



Distribution et remobilisation du plutonium dans les sédiments du prodelta du Rhône

Bruno Lansard

► To cite this version:

Bruno Lansard. Distribution et remobilisation du plutonium dans les sédiments du prodelta du Rhône. Géochimie. Université de la Méditerranée - Aix-Marseille II, 2004. Français. NNT : . tel-00007417

HAL Id: tel-00007417

<https://theses.hal.science/tel-00007417>

Submitted on 16 Nov 2004

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

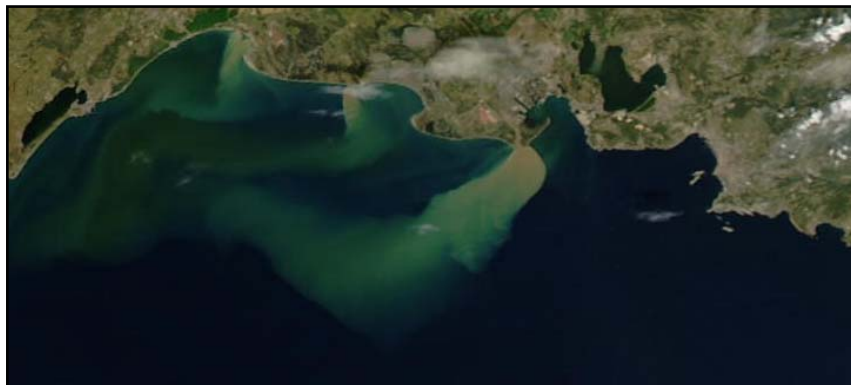
L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Université de la Méditerranée
Aix-Marseille II

Thèse de doctorat présentée par
Bruno LANSARD

Pour l'obtention du grade de
Docteur de l'Université de la Méditerranée
Spécialité : Sciences de l'Environnement Marin

DISTRIBUTION ET REMOBILISATION DU PLUTONIUM DANS LES SÉDIMENTS DU PRODELTA DU RHÔNE (MÉDITERRANÉE NORD-OCCIDENTALE)



Soutenue le 24 juin 2004 devant le jury composé de :

Professeur Peter MITCHELL	Rapporteur
Docteur Xavier DURRIEU DE MADRON	Rapporteur
Professeur Bruno HAMELIN	Examineur
Docteur Dominique BOUST	Examineur
Professeur Bernard QUÉGUINER	Président du jury
Docteur Sabine CHARMASSON	Codirectrice de thèse
Docteur Christian GRENZ	Directeur de thèse

*L'aventure ne vaut que par ce qu'on risque,
et c'est la seule chose qui nous fasse comprendre
réellement quelle chose merveilleuse est la vie et
comment on peut la vivre pleinement...*

Seul autour du monde, Alain Gerbault

REMERCIEMENTS

Au travers de ces quelques lignes, je souhaite remercier toutes les personnes impliquées de près ou de loin dans la bonne réalisation de ce travail.

Mes premiers remerciements vont tout naturellement à Christian Grenz, chargé de recherche CNRS au Centre d'Océanologie de Marseille (COM), puisque sans lui, rien ou presque n'aurait été possible. Par son soutien permanent et sa confiance sans faille, il m'a permis de mener à bien ces 3 années de recherche, qui se sont révélées être des plus enrichissantes. Je tiens également à exprimer ma sincère reconnaissance à Sabine Charmasson, chercheur au Laboratoire d'Etudes Radioécologiques en milieu Continental et Marin (LERCM) de l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN), qui a suivi, à distance, l'avancée de mes travaux et qui a codirigé cette thèse.

Le travail d'une thèse prend tout son sens lorsqu'il est soumis à l'appréciation de ses pères. Je souhaite donc exprimer toute ma gratitude aux membres du jury qui m'ont fait l'honneur de participer à l'évaluation de ce mémoire.

Je remercie vivement M. Peter Mitchell, professeur à l'Université de Dublin et directeur du laboratoire de recherche en radiophysique et en radiocarbone, pour son expertise sur le comportement du plutonium en milieu marin. Je lui suis très reconnaissant d'avoir accepté d'être rapporteur de cette thèse.

Je souhaite également remercier M. Xavier Durrieu de Madron, chargé de recherche CNRS au Centre de Formation et de Recherche sur l'Environnement Marin (CEFREM), puisqu'il a accepté, dans des délais relativement courts, le rôle de rapporteur. Ses connaissances sur la dynamique sédimentaire du golfe du Lion et ses remarques constructives ont permis de faire mûrir ce travail et d'en élargir les perspectives.

Je voudrais exprimer ma profonde reconnaissance à M. Bruno Hamelin, professeur à l'Université d'Aix-Marseille III et directeur du Centre Européen de Recherche et d'Enseignement des Géosciences de l'Environnement (CEREGE), qui malgré ses nombreuses responsabilités professionnelles a accepté d'apporter son regard critique et constructif sur ce mémoire.

Un grand merci à M. Dominique Boust, chercheur au Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg (LRC) de l'IRSN, pour son expertise en radioécologie marine et ses nombreux conseils, et qui m'a fait le plaisir de participer à ce jury.

Je tiens en outre à remercier M. Bernard Quéguiner, professeur à l'Université d'Aix-Marseille II et directeur du Laboratoire d'Océanographie et de Biogéochimie (LOB), qui en tant que responsable de ma formation en 3^{ème} cycle et directeur de mon laboratoire d'accueil, a tout naturellement accepté de présider ce jury de thèse.

Le bon déroulement d'un travail pluridisciplinaire passe nécessairement par de nombreuses collaborations. Je souhaite donc remercier les différents directeurs qui m'ont successivement accueilli dans leurs laboratoires et en particulier Messieurs Lucien Laubier et Ivan Dekeyser pour leur accueil au COM et M. Bernard Coste pour son accueil initial au LOB.

Par ailleurs, le volet radioactivité de ce travail s'est fait en étroite collaboration avec le LERCM dirigé par M. Didier Louvat. Je remercie en premier lieu, tous les membres de l'antenne du LERCM basés à la Seyne sur Mer, Mireille Arnaud, Hervé Thébault et Yves Diméglio, pour leur aide logistique et matérielle. Merci également à Frédérique Eyrolle pour son encadrement lors de mes stages sur le site du Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA) de Cadarache. Ma formation en radiochimie est l'œuvre d'une seule personne, à qui je dois beaucoup, et qui souvent travaille dans l'ombre. Je remercie très sincèrement Marcel Morello pour son savoir faire et son expertise en radiochimie du plutonium. Merci à Gilles Gontier pour ses conseils avisés et tous ces kilomètres partagés. Un grand coup de chapeau à Bernard Descamps, alias camarade Nanard, pour sa bonne humeur contagieuse et son immense humanité. Que la vie doit être douce du côté de Papeete...

