

UNE METHODE NUMERIQUE D'ETUDE DES FLUCTUATIONS SPATIO-TEMPORELLES DE LA RADIOACTIVITE AU SEIN DES BIO-INDICATEURS MARINS

Jean Le Fur

CEA -Station Marine, CEA-SMT/IFREMER CT, BP 330
83507 La Seyne sur Mer, France

Mots clés : rejets radioactifs, statistiques, algues, Manche

A NUMERICAL TECHNIQUE FOR STUDYING THE SPATIO-TEMPORAL VARIATIONS OF RADIOACTIVITY IN MARINE BIO-INDICATORS

Key words : radioactive release, statistics, algae, English Channel

Abstract

A numerical technique is described whereby a simple linear relation can be established between the temporal variation of concentrations of a given radionuclide (^{106}Ru) in a selected bio-indicator (*Fucus serratus*) and the quantities of this radionuclide in a known source (the authorized normal and controlled effluent releases from the fuel reprocessing plant at La Hague).

The relationship is based on two assumptions supported by hydrodynamical and biological considerations. We first assumed that radionuclides were taken in by the organisms in a form integrating successive discharges. This led to a search for the optimal cumulative period of successive release. Accounting for the distance between the source and the organisms, the second assumption involved a time lag between the formation of this patch and the response of the organism.

A sequential search within variations intervals of the parameters (cumulative period and lag time) was then performed in order to determine the values that led to the best relationship between the series of concentrations of the radionuclide in the effluent (the discharge source) and in the organism.

The technique has been applied to several seaweed sampling areas along the French east coast of the English Channel. The relationship proved to be consistent and, from a statistical point of view, the correlations were generally highly significant. The relationship however decreased as the distance between the outlet and the sampling area increased.

The high correlations obtained for the sampling sites nearest to the outlet are significant enough to consider the method as a new tool for monitoring the temporal variations of the radioactivity levels on the coast, for this radionuclide and this bio-indicator at least. It can possibly be used also for monitoring other tracers or pollutants.

INTRODUCTION

La réponse d'un organisme marin à une perturbation de son environnement est généralement une fonction multivariée des caractéristiques de cet environnement d'une part, des spécificités biologiques et physiologiques de l'organisme d'autre part. Face à cette complexité, on est amené lors de l'étude in situ de l'impact d'un apport extérieur sur des organismes, à rechercher des relations simples, en général statistiques, entre les réponses des organismes et la perturbation étudiée.

Dans le contexte d'un apport de substance radioactive dans le milieu naturel par exemple, les techniques d'étude des transferts aux organismes se rapportent presque exclusivement à cette problématique:

- La méthode la plus utilisée consiste à exprimer le niveau moyen de la concentration dans l'organisme en fonction de son éloignement de l'émissaire. Cette méthode souvent décrite (Aarkrog *et al.*, 1978; Mattsson *et al.*, 1978; Nilsson, 1981; Calmet *et al.*, 1987; Germain *et al.*, 1988) fournit des résultats compatibles avec des hypothèses simples: une décroissance de type exponentielle ou puissance lorsque l'on s'éloigne de la source. Cette méthode permet d'obtenir de précieux renseignements sur les niveaux relatifs de radioactivité accumulés par les organismes d'une zone géographique à l'autre (répartition spatiale).

- Une autre approche consiste à rechercher une liaison directe entre le premier maillon de la chaîne des transferts (la source de radioéléments) et le dernier (les organismes). Si une telle relation existe, elle doit permettre dans certains cas d'éviter l'ensemble des phénomènes qui interviennent entre le moment où les radioéléments sont émis et celui où ils sont fixés dans les organismes.

La méthode que nous allons décrire s'inscrit dans cette dernière approche. Il s'agit d'élaborer une méthode statistique permettant de prévoir les concentrations de radioéléments dans un organisme directement à partir des quantités de ce radioélément rejetées à l'émissaire d'une usine. Cette technique a été appliquée au domaine littoral de la Manche soumis aux rejets contrôlés et faiblement radioactifs de l'émissaire du centre de retraitement des combustibles irradiés de la Hague, implanté dans le nord-ouest Cotentin.

