

# Aspects temporels de l'impact de rejets radioactifs, effectués en mer, sur les eaux d'une station littorale de la Manche

Manche  
Eaux littorales  
Radioactivité  
Transferts  
Analyse temporelle

Channel  
Coastal waters,  
Radioactivity  
Mass transfer  
Time-series analysis

Albert FRAIZIER <sup>a</sup>, Pierre GUEGUENIAT <sup>a</sup> et Jean-Claude SALOMON <sup>b</sup>

<sup>a</sup> Unité de Radioécologie «Estuaires et Milieu Marin», Institut de Protection et de Sécurité Nucléaire (CEA), 50444 Beaumont-Hague Cedex, France.

<sup>b</sup> Institut Français de Recherche pour l'Exploitation de la Mer (IFREMER), Centre de Brest, B.P. 70, 29280 Plouzané, France.

Reçu le 13/06/91, révisé le 13/11/91, accepté le 19/11/91.

## RÉSUMÉ

L'élimination en mer des effluents liquides de l'usine de La Hague (CEA/Cogema), qui traite des combustibles irradiés, modifie dans l'espace et le temps la radioactivité des eaux marines. Les fluctuations de cette radioactivité, qui sont régies par de nombreux paramètres (intensité, fréquence et heure des rejets, régime hydrodynamique des eaux régionales, conditions météorologiques locales, *etc.*) ont été étudiées, en particulier, pour une station littorale située à environ 5 km du point de rejet.

L'impact global des rejets sur la radioactivité des eaux, qui est la résultante de l'intervention de ces divers paramètres a été déterminé en s'appuyant sur de nombreuses données obtenues de 1985 à 1989. Il exprime la radioactivité des eaux en (x) Bq.l<sup>-1</sup> pour un rejet standard de 1 Bq.j<sup>-1</sup>.

Cette valeur globale peut être considérée comme satisfaisante en tant qu'élément d'appréciation de la dispersion générale des effluents et de la qualité de l'environnement, mais elle n'est cependant pas toujours rigoureusement adéquate pour l'interprétation radioécologique de phénomènes se produisant à un moment précis.

L'étude menée a montré que l'effet des rejets sur la radioactivité des eaux pouvait se manifester en plusieurs phases. Deux de celles-ci ont été identifiées : une première, à court terme (de l'ordre de deux semaines après l'émission dans le milieu), une seconde, nettement différée, processus pouvant être associé aux mouvements des masses d'eau se produisant sur une période étendue.

L'impact observé pour le court terme ( $< 10^{-13}$  Bq.l<sup>-1</sup> par Bq.j<sup>-1</sup> rejeté) correspond sensiblement aux résultats des études prévisionnelles menées préalablement à la mise en service de l'usine, à l'aide de colorants. Par contre, l'impact à longue échéance, dont la contribution est d'autant plus accentuée que la durée de vie du radionucléide est importante (par exemple  $4 \times 10^{-13}$  Bq.l<sup>-1</sup> par Bq.j<sup>-1</sup>, pour le <sup>137</sup>Cs, de période radioactive égale à trente ans), peut se révéler notablement supérieur aux premières estimations.

Afin de mieux appréhender les mécanismes contrôlant l'impact différé, une meilleure connaissance du rôle des divers paramètres, notamment des recyclages de masses d'eau, à long terme, est nécessaire. Une formulation est proposée en vue d'établir une thématique de recherches appropriée.

*Oceanologica Acta*, 1992. **15**, 1, 75-85.

## ABSTRACT

## Time-dependent impact of seaward radioactive discharges on waters of one coastal station of the English Channel

The disposal at sea of liquid waste from the nuclear fuel reprocessing plant at La Hague (CEA/Cogema) causes modifications to the radioactivity of marine waters in both space and time. Fluctuations in this radioactivity are controlled by many different parameters; to study these parameters, samples were taken, in particular, from a coastal site situated 5 km from the outlet pipe.

The overall impact of these releases on the radioactivity of sea-water depends on various factors, including the amount and frequency of discharges, the hydrodynamic regime of water masses in the region and local meteorological conditions. In order to assess this impact, use is made of numerous samples collected over the period 1985-1989. The radioactivity of these waters is expressed in terms of the activity level (in  $\text{Bq.l}^{-1}$ ) normalized to a standard release rate of 1 Bq per day.

This overall value may be considered as a satisfactory indicator of the degree of effluent dispersal as well as the general quality of the environment. However, it is not always strictly applicable to the radioecological interpretation of phenomena which occur at a given moment in time.

The present study shows that the effect of discharges on sea-water radioactivity may manifest itself on several time-scales. Two different stages are identified here; the first is short-term in nature (of the order of two weeks after release into the environment), whereas the second is clearly delayed and associated with movements of water masses occurring over an extended period.

The impact observed on the short term ( $< 10^{-13} \text{ Bq.l}^{-1}$  per  $\text{Bq day}^{-1}$  discharges) is in close agreement with the forecasts made on the basis of tracer-dye studies before the construction of the plant. By contrast, the long-term impact may turn out to be greater than predicted; this effect is even more pronounced when the radionuclide under consideration has a long half-life (e. g.  $4 \times 10^{-13} \text{ Bq.l}^{-1}$  per  $\text{Bq day}^{-1}$  of  $^{137}\text{Cs}$  discharged; half-life: thirty years).

In order better to understand the mechanisms controlling the delayed environmental impact, it is necessary to establish the role of the different parameters involved, particularly the long-term recycling of water masses. An approach is proposed here with the object of drawing up a plan to conduct the required research.

*Oceanologica Acta*, 1992. **15**, 1, 75-85.

## INTRODUCTION

Afin d'étudier la dispersion en mer des effluents liquides de l'usine de La Hague (Cogema), qui traite les combustibles irradiés, des examens de la radioactivité des eaux sont régulièrement pratiqués. Ils concernent les proche, moyen et lointain environnements du site industriel. Ils ont déjà permis de définir les processus de transferts en Manche, dont les grandes lignes ont été exposées (Guéguéniat *et al.*, 1988 ; Salomon *et al.*, 1991). Résumées brièvement, les conclusions de ces auteurs indiquent que ces processus entraînent globalement la dispersion et la dilution de la majeure partie des effluents rejetés en Manche orientale, puis en mer du Nord, *via* le Pas-de-Calais. Une fraction de ceux-ci peut toutefois migrer vers le sud de la Manche (baie du Mont-St-Michel), conséquence de l'alternance des courants de marée.

Dans ce travail, nous porterons l'attention sur le proche environnement. Nous nous proposons, en particulier,

d'affiner le bilan d'impact des rejets sur la radioactivité des eaux littorales et, ce faisant, de vérifier concrètement le modèle prévisionnel établi antérieurement à la mise en service de l'usine.

Cet impact s'exprime, par convention, en ( $x$ ) Becquerel par litre ( $\text{Bq.l}^{-1}$ ) pour un rejet standard de 1 Becquerel par jour ( $\text{Bq.j}^{-1}$ ). La validité des calculs qui seront réalisés est subordonnée à l'emploi de données répondant à cette relation de cause à effet. Nous nous attacherons à remplir cette condition en apportant au besoin les ajustements nécessaires.

En complément, une recherche d'explication des phénomènes constatés sera faite, en se référant à des données récentes, obtenues sur le régime hydrologique régional.

