

# RÉSULTATS DE MESURES RÉCENTES DE SPECTROMÉTRIE GAMMA *IN SITU* EN MÉDITERRANÉE OCCIDENTALE (Campagne « Calypso » - décembre 1963)

par Roger CHESSELET, Claude LALOU et Daniel NORDEMANN

Nous avons utilisé la méthode de spectrométrie gamma *in situ* de l'eau de mer au cours de deux campagnes océanographiques effectuées, l'une en août 1963 dans le golfe de Gascogne, l'autre en décembre 1963 en Méditerranée occidentale.

Au cours de ces campagnes, nous avons plus spécialement étudié les concentrations de l'eau de mer en zirconium 95 niobium 95 et en ruthénium 103 ruthénium 106 rhodium 106, qui étaient décelables directement dans la mer par cette méthode.

Ces radionuclides, à l'époque de nos mesures, étaient présents en quantités notables, sous forme d'aérosols radioactifs, dans les retombées atmosphériques (de 10 mCi/km<sup>2</sup>/mois à 100 mCi/km<sup>2</sup>/mois pour les zirconium 95 niobium 95 et de 20 mCi/km<sup>2</sup>/mois à 65 mCi/km<sup>2</sup>/mois pour les ruthénium 103 ruthénium 106, rhodium 106) depuis la reprise des tests nucléaires atmosphériques en octobre 1961. Ces radionuclides ont été par conséquent injectés dans les eaux marines, on peut donc les utiliser en tant que « traceurs » dans l'étude des mécanismes de solubilisation, de fixation sur les hydrosols, de diffusion et de transport, etc...

Les résultats obtenus par la spectrométrie gamma *in situ*, confrontés à ceux obtenus en laboratoire par voie radiochimique ont permis d'établir, dans les zones étudiées, de nombreux profils de concentration, tant verticaux qu'horizontaux.

Les divers profils de concentration en fonction de la profondeur qui ont été observés au cours de ces deux campagnes nous ont permis de vérifier le rôle de la thermocline comme limite de la zone d'accumulation pour les émetteurs étudiés. Cette observation nous a permis, à partir des répartitions verticales, d'établir avec précision les valeurs des concentrations moyennes de l'eau de mer. Il a été ainsi possible de déduire les activités spécifiques des retombées responsables des concentrations observées dans la mer.

Parallèlement, au moyen de nos installations de spectrométrie gamma, au laboratoire, nous avons mesuré les activités spécifiques de la retombée sur les zones côtières continentales et nous avons pu constater que, dans tous les cas, le rapport retombées maritimes/retombées continentales était supérieur à 1. Des causes diverses peuvent expliquer ce fait et elles ont fait l'objet d'une publication récente (CHESSELET *et al.*, 1965).

La figure 1 montre les différentes valeurs de ce rapport, pour chacune des régions maritimes étudiées et pour chacune des stations de mesure en mer en fonction de leur distance à la terre. Les valeurs élevées de ce rapport que l'on observe dans la région côtière de Nice ont pu être reliées à une situation météorologique et hydrologique locale (région à fort gradient de retombées).

La spectrométrie gamma *in situ* nous ayant permis d'obtenir, comme nous l'avons dit, de nombreux profils de concentration en fonction de la profondeur, nous avons utilisé ceux-ci

pour mettre en évidence les mécanismes qui gouvernent les accumulations dans la zone située au-dessus de la thermocline.

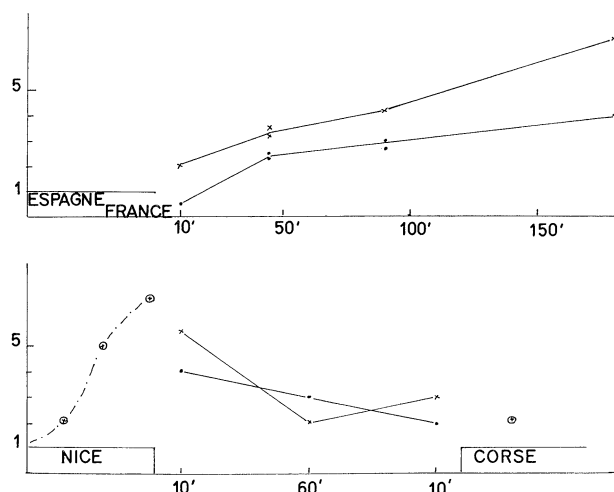


FIG. 1. — Valeurs trouvées pour les rapports retombées maritimes/retombées continentales en fonction des distances à la terre du point de mesure, comparaison entre le golfe de Gascogne et la Méditerranée occidentale. Les taux de retombées à l'approche de la région côtière niçoise et sur la Corse sont donnés en unités arbitraires. Les croix représentent les rapports pour le ruthénium 103 ruthénium 106 rhodium 106, les points les rapports pour le zirconium 95 niobium 95.