MATERIELS ET METHODES

La technique que nous avons mise en oeuvre est inspirée de travaux antérieurs:

* Calmet (1986) émet l'hypothèse que l'émission d'une certaine quantité de radioéléments est perçue par un organisme distant, sous la forme d'une nappe de dilution qui intègre une succession de rejets par le jeu des mélanges

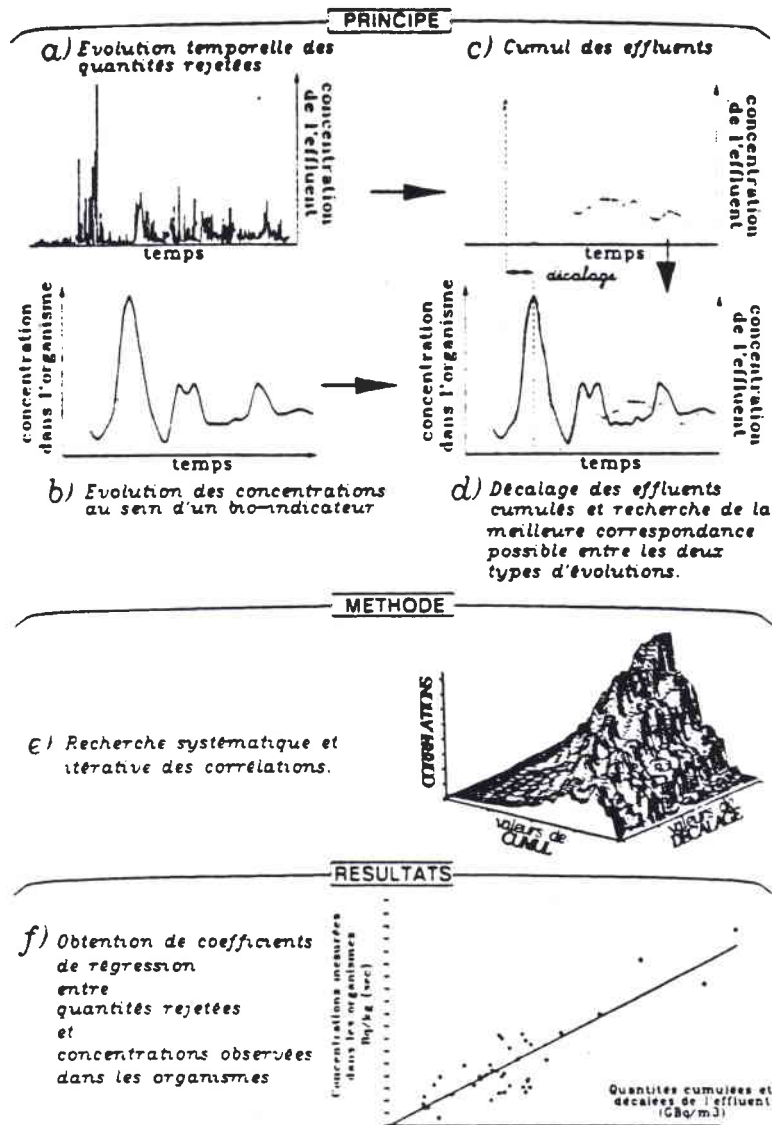


Figure 1: Etablissement d'une relation directe entre les fluctuations de concentration d'un radioélément au sein d'un indicateur biologique et les quantités rejetées dans l'environnement.

hydrodynamiques (va et vient des eaux par le jeu de la marée): En cherchant le temps optimum d'intégration des effluents par un procédé itératif, il établit alors la meilleure corrélation entre les deux séries observées des concentrations (effluent et organisme). Pour employer cette technique, l'auteur estime en outre un temps minimum de perception de la tache par l'organisme. Ce temps est obtenu à partir d'estimations du temps de transit des masses d'eaux entre l'émissaire et la station de prélèvement des organismes.