Je tiens à remercier tout particulièrement Catalina Gascó et Maria-Paz Antón du Centro de Investigaciones Energéticas, Medioambientales y Tecnológicas (CIEMAT) de Madrid pour leur enthousiasme et leur collaboration active. Certaines mesures de plutonium présentées dans ce manuscrit sont le fruit de leur travail et elles m'ont aimablement transmis leurs résultats. D'autres mesures de radioactivité figurant dans ce mémoire viennent du savoir faire du Laboratoire de Mesure de la Radioactivité de l'Environnement (LMRE) de l'IRSN, dirigé par Patrick Bouisset. Je remercie tout spécialement Michèle Agarande qui conduit le groupe de radiochimie du LMRE.

Je souhaite remercier chaleureusement nos collègues du CEREGE et en particulier Olivier Radakovitch et Claude Vella pour leur aide sur le terrain et pour l'analyse des données de ^{210}Pb . Merci également à Jean-Claude Aloisi et Patrick Barthe du CEFREM pour leur coup de main sur le pont et leur connaissance de la sédimentologie du golfe du Lion.

Cette aventure a débuté, du moins en partie, grâce au soutien de Christophe Rabouille, chercheur CEA au Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE). Je lui dois une profonde reconnaissance puisque depuis plus de 4 ans, nous entretenons une étroite collaboration qui j'en suis sûre perdurera dans le futur.

Je remercie bien évidemment tous les chercheurs, ingénieurs et techniciens du COM et en particulier : Elisabeth Alliot, Christian Bernard, Nicole Boury-Esnault, Loïc Charpy, Claude Degiovanni, Renaud Fichez, Roland Graille, Franck Gilbert, Vincent Grossi, Claude Jalong, Michel Laffont, Bernard de Ligondes, Delphine Massias, Patrick Raimbault, Jean-Claude Romano, Katherine Walch...

Un immense merci à Estelle Schaaff pour son aide précieuse lors des missions de carottage et des expériences en canal à courant. Merci également à Christel Pinazo et Samuel Meulé pour tous leurs conseils et surtout pour leurs connaissances en dynamique sédimentaire, en analyse spectrale et en programmation Matlab.

J'ai une pensée particulière pour tous les thésards et étudiants avec qui j'ai ramé dans la même "galère" : Vincent, Virginie, Nathaniel, Nathalie, Aurélie, Laurent, Bouazza, Basile et tous les autres chourmos... Bon vent à tous.

Bien sûr, je ne saurais oublier tous les capitaines et marins océanographes de GENAVIR puisque sans eux rien n'est envisageable sur la Grande Bleue. Merci à vous tous de m'avoir fait partager votre quotidien pour pouvoir, de temps en temps, m'échapper du mien.

Merci à toute ma famille, au sens large du terme, pour leur confiance, leur soutien et pour tout ce qu'ils m'ont apporté depuis le premier jour. C'est grâce à eux si j'en suis arrivé là et si je continue mon petit bonhomme de chemin... Je leur dédie ce manuscrit.

Et pour conclure, je garde en mémoire toutes celles et ceux que j'ai rencontrés autour d'une carotte sur le pont, d'une discussion en coin de table, d'une bière au comptoir... Bref à toutes ces tranches de vie partagées au cours de ces 3 années.

SOMMAIRE

Sommaire

1.	<i>Introduction générale</i>	1
2.	<i>Le plutonium dans l'environnement marin</i>	7
2.1.	Caractéristiques générales du plutonium	7
2.2.	Le comportement physico-chimique du plutonium en milieu marin	10
2.2.1.	La spéciation du plutonium	10
2.2.2.	Affinité du plutonium pour la phase particulaire.....	11
2.3.	La remobilisation du plutonium	12
2.3.1.	Définitions.....	12
2.3.2.	La dynamique du plutonium dans les sédiments	13
2.3.2.1.	La mobilité du plutonium.....	13
2.3.2.2.	Les associations géochimiques du plutonium	14
2.3.3.	Les facteurs contrôlant la remobilisation du plutonium	14
2.3.3.1.	Facteurs chimiques.....	14
2.3.3.2.	Facteurs physiques	16
2.3.3.3.	Facteurs biologiques.....	16
3.	<i>Cadre de l'étude et relations avec le plutonium</i>	19
3.1.	Caractéristiques du site d'étude	19
3.1.1.	La dynamique du Rhône	19
3.1.2.	Le prodelta du Rhône : une zone stratégique	21
3.1.3.	La circulation générale du golfe du Lion	23
3.1.4.	La dynamique sédimentaire du golfe du Lion	26
3.2.	Etat des connaissances sur le plutonium: du Rhône au golfe du Lion	27
3.2.1.	Les rejets passés de l'usine de Marcoule.....	27
3.2.2.	Le devenir du plutonium introduit dans le Rhône	29
3.2.3.	Le plutonium dans les sédiments du golfe du Lion	32
4.	<i>Stratégie d'échantillonnage, méthodes d'analyse et expérimentations</i>	35
4.1.	Campagnes océanographiques et matériels mis en œuvre	35
4.1.1.	Campagne REMORA 1	36
4.1.2.	Campagne REMORA 2.....	38
4.1.3.	Campagne REMORA 3.....	39
4.1.4.	Les autres campagnes en mer	40

