

# ÉTUDE DE L'ÉVOLUTION DANS LE MILIEU MARIN DES PARTICULES RADIOACTIVES AYANT POUR ORIGINE LES AÉROSOLS DE LA RETOMBÉE ATMOSPHÉRIQUE

par Roger CHESSELET et Claude LALOU

Au cours de recherches récentes sur la radioactivité du milieu marin, nous avons plus spécialement étudié des radionuclides émetteurs gamma tels que le zirconium 95 niobium 95, les cerium 141 cerium 144 praséodyme 144 et les ruthenium 106 rhodium 106 qui étaient présents, à l'époque de nos mesures, en quantité notable dans les retombées atmosphériques depuis la reprise des tests nucléaires dans l'atmosphère en octobre 1961. Nous avons spécialement étudié ces corps dans le milieu marin en tant que « traceurs » de mécanismes à évolution rapide dans l'étude de la cinétique de la contamination du milieu marin.

Les processus qui, dans l'eau de mer, peuvent faire varier l'état physico-chimique et les dimensions des particules radioactives injectées à la surface de la mer sont très nombreux, extrêmement complexes et de ce fait très mal connus (FREILING et BALLOU, 1962).

Le temps de résidence des radionuclides sous forme de particules dans l'eau de mer est directement lié à la vitesse de sédimentation de ces particules, donc à leur taille, et les variations de leur solubilité peuvent intervenir dans les phénomènes de concentration.

C'est pourquoi, tout au long de cette étude, nous allons tenter de savoir quelles sont les modifications que les particules issues des retombées atmosphériques subissent du fait de leur injection dans la mer, et quelles sont les conséquences qu'entraînent ces modifications dans les processus de contamination.

Quand elles ont atteint la surface de la mer, les particules radioactives que nous avons étudiées peuvent, soit continuer d'exister dans l'eau à l'état particulaire, soit se solubiliser.

Nous allons donc envisager les différents modes de concentration en fonction de ces deux états des particules radioactives dans la mer.

En ce qui concerne l'état particulaire de la retombée et son incidence sur les phénomènes de concentration, nous avons pu montrer récemment, au cours d'une étude systématique sur des pêches planctoniques effectuées pendant un an dans la région côtière de Nice par le Centre d'Étude et de Recherches de Biologie et d'Océanographie médicales, que les concentrations dans le plancton étaient dues à l'absorption de particules radioactives et essentiellement liées à la retombée immédiate présente dans la mer sous forme particulaire (CHESSELET et LALOU, 1964a).

Parallèlement nous avons, d'une part, mesuré en divers points et à diverses profondeurs, l'activité spécifique de l'eau de mer pour les nuclides étudiés, et d'autre part, filtré de grands volumes (2 000 litres) de cette eau de mer sur des filtres Millipore de très faible porosité (0,45 microns) (CHESSELET et NORDEMANN, 1963). Nous avons pu constater que l'activité retenue par ces filtres ne représentait que 1 à 10 % de l'activité spécifique de l'eau de mer (Méditerranée occidentale juillet 1962, décembre 1963) et nous avons pu vérifier que cette activité retenue

sur les filtres correspondait uniquement à l'activité spécifique que l'on trouvait à cette époque dans le seston. Pour le zirconium 95 niobium 95 par exemple, dans la Baie des Anges, on a trouvé à l'époque (juillet 1962) une activité spécifique de l'eau de mer d'environ 7 pCi/litre, et sur le filtre correspondant une activité de 0,05 pCi/litre. Sachant qu'on a environ 0,5 gramme de seston sec par mètre cube dans cette région, les 0,05 pCi/litre correspondent à une activité spécifique du seston en zirconium 95 niobium 95 d'environ 100 pCi/gramme. Cette activité spécifique correspond bien aux activités moyennes que nous avons mesurées par ailleurs dans le seston pour cette région. Donc environ 90 % de l'activité spécifique de l'eau de mer se trouve en solution, alors qu'il suffisait de filtrer grossièrement les eaux de précipitation pour arrêter sur le filtre 90 % de l'activité due aux émetteurs étudiés.

<sup>95</sup> Zr <sup>95</sup> Nb mCi/km <sup>2</sup>	<sup>103</sup> Ru mCi / km <sup>2</sup>	<sup>106</sup> Ru mCi / km <sup>2</sup>	<sup>103</sup> Ru + <sup>106</sup> Ru mCi / km <sup>2</sup>	<sup>141</sup> Ce mCi / km <sup>2</sup>	<sup>144</sup> Ce mCi / km <sup>2</sup>	<sup>141</sup> Ce + <sup>144</sup> Ce mCi / km <sup>2</sup>
119	9	267	276	4	544	548

TABLE. I. — Activités résiduelles en Méditerranée en décembre 1963.

