

**Distribution spatio-temporelle des radioéléments issus  
des retombées de l'accident nucléaire de Tchernobyl  
au sein des différents compartiments  
du Bassin Méditerranéen nord-occidental**

D. CALMET\*, J.M. FERNANDEZ\*, G. GONTIER\*, S. CHARMASSON\* et Y. BARON\*\*

\* Commissariat à l'Energie Atomique, IPSN, DERS, SERE, Station Marine de Toulon,  
B.P. 330, 83507 La Seyne-sur-Mer Cedex (France)

\*\* Groupe d'Etudes Atomiques, EAMEA, B.P. 19, 50115 Cherbourg Naval (France)

**Résumé**

A la suite de l'accident nucléaire du réacteur n°4 de Tchernobyl le 26 avril 1986 un programme d'études du devenir des radioéléments associés aux retombées atmosphériques de l'accident a été mis en place sur l'ensemble du domaine marin français. Ainsi des échantillons d'eaux de mer, de matières en suspension, de sédiments et de bioindicateurs marins (algues, phanérogame, mollusques, poissons) ont fait l'objet de collecte sur plus de 30 sites du littoral continental et insulaire méditerranéen du bassin nord-occidental français afin de mesurer les différents émetteurs gamma anthropogènes. Ces mesures (3000) sont venues compléter une base de données, dénommée **RADMED** pour Radioactivité de la mer Méditerranée, créée en 1981 et renfermant des résultats acquis depuis 1975. L'exploitation de cette base de données permet aujourd'hui d'évaluer l'impact des retombées atmosphériques suite à l'accident de Tchernobyl en comparaison avec les niveaux radiologiques associés aux rejets liquides faiblement radioactifs industriels chroniques et aux retombées atmosphériques dues aux essais d'armes nucléaires d'armes dans l'atmosphère de l'hémisphère nord dont le dernier date de 1979.

L'analyse de l'ensemble des données au cours du temps montre que la totalité des indicateurs prélevés: eaux de mer, sédiments et bioindicateurs ont réagi très rapidement à l'introduction des radioéléments issus de l'accident de Tchernobyl par l'apparition brutale principalement de  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{141}\text{Ce}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{110m}\text{Ag}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ . Cependant au cours des 30 premiers jours les niveaux de ces radioéléments ont décliné de près de 60 à 90%. Dans le cas des éléments à vie courte comme le  $^{131}\text{I}$ , ces derniers ont disparus totalement en quelques semaines. En 1987, 18 mois après l'accident, seuls  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{110m}\text{Ag}$  et  $^{106}\text{Ru}$  sont encore détectés régulièrement dans les différentes composantes de l'environnement marin méditerranéen. Dans l'espace, la région française la plus touchée se limitait à la portion est du littoral méditerranéen de Toulon à Monaco y compris le littoral corse.

Dans les zones exemptes de tous rejets industriels faiblement radioactifs la modélisation des phases d'élimination des radioéléments des organismes marins comme *Mytilus* sp. dans le cadre d'un Mussel Watch permet de quantifier les différentes périodes d'élimination biologiques et de les comparer avec celles obtenues dans le cadre d'expériences en situation de contamination chronique. Ainsi la modélisation de l'élimination des isotopes  $^{103}\text{Ru}$  et  $^{106}\text{Ru}$  du ruthénium conduit à des périodes biologiques inférieures de moitié en ce qui concerne la période d'élimination la plus lente. Cette constatation laisse supposer que dans le cas de situations accidentelles ponctuelles la contamination des organismes est plus labile qu'elle ne l'est dans le cas de situation de contaminations chroniques.

L'échantillonnage des sédiments non soumis à des apports telluriques importants montre une incorporation différentes des radioéléments au sein de la colonne sédimentaire. Ainsi, au cours du deuxième semestre 1986 et en 1987 le  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{144}\text{Ce}$  sont détectés uniquement dans les 2 premiers cm de surface des dépôts sédimentaires tandis que le  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{134}\text{Cs}$  pénètrent jusque 10 cm de profondeur. Au niveau des embouchures des rivières, comme celles du Var et de l'Argens, les sédiments sont marqués plus profondément en fonction de l'importance des apports fluviaux, mais en 1987 les teneurs en  $^{137}\text{Cs}$  de l'horizon centimétrique de surface diminuent par rapport à l'horizon sous-jacent, ce qui traduit des apports récents moins marqués.

