adjacent areas. In : "Techniques for identifying transuranic speciation in aquatic environments", IAEA, Vienna, p. 89-102

Koide M., Lee D.S., & Goldberg E.D., 1982. Metal and transuranic records in mussel shells, byssal threads and tissues. *Est. Coastal Shelf Sci.*, 15, 679-695.

Linsalata P., McDonald E.W., Cohen N. & Singh N.P., 1980. ²³⁹⁻²⁴⁰Pu and ²³⁸Pu in sediments of the Hudson river estuary. *Environ. Sci. Technol.*, 14, 1519-1523.

Martin J.J., 1978. Contrôle des rejets d'effluents gazeux et liquides dans les centrales nucléaires françaises. In "Monitoring of radioactive effluents from nuclear facilities", IAEA, Vienna, SM-217/12, p. 479-490.

Martin J.M. & Thomas A.J., 1989. Contamination radioactive de l'environnement par l'industrie Nucléaire. *Acces du coll. "Nucléaire, santé, sécurité"*, Montauban, Janv. 1988, p. 347-381.

Talvitie N.A., 1971. Radiochemical determination of plutonium in environmental and biological samples by ion exchange. *Anal. Chem.*, 43, 1827-1830.

Talvitie N.A., 1972. Electrodeposition of actinides for alpha spectrometric determination. *Anal. Chem.*, 44, 280-283.

Thomas A.J. & Martin J.M., 1982. Chemical composition of river suspended sediment : Yangtse, Mackenzie, Indus, Orinoco, Parana and French rivers. *Mitt. Geol.-Paläont. Inst. Univ. Hamburg*, SCOPE-UNEP Sonderband, 52, 555-564.

Wong K.J., 1971. Radiochemical determinations of plutonium in seawater, sediments and organisms. *Anal. Chem.*, 56, 355-364.

Young J.A. & Silker W.B., 1980. Aerosol deposition velocities on the Pacific and Atlantic oceans calculated from ⁷Be measurements. *Earth Pl. Sci. Letters*, 50, 92-104.

Table 1.

Isotopes du Cs et du Pu dans les MES de la Loire fluviale

et valeurs comparatives en Garonne (dépourvue d'industrie nucléaire)

	Garonne	Loire amont Cosne	Loire à l'aval des centrales				
	1978-84	4/1983	Ancenis 4/1979	Montjean 10/1980	Mauves 10/1980	Montjean 6/1982	Montjean 1/1983
Distance embouchure (km)		562	93	119	73	119	119
Débit liquide (m ³ /s)			3600	525	650	320	1390
Charge en MES (mg/l)		41	47	50	58	32	23
Plutonium							
Pu-239+240 (fCi/g)		4.6 ± 0.3	8.4 ± 1.0	24.8 ± 1.8	21.8 ± 0.6	7.5 ± 0.7	9.5 ± 0.4
Pu-238/Pu-239+240		0.035 ± 0.013	nd	0.28 ± 0.05	0.59 ± 0.03	0.10 ± 0.05	<= 7.4
Pu-239+240/Al (fCi/g Al)	68 ± 17	91 ± 6	114 ± 14	392 ± 28	334 ± 9	248 ± 23	121 ± 5
Pu-239+240/Be-7	0.0012	0.0015 ± 0.0001	0.0016 ± 0.0003	0.0031 ± 0.0004	0.0061 ± 0.0008	0.0014 ± 0.0002	-
Césium							
Cs-137 (pCi/g)		0.38 ± 0.02	1.07 ± 0.05	1.50 ± 0.05	1.67 ± 0.07	0.46 ± 0.03	-
Cs-134/Cs-137		nd < 0.016	0.065 ± 0.033	0.10 ± 0.02	0.10 ± 0.02	0.035 ± 0.028	
Cs-137/Al (pCi/g Al)	5.3 ± 0.9	7.6 ± 0.4	14.6 ± 0.7	23.7 ± 0.8	25.6 ± 1.1	15.2 ± 1.0	
Cs-137/Be-7	0.10 ± 0.03	0.126 ± 0.010	0.200 ± 0.024	0.190 ± 0.020	0.470 ± 0.064	0.087 ± 0.010	
Bilan du Pu							
% de Pu-239+240 industr. (Fi)							
d'après Pu/Al			<= 20	77	73	63	<= 25
d'après Pu/Be-7			<= 6	52	75	0	
Pu-238/Pu-239+240 rejets (Ri)							
d'après Pu/Al			-	0.35	0.80	0.14	-
d'après Pu/Be-7			-	0.51	0.78	-	
Bilan du Cs							
% de Cs-137 industr. (Fi)							
d'après Cs/Al			48	68	70	50	-
d'après Cs/Be-7			37	34	73	0	
Cs-134/Cs-137 rejets (Ri)							
d'après Cs/Al			0.14	0.15	0.14	0	
d'après Cs/Be-7			0.18	0.29	0.14	0	