## MATÉRIEL ET MÉTHODES

Le positionnement de la station d'observation a été choisi pour faciliter la comparaison de nos résultats avec ceux

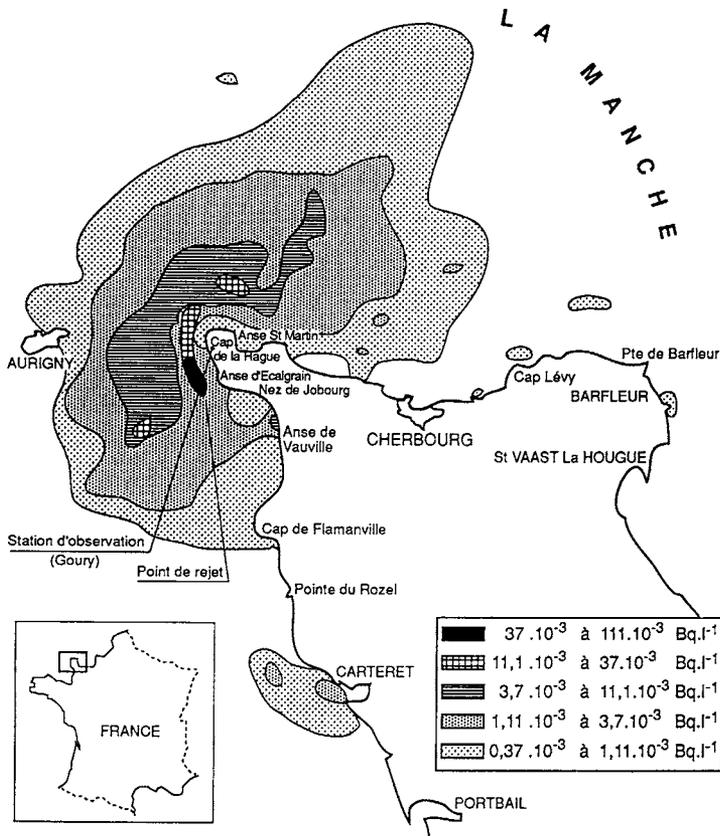


Figure 1

Positionnement de la station d'observation des eaux littorales de Goury et résultats de l'étude prévisionnelle d'impact (carte des concentrations moyennes pour un rejet de  $3,7 \times 10^{10}$  Bq.j<sup>-1</sup>, d'après Lapicque, 1974).

*Location of the coastal waters observation station at Goury, with results of the preliminary impact assessment (map of mean activity levels normalized to a discharge rate of  $3,7 \times 10^{10}$  Bq day<sup>-1</sup>, from Lapicque, 1974).*

obtenus lors des études prévisionnelles de dispersion des effluents, conduites à l'aide d'un colorant (Rhodamine) (Lapicque, 1974 ; Ancellin *et al.*, 1979). L'emplacement retenu - Goury - est grossièrement centré sur la carte d'iso-concentration, en radionucléides, qui avait été extrapolée de ces études. Il est éloigné d'environ 5 km de l'émissaire de rejet des effluents (fig. 1).

Selon le modèle présenté, la station se situe dans une zone où la radioactivité prévisible des eaux serait comprise entre  $0,37 \times 10^{-3}$  et  $1,11 \times 10^{-3}$  Bq.l<sup>-1</sup> pour un rejet standard de  $3,7 \times 10^{10}$  Bq.j<sup>-1</sup> d'un radionucléide quelconque - soit un impact compris entre  $0,1$  et  $0,3 \times 10^{-13}$  (Bq.l<sup>-1</sup> par Bq.j<sup>-1</sup> rejeté). En fait, des examens réalisés ultérieurement par l'un des auteurs de ce travail, au large du cap de La Hague, placent plutôt la station dans un secteur où la radioactivité des eaux, résultant de ce rejet standard, serait de  $11,1 \cdot 10^{-3}$  Bq.l<sup>-1</sup>, correspondant à un impact de  $3 \times 10^{-13}$  Bq.l<sup>-1</sup> par Bq.j<sup>-1</sup>.

Cet auteur avait proposé, en conséquence, une réactualisation du schéma de dispersion. Ce schéma (fig. 2) indique que la zone des concentrations comprises entre  $3,7 \times 10^{-3}$  et  $11,1 \times 10^{-3}$  Bq.l<sup>-1</sup> pour  $3,7 \times 10^{10}$  Bq.j<sup>-1</sup> rejetés, représentée figure 1, englobe en réalité la fraction du littoral où ont été effectués les échantillonnages d'eau de mer.

Ces échantillonnages ont porté sur 120 litres prélevés, à quelques exceptions près, chaque semaine, à marée haute, en surface, sur le littoral. Les échantillons ont subi un traitement, à pH 3,5 par le bioxyde de manganèse et le ferrocyanure de cobalt-potassium, en vue d'obtenir un précipité renfermant les radionucléides en présence. La méthode a été décrite par Guéguéniat *et al.* (1988). La radioactivité  $\gamma$  de ce précipité a été ensuite mesurée au Groupe d'Études Atomiques de la Marine Nationale. Les ensembles de spectrométrie utilisés (type GeLi, IN 90) sont périodiquement étalonnés à l'aide de sources tests fournies par le LMRI (Laboratoire de Métrologie des Rayonnements Ionisants - CEA/ORIS/Bureau National de métrologie).

Nous avons principalement utilisé pour ce travail les résultats se rapportant aux <sup>125</sup>Sb et <sup>106</sup>Ru-<sup>106</sup>Rh. Pour ces radionucléides, les plus représentés dans les effluents, les erreurs de mesure étaient inférieures à 15 %. Des données obtenues pour les <sup>60</sup>Co et <sup>137</sup>Cs, avec une moindre précision (15 % <  $\sigma$  < 50 %), ont pu être également employées, à titre complémentaire. Nous avons estimé qu'il n'était pas nécessaire de faire de distinction entre formes solubles et insolubles des <sup>125</sup>Sb et <sup>106</sup>Ru-<sup>106</sup>Rh, et

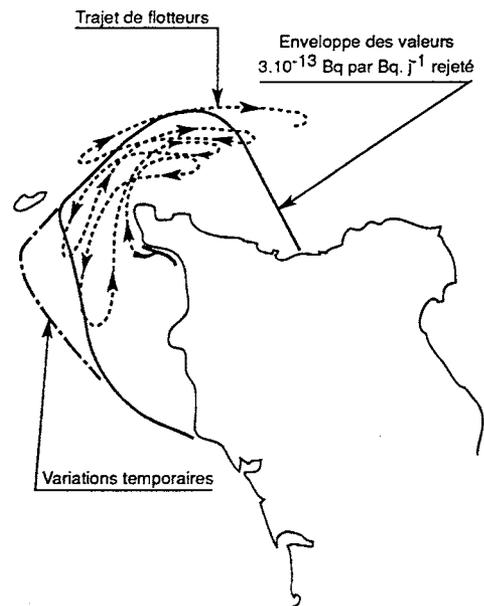


Figure 2

Comparaison de la trajectoire de bouées lâchées au point de rejet avec l'enveloppe des courbes d'iso-concentration  $3 \times 10^{-13}$  Bq.l<sup>-1</sup> par Bq.j<sup>-1</sup> rejeté (campagnes N.O. Pluteus 1983 à 1987). Les flotteurs avaient été déposés en mer, au point prévu pour l'émission des effluents, aux périodes du cycle de marée considérées comme les plus favorables pour la dispersion. Ces dernières avaient été préalablement déterminées en simulation sur maquette au laboratoire d'hydraulique de Chatou et au laboratoire de mécanique des fluides de Grenoble (d'après Ancellin *et al.*, 1979).