Dans les zones soumises à des rejets industriels, comme l'estuaire du Rhône, l'impact de Tchernobyl au sein des organismes marins n'a été visible que pendant une courte période de l'ordre de 90 jours pour les radioéléments comme le  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  et le  $^{106}\text{Ru}$  eux-mêmes rejetés dans les effluents liquides faiblement radioactifs des installations nucléaires. Au sein des masses d'eau de l'aire de dilution rhodanienne l'étude du  $^{137}\text{Cs}$  permet le traçage des eaux du Rhône dans l'ensemble du Golfe du Lion qu'elle traversent suivant un axe nord-est sud-est jusqu'au Cap Béar. Au niveau de la colonne sédimentaire les mesures réalisées sur des horizons centimétriques sur plus de 30 cm permet de visualiser les apports dus aux retombées de Tchernobyl des apports industriels. En particulier à partir du rapport  $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$ , proche de 2.0 dans le cas des apports caractéristiques de Tchernobyl, l'on peut établir des taux de sédimentation dans la zone du talus prodeltaïque de l'ordre de 36 cm/an qui correspondent à ce qui calculés par ailleurs.

L'exploitation de la base de données RADMED permet donc de resituer l'incidence des retombées atmosphériques de l'accident de Tchernobyl dans le contexte radiologique du bassin nord-occidental méditerranéen en situation normale. L'extension et/ou la comparaison avec d'autres bases de données devraient permettre de généraliser ou non certaines de nos observations. Ainsi la recherche de bioindicateurs utilisables sur l'ensemble de la mer Méditerranée, comme peut l'être la phanérogame marine *Posidonia oceanica*, pourrait aboutir à des standards permettant la comparaison des niveaux de contamination.

**Flux of artificial radionuclides  
in the Northwestern Mediterranean**

S.W. FOWLER\*, S. BALLESTRA\*, J. LA ROSA\* and P. BUAT-MENARD\*\*

\* International Atomic Energy Agency, International Laboratory of Marine Radioactivity,  
2 Avenue Prince Héréditaire Albert, 98000 Monaco (Principauté de Monaco)  
\*\* Centre des Faibles Radioactivités, Laboratoire Mixte CNRS-CEA, B.P. 1,  
91190 Gif-sur-Yvette (France)

**ABSTRACT**

Sediment trap experiments have been used to measure the vertical flux of artificial radionuclides at several locations in the northwestern Mediterranean. Radionuclides originating from the Chernobyl accident were also measured and the mechanism for their rapid vertical transport identified. Based on similar flux studies in the North Pacific, there is evidence that the behaviour of particulate-associated  $^{241}\text{Am}$  relative to  $^{239+240}\text{Pu}$  may be different in Mediterranean waters.

**INTRODUCTION**

Recent biogeochemical flux studies have been instrumental in furnishing data on the vertical flux of natural and artificial radionuclides through the water column in the North Pacific and North Atlantic, however, to date similar information for the Mediterranean has been lacking. Data for several artificial radionuclides are now accruing from sediment trap studies carried out at selected sites in the northwestern basin and the Ligurian Sea. The overall goal is to establish rates at which surface-introduced artificial radionuclides are transported through the water column to the bottom sediments. Preliminary results from these studies are reviewed here and compared with similar measurements from other oceanic areas.

**RESULTS AND DISCUSSION**

Within the French ECOMARGE Programme, the transuranium nuclides  $^{239+240}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Am}$  were measured in samples from sediment traps at 80, 200 and 315 m in a 650 m water column in the Lacaze-Duthiers Canyon, Golfe du Lion (Fowler et al., 1987a). Plutonium concentrations ranging from 0.6-1.4 Bq kg<sup>-1</sup> dry were somewhat lower than those which have been measured in samples from the open North Pacific; however, the average  $^{239+240}\text{Pu}$  flux in the upper 315 m, 7.4 mBq m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>, was one to two orders of magnitude higher than has been found in the North Pacific due to the much greater mass fluxes (e.g. up to 13 g m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup>) in the high energy environment of the Lacaze-Duthiers Canyon. Considering that the majority of the atmospheric fallout has taken place since 1958, a total integrated  $^{239+240}\text{Pu}$  deposition of roughly 67 mBq km<sup>-2</sup> can be computed for the 25-year period. This is in good agreement with the value of 78 mBq Pu km<sup>-2</sup> calculated for fallout during the same period at 43°N by the US Health and Safety Laboratory. However, from cores taken in the Golfe du Lion, the Pu inventory in the sediments is only about 30 mBq km<sup>-2</sup>. This suggests that a substantial fraction of the particulate-associated Pu is not retained in the sediments.