Quand la thermocline est suffisamment profonde, c'est-à-dire à — 100, — 150 mètres, les profils des variations des concentrations en fonction de la profondeur ont chaque fois l'allure générale montrée par la figure 2.

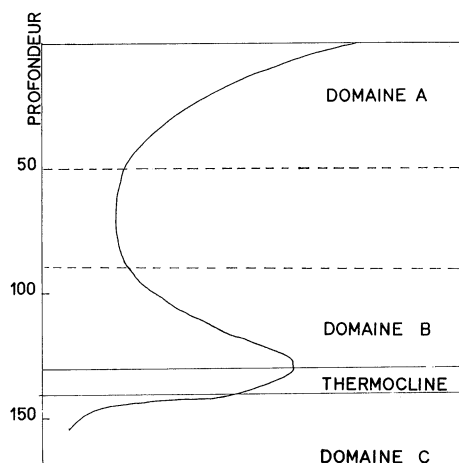


FIG. 2. — Allure générale des profils de concentrations en zirconium 95 niobium 95 et en ruthénium 103 ruthénium 106 rhodium 106.

Il nous est apparu que, d'une façon générale, on pouvait diviser ces profils en trois domaines distincts.

1° *Le domaine A*, qui montre la décroissance rapide avec la profondeur de l'activité récemment injectée sous forme de retombée radioactive. Dans ce domaine A, les radionuclides que nous avons étudiés peuvent être « libres », c'est-à-dire en solution, ou liés à des particules de toute nature. Nous avons mené plusieurs investigations sur la fraction en solution et sur la fraction liée aux particules dans les eaux du domaine A. Ces études montrent d'une façon évidente que la fraction assimilable à la fraction soluble représente à elle seule 90 à 95 % de l'activité spécifique de l'eau de mer pour les nuclides étudiés (CHESSELET R., NORDEMANN D., 1963).

2° *Le domaine B* montre une augmentation de l'activité au niveau ou à l'approche de la

thermocline. Pour expliquer ce phénomène, nous avons émis l'hypothèse que dans ce domaine on se trouve avant tout en présence d'activité liée aux particules de toute nature qui se trouve-

raient bloquées pour un temps au-dessus de la thermocline. La répartition de ces particules résulterait de la compétition entre la chute verticale et la diffusion dans cette zone. JOSEPH J., (1955), LOWMAN F.G. (1960), et surtout JERLOV N.G. (1959), ont également montré dans des courbes de répartition des particules en fonction de la profondeur, un régime d'accumulation au niveau de la thermocline. JERLOV a interprété de façon mathématique les phénomènes qui peuvent expliquer cette accumulation. Lors de nos mesures *in situ* parallèlement à cette remontée d'activité au niveau de la thermocline pour les émetteurs gamma artificiels observés, nous avons pu constater, au voisinage de cette couche, une légère augmentation de l'activité due au bismuth 214, descendant du radium qui est concentré dans la mer dans les particules : eau de mer  $10^{-16}$  g de Ra/ml, seston environ  $10^{-13}$  g/gramme d'échantillon humide.

Cette constatation corrobore l'hypothèse d'une augmentation de l'activité liée à une accumulation de particules de densité extrêmement faible. De telles particules peuvent, au cours de leur descente vers le fond, stagner quand elles rencontrent des couches d'eau plus denses, ce qui expliquerait leur accumulation au niveau de la thermocline.

Il est également possible d'invoquer une autre hypothèse pour expliquer ces profils. Cette hypothèse tiendrait compte d'une circulation de type cellulaire à axe horizontal qui entraînerait vers la thermocline des eaux de surface riches en activité. Ceci serait conforme au modèle donné par I. HELA, 1963. Il nous a paru cependant préférable d'étudier, dans le domaine B, les profils que nous avons obtenus, en tenant compte de la première hypothèse.