*Comparison of the trajectories of buoys released from the waste outlet pipe with iso-activity contour for  $3 \times 10^{-13}$  Bq.l<sup>-1</sup> per Bq day<sup>-1</sup> discharged (N.O. Pluteus cruises from 1983 to 1987). Buoys were released into the sea, at the point provided for the waste outlet pipe, during the best tide periods for dispersion. This point was determined in advance by model simulation in the Chatou Hydraulic Laboratory and in the Fluid Mechanics Laboratory, Grenoble (from Ancellin *et al.*, 1979).*

par conséquent de filtrer les eaux, en routine. Des investigations préliminaires avaient en effet montré que ces radionucléides, issus des effluents, se présentent essentiellement sous formes solubles (99,8 et 98 %), même en présence d'une charge en matières en suspension exceptionnellement élevée pour le secteur étudié (36,5 mg.l<sup>-1</sup>).

Enfin, les informations sur les caractéristiques qualitative et quantitative des rejets (terme source) nous ont été communiquées par la Cogema. Ces rejets sont effectués aux heures considérées comme les plus propices pour la dispersion, eu égard aux force et direction du courant de marée, c'est-à-dire dans un intervalle de temps compris entre 1 heure et 2 heures et demi avant les pleines mers locales (port de Diélette).

Le pas de temps choisi pour l'observation des variations de la radioactivité des eaux, par rapport à celles des rejets, a été de sept jours. On retiendra donc que les valeurs citées pour la radioactivité de l'eau (Bq.l<sup>-1</sup>) correspondent à une valeur moyenne hebdomadaire et celle des rejets à la somme des rejets effectués pendant une semaine (Bq.7 j<sup>-1</sup>). L'ensemble des données porte sur la période s'étendant de 1985 à 1988, à laquelle s'ajoutent les neuf premiers mois de 1989. Au total pour les deux radionucléides c'est de l'ordre de 400 couples de données qui ont été comparés.

## RÉSULTATS

### Impact à court terme

#### *Délais d'apparition du signal spécifique d'un rejet*

Les quantités de radionucléides rejetées en mer (10<sup>11</sup> à quelques 10<sup>12</sup> Bq.7 j<sup>-1</sup> pour le <sup>125</sup>Sb et 10<sup>12</sup> à quelques 10<sup>13</sup> Bq.7 j<sup>-1</sup> pour le <sup>106</sup>Ru-<sup>106</sup>Rh) ont varié dans le temps dans des proportions pouvant atteindre et parfois dépasser un facteur 10. Ceci entraînait en conséquence des fluctuations de la radioactivité des eaux.

Notre première préoccupation pour l'analyse des données a été de vérifier si ces variations des rejets, en niveau, et de celles, correspondantes, de la radioactivité des eaux, étaient synchronisées et, éventuellement, avec quel déphasage de temps. Ceci est le point de départ indispensable pour établir la relation de cause à effet.

#### *Réponse instantanée*

Sur la figure 3 sont indiquées, pour le <sup>125</sup>Sb et le <sup>106</sup>Ru-<sup>106</sup>Rh, les radioactivités observées dans les eaux, en fonction de celles des rejets effectués au cours de la même semaine. Le calcul montre que la tendance relationnelle qui semblerait exister entre les deux valeurs est en réalité très faible : r<sup>2</sup> (<sup>125</sup>Sb) = 0,07 ; r<sup>2</sup> (<sup>106</sup>Ru - <sup>106</sup>Rh) = 0,11. L'effet des rejets sur les eaux de la station de Goury ne peut donc pas, dans la majeure partie des cas, être considéré comme instantané.

La mise en évidence d'une corrélation éventuelle entre les rejets et le marquage correspondant du milieu doit en conséquence être précédée de l'évaluation du décalage temporel pouvant intervenir entre les deux évènements.

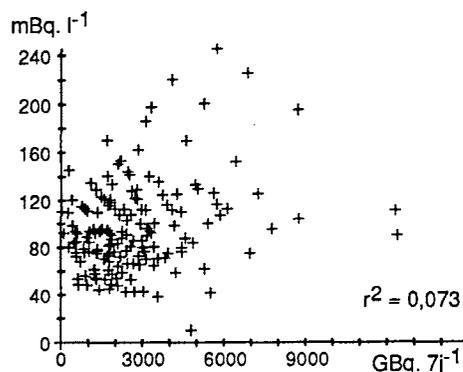
### *Réponse différée*

L'observation de ce déphasage peut se faire par la comparaison des diagrammes représentant respectivement l'évolution des rejets dans le temps et celle de la radioactivité des eaux.

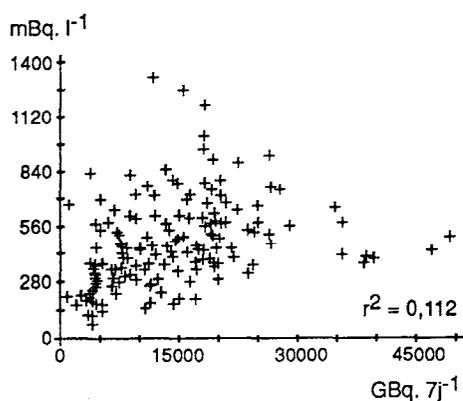
En pratique, cette comparaison se révèle difficile puisque les rejets successifs (plus ou moins intenses et espacés) génèrent des signaux (plus ou moins immédiats, différés, ponctuels ou étalés dans le temps) qui, dans de nombreux cas, interfèrent.

Seuls quelques pics de radioactivité des eaux, bien isolés, qui représentent environ 20 % de l'ensemble des données, peuvent être mis à profit pour l'application de cette méthode graphique.

Nous avons représenté figure 4 quelques exemples significatifs où l'on peut évaluer avec un minimum d'incertitude les délais qui s'écoulent entre un rejet particulier, bien identifié, et l'évolution correspondante de la radioactivité des eaux. Tous les exemples montrent qu'en moyenne ceux-ci seraient de l'ordre de deux semaines. Nous les qualifierons dans la suite de ce texte de «court terme».



A - <sup>125</sup>Sb



B - <sup>106</sup>Ru - <sup>106</sup>Rh

Figure 3

Observation de la variation de radioactivité des eaux de la station de Goury, en fonction de celle des quantités de radionucléides rejetés au cours de la même semaine (données recueillies de 1985 à 1989).