Table 1. (suite)

	Loire à l'aval des centrales			
	Chalonne 1/1983	Montjean 4/1983	Montjean 5/1983	Mauves 5/1983
Distance embouchure (km)	127	119	119	73
Débit liquide (m ³ /s)		2500	4200	3650
Charge en MES (mg/l)	-	22	26	30
Plutonium				
Pu-239+240 (fCi/g)	7.9 +- 0.8	10.1 +- 0.9	7.0 +- 0.4	6.5 +- 0.4
Pu-238/Pu-239+240	<= 17	0.10 +- 0.03	0.11 +- 0.02	0.038 +- 0.010
Pu-239+240/Al (fCi/g Al)	107 +- 11	153 +- 14	80 +- 5	83 +- 5
Pu-239+240/Be-7	-	0.0026 +- 0.0004	0.0015 +- 0.0001	0.0018 +- 0.0003
Césium				
Cs-137 (pCi/g)	-	0.76 +- 0.04	0.88 +- 0.04	0.71 +- 0.05
Cs-134/Cs-137		<= 0.067 +- 0.019	0.050 +- 0.015	< 10.6 +- 3.0
Cs-137/Al (pCi/g Al)		11.6 +- 0.6	10.0 +- 0.5	9.0 +- 0.6
Cs-137/Be-7		0.200 +- 0.024	0.193 +- 0.018	0.200 +- 0.030
Bilan du Pu				
% de Pu-239+240 industr. (Fi) d'après Pu/Al	<= 15	40	0	0
d'après Pu/Be-7		42	0	0
Pu-238/Pu-239+240 rejets (Ri) d'après Pu/Al	-	0.20	-	-
d'après Pu/Be-7		0.19	-	-
Bilan du Cs				
% de Cs-137 industr. (Fi) d'après Cs/Al	-	34	24	15
d'après Cs/Be-7		37	35	37
Cs-134/Cs-137 rejets (Ri) d'après Cs/Al		<= 0.20	0.21	-
d'après Cs/Be-7		<= 0.18	0.29	< 0.30

Table 2.

Bilan du Be-7 dans l'estuaire de la Loire (1979-1983)

(1 pCi = 37 mBq)

		Bilan	étiage 1982	moyen 1980	crue 1979	crue 1983
Conc. MES fleuve	pCi/g	5.4	5.3	5.74	5.35	4.54
Conc. MES estuaire	pCi/g	1.3	1	0.73	2.27	2.82
Coef. distrib. Kd	l/kg	40000	40000	40000	40000	40000
Conc. Cm pluie	pCi/l	36	36	36	36	36
Débit solide Qs	Mt/an	1	0.35	0.54	7	10
Débit liquide Ql	km ³ /an	26	10.1	16.6	114	132
Surface précipitations	km ² mm/an	100 846	70 780	150 828	150 1370	150 1460
Flux particulaire	Ci/an	5.4	1.9	3.1	37.5	45.4
Flux dissous	Ci/an	3.5	1.3	2.4	15.2	15.0
Flux atmosphérique	Ci/an	3.0	2.0	4.5	7.4	7.9
FLUX D'ENTREE	Ci/an	11.96	5.16	9.95	60.1	68.3
FLUX DE SORTIE	Ci/an	1.3	0.35	0.39	15.9	28.2
Stock réactif	Mt	1.7	1.0	2.7	4.1	3.0
Temps de résidence	années	1.7	2.9	5.1	0.6	0.3

