

DIFFUSION DU PLUTONIUM EN MILIEU MARIN  
 ETUDE QUANTITATIVE EFFECTUEE SUR DES ESPECES MARINES  
 DU LITTORAL DE LA MANCHE  
 DE BREST (Pointe St Mathieu) A HONFLEUR \*

A. FRAIZIER et J.C. GUARY  
 Commissariat à l'Energie Atomique  
 Laboratoire de Radioécologie Marine  
 B.P. 270 - 50107 CHERBOURG, France

## 1. INTRODUCTION

Nous avons, dans cette étude réalisée en 1975-1976, mesuré la radioactivité due au plutonium chez diverses espèces marines recueillies dans un secteur situé de part et d'autre de l'usine de retraitement des combustibles irradiés de La Hague (Brest/Pointe St Mathieu - Honfleur) (Fig. 1).

Nos résultats sont susceptibles d'apporter des compléments d'information sur la diffusion du plutonium en mer, depuis un émissaire de rejets d'effluents radioactifs : en effet, à l'exception de travaux concernant le comportement du plutonium dans l'environnement marin proche de l'usine de retraitement des combustibles irradiés de Windscale (Grande-Bretagne), la plupart des recherches font plutôt état du devenir du plutonium issu des retombées atmosphériques, dans le milieu marin.

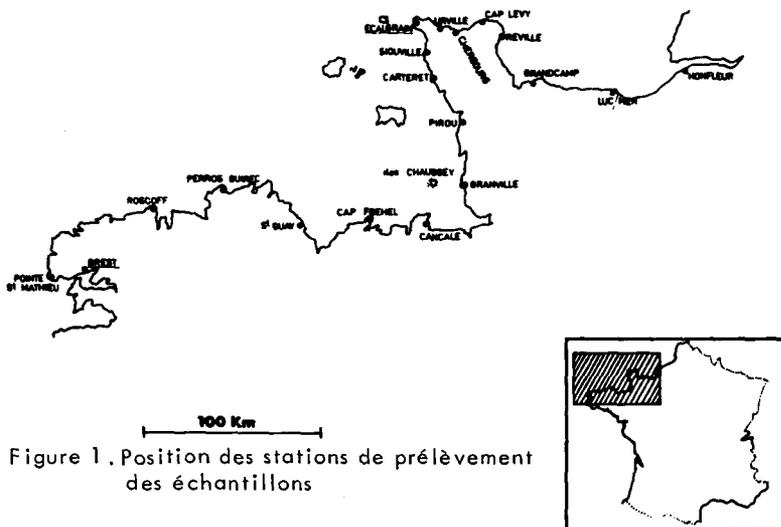


Figure 1. Position des stations de prélèvement des échantillons

## 2. MATERIEL ET METHODES

Les espèces indicatrices suivantes ont été sélectionnées en fonction de leur pouvoir d'accumulation du plutonium et de leur disponibilité (1) : un lichen :

\* Le texte intégral de cette communication sera publié sous forme de rapport CEA : CEA-R-4822 (1977).

Lichina pygmaea (F.C. <sup>1</sup> ~ 4290), deux algues : Corallina officinalis (F.C. ~ 1175) et Fucus serratus (F.C. ~ 423), un spongiaire : Hymeniadion sanguinea (F.C. ~ 1495) et un crustacé cirripède : Balanus balanoides (F.C. ~ 503).

Les emplacements des sites de prélèvement sont indiqués Fig. 1, la station d'Ecalgrain a été choisie en raison de sa proximité de l'émissaire de l'usine de retraitement des combustibles irradiés de La Hague.

Le traitement des échantillons pour la mesure du plutonium fixé a été effectué suivant des méthodes précédemment décrites (2).

### 3. RESULTATS

On trouvera tableau 1 les radioactivités en plutonium (isotopes 238 - 239 et 240) des échantillons prélevés dans les différentes stations. L'évolution des niveaux de radioactivité en fonction de la position des stations de prélèvement le long du littoral est sensiblement identique pour L. pygmaea, F. serratus, C. officinalis et H. sanguinea ; par contre la teneur en plutonium de B. balanoides montre, par rapport aux précédentes, une variation moindre dans l'espace.