*Weekly variation of radioactivity in waters collected at Goury as a function of the amount of radionuclides released from La Hague (data compiled for 1985-1989).*

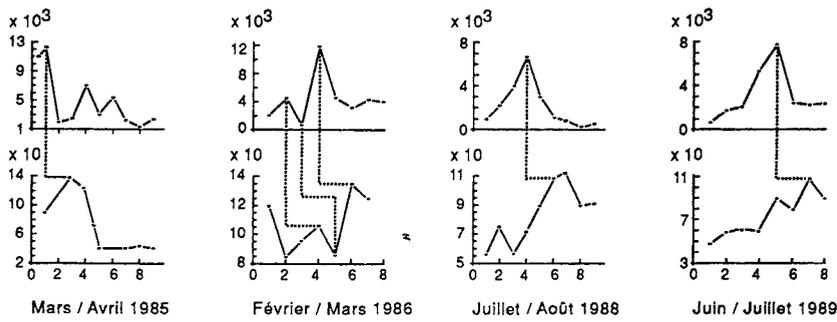
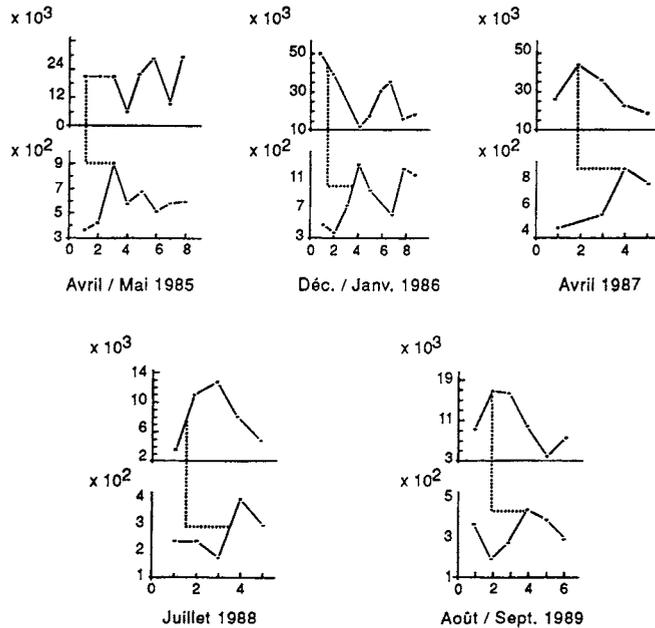


Figure 4

Exemple de recherche graphique de l'intervalle de temps séparant les rejets (schéma supérieur) et leurs conséquences sur la radioactivité des eaux (schéma inférieur). En ordonnées : quantités rejetées (GBq  $\cdot$  j<sup>-1</sup>) et radioactivité des eaux (mBq.l<sup>-1</sup>) ; en abscisses : temps écoulé (semaines).

Graphical solution for interval of time separating discharge (upper diagram) from observed response in the radioactivity of waters (lower diagram). On ordinate axis: discharge rate in GBq per week and radioactivity of waters (mBq.l<sup>-1</sup>) ; abscissae : elapsed time in weeks.

A - <sup>125</sup>Sb



B - <sup>106</sup>Ru - <sup>106</sup>Rh

Pour confirmer cette observation, nous avons calculé, à partir des données retenues pour les exemples, la corrélation entre l'évolution de la radioactivité des rejets et celle des eaux.

Si l'on ne tient pas compte d'un retard entre les deux événements  $r^2$  n'est égal qu'à 0,16 (<sup>125</sup>Sb) et 0,05 (<sup>106</sup>Ru-<sup>106</sup>Rh). Par contre, en tenant compte d'un décalage de deux semaines,  $r^2$  prend les valeurs 0,89 (<sup>125</sup>Sb) et 0,67 [<sup>106</sup>Ru-<sup>106</sup>Rh (fig. 5)].

Cette durée d'apparition de signaux bien caractérisés semblant tout à fait plausible, nous en avons tenu compte pour renouveler le calcul effectué au paragraphe 1 (fig. 3) sur l'ensemble des données recueillies de 1985 à 1989. Dans ce cas (fig. 6), le coefficient de corrélation égal à 0,36 (<sup>125</sup>Sb) bien que peu élevé, se montre largement supérieur à ce qu'il était (0,07) dans le précédent calcul. Il en va de même pour le <sup>106</sup>Ru-<sup>106</sup>Rh, la nouvelle valeur  $r^2$  étant de 0,46 alors qu'elle était auparavant de 0,11.

Il est évident que, compte tenu des possibilités d'interférences mentionnées ci-dessus, on ne pouvait s'attendre à ce que ce calcul, appliqué à l'ensemble des données, sans aucune distinction, aboutisse à des résultats aussi éloquents que ceux obtenus à partir d'exemples sélectionnés pour leur simplicité.

### Impact à long terme

On remarquera figure 6 que les droites de régression ne passent pas par l'origine des ordonnées (radioactivité des eaux de mer). Ceci indique qu'une radioactivité, ne correspondant pas à un signal précis, subsiste, même en absence de rejets récents.

Évaluée sur l'ensemble de la période 1985-1989, cette radioactivité résiduelle moyenne serait de 61 mBq.l<sup>-1</sup> (<sup>125</sup>Sb) et de 232 mBq.l<sup>-1</sup> (<sup>106</sup>Ru-<sup>106</sup>Rh). On en déduit que l'impact à court terme se superpose à un fond continu. Ce dernier serait constitué des reliquats de rejets antérieurs, qui représenteraient ainsi un terme source secondaire, déplacé lors du recyclage des masses d'eau régionales.

Ce fond dit «continu» doit en fait être modulé en amplitude en fonction de la valeur des rejets anciens et, dans le temps, selon des séquences associées à la circulation des eaux. On peut toutefois, en postulant que l'essentiel des recyclages se produit à l'intérieur d'un intervalle de temps d'un an, vérifier si ce fond résiduel était en rapport avec les rejets totaux effectués aux cours des diverses années d'observation.

Figure 5

Étude, à partir d'exemples sélectionnés, de la corrélation entre les rejets de radionucléides et leurs effets sur la radioactivité des eaux, sans tenir compte (1) ou en tenant compte (2), d'un retard d'apparition du signal, égal à deux semaines.

Diagram showing correlation between amount of discharged radionuclides and resulting effect on radioactivity of waters, using selected examples. In (1), no account is taken of a delay-time before appearance of the signal. In (2), a delay-time of two weeks is applied.

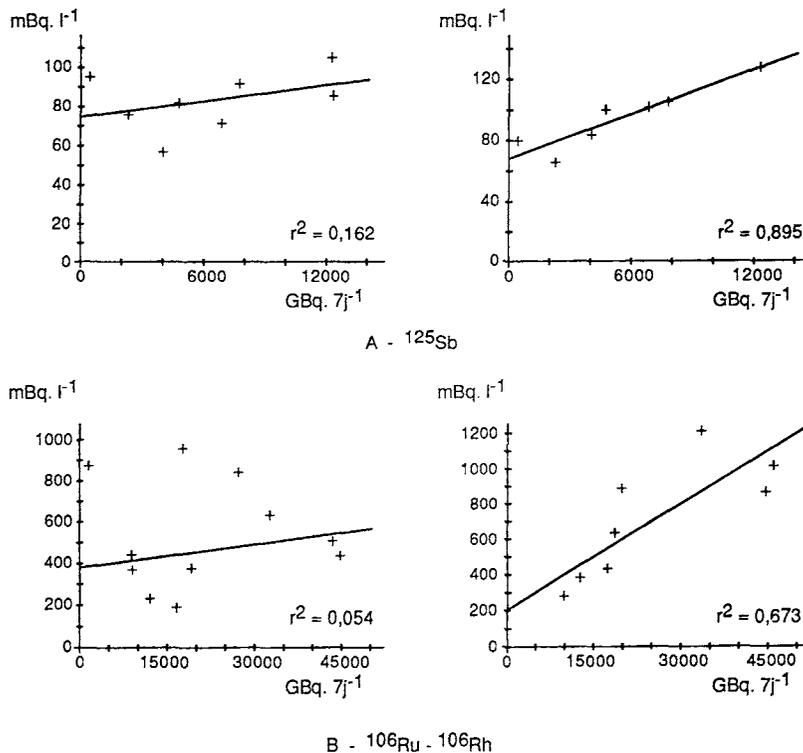
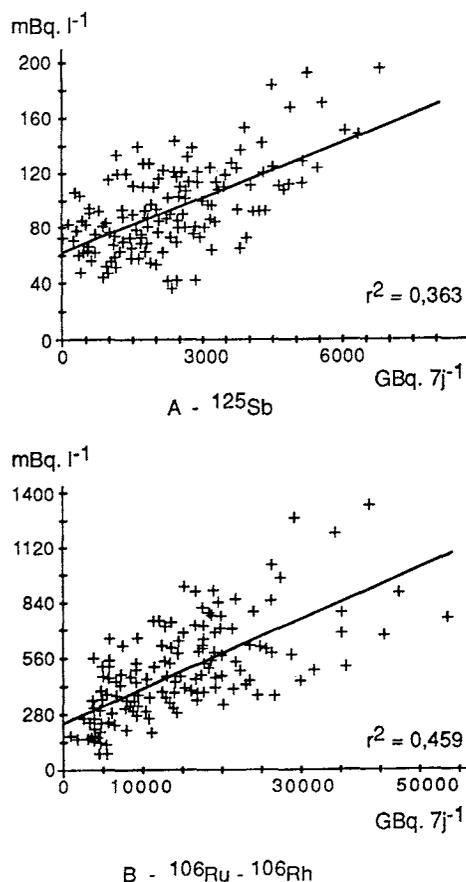