4.2. Méthodes d'analyse pour caractériser les sédiments.....	41
4.2.1. La porosité des sédiments	41
4.2.2. Analyses granulométriques	41
4.2.3. Teneur en matière organique totale, carbone organique total et azote total	42
4.3. Mesures de la radioactivité	43
4.3.1. Détection des émetteurs gamma.....	43
4.3.2. Détection des émetteurs alpha.....	43
4.3.2.1. La radiochimie du plutonium	43
4.3.2.2. Détection des isotopes du plutonium par spectrométrie alpha	47
4.3.3. Intercomparaison des mesures de plutonium	49
4.3.4. Limitations des mesures en plutonium.....	49
4.4. Utilisation du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$	50
4.5. Expériences de remise en suspension en canal à courant.....	52
4.5.1. Le dispositif expérimental.....	53
4.5.2. Expérimentation pour étudier la remobilisation du plutonium.....	55
4.5.2.1. Détermination des paramètres de l'érosion	56
4.5.2.2. Analyses des activités de plutonium remobilisé.....	58
5. Le plutonium dans les sédiments du prodelta du Rhône	61
5.1. Caractéristiques des sédiments sous l'influence du Rhône	61
5.1.1. Distribution granulométrique des sédiments superficiels.....	61
5.1.2. La porosité des sédiments	62
5.1.3. Distribution de la matière organique	63
5.1.4. Distribution de l'oxygène à l'interface eau-sédiment.....	64
5.1.5. Estimation des taux de sédimentation pour le domaine distal.....	65
5.2. Distribution du plutonium dans les sédiments face à l'embouchure du Rhône	69
5.2.1. Variations temporelles du plutonium à proximité de l'embouchure	69
5.2.2. Distribution verticale du plutonium dans le domaine prodeltaïque.....	70
5.2.3. Estimation des taux de sédimentation à Roustan.....	75
5.2.4. Variabilité spatiale du plutonium dans les sédiments de surface.....	78
5.3. Estimation des stocks de plutonium	82
5.3.1. Intérêt du ^{137}Cs pour estimer les activités en plutonium.....	82
5.3.1.1. Corrélations entre le ^{137}Cs et les isotopes du plutonium.....	84
5.3.1.2. Remarques sur l'utilisation de cette méthode.....	87
5.3.2. Calculs des inventaires en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$	88
5.3.3. Calculs des stocks de plutonium	91
6. Etude expérimentale de la remobilisation du plutonium.....	93
6.1. La dynamique des sédiments cohésifs	93
6.2. Expériences de remise en suspension en canal à courant.....	94
6.2.1. Caractéristiques des stations échantillonnées	95

6.2.2.	Résultats sur l'érodabilité des sédiments.....	97
6.2.3.	Résultats sur la remobilisation du plutonium	100
6.2.3.1.	Activités en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ dans l'eau de mer	100
6.2.3.2.	La remobilisation chimique du plutonium.....	101
6.2.3.3.	La remobilisation physique du plutonium	103
6.3.	Synthèse des résultats	107
6.3.1.	La remobilisation du plutonium	107
6.3.2.	Améliorations des expériences en canal à courant	108
7.	<i>Campagne de mesures in situ à l'embouchure du Rhône</i>	111
7.1.	Instrumentation mise en œuvre	113
7.2.	Estimation de la contrainte de cisaillement due à l'interaction houle-courant.....	117
7.2.1.	Estimation de la contrainte de cisaillement liée au courant seul	118
7.2.2.	Estimation de la contrainte de cisaillement générée par les vagues seules.....	118
7.2.3.	Estimation de la contrainte de cisaillement due à l'interaction houle courant	123
7.3.	Résultats de la campagne de mesures in situ.....	128
7.3.1.	Les forçages environnementaux.....	128
7.3.1.1.	Evolution des conditions météorologiques.....	128
7.3.1.2.	Evolution du débit du Rhône.....	129
7.3.1.3.	Influence de la marée	130
7.3.2.	Résultats des mesures de courant, de backscatter et de turbidité	131
7.3.3.	Détermination des caractéristiques des vagues	135
7.4.	Validation du protocole des expériences de remise en suspension	137
7.5.	Etude des contraintes de cisaillement sur le fond	138
7.5.1.	Résultats de la contrainte de cisaillement liée au courant seul	138
7.5.2.	Résultats de la contrainte de cisaillement liée aux vagues seules.....	139
7.5.3.	Résultats de la contrainte de cisaillement liée à l'interaction houle-courant.....	139
7.5.4.	Etude de cas caractéristiques.....	142
7.6.	Résumé des mesures in situ.....	144
7.6.1.	Dynamique à l'embouchure du Rhône par Mistral et Tramontane	146
7.6.2.	Dynamique de l'embouchure du Rhône par vent de Sud-Est.....	148
7.6.3.	Conclusions.....	150
8.	<i>Synthèse et bilan</i>	151
8.1.	Distribution des stocks de plutonium.....	151
8.2.	Estimation des flux potentiels de remobilisation.....	152
8.3.	Bilan sur le devenir du plutonium à l'embouchure du Rhône.....	155
9.	<i>Conclusions et perspectives.....</i>	159
10.	<i>Références Bibliographiques.....</i>	165

INTRODUCTION GÉNÉRALE

1. Introduction générale

Les flux de matières dissoutes et particulaires à l'interface continent-océan ont un impact déterminant sur la productivité et la qualité des environnements côtiers. Depuis le début de l'ère industrielle, les zones côtières subissent une pression anthropique croissante qui conduit lentement à la dégradation de ces écosystèmes fragiles (Kennish, 1997). Dans ce contexte, les fleuves jouent un rôle central puisqu'ils sont à la fois les réceptacles et les vecteurs de nombreux contaminants d'origine naturelle et artificielle. En milieu marin, les sédiments prodeltaïques et estuariens sont fréquemment considérés comme des termes puits majeurs pour les contaminants associés aux particules (Ridgway et Shimmiel, 2002). Cependant ces puits ne sont généralement que temporaires et ne peuvent pas être considérés comme des zones de stockage définitif. En effet, les sédiments côtiers peuvent agir comme des sources diffuses, dites secondaires, de contaminants pour l'environnement. Les interactions complexes entre des processus physiques, chimiques et biologiques peuvent remobiliser les polluants de la colonne sédimentaire vers la colonne d'eau et ainsi favoriser leur dispersion mais également leur biodisponibilité (Zoumis *et al.*, 2001). En zone côtière, la dynamique sédimentaire contrôle le devenir de nombreux contaminants associés à la phase particulaire. A ce titre, les phénomènes de remise en suspension constituent fréquemment la première étape dans la dispersion des sédiments et la remobilisation de nombreux polluants comme les métaux lourds (Calvo *et al.*, 1991) et les métaux traces (Millward *et al.*, 1998 ; Simpson *et al.*, 1998 ; Saulnier et Mucci, 2000 ; Martino *et al.*, 2002). Au cours du temps, les sédiments peuvent donc agir comme des termes puits et des termes sources de contaminants pour l'environnement marin. De ce fait, la connaissance de la dynamique des sédiments fluviaux et côtiers est indispensable pour appréhender celle d'un grand nombre de contaminants associés aux apports terrigènes.