Nous allons confronter successivement l'allure des profils observés dans les domaines A et B avec des fonctions théoriques déduites de l'équation différentielle régissant la répartition, dans le cas de la diffusion à une dimension :

$$\frac{\partial s}{\partial t} = D \frac{\partial^2 s}{\partial z^2} - \left( v - \frac{\partial D}{\partial z} \right) \frac{\partial s}{\partial z} - \frac{\partial v}{\partial z} s + R \quad (1)$$

où  $s$  = activité par unité de volume

$T$  = temps

$z$  = profondeur

$D$  = coefficient de diffusion

$R$  = autres variations des concentrations ou des activités.

Selon les domaines que nous avons précédemment définis, nous ferons apparaître les termes prépondérants dans l'équation (1), ce qui, en négligeant les autres, nous permettra de l'intégrer et de confronter ainsi avec nos résultats expérimentaux, un modèle simplifié.

## Domaine A.

Nous nous plaçons dans le cas de la diffusion simple et nous assimilons les injections passées à une injection unique antérieure d'un temps  $t$  à la date de la mesure. Cette approximation est fondée sur nos observations de l'évolution des retombées en fonction du temps. La solution de l'équation de diffusion (1) compte tenu de ces diverses hypothèses simplificatrices, est de la forme :

$$s = \frac{Q}{\sqrt{\pi Dt}} \exp \left( -\frac{z^2}{4 Dt} \right) \quad (2)$$

où  $Q$  désigne la quantité injectée par unité de surface,  $D$  le coefficient de diffusion et  $z$  la profondeur exprimée depuis la surface.

L'application de la méthode des moindres carrés permet, par l'assimilation des divers profils observés dans la couche superficielle à une fonction de la forme (2), la détermination de la quantité  $Dt$ .

La connaissance du temps  $t$ , déduite des taux de retombées, permet d'obtenir les valeurs du coefficient de diffusion verticale pour la couche superficielle du domaine A.

Chaque station présente un coefficient de diffusion sensiblement identique quelque soit le groupe de nuclides étudié; dans les eaux de Bordighera dont la thermocline est en cours de disparition, on remarque un coefficient de diffusion plus élevé que dans les eaux de la baie des Anges dont la thermocline est à 150 mètres.

	Méditerranée occidentale décembre 1963		Golfe de Gas- cogne août 63
	Baie des Anges	Bordighera	Large 45°30N 6°30O
$^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}$	1,2	8	7,4
$^{103}\text{Ru} + ^{106}\text{Ru}^{106}\text{Rh}$	1,2	5,2	7
Profondeur de la thermocline	150 m	—	150 m

TABL. 1. — Coefficients de diffusion « domaine A » en  $\text{cm}^2\text{s}^{-1}$

	Méditerranée occidentale décembre 1963		Golfe de Gas- cogne août 63
	Baie des Anges	Bordighera	Large
$^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}$	—	0,019	0,0060
$^{103}\text{Ru} \ ^{106}\text{Ru} \ ^{106}\text{Rh}$	0,013	0,022	0,0064
Profondeur de la thermocline	150 m	—	150 m

TABL. 2 — Coefficients de diffusion « domaine B » en  $\text{cm}^2\text{s}^{-1}$

#### Domaine B.

Dans le domaine B, pour expliquer le phénomène d'accumulation qui rendrait compte de l'allure du profil, nous avons admis que l'on avait à faire, avant tout, à des particules organiques et inorganiques porteuses de l'activité. Nous admettons la proportionnalité de l'activité observée et de la densité des particules le long du profil de ce domaine. Dans ce cas, la résolution de l'équation différentielle réduite aux termes correspondants à la chute des particules à la vitesse  $v$  et à la diffusion en régime permanent, conduit à une fonction de la forme :

$$s = s_m \exp \left( -\frac{z}{D/v} \right) \quad (3)$$

où  $s_m$  est la valeur déterminée de l'activité au niveau de la thermocline,  $z$ , la hauteur au-dessus de la thermocline,  $D$  le coefficient de diffusion pour les particules considérées.