Stations de prélèvement	Espèces					
	<u>L. pygmaea</u>		<u>C. officinalis</u>	<u>F. serratus</u>	<u>H. sanguinea</u>	<u>B. balanoides</u>
	1975	1976		1975		
Brest (Pointe St Mathieu)		3,5 ± 0,4				
Roscoff		3,3 ± 0,4				
Perros Guirec		9,5 ± 1,2				
St Quay Portrieux		32,8 ± 4,1				
Cap Fréhel		37,4 ± 4,7				
Cancale			7,8 ± 0,9	3,1 ± 0,3	5,6 ± 0,7	8,4 ± 1,0
Granville	23,5 ± 2,9	43,1 ± 5,4	8,9 ± 1,1		4,2 ± 0,5	4 ± 30,5
Ploù				3,9 ± 0,4		10,2 ± 1,2
Carteret	73,7 ± 9,2	49,1 ± 6,1				8 ± 21,0
Stouville	333 ± 41,6	132,7 ± 16,5	40,1 ± 5,0		26,8 ± 3,3	13,6 ± 1,7
Ecalgrain (La Hague)	174,8 ± 21,8	190,8 ± 23,8	69,4 ± 8,6	23,4 ± 2,9	36,6 ± 4,5	17,5 ± 2,1
Liville			80,6 ± 10,0		28,5 ± 3,5	16,8 ± 2,1
Cap Levy	123,7 ± 15,4	76,1 ± 9,5	27,4 ± 3,4			
Réville			29,1 ± 3,6	19,2 ± 2,4	9,2 ± 1,1	
Grandcamp			20,1 ± 2,5			5,9 ± 0,7
Luc sur mer			5,1 ± 0,6	7,1 ± 0,8	8,5 ± 1,0	5,2 ± 0,6
Honfleur				2,1 ± 0,2		4,1 ± 0,5

TABLEAU 1 - Radioactivité du plutonium fixé par les différentes espèces (pCi/kg frais d'échantillon)

La radioactivité des espèces marquant un maximum au niveau d'Ecalgrain, il convenait de comparer les radioactivités des échantillons des diverses stations à celles mesurées pour ce site particulier. Attribuant à ces dernières une valeur arbitraire égale à 100 nous avons calculé, par rapport à celles-ci, et pour chaque espèce, une valeur relative correspondante exprimée en pourcentage. L'ensemble des pourcentages obtenus pour L. pygmaea, F. serratus, C. officinalis et H. sanguinea (B. balanoides devant être considéré comme un cas particulier) a permis le tracé d'une courbe globale d'évolution de la radioactivité en plutonium, de part et d'autre du point de rejet (Fig. 2).

### 4. DISCUSSION

Les observations selon lesquelles la radioactivité due au plutonium fixé par les cinq espèces choisies diminuait en fonction de la distance entre le point

$$^1 \text{F.C. (Facteur de concentration)} = \frac{\text{Radioactivité spécifique de l'espèce (pCi/kg frais)}}{\text{Radioactivité spécifique de l'eau de mer (pCi/l)}}$$

de rejet de l'usine de La Hague et le point de prélèvement vont dans le sens de celles faites dans le secteur de Windscale. D'après les données de Mitchell (3) (4) (5), le facteur de réduction de la radioactivité de l'algue Porphyra en fonction de la distance du point de rejet de l'usine de Windscale, serait, pour un éloignement de 40 km, de l'ordre de 1,5 à 2,3 - valeurs comparables à celles que nous avons observées à des distances analogues.