Dans une expérience faite au laboratoire nous avons cherché à préciser les conditions de solubilisation en fonction du temps que nous avons ainsi constatée *in situ* (CHESSELET et LALOU, 1965). Dans cette expérience nous avons cherché à nous écarter le moins possible des conditions réelles dans lesquelles les aérosols radioactifs arrivent à la surface de la mer. Cette expérimentation, quoique grossière à plus d'un titre, nous a apporté des précisions intéressantes.

Pour simuler l'injection des aérosols radioactifs dans l'eau de mer, nous avons utilisé comme source d'aérosols radioactifs une gaze qui avait filtré sur un collecteur C.R.A.P.A.L. à la fois la retombée sèche et la retombée humide pendant un mois dans la région de Nice, en avril 1963.

La couche d'aérosols retenue par cette gaze était donc bien représentative de la retombée réelle. L'injection des aérosols radioactifs a été faite dans un volume défini d'eau de mer naturelle prélevée dans cette région, suffisamment ancienne pour ne plus présenter de radioactivité décelable due aux corps que nous avons étudiés. Cette eau de mer, après être restée en contact des laps de temps définis avec la gaze support des aérosols radioactifs, était filtrée sur un filtre de 0,45 micron de porosité. Nous avons pu constater qu'après quelques heures 50 % de l'activité initiale présentée par la gaze de collection étaient retrouvés au-delà du filtre et qu'ensuite, au cours du temps, on retrouvait toujours au-delà du filtre une quantité croissante d'activité, et ceci pour les trois radionuclides étudiés (fig. 1).

Les résultats de cette expérience vérifiaient donc les résultats obtenus lors des filtrations *in situ* et étaient en accord avec ce que nous avons avancé au sujet de la « susceptibilité » du plancton à la retombée immédiate, celle-ci étant encore sous forme de particules alors que l'activité spécifique de l'eau de mer elle-même est due en majorité à l'activité en solution.

À côté du zooplancton, dont la concentration en radionuclides est régie par les mécanismes d'absorption, il existe dans la mer de nombreuses autres particules : le phytoplancton, le détritus, composé essentiellement de matière organique en décomposition et de matière inorganique, la matière en suspension qui forme la charge d'un fleuve, en majorité minérale détritrique et finalement le sédiment. Sur ces trois dernières fractions principales ce sont essentiellement les phénomènes d'adsorption qui régissent les concentrations en radionuclides.

Nous allons étudier ici successivement ces trois vecteurs de la radio-activité dans la mer.

Le détritus que nous avons étudié, a été récolté en même temps que les pêches planctoniques, il est essentiellement constitué de polysaccharides et d'alginate (SENEZ, comm. pers.) et par conséquent semble être du à la décomposition de matière végétale. Le très grand pouvoir d'adsorption que l'on a constaté est lié à la décomposition de cette matière et aux groupes

polaires nombreux qu'elle présente (POLIKARPOV, 1961). Le facteur de concentration du détritit par rapport au plancton a pu être évalué, son activité spécifique est dix fois supérieure à celle