* Lors d'une étude des variations spatiales des niveaux de ^{99}Tc dans l'algue *Fucus serratus*, Calmet *et al.* (1987) utilisent la méthode des corrélations croisées ou corrélations avec retard entre deux séries de données. La méthode est utilisée pour comparer les variations de concentration en technétium d'échantillons de fucus prélevés en différentes stations de la Manche.

Partant de ces résultats nous avons combiné les deux techniques décrites, à la recherche d'une liaison cohérente entre les fluctuations de concentration de radioéléments dans les organismes et celles de la source de radioéléments.

L'indicateur biologique retenu pour l'étude des relations organisme/effluents est *Fucus serratus* L. Cet organisme est largement distribué sur le littoral de la Manche. Le nombre restreint des voies de transferts des radioéléments entre ces végétaux (organismes autotrophes) et leur milieu en fait un des bio-indicateurs susceptibles de présenter les réponses les

plus directes aux fluctuations de concentrations dans l'environnement. C'est aussi une des espèces indicatrices pour laquelle on dispose du plus grand nombre de mesures de radioactivité.

L'élément choisi comme traceur des transferts est le ruthénium-106. Ses propriétés physico-chimiques dans l'eau sont très variables au cours du temps et peuvent de ce fait le présenter comme un mauvais traceur. Ce radioélément reste cependant le plus facile à détecter dans la biosphère parmi ceux constituant les effluents faiblement radioactifs rejetés en mer depuis le Cotentin; on le retrouve fixé aux fucales assez loin de l'émissaire.

Les réseaux d'observation et de surveillance des installations nucléaires côtières constituent la principale source de données de radioactivité dans l'écosystème marin de la Manche. Les données utilisées proviennent d'un des réseaux français mis en place pour surveiller l'environnement soumis aux rejets de l'usine de retraitement de la Hague (Auset, 1969; Scheidauer *et al.*, 1974).

Ces données sont de deux types. Il s'agit en premier lieu des volumes, des heures d'émission et des concentrations en radioéléments des effluents liquides radioactifs rejetés par le centre de retraitement. Ces valeurs ont été obtenues à partir des données fournies par le Service de Protection de l'établissement de la Hague. Le deuxième type de données utilisé correspond aux mesures qui ont été réalisées sur les

Indicateurs biologiques suivis au sein du réseau par le Service de Protection de la Hague et la Marine Nationale (GEA/EAMEA). L'échantillonnage des organismes est effectué mensuellement en plusieurs stations du littoral. Les mesures de la radioactivité des algues dont nous disposons concernent l'échantillonnage effectué entre les années 1981 et 1985; de plus, des données sont disponibles depuis l'année 1976 pour les deux stations Fermanville et Goury (figure 2).

L'objectif est de déterminer les coefficients d'une équation reliant de façon linéaire les deux variables: "concentration d'un radioélément rejeté dans l'environnement" et "concentration observée dans un organisme à une station de prélèvement donnée". Le principe de la méthode, décrit sur la figure 1, est le suivant.

Le pas temporel des séries de données sur les effluents est de l'ordre de la journée (figure 1a) alors que celui des prélèvements de fucus est mensuel (figure 1b). On procède donc à un remaniement de la série des concentrations dans l'effluent pour obtenir deux séries de progressions comparables (avec le même nombre de valeurs) sur lesquelles la régression pourra être effectuée. Les critères utilisés sont inspirés de ceux qui ont été employés dans les deux études citées précédemment (Calmet, 1986 et Calmet *et al.*, 1987): on considère dans un premier temps que l'organisme ne "perçoit" pas toutes les variations de l'effluent mais les intègre en partie dans le temps. Les valeurs de rejet sont donc cumulées sur une période de temps à déterminer (figure 1c). On suppose de plus que le front de la nappe de dilution met un certain temps pour parvenir jusqu'à l'organisme ce qui nous conduit à effectuer un décalage dans le temps de la série obtenue pour les effluents par rapport à celle obtenue pour les organismes (figure 1d). Le calcul consiste à déterminer à la fois les valeurs de cumul et de décalage qui permettent d'obtenir, pour une station donnée, la meilleure correspondance entre les concentrations dans l'organisme et la série transformée des concentrations dans l'effluent (figure 1d).