Figure 6

Observations de la variation de radioactivité des eaux de la station de Goury, en fonction de celle des quantités de radionucléides rejetés, deux semaines avant la période de mesure des eaux (données recueillies de 1985 à 1989).

Variation of radioactivity of waters at Goury as a function of the amount of discharged radionuclides, applying a delay-time of two weeks between release from La Hague and measurement at sampling station (data compiled for 1985-1989).



1 - Sans retard dans le temps      2 - Avec retard de 2 semaines

Pour ce faire, on effectue, comme pour l'obtention de la figure 6, une étude de corrélation entre la radioactivité observée dans les eaux et les quantités de radionucléides rejetés, cette fois, non plus sur l'ensemble de la période 1985-1989, mais sur les données obtenues année par année. On constate (tab. 1) que le fond résiduel variait en relation avec l'importance des rejets [ $r^2$  ( $^{125}\text{Sb}$ ) = 0,92 ;  $r^2$  ( $^{106}\text{Ru}$ - $^{106}\text{Rh}$ ) = 0,73 (fig. 7)]. Il était naturellement d'autant plus accentué que la radioactivité dans les rejets était importante (60 à 80 mBq.l<sup>-1</sup> pour le  $^{125}\text{Sb}$  et 130 à 350 mBq.l<sup>-1</sup> pour le  $^{106}\text{Ru}$ - $^{106}\text{Rh}$ ).

Cette démonstration confirme le fait (tout au moins à l'échelle de l'année) que la valeur du terme source secondaire était bien en rapport avec celle des rejets effectués au cours de ce laps de temps.

BILAN D'IMPACT

Nous avons montré dans les chapitres précédents que l'impact des rejets sur la radioactivité des eaux de mer pouvait d'ores et déjà se définir comme étant «à court terme», «à long terme» ou encore «global», si l'on prend en compte tous les modes de transfert susceptibles d'intervenir.

Dans les tableaux 2 et 3 sont rassemblés les résultats des calculs faits pour quantifier les différentes valeurs qu'il peut donc prendre.

En moyenne pour l'ensemble de la période 1985-1989, l'impact à court terme était de  $0,8 \times 10^{-13}$  (Bq.l<sup>-1</sup> par Bq.j<sup>-1</sup>) pour le  $^{125}\text{Sb}$  et de  $10^{-13}$  pour le  $^{106}\text{Ru}$ - $^{106}\text{Rh}$ . Pour le long terme, il était de  $1,9 \times 10^{-13}$  et  $1,3 \times 10^{-13}$  et enfin sur le plan global, il était de  $2,7 \times 10^{-13}$  et  $2,3 \times 10^{-13}$ .

Tableau 1

Valeurs moyennes de la radioactivité résiduelle ( $\text{mBq.l}^{-1}$ ) des eaux de la station de Goury, estimées pour les années 1985-1989

*Average values of residual radioactivity ( $\text{mBq.l}^{-1}$ ) in water samples taken at Goury, estimated for the period 1985-1989.*

Année	$^{125}\text{Sb}$ Rejets totaux (TBq)	$^{125}\text{Sb}$ Radioactivité résiduelle des eaux ( $\text{mBq.l}^{-1}$ )	$^{106}\text{Ru}$ - $^{106}\text{Rh}$ Rejets totaux (TBq)	$^{106}\text{Ru}$ - $^{106}\text{Rh}$ Radioactivité résiduelle des eaux ( $\text{mBq.l}^{-1}$ )
1985	117,7	60,0	871,4	336,5
1986	139,7	70,8	795,4	272,6
1987	181,0	80,0	1038,9	353,6
1988	98,2	62,6	513,3	131,6
1989 (9 mois)	71,2	55,6	320,0	204,1

Tableau 2

Calcul de l'impact des rejets de  $^{125}\text{Sb}$  sur la radioactivité des eaux littorales de la station de Goury, avec : A) rejets moyens quotidiens, dans l'année ; B) radioactivité moyenne de l'eau pendant l'année ; C) fond résiduel moyen (valeurs du tab. 1) ; D) transfert moyen à court terme  $D = B - C$  ; E) impact global moyen,  $E = B/A$  ; F) impact moyen à court terme,  $F = D/A$  ; G) impact moyen à long terme,  $G = C/A$ .

*Calculation of the impact of  $^{125}\text{Sb}$  discharges on coastal waters collected at Goury, with: A) mean daily discharges in the year; B) mean annual specific radioactivity of waters (As); C) mean residual radioactivity (i.e. table 1); D) mean transfer in the medium term  $D = B - C$ ; E) mean overall impact,  $E = B/A$ ; F) average medium-term impact,  $F = D/A$ ; G) average long-term impact,  $G = C/A$ .*

Année	A	B	C	D	E	F	G
	Rejets moyens quotidiens $\text{Bq.j}^{-1} \times 10^9$	As eau de mer $\text{Bq.l}^{-1} \times 10^{-3}$	Fond résiduel moyen $\text{Bq.l}^{-1} \times 10^{-3}$	Transfert moyen à court terme $\text{Bq.l}^{-1} \times 10^{-3}$	Impact global moyen $\times 10^{-13}$ $\text{Bq.l}^{-1}$ par $\text{Bq.j}^{-1}$	Impact moyen à court terme $\times 10^{-13}$ $\text{Bq.l}^{-1}$ par $\text{Bq.j}^{-1}$	Impact moyen à long terme $\times 10^{-13}$ $\text{Bq.l}^{-1}$ par $\text{Bq.j}^{-1}$
1985	322,5	$82,6 \pm 28,8$	60,0	22,6	$2,6 \pm 0,9$	0,7	1,9
1986	382,8	$96,4 \pm 40,2$	70,7	25,7	$2,5 \pm 0,1$	0,7	1,8
1987	496,0	$128,0 \pm 39,1$	79,9	48,1	$2,6 \pm 0,8$	1,0	1,6
1988	270,6	$79,6 \pm 21,7$	62,5	17,1	$2,9 \pm 0,8$	0,6	2,3
1989	263,7	$77,1 \pm 19,3$	55,6	21,5	$2,9 \pm 0,7$	0,8	2,1
Valeurs moyennes sur l'ensemble de la période.					$2,7 \pm 0,2$	$0,8 \pm 0,1$	$1,9 \pm 0,2$

Tableau 3

Calcul de l'impact des rejets de  $^{106}\text{Ru}$ - $^{106}\text{Rh}$  sur la radioactivité des eaux littorales de la station de Goury (légende identique à celle du tab. 2).