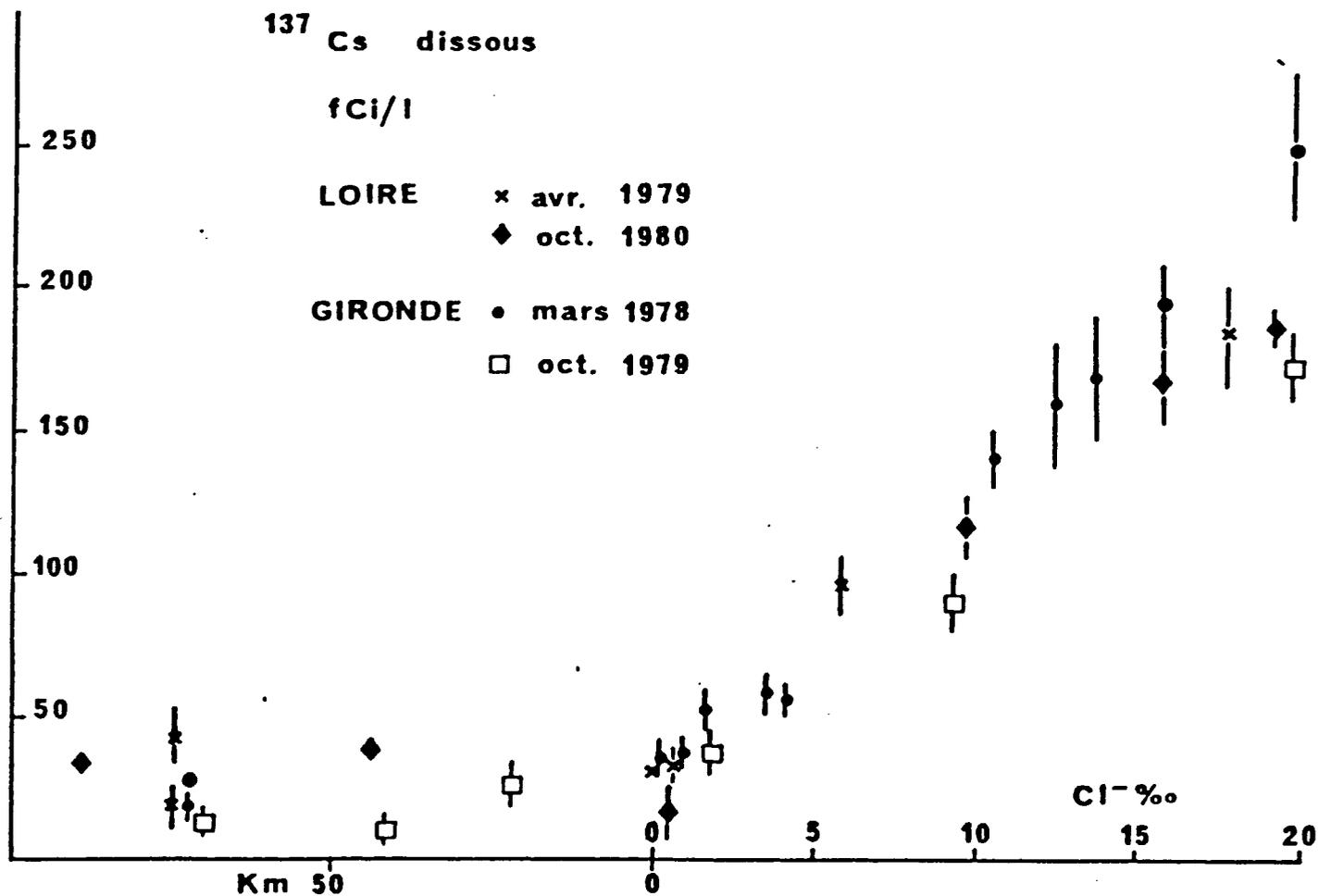


fig. I : Concentrations en Cs-137 dissous dans la Garonne et la Loire, et dans leurs estuaires