Le coefficient de corrélation r (Bravais-Pearson) est le critère qui a été retenu pour évaluer la valeur de l'ajustement entre les deux séries. La méthode de recherche des valeurs de cumul et de décalage est la suivante:

Soient t_p la date de prélèvement des organismes à une station donnée, t_d le temps de décalage entre les séries de concentration de l'effluent et de l'organisme, et T_c la période de temps de cumul des concentrations de l'effluent. A la concentration de l'organisme au temps t_p on fait correspondre pour l'effluent une valeur égale à la somme des concentrations mesurées dans cet effluent entre les temps $t_p - (T_c + t_d)$ et $t_p - t_d$. Pour chaque t_p d'une série de mesures effectuées sur les échantillons de fucus, on calcule de cette façon la valeur correspondante pour l'effluent (le calcul est effectué après avoir corrigé les concentrations de l'effluent en fonction de la période physique du radioélément). On calcule alors le coefficient de corrélation entre les deux variables "organisme" et "effluent transformé". Ce processus est répété pour un ensemble discret de valeurs de t_d et de T_c contenues dans un intervalle de temps suffisant pour que les meilleures valeurs possibles de ces paramètres y soient incluses. Si la date de départ de la série des concentrations dans les organismes est t_0 , il est nécessaire de connaître les concentrations dans l'effluent au moins depuis $t_0 - (T_{cmax} + t_{dmax})$, T_{cmax} et t_{dmax} étant respectivement les valeurs maximum de cumul et de décalage explorées.

Les résultats sont présentés sous forme de graphes en trois dimensions où les axes X et Y représentent les variables "cumul" et "décalage" et où l'axe Z représente la variable "coefficient de corrélation" (figure 1e). Les valeurs de cumul et de décalage qui déterminent la liaison la plus forte entre les séries des organismes et des effluents se situent au "sommet" du graphe.

Lorsque le coefficient de corrélation maximum est significativement différent de 0, les valeurs de cumul et de décalage correspondant à ce coefficient sont reprises pour élaborer la série transformée des effluents. A partir de cette