*Calculation of the impact of  $^{106}\text{Ru}$ - $^{106}\text{Rh}$  discharges on coastal waters collected at Goury (same captions as Tab. 2).*

Année	A	B	C	D	E	F	G
	Rejets moyens quotidiens $\text{Bq.j}^{-1} \times 10^9$	A <sub>s</sub> eau de mer $\text{Bq.l}^{-1} \times 10^{-3}$	Fond résiduel moyen $\text{Bq.l}^{-1} \times 10^{-3}$	Transfert moyen à court terme $\text{Bq.l}^{-1} \times 10^{-3}$	Impact global moyen $\times 10^{-13}$ $\text{Bq.l}^{-1}$ par $\text{Bq.j}^{-1}$	Impact moyen à court terme $\times 10^{-13}$ $\text{Bq.l}^{-1}$ par $\text{Bq.j}^{-1}$	Impact moyen à long terme $\times 10^{-13}$ $\text{Bq.l}^{-1}$ par $\text{Bq.j}^{-1}$
1985	2387	$548 \pm 221$	336	212	$2,3 \pm 0,9$	0,9	1,4
1986	2179	$570 \pm 224$	272	298	$2,6 \pm 0,1$	1,4	1,2
1987	2846	$505 \pm 132$	353	152	$1,8 \pm 0,5$	0,5	1,2
1988	1406	$348 \pm 185$	131	217	$2,5 \pm 1,3$	1,5	0,9
1989 (9 mois)	1185	$267 \pm 76$	204	63	$2,2 \pm 0,6$	0,5	1,7
Valeurs moyennes sur l'ensemble de la période					$2,3 \pm 0,3$	$1,0 \pm 0,4$	$1,3 \pm 0,3$

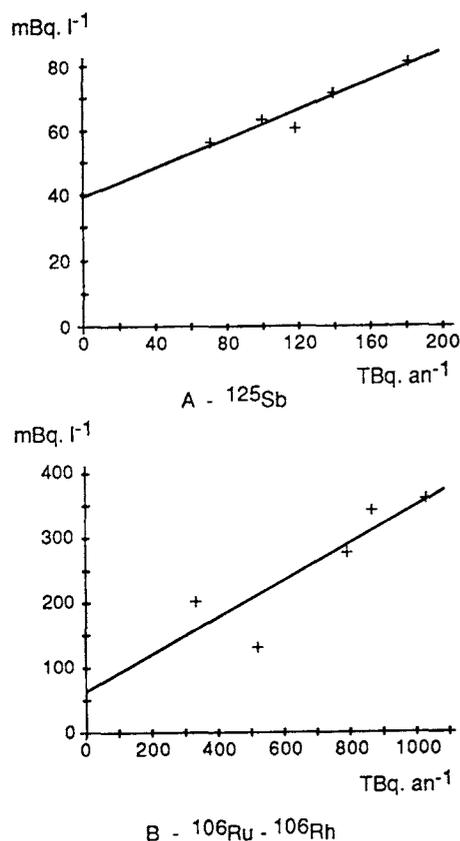


Figure 7

Valeurs de la radioactivité résiduelle des eaux de la station de Goury (impact à long terme), en fonction des quantités de <sup>125</sup>Sb et de <sup>106</sup>Ru-<sup>106</sup>Rh rejetées, par année, au cours de la période 1985-1989.

Variation of residual radioactivity in waters at Goury (long-term impact) as a function of the activities of <sup>125</sup>Sb and <sup>106</sup>Ru-<sup>106</sup>Rh discharged per year over the period 1985-1989.

Tableau 4

Impact global des rejets de <sup>137</sup>Cs et de <sup>60</sup>Co sur la radioactivité des eaux littorales de Goury. 1) Pour le <sup>137</sup>Cs, il a été fait déduction d'un bruit de fond de retombées égal à  $3 \times 10^{-3}$  Bq.l<sup>-1</sup>, valeur observée à distance, dans les zones non soumises aux rejets de l'usine de La Hague. 2) Valeurs s'écartant de la moyenne de plus d'une fois celle de l'écart type : - pour le <sup>137</sup>Cs : anomalie attribuée à un excédent de radioactivité consécutif à l'accident de Tchernobyl survenu en 1986 ; - pour le <sup>60</sup>Co : valeur n'étant plus d'actualité par suite de changement de formes physico-chimiques lors du traitement des effluents avant rejet.

Overall impact of discharges of <sup>137</sup>Cs and <sup>60</sup>Co on the radioactivity of waters at Goury. 1) For <sup>137</sup>Cs, a background fallout level of  $3 \times 10^{-3}$  Bq.l<sup>-1</sup> was subtracted from the measured activity ; the background used is the value observed at distance from the source in zones unaffected by discharges from La Hague. 2) Values more than one standard deviation away from the mean: - the <sup>137</sup>Cs anomaly is attributed to the excess radioactivity derived from the Tchernobyl accident in 1986; - this value is no longer representative of current discharges of <sup>60</sup>Co, since the physical and chemical form of the waste is now modified by treatment before release.

Année	<sup>137</sup> Cs			<sup>60</sup> Co		
	Rejet moyen quotidien Bq x 10 <sup>9</sup>	A <sub>s</sub> (1) moyenne dans l'année Bq x 10 <sup>-3</sup>	Impact global x 10 <sup>-13</sup> Bq.l <sup>-1</sup> par Bq.j <sup>-1</sup>	Rejet moyen quotidien Bq x 10 <sup>9</sup>	A <sub>s</sub> moyenne Bq x 10 <sup>-3</sup>	Impact global x 10 <sup>-13</sup> Bq.l <sup>-1</sup> par Bq.j <sup>-1</sup>
1985	86,2	39,1	4,5	42	7,3	1,7 <sup>(2)</sup>
1986	26,2	18,8	7,2 <sup>(2)</sup>	33,1	9,7	2,9
1987	20,8	8,5	4,1	20,2	5,3	2,6
1988	23,0	9,5	4,1	17,9	5,5	3,1
1989	35,0	11,4	3,2	12,7	4,2	3,3
		Valeur moyenne	4,6 ± 1,3		Valeur moyenne	2,7 ± 0,6
	Valeur moyenne, abstraction faite de celle déterminée pour 1986		4,0 ± 0,5	Valeur moyenne, abstraction faite de celle déterminée pour 1985		3,0 ± 0,2

On remarquera que si pour le <sup>106</sup>Ru-<sup>106</sup>Rh les conséquences à court ou à long terme ont été sensiblement équivalentes ( $10^{-13}$  et  $1,3 \times 10^{-13}$  soit 43 et 57 % de l'impact global), ce n'est pas le cas pour le <sup>125</sup>Sb ( $0,8 \times 10^{-13}$  et  $1,9 \times 10^{-13}$ ) pour lequel l'impact à long terme représenterait la contribution prépondérante, soit 70 %.

#### RELATION ENTRE L'IMPORTANCE DE L'IMPACT GLOBAL ET LA PÉRIODE RADIOACTIVE DES RADIONUCLÉIDES REJETÉS

Il a été indiqué, ci-avant, que les recyclages du <sup>125</sup>Sb, de période radioactive (T<sub>1/2</sub>) égale à 2,7 ans, étaient favorisés par rapport à ceux du <sup>106</sup>Ru-<sup>106</sup>Rh (T<sub>1/2</sub> = 1 an).