LOIRE FLUVIALE: 1980-1983

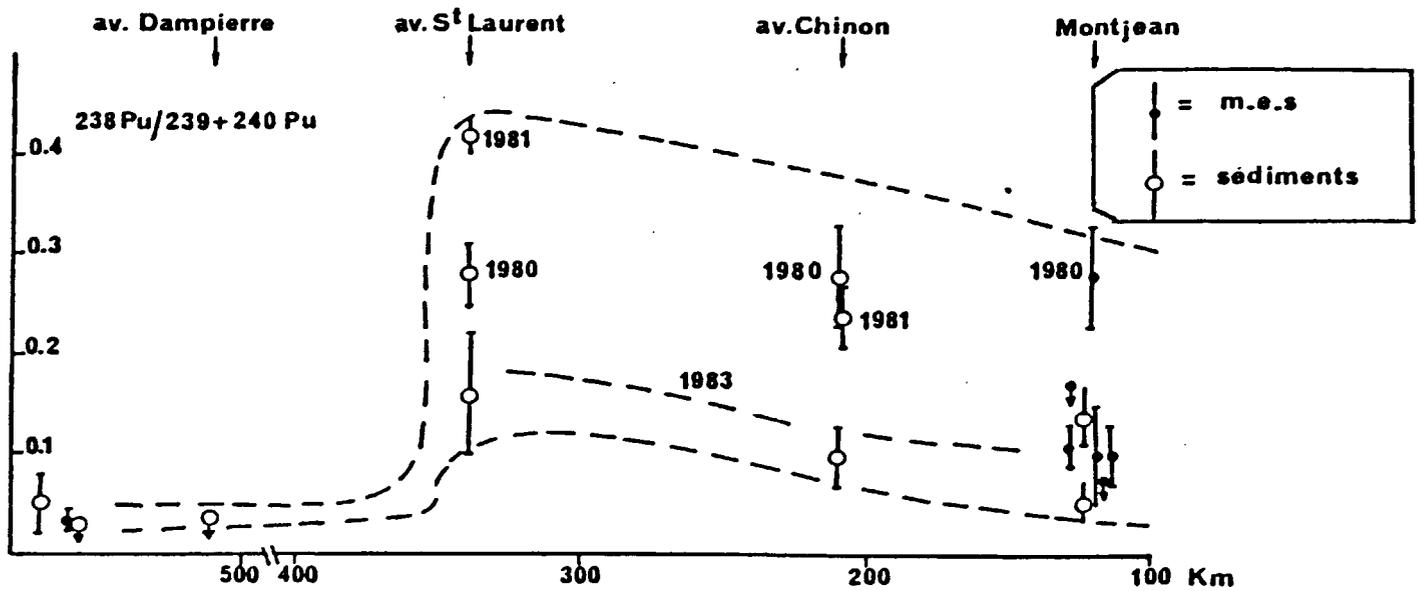


fig. II. : Composition isotopique du plutonium dans les sédiments et suspensions de la Loire fluviale (1980-1983)