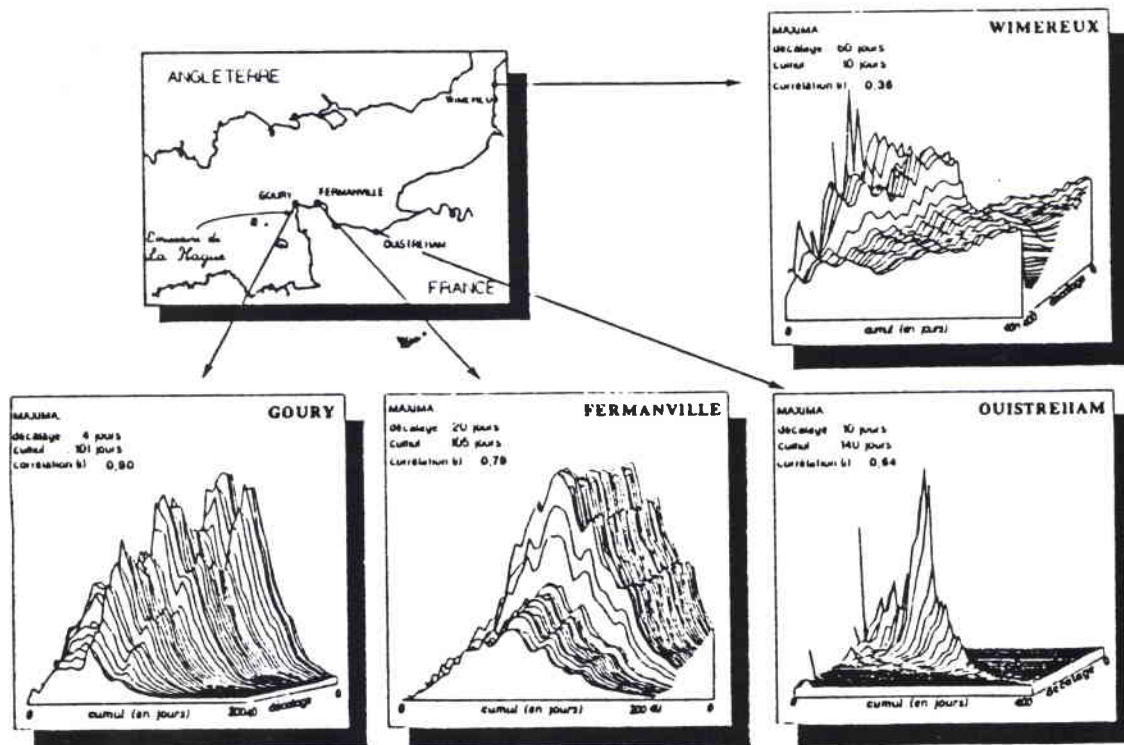


figure 2: Recherche d'une liaison directe entre les effluents et les organismes: adéquation de la méthode en fonction de l'éloignement de la station de prélèvement des organismes par rapport à la source de radioéléments. Application à l'étude des niveaux de ruthénium-106 dans l'algue brune *Fucus serratus* prélevée en quatre stations littorales françaises de la Manche. (L'origine des radioéléments est l'émissaire du centre de retraitement des combustibles irradiés de la Hague).

série et de celle des concentrations dans les organismes, on détermine les coefficients de la droite de régression entre les variables "organisme" et "effluent transformé" (figure 1f).

RESULTATS, DISCUSSION

La technique décrite a été appliquée à quatre stations réparties le long du littoral français de la Manche, à l'est de l'émissaire de la Hague (figure 2). La recherche des corrélations a été réalisée à partir du plus grand nombre de mesures disponibles de ruthénium sur le fucus. Ces mesures sont réparties entre les années 1981 et 1985. Pour les stations de Goury et Fermanville, la méthode a pu être appliquée à l'ensemble des mesures réalisées entre 1976 et 1983, soit 8 ans de résultats. A chaque série de données, 40 valeurs de décalage et 40 valeurs de cumul d'effluent, régulièrement réparties à l'intérieur d'un intervalle suffisamment grand pour contenir les valeurs recherchées, ont été testées. Les résultats obtenus sont exprimés sur la figure 2; les résultats des tests t ou epsilon (écart-réduit) effectués sur les coefficients de corrélation sont reportés sur le tableau I.

Nom de la station	Intervalle de la simulation (ans), nombre de mesures.	Décalage optimal (jours)	Cumul optimal (jours)	r et niveau de confiance (voir légende)
Goury	4 (43)	4	101	0,90 ($\epsilon = 9,3''$)
Goury	8 (95)	4	106	0,67 ($\epsilon = 7,8''$)
Fermanville	4 (43)	20	105	0,79 ($\epsilon = 6,8''$)
Fermanville	8 (95)	22	126	0,68 ($\epsilon = 7,9''$)
Ouistreham	2 (17)	10	140	0,64 ($t = 3,2'$)
Wimereux	2 (22)	160	6	0,41 ($t = 2,0NS$)
Wimereux	5 (52)	60	10	0,36 ($\epsilon = 2,6'$)

Tableau I: Recherche de corrélations entre les effluents et les organismes: valeur statistique des corrélations. (r: coefficient de corrélation. On conclut à l'existence d'une corrélation au risque α : * 1%, ** 0,1%, NS: on conclut à l'absence de corrélation au seuil 5%).

Mise à part l'étude réalisée sur deux ans de mesures à Wimereux, les corrélations entre les séries des concentrations dans les organismes et dans les effluents sont significativement différentes de 0. Sur la figure 2, les champs de corrélations tendent généralement vers un pic unique avec une augmentation régulière des corrélations lorsque les valeurs de cumul et de décalage convergent vers leur valeur optimale. Il est remarquable que pour les stations de Goury et de Fermanville, les valeurs de cumul et de décalage obtenues soient globalement les mêmes que le calcul ait été effectué sur des séries "courtes" ou "longues" (voir tableau I). Ce point est un argument en faveur de la cohérence de la méthode. Lorsque la distance augmente entre la station étudiée et l'émissaire de la Hague cette relation se dégrade; ceci se traduit par une diminution du coefficient de corrélation et une réponse moins structurée. Ainsi, pour la station de Wimereux qui est la plus éloignée de l'émissaire, les variations sont beaucoup plus erratiques autour du pic de corrélation maximum et dans le tableau, les valeurs de cumul et de décalage sont très différentes selon l'étendue de la période utilisée pour effectuer les calculs.