Il était donc intéressant de vérifier la relation qui semble lier l'impact global (tout au moins sa composante à long terme) à la période radioactive des radionucléides rejetés. Pour cela, nous avons utilisé à titre complémentaire des données obtenues pour les <sup>137</sup>Cs et <sup>60</sup>Co. Celles-ci, du fait de rejets peu importants entraînant une moindre radioactivité des eaux, présentaient des possibilités d'erreurs pouvant être comprises entre 15 et 50 % de leurs valeurs. Pour cette raison, elles n'avaient pu être utilisées pour les analyses précédentes.

Toutefois, leur nombre important (environ 200 par radionucléide pour la période 1985-1989) permet de calculer sur un temps prolongé une valeur d'impact global moyen assez fiable. Les résultats de ces calculs sont rassemblés dans le tableau 4.

En résumé, pour les quatre radionucléides, les valeurs sont de :

<sup>106</sup>Ru-<sup>106</sup>Rh (T<sub>1/2</sub> = 1 an) :  $2,3 \times 10^{-13}$  (Bq.l<sup>-1</sup> pour 1 Bq.j<sup>-1</sup>)

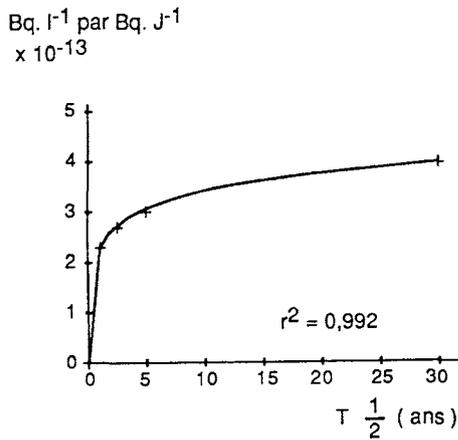


Figure 8

Étude de l'évolution de l'impact global, en fonction de la période radioactive ( $T_{1/2}$ ) des radionucléides rejetés en mer.

*Variation of overall impact as a function of the half-life ( $T_{1/2}$ ) of radionuclides discharged into the sea.*

$^{125}\text{Sb}$  ( $T_{1/2} = 2,7$  ans) :  $2,7 \times 10^{-13}$  (Bq.l $^{-1}$  pour 1 Bq.j $^{-1}$ )

$^{60}\text{Co}$  ( $T_{1/2} = 5,2$  ans) :  $3,0 \times 10^{-13}$  (Bq.l $^{-1}$  pour 1 Bq.j $^{-1}$ )

$^{137}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 30$  ans) :  $4,0 \times 10^{-13}$  (Bq.l $^{-1}$  pour 1 Bq.j $^{-1}$ )

Elles sont corrélées avec la période radioactive des radionucléides :  $r^2 = 0,99$  et la relation les reliant, de forme logarithmique, est la suivante (fig. 8) :

$$I = [2,237 + 0,505 \text{ Log } T_{1/2} (\text{ans})] \times 10^{-13}.$$

## DISCUSSION

Les délais d'apparition, dans les eaux de Goury, des signaux caractéristiques de rejets d'effluents radioactifs, peuvent être reliés, tout au moins en partie, à ceux nécessaires pour que se réalisent les échanges des diverses masses d'eaux du golfe normand-breton.

Ces échanges, décrits par Salomon *et al.* (1988), apparaissent très complexes. Le schéma présenté figure 9 montre en effet l'existence : d'un courant anticyclonique entre Flamanville et Carteret ; de courants cycloniques autour des îles de Jersey et de Guernesey ; d'un double tourbillon anticyclonique dans la baie de St Brieuc et à l'Ouest de Jersey, cyclonique entre Jersey et les Minquiers ; et enfin d'une veine d'eau circulant obliquement, depuis l'ouest de la baie de St Brieuc (Bréhat), vers le raz Blanchard.

L'impact, se manifestant à court terme, correspondrait au retour à relativement brève échéance, au niveau de la station d'observation, de radionucléides qui, au lieu d'être rapidement éliminés vers le Nord et la Manche, auraient été captés par le tourbillon de Flamanville. Celui-ci présente en effet une période de révolution sensiblement équivalente à l'intervalle de temps (deux semaines en moyenne) s'écoulant entre les rejets et le constat effectué.

L'effet observé à long terme serait, pour sa part, la conséquence d'un déplacement plus lointain des radionucléides échappant, par le Sud, au courant anticyclonique de

Flamanville. Ces derniers migreraient ensuite dans les divers tourbillons du golfe, avant de regagner la Manche, *via* le raz Blanchard et le Cap de la Hague. Ce dernier mode de transfert entretient donc un fond rémanent de radioactivité composite dans lequel la contribution relative des éléments à longue durée de vie prend de plus en plus d'importance avec le temps écoulé.

En raison de ce manque de synchronisme entre les rejets et une partie de leurs effets, il convient donc d'interpréter le résultat du calcul d'impact avec précaution. Ce résultat peut, par exemple, être sous-estimé si, au moment de l'échantillonnage des eaux, des transferts différés, correspondant à des rejets importants, n'ont pas encore produit leur effet. A l'inverse, il peut être surestimé si ces transferts secondaires se manifestent lors de rejets en diminution.

En toute rigueur, ce type de détermination ne devrait être fait qu'en utilisant des données obtenues en période prolongée d'équilibre entre la radioactivité des eaux et celle des rejets, ou en disposant d'une parfaite connaissance des délais de recyclage des eaux marquées, permettant d'effectuer les ajustements nécessaires. Ceci n'était pas exactement notre cas mais il est certain toutefois que l'utilisation de nombreux résultats, obtenus sur de longues périodes, contribue à minimiser ces inconvénients et autorise des comparaisons avec les études antérieures.

Les valeurs que nous avons déterminées pour l'impact global, de 1985 à 1989, qui cumulent les effets des transferts à court et long termes dans les eaux littorales de Goury, comprises entre  $2,3 \times 10^{-13}$  ( $^{106}\text{Ru}$ - $^{106}\text{Rh}$ ) et  $4 \times 10^{-13}$  ( $^{137}\text{Cs}$ ), confirment le nouveau schéma de dispersion proposé par Guéguéniat au vu de résultats acquis au cours de campagnes ponctuelles (fig. 2). Par contre, les indications extrapolées des études prévisionnelles (impact compris entre  $0,1$  et  $0,3 \times 10^{-13}$ ) qui correspondent sensiblement à

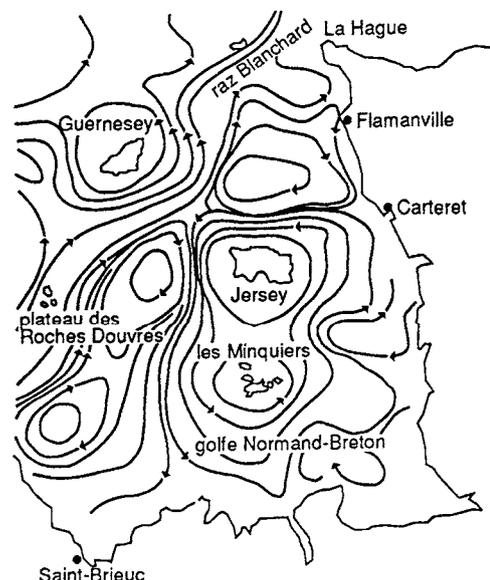


Figure 9

Trajectoires à long terme des particules d'eau dans le golfe Normand-Breton (d'après Salomon *et al.*, 1988)

*Long-term water parcel trajectories in the Normand-Breton Gulf (from Salomon *et al.*, 1988).*

nos observations sur les transferts à court terme -  $0,8 \times 10^{-13}$  ( $^{125}\text{Sb}$ ) à  $1 \times 10^{-13}$  ( $^{106}\text{Ru}$ - $^{106}\text{Rh}$ ) - ne rendraient compte de d'évènements se produisant à brefs délais.