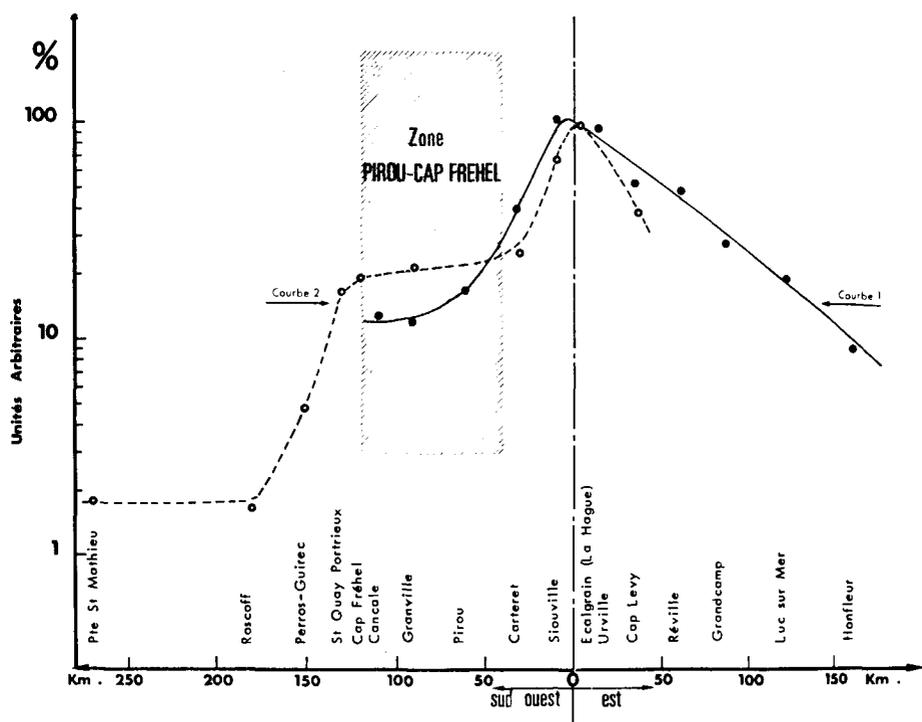


Figure 2. Evolution relative de la radioactivité en plutonium des espèces de part et d'autre de la zone de référence Ecalgrain.

- Courbe 1 : pour l'ensemble des échantillons prélevés en 1975 (à l'exception de B. balanoides)
- Courbe 2 : pour L. pygmaea prélevé en 1976.

Le facteur de réduction pour les stations situées à 100 km est de 5 à 10 par rapport à la zone proche de l'émissaire. A cette distance les niveaux de radioactivité due au plutonium étaient, dans la plupart des cas, encore supérieurs à ceux attribuables aux retombées atmosphériques en milieu océanique et mesurés chez diverses espèces marines : 1,8 pCi/kg frais pour le spongiaire Clathria delicata (Cap Cod - Océan Atlantique, 1970), 0,34 pCi/kg frais pour l'algue rouge Chondrus crispus et 0,57 - 1,36 pCi/kg frais pour l'algue brune Ascophyllum nodosum (Plymouth Harbor - Océan Atlantique, 1971) (6), 0,58 - 0,76 pCi/kg frais pour l'algue brune Laminaria saccharina (ouest de Point Loma - Océan Pacifique, 1973) (7), 5,4 pCi/kg frais pour l'algue brune Fucus vesiculosus (Golfe de Finlande - Mer Baltique, 1974) (8). Au delà de 150 km les niveaux de radioactivité des espèces mesurées tendent à se rapprocher de ces dernières valeurs.

Il apparaît que le plutonium présent dans les effluents liquides de l'usine de La Hague qui subissent une dilution très importante à la sortie de l'émissaire ( $10^6$ - $10^7$ ) (9), peut cependant être détecté dans le milieu marin même à distance ; des constatations analogues ont été faites pour les produits de fission (10).