Les valeurs optimales obtenues pour le décalage fluctuent d'une station à l'autre alors que, mis à part les résultats obtenus à la station de Wimereux, les intervalles de temps retenus pour cumuler les concentrations de l'effluent sont relativement constants d'une station à l'autre, égaux à 115,6 jours en moyenne ($\sigma = 16,7$).

Il semble donc que la méthode décrite fournisse une gamme de réponse cohérente pour les stations proches de l'émissaire.

On a reporté sur les figures 3a et b les séries comparées des fluctuations de concentrations du ruthénium dans les fucus et celles des rejets, obtenues avec les valeurs optimales de décalage et de cumul. Les deux graphes représentent respectivement les résultats de l'étude sur quatre ans des algues de la station de Goury et celle sur huit ans de la

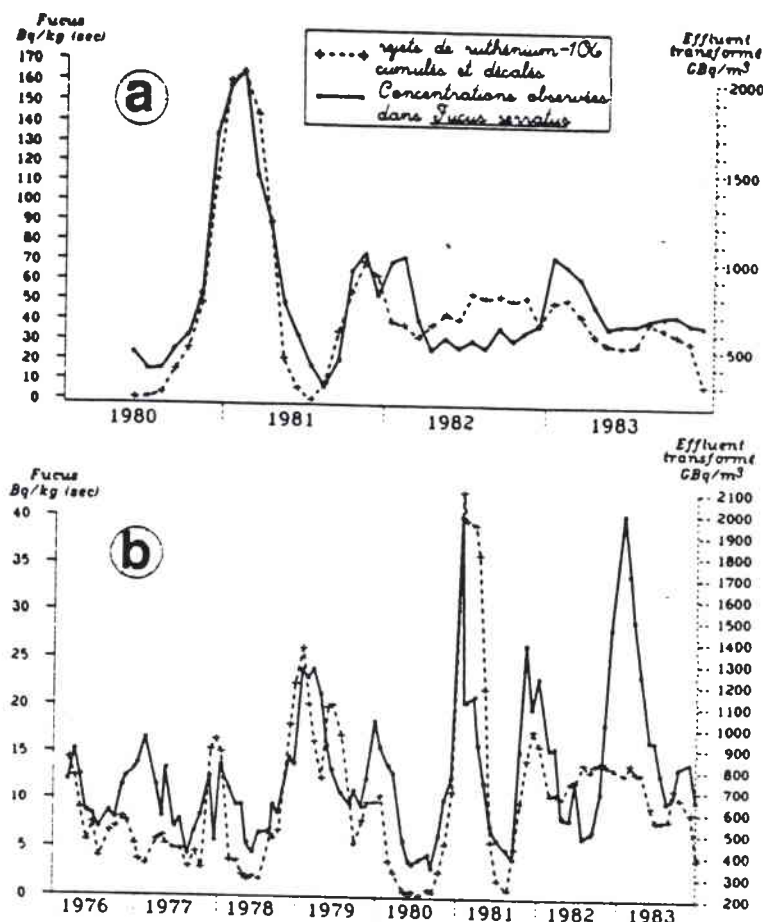


Figure 3: Relation entre les concentrations de ruthénium mesurées dans les effluents de la Hague et au sein d'échantillons de *Fucus serratus*: évolutions comparées des séries "effluents transformés" et "fucus". (a) Station de prélèvement de Goury, étude sur une période de quatre ans; (b) station de prélèvement de Fermanville, étude sur une période de huit ans (voir tableau I).

station de Fermanville. L'accord obtenu entre les deux séries est en général très satisfaisant. Pour la station de Fermanville cependant, à la fin de la période d'étude un pic brutal dans les concentrations de fucus ne trouve pas de correspondance au niveau de la valeur retenue pour l'effluent. Cette discordance ne semble pas artificielle car au moins dix mesures de fucus participent au pic observé. Ce désaccord peut être dû à la variation au cours de cette période d'un facteur influent sur les niveaux de ruthénium dans les fucus (physico-chimie de l'effluent, changement des conditions climatiques se répercutant sur la physiologie des algues etc.). Les bases de données ne contiennent malheureusement pas l'information nécessaire à l'interprétation de ce phénomène.