De même que dans le cas précédent, la détermination des coefficients  $s_m$  et  $D/v$  est effectuée à partir des valeurs expérimentales des profils d'activité dans la zone située au-dessus de la thermocline, par la méthode des moindres carrés. Par ailleurs, nous avons obtenu par centrifugation, avec les approximations que cela comporte, une évaluation de la vitesse moyenne de chute dans la mer des particules porteuses de l'activité observée. La valeur obtenue de  $2.10^{-6} \text{ cm s}^{-1}$  permet de déduire, pour chaque profil expérimental, la valeur du coefficient de diffusion verticale  $D$  pour ces particules.

De même que dans le cas précédent, par stations ces valeurs sont très voisines quelque soit le groupe de nuclides étudié, ce qui suggère l'identité de la nature des particules porteuses de l'activité. On observe, dans le domaine B, des coefficients de diffusion plus faibles que ceux obtenus pour les nuclides solubilisés dans le domaine A.

### Domaine C.

Pour le domaine C, un plus grand nombre de mesures serait nécessaire pour pouvoir donner une interprétation correcte du phénomène de franchissement de la thermocline. Dans tous les cas, nous avons pu constater que l'activité mesurée devient presque nulle quand le sondage dépasse la thermocline. Il est nécessaire d'envisager de faire des mesures plus serrées dans le temps et dans l'espace. Les faibles activités mesurées au-delà de la thermocline rendent ces mesures extrêmement délicates.

### Conclusions.

Dans tous les cas, les coefficients de diffusion verticale que nous avons obtenus dans le domaine A des eaux de surface sont faibles comparés aux valeurs indiquées par d'autres auteurs (SVERDRUP). Ceci semble montrer la présence d'une stratification et la faible influence des phénomènes extérieurs qui auraient pu tendre à homogénéiser les activités.

Nous avons observé, par ailleurs, des répartitions sensiblement homogènes au-dessus de la thermocline, lorsque celle-ci est proche de la surface (50 mètres). Ceci peut être expliqué par deux processus différents : soit par l'absence de stratification, soit par le rapprochement du domaine A et du domaine B qui ne peuvent alors être différenciés.

Les résultats que nous avons présentés ici, donnent une image encore approximative mais satisfaisante des mécanismes qui contribuent à l'accumulation de certains radionuclides apportés par les retombées atmosphériques, dans la couche de surface de la mer<sup>(1)</sup>.

*Service d'Electronique Physique, Centre d'Études Nucléaires de Saclay  
et Centre des Faibles Radioactivités, C.N.R.S. Gif-sur-Yvette.*

### BIBLIOGRAPHIE

- CHESSELET (R.) et NORDEMANN (D.), 1963. — Étude de la radioactivité des eaux de la Méditerranée occidentale par spectrométrie gamma *in situ* (1961-1962). — *Bull. Inst. océanogr.*, Monaco, n° 1266 **60**, et *I.A.E.A. Radiocativity in the sea*, Publ. n° 2.
- CHESSELET (R.), LALOU (C.) et NORDEMANN (D.), 1965. — Méthodes et résultats de mesures de radioactivité dans la mer. — *Cab. du C.E.R.B.O.M.*, Nice (sous presse).

---

(1) Note : Au cours de la même assemblée de la C.I.E.S.M., Bernard SAINT-GUILLY, calculant des coefficients de diffusion thermique turbulente dans les eaux de surface de la Méditerranée occidentale a donné des valeurs très voisines de celles que nous avons calculées pour le domaine A.

- HELA (I.), 1963. — Surface currents of the Ligurian sea. — *Bull. Inst. oceanogr.*, Monaco, n° 1268, **60** et *I.A.E.A. Radioactivity in the sea*, Publ n° 4.
- JERLOV (N.G.), 1959. — Maxima in the vertical distribution of particles on the sea. — *Deep Sea. res.*, **5**: 178-184.
- JOSEPH (J.), 1955. — Extinction measurements to indicate distribution and transport of water masses. — *Proc. U.N.E.S.C.O., symposium on Physical oceanography Tokyo*.
- LOWMAN (F.G.), 1960. — Marine biological investigations at the Eniwetok test site. Disposal of radioactive wastes. — Monaco, November 1959.
- SAINT-GUILLY (B.), 1964-1965. — Valeurs du coefficient de diffusion thermique turbulente au niveau de la pycnocline. — *Comm. int. Explor. sci. Mer. Médit., Rapp. et P.V.* (sous presse).
- SVERDRUP (H.U.), JOHNSON (N.M.) et FLEMING (R.H.), 1959. — The oceans (8<sup>e</sup> édition) Prentice hall inc.
-