Parmi les contaminants introduits dans l'environnement, les éléments radioactifs artificiels occupent une place de choix compte tenu de leur toxicité chimique mais surtout de leur radiotoxicité. De plus, les radionucléides, qu'ils soient naturels ou anthropiques, sont d'excellents traceurs de processus environnementaux d'origine naturelle et artificielle (MacKenzie, 2000). Dans le cadre du programme WOMARS (Worldwide Marine Radioactivity Studies), le plutonium ($^{239,240}\text{Pu}$), le strontium (^{90}Sr) et le césium (^{137}Cs) ont été sélectionnés comme étant les radionucléides artificiels les plus importants en terme de radioécologie marine (Povinec *et al.*, 2002). En effet, ces trois

radionucléides artificiels sont respectivement les plus abondants dans les trois catégories d'émetteurs alpha, beta et gamma. Ils sont donc potentiellement responsables des plus fortes radiations pour la faune et la flore marine et par conséquent pour l'homme. Des trois radionucléides, seul le plutonium possède une période radioactive suffisamment longue pour persister plusieurs milliers d'années dans l'environnement. Son devenir doit donc être considéré sur le long terme et il est essentiel de connaître à la fois son comportement mais également ses différentes voies de transfert en milieu marin.

Le plutonium introduit dans l'océan mondial provient exclusivement d'activités anthropiques. En fonction de leur impact sur l'environnement, les différentes sources de plutonium peuvent être classées en trois catégories (Livingston et Povinec, 2000). Tout d'abord, les retombées atmosphériques des essais d'armes nucléaires ont représenté la principale source de plutonium à l'échelle mondiale. Puis, des sources accidentelles, comme l'accident de Tchernobyl, ont eu un impact plus restreint. Enfin, les centres de retraitement du combustible nucléaire, comme les sites de Sellafield en Angleterre (Kershaw *et al.*, 2001), de La Hague (Guéguénat *et al.*, 1996 ; Boust, 1999) et de Marcoule (Charmasson, 1998) en France, ont introduit des quantités significatives de plutonium à une échelle régionale. Compte tenu de sa période radioactive, une contamination ponctuelle et locale en plutonium pourrait se transformer en une contamination chronique et diffuse pour l'environnement.

En milieu marin, le comportement physico-chimique du plutonium est particulièrement complexe car il dépend de la spéciation chimique du Pu, c'est à dire de ses états d'oxydation, de ses caractéristiques de sorption... (Choppin et Wong, 1998). Toutefois, le plutonium possède une très forte affinité pour la phase particulaire et son devenir est majoritairement gouverné par la dynamique sédimentaire. A titre d'exemple, Holm (1995) estime que 99 % du plutonium introduit en mer Baltique, par les retombées atmosphériques des essais nucléaires et de l'accident de Tchernobyl, sont intégrés dans le compartiment sédimentaire. Les mêmes conclusions ont été faites sur le plutonium introduit en mer Noire par les retombées atmosphériques (Buesseler et Benitez, 1994). En mer d'Irlande, plus de 90 % du plutonium rejeté par l'usine de Sellafield sont incorporés dans les sédiments situés à proximité de l'émissaire de rejet (Kershaw *et al.*, 1995). Avec le temps, un "pool" significatif de plutonium s'est donc rapidement constitué dans les sédiments de nombreuses marges continentales.

Depuis la fin des années 80, les rejets des différents centres de retraitement européens ont été soit fortement diminués soit définitivement stoppés, comme dans le cas de l'usine de Marcoule. En mer d'Irlande, la réduction drastique des rejets de plutonium par l'usine de Sellafield aurait dû entraîner une baisse significative des concentrations de plutonium dans la colonne d'eau. Or, les niveaux d'activité n'ont pas diminué dans les proportions escomptées et restent relativement élevés (Hunt *et al.*, 1998 ; Leonard *et al.*, 1999 ; Mitchell *et al.*, 1999). Ces observations suggèrent alors l'existence d'une source secondaire de plutonium, jusqu'à présent sous-estimée, et vraisemblablement liée à la remobilisation des stocks sédimentaires.

Les premières études menées sur la dynamique du plutonium concluaient à une relative immobilité du plutonium dans les sédiments (Livingston et Bowen, 1979 ; Sholkovitz *et al.*, 1983 ; Sholkovitz et Mann, 1984). Toutefois dans certaines conditions, les interactions eau-sédiment pourraient être plus importantes que celles estimées auparavant et elles favoriseraient ainsi la mobilité du plutonium. A terme, de nombreux auteurs (Hunt et Kershaw, 1990 ; Cook *et al.*, 1997 ; Kershaw *et al.*, 1999a ; Mitchell *et al.*, 1999, 2001 ; Morris *et al.*, 2000) considèrent que la remobilisation des stocks sédimentaires pourrait représenter la principale source de plutonium pour l'environnement marin. A titre d'exemple, dans la partie occidentale de la mer d'Irlande, Mitchell *et al.* (2001) estiment que la quasi-totalité du plutonium particulaire présent dans la colonne d'eau est liée à la remise en suspension des sédiments contaminés. Par ailleurs, de nombreuses études ont montré qu'une partie du plutonium introduit en mer d'Irlande pouvait être transportée, sous forme dissoute, sur de très grandes distances. En effet, la dispersion du plutonium rejeté par l'usine de Sellafield peut être suivie en mer du Nord, le long des côtes norvégiennes et même jusqu'à l'océan Arctique (Dahlgard, 1995 ; Kershaw et Baxter, 1995 ; Guéguénat *et al.*, 1996 ; Kershaw *et al.*, 1999b ; Cooper *et al.*, 2000). La dispersion du plutonium s'effectuerait donc dans un premier temps par la translocation des sédiments côtiers contaminés (Mackenzie *et al.*, 1987 ; 1999) et dans un second temps, par la dynamique des masses d'eau, suite à la redissolution d'une partie des stocks sédimentaires de plutonium.