LOIRE FLUVIALE 1980-1983

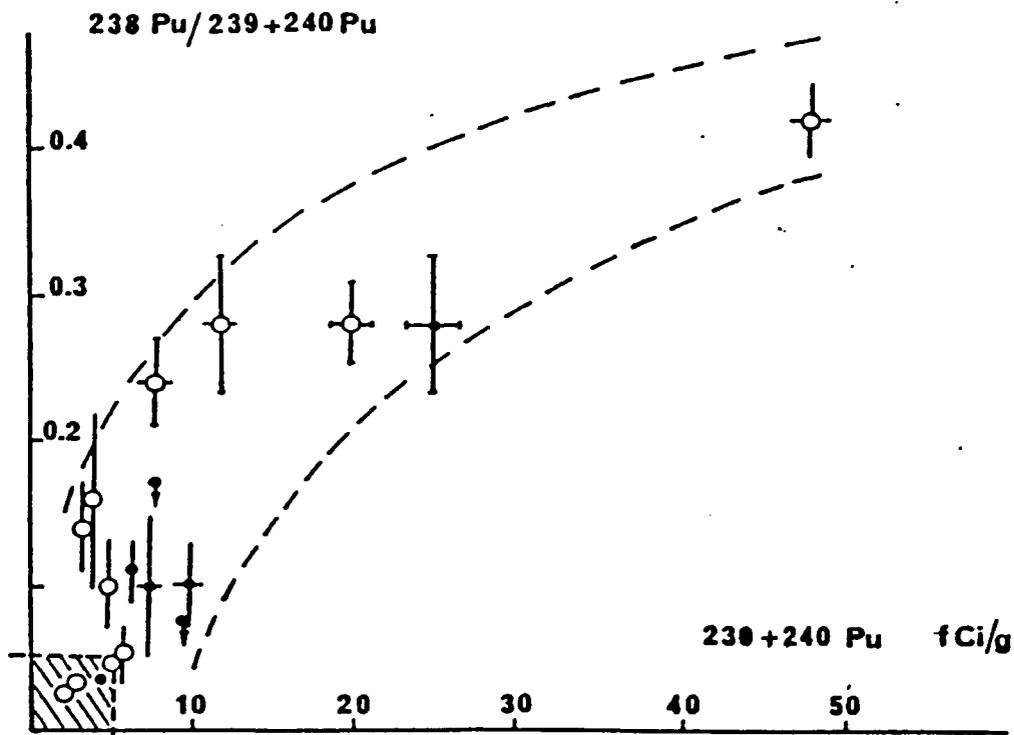
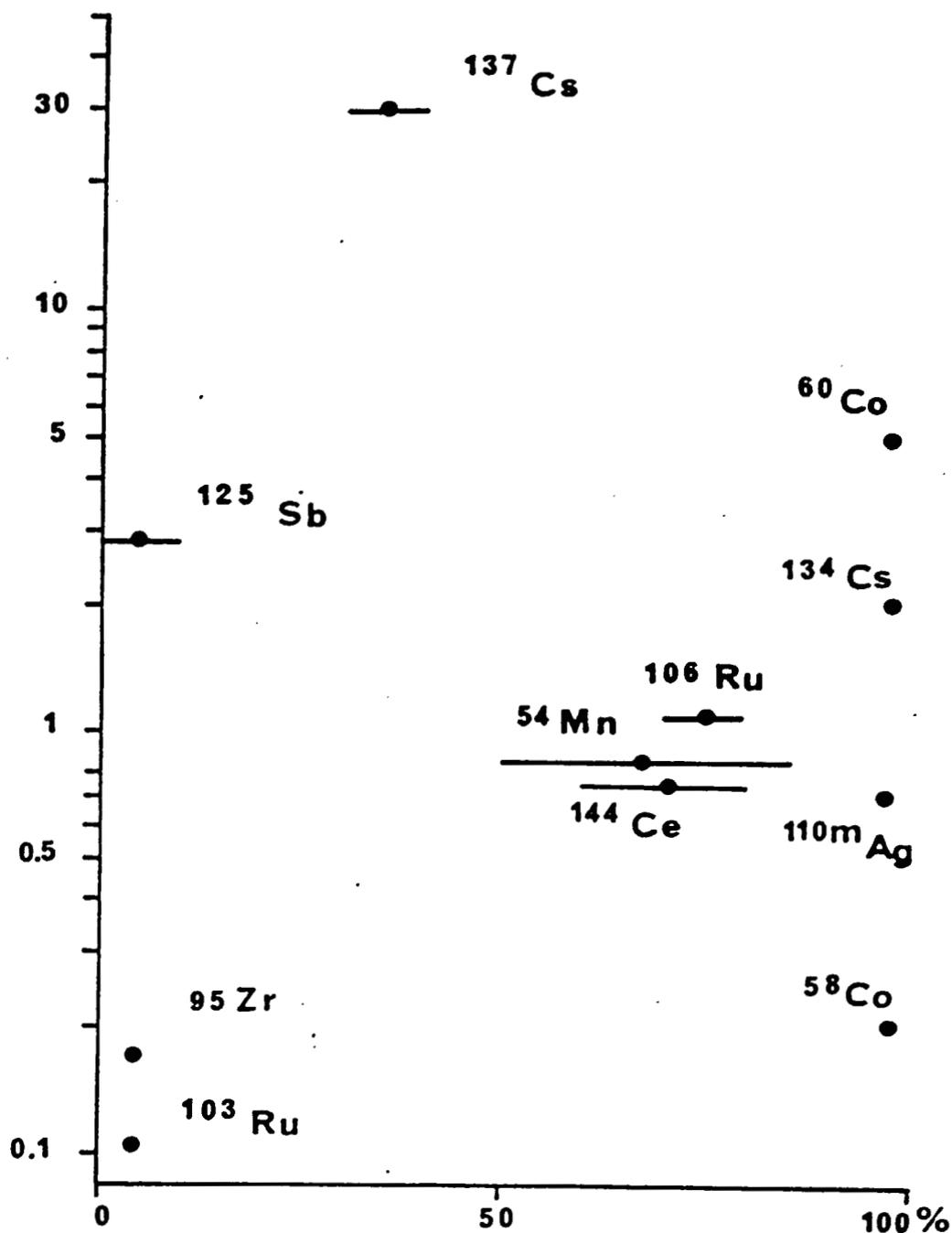


fig. III : Concentrations en Pu-239+240 et rapports isotopiques dans la Loire

PERIODE (ans)