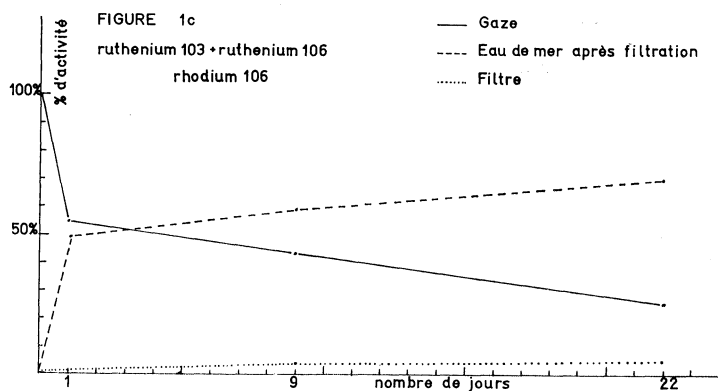
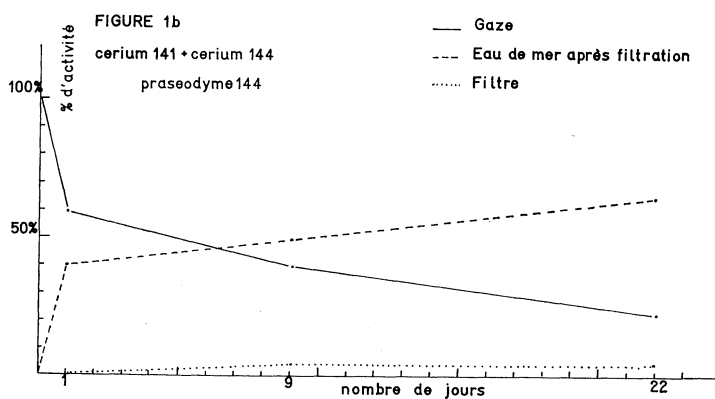
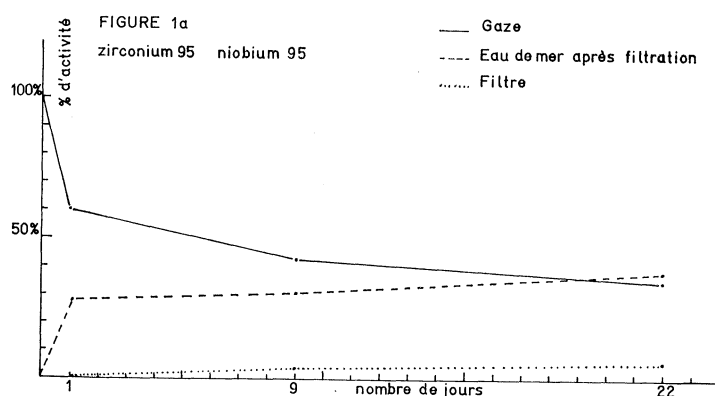


FIG. 1. — Courbes de solubilisation des débris radioactifs atmosphériques dans l'eau de mer : a pour le zirconium 95 + niobium 95; b pour le cerium 141, cerium 144, praséodyme 144; c pour le ruthenium 103, ruthenium 106, rhodium 106.

du plancton. Des mesures d'activité bêta totale sur du détritit trié ont donné une activité spécifique de 3 250 pCi/g, et pour le plancton seul une activité spécifique de 300 pCi/g.

Le rôle du détritit comme vecteur de la radioactivité peut devenir extrêmement important puisque, dans le cas où il y a pénurie de phytoplancton, il sert de réserve de nourriture au

plancton, et que, surtout, pendant qu'il sédimente, il sert de nourriture aux animaux pélagiques et benthiques (KREY, 1961).

En ce qui concerne le pouvoir d'adsorption des particules terrigènes, il peut y avoir un rôle très important car on peut lui attribuer un véritable rôle de nettoyage de la radioactivité lorsqu'il est injecté en concentrations suffisantes dans la mer par un fleuve. Nous avons pu en effet constater que les concentrations en radionuclides artificiels portées par la charge d'un fleuve augmentaient rapidement lorsque cette charge est introduite dans la mer. Il peut donc y avoir compétition entre les particules inorganiques inférieures à 50 microns, même présentes en très faible concentration (5 mg/l) et la matière vivante dans la fixation des radionuclides artificiels présents dans la mer. On a pu montrer dans le Var, que 15 % environ de l'activité spécifique en cerium 141 cerium 144 praséodyme 144 de la retombée collectée pendant le même temps étaient fixés pendant les premières heures du transit des particules terrigènes à la surface de la mer (CHESSELET et LALOU, 1964b).

Bien que nos recherches ne nous aient pas conduits à une étude extensive des sédiments, nous avons cependant quelques résultats obtenus au cours de notre étude de cette région qui a été effectuée en commun avec le Centre d'Étude et de Recherches de biologie et d'océanographie médicales de Nice.

Les mécanismes qui peuvent rendre compte des concentrations des produits de fission de la couche superficielle des sédiments sont de deux ordres :

- 1) le pouvoir d'adsorption de la surface du sédiment lui-même vis-à-vis des particules radioactives en suspension dans la mer;
- 2) l'apport à la surface du sédiment de tous les matériaux dont la radioactivité est liée aux différents mécanismes de concentration.

Le rôle de cette couche superficielle des sédiments dans le cycle des nuclides radioactifs artificiels dans la mer a aussi son importance. C'est en effet cette couche, riche en matière organique, qui est ingérée par les animaux benthiques tels que les Annélides, les Holothurides, les éponges etc...