Il existe à présent des signes tangibles, en particulier en mer d'Irlande, prouvant que le plutonium peut être remobilisé des sédiments vers la colonne d'eau (Mitchell *et al.*, 2001). Cette remobilisation est contrôlée par différents processus physiques, chimiques et biologiques comprenant la désorption et la diffusion du plutonium au sein des sédiments, la dynamique sédimentaire et la bioturbation (Kershaw *et al.*, 1999a). Compte tenu de sa période radioactive, la remobilisation du plutonium doit être prise en considération pour une évaluation plus réaliste de son devenir sur le long terme. Or, dans la plupart des études traitant du transfert des radionucléides anthropiques dans l'environnement marin, seules sont prises en compte les sources classiques associées soit aux retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires soit aux introductions accidentelles ou encore aux rejets des installations nucléaires. La remobilisation des radionucléides artificiels est donc une thématique innovante qui devrait aboutir à une connaissance plus fiable et plus précise de la radioactivité dans l'environnement marin. Dans ce but, le programme européen *REMOTRANS*¹ a réuni 12 laboratoires de 8 pays européens afin de préciser les différents mécanismes impliqués dans la remobilisation des radionucléides artificiels. Un des objectifs de ce programme était de mieux comprendre les facteurs et les processus qui contrôlent la remobilisation du plutonium en étudiant plus spécifiquement : la spéciation du plutonium, sa partition entre les phases liquide, colloïdale et solide, les réactions de sorption-désorption, les phénomènes de remise en suspension à l'interface eau-sédiment et l'influence d'autres facteurs environnementaux comme la salinité, la température, l'oxygène, le pH... Ces études ont été réalisées pour des environnements marins très contrastés, comprenant la Manche, la mer d'Irlande, la mer du Nord, la mer Baltique et la Méditerranée.

Le présent travail s'intéresse au devenir du plutonium rejeté dans le Rhône par l'usine de Marcoule et à sa dispersion en Méditerranée. En effet, le centre de retraitement du combustible nucléaire de Marcoule, situé sur la basse vallée du Rhône, représentait jusqu'à la fin de ses activités, en 1997, la principale source de plutonium pour le golfe du Lion (Noël, 1996). Entre 1961 et 2000, le complexe de Marcoule aurait rejeté 92 ± 5 GBq de ^{238}Pu et 443 ± 72 GBq de $^{239,240}\text{Pu}$ dans le Rhône, sous la forme d'effluents faiblement radioactifs (Eyrolle *et al.*, 2004). Or, le Rhône représente la principale source d'eau douce, de sédiments mais également de polluants pour l'ensemble du golfe du Lion. Le continuum formé par le Rhône, son prodelta et le plateau continental est un système dynamique complexe qui est au centre des préoccupations de la communauté scientifique engagée dans le chantier golfe du Lion du *PNEC*² (Raimbault et Durrieu de Madron, 2003).

Sous l'effet de la floculation, le matériel particulaire véhiculé par le Rhône sédimente massivement à l'embouchure et entraîne la formation d'une zone prodeltaïque (Aloisi, 1986). Noël (1996) estime que le prodelta du Rhône aurait accumulé sur une surface de 30 km² plus de la moitié des apports particuliers émis par le Rhône sur les trente dernières années. Cette zone préférentielle d'accumulation sédimentaire constitue une importante zone de piégeage pour de nombreux contaminants comme des hydrocarbures (Lipiatou et Saliot, 1991 ; Lipiatou *et al.*, 1997), des métaux traces (Span, 1984 ; Fernex *et al.*, 1992 ; Fernex *et al.*, 2001), des PCB (Tolosa *et al.*, 1997) mais également pour les radionucléides artificiels rejetés par l'usine de Marcoule. Plusieurs études radioécologiques ont déjà été réalisées sur les sédiments du prodelta du Rhône et quasiment toutes se focalisaient sur la distribution de ^{137}Cs (Fernandez, 1984 ; Calmet et Fernandez, 1990 ; Martin et Thomas, 1990 ; Charmasson, 1998 ; 2003 ; Charmasson *et al.*, 1998 ; Radakovitch *et al.*, 1999). Par contre, il existe très peu de mesures de plutonium pour les sédiments situés face à l'embouchure du Rhône. Pourtant, lors d'un premier bilan sur le plutonium à l'échelle du golfe du Lion, Noël (1996) soulignait l'importance du prodelta du Rhône dans le piégeage du plutonium. Ce bilan insistait en particulier sur la difficulté d'estimer correctement la quantité de plutonium stockée dans les sédiments du domaine prodeltaïque en raison de l'importante hétérogénéité spatiale de cette zone.

A l'échelle du golfe du Lion, la dispersion du plutonium est intrinsèquement liée à la dispersion des apports particuliers du Rhône. Dans le cadre de ce travail, les isotopes du plutonium rejetés par l'usine de Marcoule seront utilisés comme traceur anthropique des apports solides du Rhône afin de mieux comprendre leur dispersion sur le plateau continental. La dynamique des sédiments du golfe du Lion a été abordée par des mesures in situ (Naudin et Cauwet, 1997 ; Durrieu de Madron *et al.*, 1999 ; 2000 ; Monaco *et al.*, 1999 ; Lapouyade et Durrieu de Madron, 2001 ; Grémare *et al.*, 2003), des expérimentations en canal à courant (Schaaff *et al.*, 2002 ; Schaaff, 2003) et par la modélisation (Kondrachoff, 1995 ; Casitas, 1999). Cependant à l'heure actuelle, la dynamique sédimentaire du débouché du Rhône et, plus généralement, celle du golfe du Lion sont encore mal connues.

Ce travail de recherche s'inscrit dans une démarche pluridisciplinaire dont le but est d'intégrer différentes approches et outils permettant de mieux cerner la distribution et la remobilisation des isotopes du plutonium dans les sédiments du prodelta du Rhône. Il s'articule donc autour de deux grandes problématiques, avec d'un côté une problématique de radioécologie marine et de l'autre une problématique de dynamique sédimentaire.

Le devenir du plutonium dans la colonne sédimentaire est une question difficile car de multiples facteurs peuvent potentiellement entraîner sa remobilisation. Par ailleurs, le système rhodanien en connexion avec le golfe du Lion est un système dynamique complexe qu'il faudra caractériser pour mieux comprendre le devenir du plutonium à l'embouchure du Rhône. L'état des connaissances sur ces différents domaines sera donc exposé en préambule de cette étude, respectivement aux Chapitres 2 et 3. Par la suite, notre démarche a été motivée par la question suivante, qui servira de fil conducteur tout au long de ce mémoire : les sédiments du prodelta du Rhône peuvent-ils constituer une source de plutonium pour le golfe du Lion ?

Poser la question d'une remobilisation du plutonium sous-entend nécessairement l'existence d'un stock. Or, la littérature ne renferme que de rares données sur le plutonium dans les sédiments du golfe du Lion en général et du prodelta du Rhône en particulier. La première étape de ce travail visait donc à combler ce manque de données. Elle a été réalisée dans le cadre du programme *REMOTRANS* où des efforts importants d'échantillonnage et d'analyse ont été effectués pour caractériser les stocks sédimentaires situés face à l'embouchure du Rhône (Chapitre 4). L'ensemble des mesures réalisées au cours de ce travail nous a permis d'étudier la distribution spatiale des isotopes du plutonium et nous essayerons de comprendre les processus et la dynamique qui ont pu engendrer cette répartition. Ces mesures nous permettront également d'estimer pour la première fois les stocks de plutonium contenus dans les sédiments face à l'embouchure du Rhône (Chapitre 5).