Similar measurements were made during the DYFAMED I experiment (April-May 1986) at a station in the Ligurian Sea (Fowler et al., 1987b). An automated time-series sediment trap was moored 15 nautical miles off Calvi, Corsica at a depth of 200 m in a 2200 m water column. The six consecutive samples, each one set to collect over a 6.25 day interval, contained  $^{239+240}\text{Pu}$  concentrations ranging from 1.6-9.6 Bq kg<sup>-1</sup> dry. All samples were very rich in ungraded organic material with an average C/N ratio of approximately 8. Corresponding plutonium fluxes 0.17-1.1 mBq m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup> were lower than those observed in the Golfe du Lion because of the much lower particle mass flux in the Ligurian Sea.

Studies from the VERTEX Programme in the North Pacific have shown that  $^{241}\text{Am}$ , because of its greater reactivity with particles, is scavenged preferentially from the water column compared to  $^{239+240}\text{Pu}$  (Fowler et al., 1983; 1985). Activity ratios of  $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$  as high as 3.0 have been measured in large particles from sediment traps at depth. In contrast, while  $^{241}\text{Am}$  also appears to be removed rapidly from the water column in the Mediterranean, its relative reactivity compared to plutonium may be different as evidenced by much lower activity ratios of approximately 0.1 to 0.4 in trapped and suspended (Ballestra et al., 1981) particulates.

During the DYFAMED I experiment, the Chernobyl accident occurred on 26 April 1986 which resulted in the introduction of substantial amounts of artificial radionuclides into the Mediterranean region over the following few days. Sediment trap analyses for both alpha and gamma emitters showed maximum downward fluxes through 200 m approximately seven days after the peak radioactivity was delivered to the surface on 3 May. Fluxes in Bq m<sup>-2</sup> d<sup>-1</sup> through 200 m during the period 8-15 May averaged 1.3 for  $^{95}\text{Zr}$ , 1.3 for  $^{103}\text{Ru}$ , 0.1 for  $^{134}\text{Cs}$ , 0.2 for  $^{137}\text{Cs}$ , 0.7 for  $^{141}\text{Ce}$ , 0.7 for  $^{144}\text{Ce}$  and 0.003 for  $^{239+240}\text{Pu}$ . Microscopic examination indicated that most of the sinking particles were zooplankton fecal pellets. Concentrations of the same radionuclides in fecal pellets produced by copepods in the surface layers were similar to levels found in the trapped particles confirming pellets as the prime conveyors of radionuclide flux out of the euphotic zone.

Dry and wet fallout measurements made at Monaco during May 1986 were used to establish deposition inventories for several of the radionuclides (Holm et al., in press). Coupling these measurements with total integrated flux of the Chernobyl-derived radionuclides suggests that up to 76% of  $^{239+240}\text{Pu}$  and 50% of the Ce nuclides deposited in this region of the Ligurian Sea had passed through 200 m depth by 21 May. For the less particle-reactive  $^{137}\text{Cs}$ , only 0.2% of the total amount deposited had reached 200 m by the same time indicating that most of the  $^{137}\text{Cs}$  inventory remained in the upper water column after the DYFAMED experiment. Similar studies carried out in collaboration with the Italian ENEA during the following July indicated that less particle reactive elements such as the Ru and Cs nuclides were still being transported by sinking particles at all depths down to 250 m off the coast of La Spezia (Fowler et al., in prep.). However, no fallout signal was detected in bottom sediments at 500 m at the same site. This preliminary observation suggests the presence of a mechanism that considerably slowed the downward descent of these contaminated particles in deeper waters and their eventual incorporation in bottom sediments. More cores from deeper waters are needed to discern the exact time frame for the vertical transport of Chernobyl-derived radionuclides in the Northwestern Mediterranean.

**REFERENCES**

- Ballestra, S., Thein, M. & Fukai, R. *V<sup>66</sup> Journées Etud. Pollutions*, pp. 991-996, C.I.E.S.M., Monaco (1981).
- Fowler, S.W., Ballestra, S., La Rosa, J. & Fukai, R. *Deep-Sea Res.* 30: 1221-1233 (1983).
- Fowler, S.W., Ballestra, S., La Rosa, J. & Small, L.F. *EOS*, 66: 129 (1985).
- Fowler, S.W., Ballestra, S., Villeneuve, J.-P. & Heusener, S. *Coll. Intern. Oceanol., Perpignan*, p. 56, C.I.E.S.M., Monaco (1987a).
- Fowler, S.W., Buat-Menard, P., Yokoyama, Y., Ballestra, S., Holm, E. & Nguyen, H.V. *Nature* 329: 56-58 (1987b).
- Fowler, S.W., Schulte, E., La Rosa, J., Delfanti, R. & Papucci, C. (MS in preparation).
- Holm, E., Aarkrog, A., Ballestra, S. & Lopez, J.J. *IV<sup>em</sup> Symp. Intern. de Radioécologie de Cadarache, Impact des Accidents d'Origine Nucléaire sur l'Environnement* (in press).