APPORTS EN SUSPENSION DE LA LOIRE A
MONTJEAN: % D'ORIGINE INDUSTRIELLE
(10.1980 - 5.1983)

fig. IV : Evaluation de l'origine des émetteurs gamma artificiels dans les suspensions de la Loire fluviale

ISOTOPES DU CESIUM

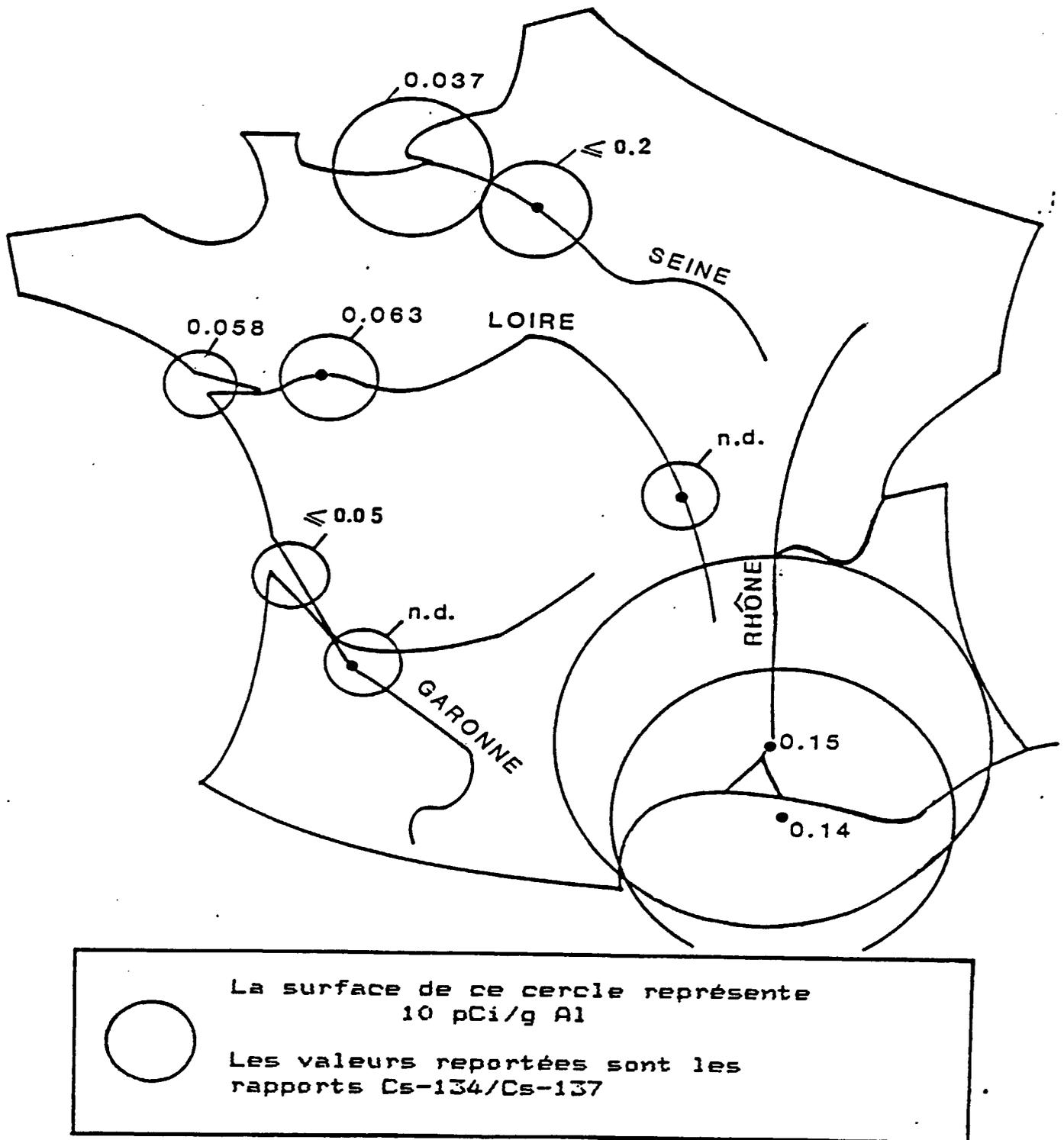


fig. V : Isotopes du césium dans les matières en suspension des fleuves et estuaires français