Pour passer de la description à la prévision, les résultats obtenus sont exprimés sous la forme d'une droite de régression calculée entre les concentrations dans les effluents après cumul et décalage et les concentrations correspondantes dans les algues. La figure 4 représente les résultats obtenus à partir de l'étude réalisée sur quatre ans à la station de Goury. Compte tenu de la relation linéaire étroite entre les deux séries, on peut espérer prévoir, d'après les coefficients de la droite de régression et les valeurs de cumul et de décalage associés, les niveaux de radioactivité d'un organisme dans la station de prélèvement, en ne connaissant que les fluctuations au cours du temps de la radioactivité des effluents.

Les coefficients utilisés dans une étude descriptive telle que celle-ci ne sont que l'expression d'un ensemble de facteurs intervenant dans l'environnement et au sein de l'organisme. Il n'est donc pas possible d'attribuer de signification précise à ces coefficients. On peut cependant supposer que le temps de décalage, qui augmente avec la distance, reflète la variation de facteurs propres à l'environnement plutôt que la réponse du bio-indicateur lui-même, supposé identique dans chaque station. Le paramètre "cumul des effluents" peut représenter soit le mélange des effluents successifs par le jeu de l'hydrodynamique, l'organisme recevant alors les effluents sous cette forme intégrée; soit le temps minimum d'incorporation en dessous duquel les concentrations du radioélément dans l'organisme ne répercutent pas les variations de radioactivité dans l'effluent.

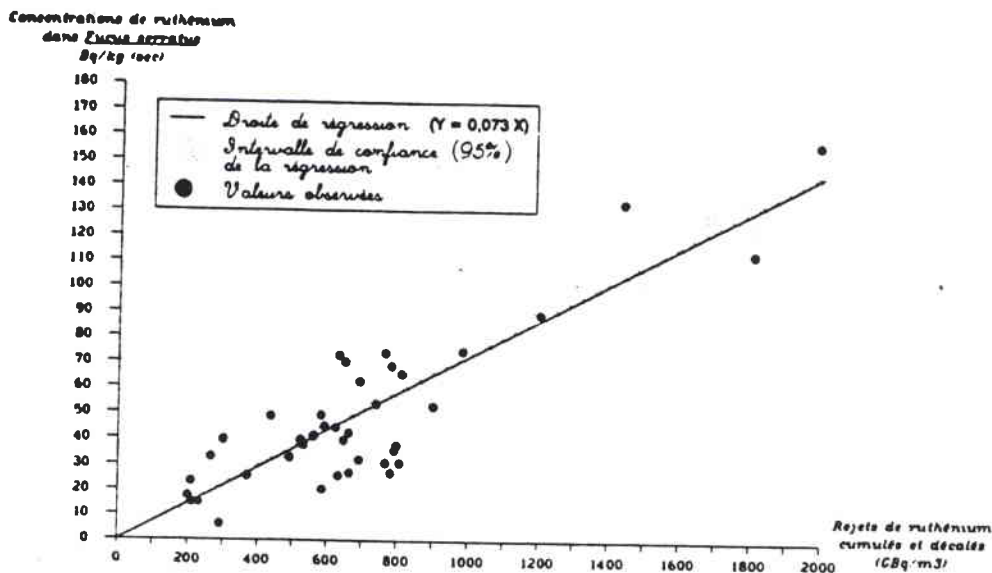


Figure 4: Régression linéaire entre les séries temporelles des rejets transformés (cumulés et décalés) et celles des concentrations dans *Fucus serratus* pour le radionucléide ruthénium-106. Résultats présentés pour la station de prélèvement de Goury à partir d'une étude sur une période de quatre ans (décalage: 4 jours, période de cumul: 100 jours, corrélation $r=0,9$).