Le deuxième volet de cette étude avait pour objectif d'estimer un flux potentiel de remobilisation du plutonium pour la zone étudiée. Dans le cadre du programme *BIOFLOW*³, des expériences de remise en suspension en canal à courant ont été réalisées pour des sédiments prélevés sur l'aire prodeltaïque. Cette approche innovante permet d'étudier en parallèle l'érosion des sédiments superficiels et la remobilisation du plutonium dans des conditions expérimentales proches des conditions environnementales (Chapitre 6).

Ces expérimentations en laboratoire ont nécessité par la suite une validation par des mesures de terrain. La troisième étape de ce travail passait par la réalisation d'une campagne in situ de mesures physiques (houle-courant) à l'embouchure du Rhône (Chapitre 7). Les résultats acquis ont permis d'étudier la dynamique sédimentaire du prodelta et ses variations temporelles. Les principaux forçages responsables des phénomènes de remise en suspension et donc de la remobilisation du plutonium ont pu être mis en évidence.

En intégrant l'ensemble de ces résultats, nous discuterons les différents scénarios envisageables pour le devenir du plutonium du prodelta du Rhône à l'échelle du golfe du Lion.

Ce travail de thèse a bénéficié du support logistique et financier des programmes nationaux et européens suivants :

- ¹Programme REMOTRANS (FIGE-CT-2000-00085) : Processes Regulating Remobilisation, Bioavailability and Translocation of Radionuclides in Marine Sediments.
- ²Programme National en Environnement Côtier (PNEC) : chantier golfe du Lion
- ³Programme BIOFLOW (EVR1-CT-2001-20008) : Flume Facility Co-operation Network for Biological Benthic Boundary Layer Research (<http://www.bioflow-eu.net>).
- Programme OAERRE (EVK3-CT-1999-00002): Oceanographic Applications to Eutrophication in Regions of Restricted Exchange (<http://www.oaerre.napier.ac.uk>).

CHAPITRE 2

2. Le plutonium dans l'environnement marin

2.1. Caractéristiques générales du plutonium

Le plutonium est un métal lourd qui est toxique chimiquement mais c'est également un des éléments les plus radiotoxiques. Il a été découvert en 1941 par l'équipe de G.T. Seaborg à l'université de Berkeley en Californie. Avec un numéro atomique (Z) de 94, le plutonium (Pu) est un radioélément transurien de la famille des actinides obtenu par transmutation artificielle de l'uranium. Suite à la capture d'un neutron, l'uranium 238 se transforme rapidement en neptunium 239. Le neptunium se transmute à son tour par rayonnement beta en plutonium 239. Comme l'uranium 235, le plutonium 239 est un élément fissile qui sert de combustible nucléaire dans les centrales électronucléaires.

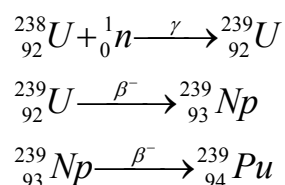


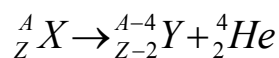
Figure 2-1 : Formation du ${}^{239}\text{Pu}$ par la capture neutronique de l' ${}^{238}\text{U}$.

Quinze isotopes du plutonium ont été synthétisés et leur nombre de masse (A) varie de 232 à 246. Dans l'environnement, les isotopes quantitativement les plus importants sont compris entre le ${}^{238}\text{Pu}$ et le ${}^{241}\text{Pu}$ (Pentreath, 1995). Les caractéristiques des principaux isotopes du Pu sont présentées dans le Tableau 2-1.

Tableau 2-1 : Caractéristiques des principaux isotopes du plutonium.

Isotope	Période radioactive (année)	Activité spécifique (Bq.g ⁻¹)	Masse du becquerel (g)	Energie principale d'émission (keV)
${}^{238}\text{Pu}$	87,75	$6,3 \cdot 10^{11}$	$1,55 \cdot 10^{-12}$	5499
${}^{239}\text{Pu}$	24 110	$2,3 \cdot 10^9$	$4,40 \cdot 10^{-10}$	5155
${}^{240}\text{Pu}$	6 570	$8,4 \cdot 10^9$	$1,19 \cdot 10^{-10}$	5168
${}^{241}\text{Pu}$	14,4	$4,1 \cdot 10^{12}$	$2,39 \cdot 10^{-13}$	21

A l'exception du ^{241}Pu qui est émetteur de rayonnements beta, les isotopes du plutonium sont tous des émetteurs de rayonnement alpha. Leur désintégration est caractérisée par l'émission d'une particule alpha composée de deux protons et de deux neutrons, soit l'équivalent d'un atome d'hélium.



Le rayonnement alpha est un rayonnement fortement ionisant mais très peu pénétrant. De ce fait le plutonium ne présente pas de risques d'irradiation externe. En revanche, s'il est absorbé par inhalation ou ingestion, l'effet du rayonnement a des conséquences biologiques certaines. Le plutonium peut se fixer en particulier sur les os ou s'accumuler dans des organes comme le foie ou les poumons (Taylor, 1995). En raison de sa période radioactive élevée, le plutonium est un élément persistant dans l'environnement et l'étude de son devenir doit être considéré sur le long terme.

Le plutonium présent dans l'environnement a une origine naturelle négligeable et une origine artificielle prépondérante. En effet, des quantités infinitésimales de plutonium peuvent se former naturellement. Elles résultent de l'effet des rayonnements cosmiques sur l' ^{238}U présent dans les minerais uranifères de la croûte terrestre (Curtis *et al.*, 1999). A l'échelle du globe, ces sources naturelles de plutonium sont insignifiantes et la quasi-totalité du plutonium présent dans l'environnement est d'origine anthropique. Les différentes activités nucléaires ont entraîné la dispersion dans l'environnement d'une quantité significative de transuraniens (MacKenzie, 2000). Parmi ces sources, certaines ont eu un impact global à l'échelle de la planète alors que d'autres ont eu un impact plus local (Aarkrog, 2003).