## CONCLUSION

Les laps de temps qui s'écoulent entre l'émission en mer des effluents de l'usine de La Hague, et la manifestation de leurs effets, sur les eaux du proche littoral, sont au moins de deux ordres de grandeur. Relativement courts (deux semaines en moyenne) ou prolongés (plusieurs mois), ils sont déterminés par les durées de déplacement des masses d'eaux régionales.

L'évaluation des conséquences des rejets sur la radioactivité des eaux littorales est sensiblement en accord avec les résultats des études menées préalablement à la mise en service de l'usine, en ce qui concerne le court terme. Ceci n'est pas le cas par contre pour les conséquences à longue échéance. Il s'avère que l'utilisation pour les études prévisionnelles d'un colorant traceur, dont les possibilités de détection sont limitées dans le temps, ne pouvait montrer l'éventualité de recyclages, nettement différés par rapport aux rejets. Négligeant cette composante, l'impact prévu était sous-estimé.

Si cette information est utile pour l'industriel, elle l'est également pour le radioécologiste. Deux points méritent une attention particulière.

Le premier concerne la présence dans ces eaux de radionucléides ayant subi un vieillissement plus ou moins accentué susceptible, dans certains cas, de modifier leurs formes physico-chimiques initiales. Le contrôleur se trouve confronté à des problèmes de méthodologie analytique, fait souvent vérifié (Guéguéniat et Gandon, 1977). Par ailleurs, cette modification a souvent une incidence sur leur biodisponibilité et par suite sur l'interprétation des données relatives aux espèces vivantes. Il convient, en conséquence, d'apporter des éclaircissements sur ce point.

Le deuxième est la nécessité, dans le cadre de l'étude d'hypothétiques accidents, d'évaluer très précisément les délais de retour à une situation normale, ces délais pouvant être notablement plus longs que le constat d'impact à court terme pouvait le laisser supposer.

Nous sommes conscients à l'issue de ce travail qui n'a pu être mené que par l'utilisation de nombreuses valeurs

moyennes, que celui-ci ne constitue qu'une approche d'un problème très complexe, dans lequel interviennent de nombreux paramètres.

Les recherches menées conjointement en océanographie physique et en radioécologie des eaux, s'enrichissant mutuellement par retour d'expérience, ont permis d'identifier certains de ces paramètres, notamment en matière de déplacement des masses d'eau (Salomon et Breton, 1991). Pour d'autres, tout particulièrement direction et force des vents, il sera nécessaire de compléter l'éventail des investigations. Pour cela, nous proposons une formulation dans laquelle le rôle de divers facteurs devrait progressivement prendre place sous une forme quantifiée.

$$A_{s(t)} = \left[ \underbrace{(R_{(t-t_1)} F_1)}_{\substack{\text{Transfert à} \\ \text{court terme}}} + \underbrace{(R_{(t-t_2)} F_2)}_{\substack{\text{Transferts} \\ \text{à long terme}}} + \dots + \underbrace{(R_{(t-t_n)} F_n)}_{\substack{\text{P a r a m è t r e s} \\ \text{du milieu}}} \right] \underbrace{(K_1, K_2, \dots, K_n)}_{\substack{\text{Résultante globale observée} \\ \text{Dans des conditions standards}}}$$

$A_{s(t)}$  : radioactivité de l'eau à un instant  $t$ .

$R_{(t-t_1)}, R_{(t-t_2)}, \dots, R_{(t-t_n)}$  : rejets effectués à des temps variables, antérieurs à la mesure de l'eau réalisée au temps  $t$ . En ce qui concerne le transfert à court terme, ce temps peut être pris égal à quinze jours, comme nous l'avons montré. Pour les transferts à long terme, ces temps devront être pris égaux aux divers délais de recyclage, qui sont à déterminer.

$F_1, F_2, \dots, F_n$  : facteurs de transfert au temps  $t$ , applicables à des rejets effectués aux temps  $t - t_1, t - t_2, \dots, t - t_n$ , dans des conditions standards qui sont à définir.

$K_1, K_2, \dots, K_n$  : coefficients de variation des conditions standards, conséquence de la fluctuation cyclique ou aléatoire des paramètres du milieu (amplitude des marées, force et direction des vents, état de la mer...) pouvant majorer ou minorer les facteurs de transfert.

## Remerciements

Les auteurs remercient M. Y. Baron, du Groupe d'Études Atomiques de la Marine Nationale, qui a effectué les mesures de radioactivité des échantillons.

Ce travail a pu être mené à bien grâce au financement du CEA/Cogema et au soutien du groupe de Recherche Manche (CNRS, Directeur L. Cabioch).

## RÉFÉRENCES

- Ancellin J., P. Guéguéniat et P. Germain** (1979). *Radioécologie marine. Étude du devenir des radionucléides rejetés en milieu marin et application à la radioprotection*, Eyrolles, Paris, 256 pp.
- Guéguéniat P. et R. Gandon** (1977). Le ruthénium. Cas particulier du devenir d'un radionucléide dans le milieu marin. *I.R.P.A., IV<sup>ème</sup> Congrès International, Paris, 24-30 avril 1977*, 255-258.
- Guéguéniat P., R. Gandon, Y. Baron, J.-C. Salomon, J. Pentreath, J.-M. Brylinski et L. Cabioch** (1988). Utilisation de radionucléides artificiels ( $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ) pour l'observation (1983-1986) des déplacements de masses d'eau en Manche. in : *Radionuclides. A tool for oceanography*, J.-C. Guary, P. Guéguéniat et R.J. Pentreath, éditeurs. Elsevier Science Publishing Co, Inc., New-York, 260-270.
- Lapicque G.** (1974). Étude de l'environnement marin d'une usine atomique et du comportement des traceurs rejetés (circulation, diffusion, fixation, sédimentation). Essai de méthodologie de spectrométrie gamma et caractéristiques des ensembles utilisés. Note CEA-N-1745, Saclay, 149 pp.
- Salomon J.-C. et M. Breton** (1991). Courants résiduels de marée dans la Manche. *Actes du Colloque International sur l'environnement des mers épicontinentales, Lille, 20-22 mars 1990, Oceanologica Acta, vol. sp. n°11*, 47-53.
- Salomon J.-C., P. Guéguéniat, A. Orbi et Y. Baron** (1988). A lagrangian model for long term tidally induced transport and mixing. Vérification by artificial radionuclide concentrations. in : *Radionuclides. A tool for oceanography*, J.-C. Guary, P. Guéguéniat et R.J. Pentreath, éditeurs. Elsevier Science Publishing Co, New York, 384-394.
- Salomon J.-C., P. Guéguéniat et M. Breton** (1991). Mathematical model of  $^{125}\text{Sb}$  transport and dispersion in the Channel. in : *Radionuclides in the study of marine processes*, P.J. Kershaw et D.S. Woodhead, éditeurs. Elsevier Science Publishing Co, Inc., New York, 74-83.