Dans une étude sur les Holothuries de faible profondeur (3 à 40 mètres) nous avons pu mettre en évidence des facteurs de concentration importants de ces radionuclides dans les viscères de ces animaux par rapport au sable sur lequel elles vivent, ces facteurs étaient de 6,6 en moyenne pour les zirconium 95 niobium 95 et de 2,8 en moyenne pour les cerium 141 cerium 144 praséodyme 144 (CHESSELET et LALOU, 1964c).

Nous avons étudié les sédiments dans le cours fluvial et marin du Var.

Dans le cours fluvial du Var, les stations étaient réparties tous les kilomètres jusqu'à 4 km en amont de l'embouchure. Nous avons constaté :

- 1) que, dans l'eau filtrée, pour le zirconium 95 niobium 95, les différentes stations dans le cours du Var montrent une activité spécifique constante moyenne d'environ 2 pCi/l, pour les ruthenium 103 ruthenium 106 rhodium 106, 0pCi/l et pour les cerium 141 cerium 144 praséodyme 144, 4,7 pCi/l;
- 2) que, dans le sédiment, l'activité moyenne en zirconium est d'environ 3 pCi/g pour l'échantillon brut, 4 pCi/g pour les ruthenium 103 ruthenium 106 rhodium 106 et 5 pCi/g pour les cerium 141 cerium 144 praséodyme 144.

Quand on fait le rapport entre l'activité spécifique de la fraction grossière (>63 microns) et celle de la fraction fine (>63 microns) on trouve que l'activité spécifique de la fraction fine est environ 4 fois supérieure à celle de la fraction grossière pour tous les radionuclides étudiés.

Dans l'eau de mer, à l'embouchure du fleuve, les activités en surface à l'époque de nos mesures étaient de 12 pCi/l pour les zirconium 95 niobium 95, 15 pCi/l pour les ruthenium 103 ruthenium 106 rhodium 106 et 23 pCi/l pour les cerium 141 cerium 144 praséodyme 144. La comparaison entre les activités apportées par l'eau du fleuve et les activités spécifiques de l'eau

de mer de surface montrent que les taux d'activité dans l'eau de mer ne peuvent pas être dus à un apport fluvial, l'eau du fleuve étant nettoyée par la grande quantité de particules en suspension, l'activité se retrouvant dans la partie fine des sédiments. Comme nous l'avons dit plus haut, la partie fine de la charge du fleuve continue à se charger d'activité après son injection dans la mer et sédimente lorsque le courant superficiel créé par le fleuve n'est plus suffisant pour le maintenir en suspension.

zirconium 95 niobium 95 (pCi/g)	2,3	4,3
ruthenium 103 ruthenium 106 rhodium 106 (pCi/g)	7,2	12,1
cerium 141 cerium 144 praséodyme 144 (pCi/g)	8,2	13,6

TABLEAU 2

Le tableau 2 donne les résultats des mesures d'activité pour les sédiments de deux stations de la région d'Antibes (1/2 mille dans l'est du cap d'Antibes) qui est une région où peuvent s'accumuler de telles particules.