✓ *Les retombées atmosphériques des essais d'armes nucléaires*

Les essais atmosphériques d'armes nucléaires, effectués de 1945 à 1980, ont constitué la principale source de plutonium pour l'environnement. Selon l'UNSCEAR (1982), les retombées atmosphériques de ces essais ont conduit à la dispersion à l'échelle mondiale des isotopes 238 à 241 du plutonium dans les proportions du Tableau 2-2 :

Tableau 2-2 : Activités des différents isotopes du plutonium introduits dans l'atmosphère par les essais d'armes nucléaires (UNSCEAR, 1982).

Isotope	Activité totale introduite dans l'atmosphère (PBq)
^{238}Pu	0,33
^{239}Pu	7,80
^{240}Pu	5,20
^{241}Pu	170

Hamilton *et al.* (1996) estiment que 90 % des retombées atmosphériques ont eu lieu avant 1970. Comme nous le verrons au cours du Chapitre 4, l'origine du plutonium peut être déterminée par l'utilisation du rapport d'activité (RA) $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ qui est spécifique pour chaque source de plutonium. Les retombées atmosphériques globales ont été caractérisées par un rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ d'environ 0,025 (Aarkrog, 1988).

✓ ***Les accidents***

Un certain nombre d'accidents a également contribué à l'introduction de plutonium dans l'environnement. Deux d'entre eux ont eu un impact à grande échelle :

- En 1964, le satellite américain Transit 5-BN-3, équipé d'un générateur nucléaire (SNAP-9A) contenant 630 TBq de ^{238}Pu , s'est désintégré dans la stratosphère. Les retombées atmosphériques successives à cet accident ont contribué significativement à l'évolution du RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$. Au début des années 70, le RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ atteignait environ 0,05 dans l'hémisphère nord (Aarkrog, 1988). Avec la décroissance radioactive, le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ caractéristique des retombées atmosphériques globales est de 0,03 en 2001.
- L'accident de la centrale de Tchernobyl en avril 1986 est le plus grave de l'histoire des réacteurs nucléaires. Les rejets de Pu liés à cet accident ont été estimés pour les isotopes ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu respectivement à 30, 36 et 26 TBq (UNSCEAR, 1988). La dispersion de ces transuraniens a été inégale mais l'essentiel des dépôts est resté confiné à une échelle régionale. En dehors de cette zone, les retombées atmosphériques de plutonium issu de Tchernobyl sont négligeables par rapport aux quantités introduites par celles des essais nucléaires.

Enfin, d'autres accidents, concernant principalement le transport d'armes nucléaires, ont eu un impact plus local (MacKenzie, 2000). Citons pour exemple, l'accident de Palomares en Espagne (1966) et de Thulé au Groenland (1968).

✓ ***Les centres de retraitement du combustible nucléaire***

Actuellement, les centres de retraitement du combustible irradié sont les principales sources de plutonium pour l'environnement marin. En Europe, les centres les plus importants sont situés à Sellafield en Angleterre et à la Hague en France (Aarkrog, 2003). Ces deux centres rejettent leurs effluents directement en mer pour favoriser la dilution et la dispersion des rejets. En France, il existait jusqu'en 1997 un second site de retraitement situé à Marcoule dont les effluents étaient rejetés directement dans le Rhône. Comme nous le verrons au chapitre suivant, la dispersion des rejets de Marcoule est complexe car avant d'atteindre le milieu marin, les radionucléides sont sous la dépendance de la dynamique du Rhône.

2.2. Le comportement physico-chimique du plutonium en milieu marin

Depuis sa découverte et son introduction dans l'environnement marin, le plutonium a fait l'objet de nombreuses études (Baxter *et al.*, 1995). Toutefois comme le souligne Pentreath (1995), le plutonium est un élément qui reste méconnu. Cette partie présente, d'une manière non exhaustive, des éléments sur le comportement physico-chimique du plutonium afin de mieux comprendre sa réactivité et ses voies de transfert dans le milieu marin.

2.2.1. La spéciation du plutonium

Dans les milieux aquatiques, le comportement physico-chimique des actinides en général et du plutonium en particulier est très complexe. En effet, la configuration électronique des actinides présente une insaturation de la sous-couche électronique 5f. Cette caractéristique peut induire une importante hybridation des niveaux électroniques externes entraînant différents états d'oxydation. En solution, le plutonium peut présenter simultanément jusqu'à 4 états d'oxydation différents, allant du Pu (III) au Pu (VI), respectivement sous les formes Pu^{3+} , Pu^{4+} , PuO_2^{2+} et PuO_2^{+} (Nelson et Lovett, 1978). La distribution des différents états d'oxydation du plutonium est gouvernée par les réactions d'oxydoréduction suivantes (Choppin, 1991) :

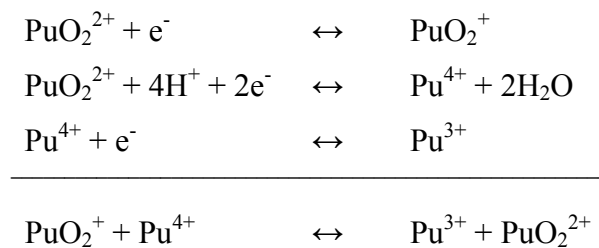


Figure 2-2 : Réactions d'oxydoréduction entre les différents états d'oxydation du plutonium.

En milieu marin, la spéciation et le comportement du plutonium sont particulièrement complexes (Choppin et Wong, 1998 ; Silver, 2001) et dépendent principalement des conditions géochimiques de l'environnement considéré (Vives i Batlle, 1993). En effet, la réactivité du plutonium (solubilité, sorption, complexation...) vis-à-vis de son environnement peut différer significativement d'un état d'oxydation à un autre (Choppin et Morgenstern, 2001). Par conséquent, la mobilité et la biodisponibilité du plutonium sont fortement influencées par la forme physico-chimique du Pu. Pour comprendre le comportement et la dynamique du plutonium, plusieurs travaux se sont donc intéressés à la distribution des états d'oxydation du Pu dans l'environnement marin.