En ce qui concerne la dissymétrie dans l'évolution du taux de radioactivité des espèces de part et d'autre de la zone de rejet (Fig.2), on peut admettre que celle-ci est en rapport avec le sens général de déplacement de l'effluent dans l'aire marine proche (nord - nord-ouest, puis nord-est) (11). Des mesures effectuées *in situ* en février-mars 1975 (12) ont montré une décroissance régulière de la teneur en plutonium de l'eau de mer depuis une station située au nord du cap de La Hague jusqu'à une station proche des côtes danoises de la mer du Nord, cette teneur variant de  $10,6$  à  $0,4 \cdot 10^{-3}$  pCi/kg. Les auteurs considèrent que ce phénomène est consécutif aux rejets de l'usine. L'examen de la figure 2 montre cependant que les niveaux de radioactivité due au plutonium ne décroissent pas d'une façon régulière en fonction de la distance pour la partie sud et ouest de la zone étudiée, ce qui pourrait correspondre à de moins bonnes conditions d'élimination du radionucléide liées à l'hydrodynamique, aux conditions de sédimentation et à la topographie de cette enclave du littoral. Ceci est à rapprocher des observations faites pour les sédiments en différents points du golfe normanno-breton (13).

Enfin, nous avons constaté que la radioactivité en plutonium de *B. balanoides* n'évoluait pas, en fonction de la distance, suivant une loi identique à celle des autres espèces. Il faut noter que ce crustacé représente, parmi les organismes choisis, l'échelon phylogénétique le plus élevé : des mécanismes biologiques plus évolués pourraient le rendre apte à opérer une certaine discrimination entre les différentes formes physico-chimiques du plutonium, distribuées dans l'espace, à partir de l'émissaire.

## 5. CONCLUSION

Les résultats de nos mesures du plutonium en milieu marin montrent que l'influence des rejets de l'usine de La Hague peut se faire sentir à distance. Il est apparu que la distribution du radioélément dans la zone concernée s'opérait de part et d'autre de l'émissaire de rejet, toutefois sa diminution, en fonction de l'éloignement, présente en direction du sud et de l'ouest (golfe normanno-breton) une certaine discontinuité.

### REFERENCES

- (1) GUARY, J.C., FRAIZIER, A., Observations *in situ*, sur les mécanismes de transfert du plutonium en milieu marin, Note CEA-N-1820 (1975)
- (2) FRAIZIER, A., GUARY, J.C., Recherche d'indicateurs biologiques appropriés au contrôle de la contamination du littoral par le plutonium, in : "Transuranium nuclides in the environment", I.A.E.A., Vienne (1975) 679
- (3) MITCHELL, N.T., Radioactivity in surface and coastal waters of the British Isles, Technical Report FRL 7 (1969)
- (4) MITCHELL, N.T., Radioactivity in surface and coastal waters of the British Isles, Technical Report FRL 8 (1970)
- (5) MITCHELL, N.T., Radioactivity in surface and coastal waters of the British Isles, Technical Report FRL 9 (1971)
- (6) NOSHKIN, V.E., et al., Plutonium in North Atlantic ocean organisms - ecological relationships, in : "Proc. 3<sup>rd</sup> Symp. Radioecology", Oak-Ridge, Vol. II (1971) 681
- (7) HODGE, V.F., et al., Rapid accumulation of plutonium and polonium on giant brown algae, *Mitl Phys.* 27 1 (1974) 29
- (8) MIETTINEN, J.K., et al., Plutonium isotopes in aquatic food chains in the Baltic Sea, in : "Impacts of releases from nuclear facilities into aquatic environments", I.A.E.A., Vienne (1975) 147
- (9) LAPICQUE, G., Etude 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 (1974)
- (10) SCHEIDHAUER, J., Programme de surveillance de l'environnement marin du Centre de La Hague, in : "Population dose evaluation and standards for Man and his environment", I.A.E.A., Vienne (1974) 347
- (11) AUSSET, R., Rejets en mer des eaux résiduaires faiblement radioactives du Centre de La Hague, *La Houille Blanche* 4 (1969) 381
- (12) MURRAY, C.N., KAUSKY, H., Plutonium and americium values in the North Sea and German coastal regions, *Freshwater and Coastal Marine Sciences* (in press)
- (13) GUEGUENIAT, P., et al., Note sur l'évolution de la radioactivité artificielle dans les sédiments de la Manche pendant les années 1971-1975, Rapport CEA-R-4739 (1976)