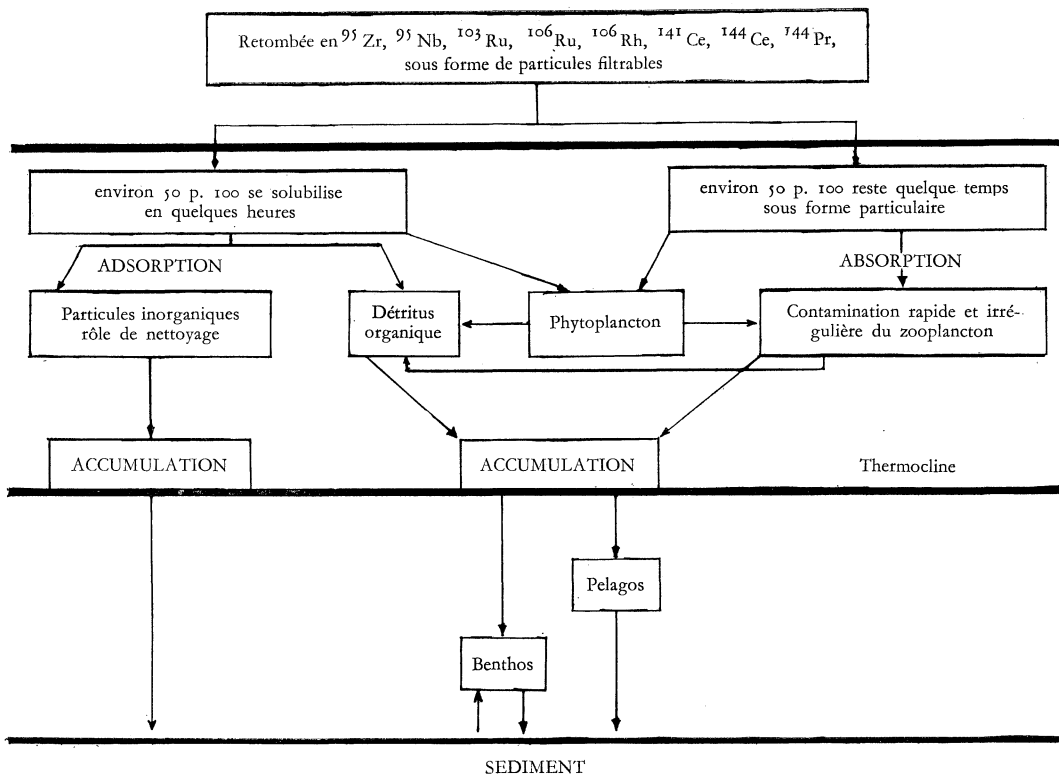


FIG. 2. — Schéma représentant les diverses voies que peuvent emprunter les radionuclides zirconium 95 niobium 95, ruthenium 103 ruthenium 106 rhodium 106, cerium 141 cerium 144 praséodyme 144 issus des retombées atmosphériques pour atteindre le fond.

Conclusions.

A la suite de cet ensemble de résultats sur les différents modes de concentration sur les diverses particules en suspension, on peut établir le schéma de la figure 2 pour représenter les diverses voies que peuvent emprunter les radionuclides zirconium 95 niobium 95, ruthenium 103 ruthenium 106 rhodium 106, cerium 141 cerium 144 praséodyme 144 issus des retombées atmosphériques pour atteindre le sédiment du fond après un temps de résidence plus ou moins

long dans la zone d'accumulation que nous avons pu par ailleurs mettre en évidence au niveau de la thermocline (CHESSELET, LALOU et NORDEMANN, 1964).

Les résultats que nous avons décrits ici font partie d'un bilan que nous avons tenté de dresser concernant la radioactivité artificielle apportée par les retombées atmosphériques et ses incidences dans les couches superficielles du milieu marin.

### BIBLIOGRAPHIE

- CHESSELET (R.) et LALOU (C.), 1964a. — Recherches récentes sur la radioactivité du plancton et du détritus organique (1<sup>re</sup> partie). — *Coll. int. pollut. milieu mar. C.E.R.B.O.M.*, Nice.
- 1964b. — Contribution à l'étude de l'influence du débit solide d'un fleuve sur les concentrations en nuclides radioactifs des eaux côtières adjacentes. — *Cab. C.E.R.B.O.M.*, 18 (1).
- 1964c. — Concentrations en radionuclides émetteurs gamma présentées par les Holothuries prélevées dans la zone côtière d'Antibes au cap Ferrat en août 1962. — *Bull. Inst. océanogr.*, Monaco, 63, n° 1305.
- CHESSELET (R.), LALOU (C.) et NORDEMANN (D.), 1964-1965. — Résultats de mesures récentes de spectrométrie gamma *in situ* en Méditerranée occidentale (Campagne « Calypso » décembre 1963). — *Comm. int. Explor. sci. Mer Médit., Rapp. et P.V.* (sous presse).
- CHESSELET (R.) et LALOU (C.), 1965. — Résultats d'une étude expérimentale de dispersion de débris radioactifs atmosphériques dans l'eau de mer. — *Bull. inst. oceanogr.*, Monaco, n° 1228 et *Radioactivity in the sea*, Publ. n° 15 AIEA.
- 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, 60, n° 1266 et IAEA *Radioactivity in the sea*, Publ. n° 2.
- FREILING (E.C.) et BALLOU (N.E.), 1962. — Nature of nuclear debris in sea water. — *Nature*.
- KREY (J.), 1961. — Der detritus im meer. — *J. Cons. perm. int. Explor. Mer*, 26 : 263-280.
- POLIKARPOV (G.G.), 1961. — The role of detritus formation in the movment of strontium 90, ceasium 137 an cerium 144. — *URSS, Acad. Sci. Reports*, 136 n° 4.
-