Etant donné que la valeur du "cumul" reste constante d'une station à l'autre, il semble que ce soit plutôt la deuxième hypothèse qui doit être retenue.

On peut considérer cette technique comme un outil de prévision pratique des niveaux moyens de radioéléments dans les organismes, dans la mesure où l'on se limite aux stations de la zone proche de l'émissaire de la Hague (soit le nord du Cotentin). En effet, bien que les corrélations calculées soient significatives pour les autres stations, elles sont moins satisfaisantes.

CONCLUSION

Les très bonnes corrélations obtenues pour les stations proches de la source de radioéléments permettent d'envisager l'utilisation de la méthode décrite dans le cadre d'une prévision des niveaux de radioactivité d'organismes soumis à une source connue. Cette méthode semble moins fiable pour les organismes plus éloignés de la source. Pour prévoir dans ce cas les concentrations dans les organismes il sera nécessaire de prendre en compte les facteurs complexes de dispersion qui interviennent entre la source et l'organisme. La mise en oeuvre d'une modélisation déterministe de l'écosystème dans laquelle ces processus seront mis en équation sera donc préférable.

Le champ d'application de cette méthode peut être étendu à un nombre plus important de stations ainsi qu'à d'autres radioéléments constitutifs des effluents rejetés par un émissaire. Il reste cependant à déterminer sa pertinence vis à vis de l'étude d'autres éléments et d'autres embranchements phylétiques.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Aarkrog A., Botter-Jensen L., Dahlgard H., Hansen H., Lippert J., Nielsen S.P. & Nilsson K., 1978.- Environmental radioactivity in Denmark in 1977. *Risø Report N° 386*. Risø Nat. Lab. PO box 49, DK-4000 Roskilde, Denmark. 154p.
- Ausset R., 1969.- Rejet en mer des eaux résiduaires faiblement radioactives du centre de La Hague. *La Houille Blanche*, vol. 4: 381-394.
- Calmet D., 1986.- Synthèse radioécologique des différents compartiments de l'environnement marin du Cotentin. *Doctorat Etat Sciences. Univ. Aix-Marseille II*, 28 mars 1986, 254p.
- Calmet D., Patti F. & Charmasson S., 1987.- Spatio-temporal variations in the technetium-99 content of *Fucus serratus* in the English Channel During 1982-1984. *J. Environ. Radioactivity*, N° 5: 37-69.
- Germain P., Baron Y., Masson M. & Calmet D., 1988.- Répartition de deux traceurs radioactifs (^{106}Ru -Rh, ^{60}Co) chez deux espèces indicatrices (*Fucus serratus* L., *Mytilus edulis* L.) le long du littoral français de la Manche. In: *Radionuclides: a tool for Oceanography*. Guary J.C., Guegueniat P. et Pentreath R.J. Eds., Elsevier Applied Sciences: 312-320.
- Mattsson S., Finck R. & Nilsson K., 1978.- Temporal and spatial variations in the distribution of activation products from Barsebäck nuclear power plant (Sweden). In: *The marine environment as established by seaweed*. Report LUNFD6/(NFRA-3018)/1-20 (1978), Univ. of Lund, Sweden.
- Nilsson M., 1981.- Pathways and estimated consequences of radionuclide releases from a nuclear power plant. A study related to Barsebäck Nuclear Power Station. *Ph.d. thesis. Lund Univ. (Sweden), Dept of Phys. Rep N° LUNFD6/NFRA--1011/1-19/(1981)*, Mar 1981, 44p.
- Scheldauer J., Ausset R., Planet J. & Coulon R., 1974.- Programme de surveillance de l'environnement marin du centre de la Hague. In: *Population dose evaluation and standards for man and his environment*. Portoroz, may 1974. Vienne IAEA: 347-366.

reçu le 14.01.90

accepté le 14.03.90