ISOTOPES DU PLUTONIUM

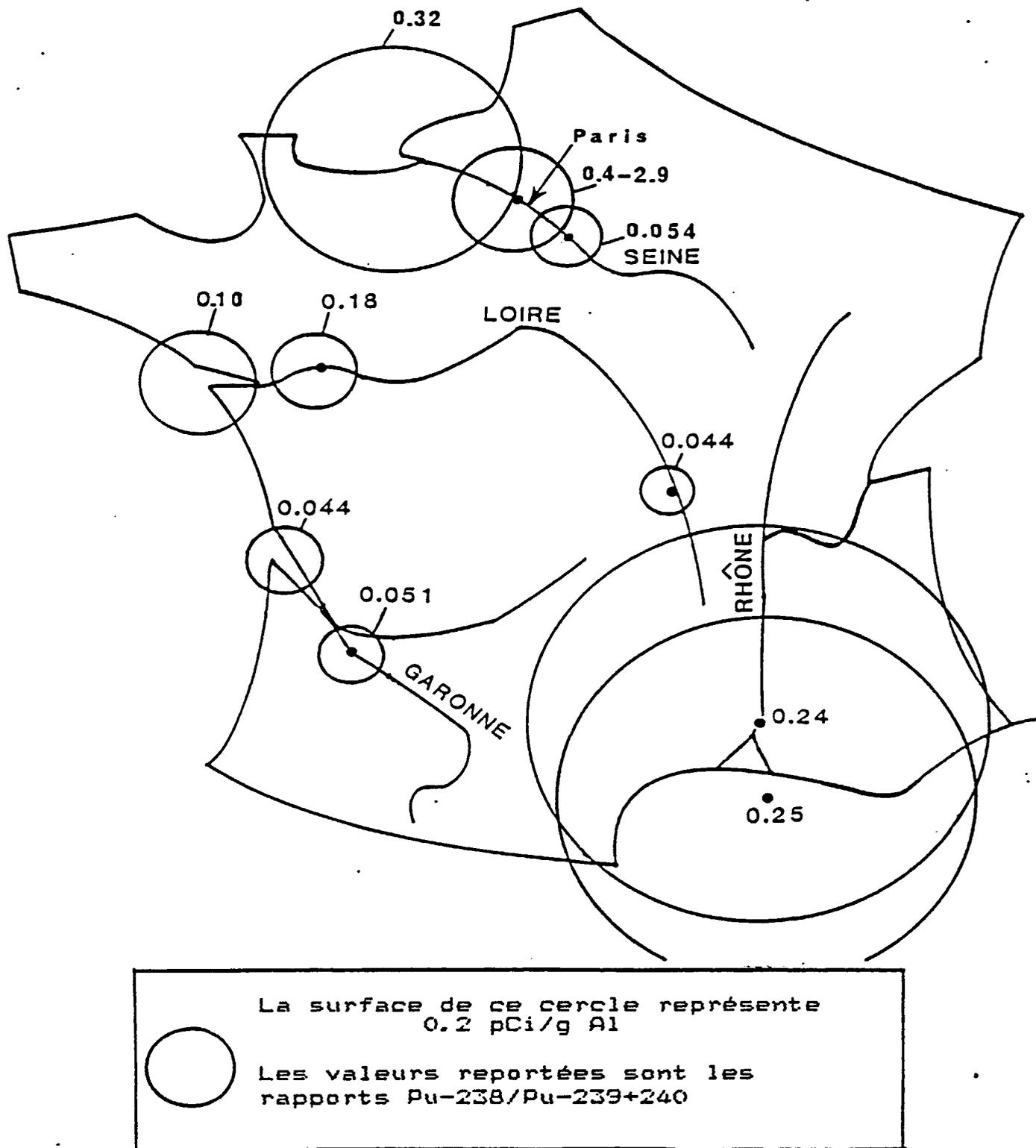


fig. VI. : Isotopes du plutonium dans les matières en suspension des fleuves et estuaires français