Dans la colonne d'eau, environ 90 % du plutonium dissous est sous la forme oxydée Pu (V) (Mitchell *et al.*, 1995). Les formes oxydées du plutonium sont peu réactives et leur dispersion s'effectue en concomitance avec la dynamique des masses d'eau. A l'opposé, les formes réduites du plutonium, majoritairement sous la forme Pu (IV), sont insolubles et prédominent dans la phase particulaire et la colonne sédimentaire (Baxter *et al.*, 1995). Ces formes réduites ont tendance à s'hydrolyser et à se complexer rapidement avec des ligands organiques et inorganiques, des hydroxydes de fer et de manganèse mais également avec des acides humiques et fulviques (Choppin et Wong, 1998 ; Choppin et Morgenstern, 2001). Par conséquent, le devenir du plutonium particulaire est principalement gouverné par la dynamique sédimentaire (Mackenzie *et al.*, 1987). En zones côtières, la majorité du plutonium est associée à la phase particulaire et une fraction minoritaire du Pu est en solution. Par ailleurs, la phase colloïdale (<0,45µm) peut également jouer un rôle important dans le transport du plutonium. En milieu côtier, le plutonium associé à la phase colloïdale représenterait entre 8 et 14 % du plutonium total (Mitchell *et al.*, 1995 ; Dai *et al.*, 2001). En fonction de la spéciation du plutonium, on peut donc s'attendre à un découplage entre la dispersion des formes réduites et des formes oxydées. Les deux stocks de plutonium décrits ci-dessus ne sont bien évidemment pas disjoints et de nombreux processus physico-chimiques peuvent assurer le transfert du plutonium entre ces deux compartiments. Ces processus regroupent en particulier des réactions de sorption-désorption, sédimentation-remise en suspension...

2.2.2. Affinité du plutonium pour la phase particulaire

Pour caractériser l'affinité d'un radioélément en solution pour la phase particulaire, un coefficient de distribution, noté Kd, est fréquemment utilisé. Le Kd est un rapport d'activité spécifique qui permet de décrire l'équilibre chimique d'un radionucléide entre la phase solide et la phase liquide.

$$Kd = \frac{\text{Activité spécifique dans la phase particulaire } (Bq.kg^{-1})}{\text{Activité spécifique dans la phase dissoute } (Bq.l^{-1})}$$

Les valeurs moyennes de Kd pour le plutonium en milieu marin sont comprises entre 10^5 - 10^7 l.kg⁻¹ (AIEA, 1985). Le plutonium réduit, Pu (IV), présente une très forte affinité pour les particules avec un Kd de 2 ordres de grandeur supérieur au Kd du plutonium oxydé, Pu (V) (Nelson et Lovett, 1978). Par ailleurs, les caractéristiques physico-chimiques des sédiments influent considérablement sur la sorption du plutonium. En général, le plutonium s'adsorbe préférentiellement sur les particules les plus fines car elles présentent une plus grande surface d'échange spécifique (Duursma et Gross, 1971 ; Hetherington, 1978, MacKenzie et al., 1999). Les sédiments fins sont donc généralement considérés comme les principaux réservoirs de plutonium pour l'environnement marin.

2.3. La remobilisation du plutonium

2.3.1. Définitions

D'une manière générale, la remobilisation du plutonium sera définie comme le transfert de Pu de la colonne sédimentaire vers la colonne d'eau. Ce transfert peut être actif ou passif et s'effectuer avec ou sans changement de phase (particulaire/dissous). La remobilisation regroupe donc deux phénomènes bien distincts. Tout d'abord, un phénomène physique lié à la remise en suspension des sédiments contaminés. En effet, le Pu associé à la phase particulaire peut être réinjecté dans la colonne d'eau par la remise en suspension des sédiments. Puis, un processus chimique réversible et relativement lent de sorption-désorption. La remobilisation chimique est due à l'existence d'un équilibre entre les concentrations de plutonium dans l'eau de mer et celles dans l'eau interstitielle des sédiments. Une fraction du Pu adsorbé sur les particules est dite labile, c'est-à-dire susceptible d'être échangée entre la phase particulaire et la phase dissoute d'une manière réversible. Une autre fraction non labile serait très fortement liée à la phase particulaire et difficilement désorbable (Hamilton-Taylor *et al.*, 1993). La remobilisation chimique entraîne nécessairement un changement de phase entre le particulaire et le dissous. La redissolution du plutonium peut avoir lieu à l'intérieur même de la colonne sédimentaire, par désorption du plutonium vers l'eau interstitielle, mais également dans la colonne d'eau, suite à la remise en suspension de sédiments contaminés. Nous distinguerons donc la remobilisation physique du plutonium, liée à la remise en suspension des sédiments, de la remobilisation chimique, liée à la désorption du plutonium.

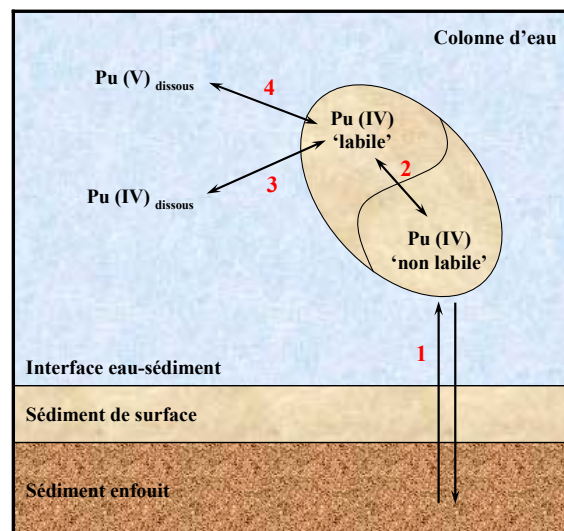


Figure 2-3 : Représentation schématique des processus physico-chimiques impliqués dans la remobilisation du plutonium à l'interface eau-sédiment, d'après McCubbin *et al.* (1999). (1) Remobilisation physique du Pu lié à la dynamique sédimentaire et à la bioturbation. (2) Inter conversion entre les formes labiles et non labiles du Pu (IV), d'après Hamilton-Taylor *et al.* (1993). (3) Réactions rapides et réversibles de complexation du Pu à la surface des particules. (4) Réactions d'oxydoréduction du premier ordre à la surface des particules.

2.3.2. La dynamique du plutonium dans les sédiments

Une fois introduit dans le milieu marin, le plutonium s'adsorbe rapidement sur les particules en suspension et finit par atteindre l'interface eau-sédiment. Cependant, l'intégration du plutonium au sein de la colonne sédimentaire est contrôlée par de nombreux processus chimiques (sorption-désorption), physiques (sédimentation-remise en suspension) et biologiques (bioturbation). La remobilisation du plutonium pose alors la question de la mobilité du Pu au sein de la colonne sédimentaire.

2.3.2.1. La mobilité du plutonium

L'analyse des eaux interstitielles est l'une des meilleures méthodes pour appréhender la désorption et la diffusion du plutonium au sein de la colonne sédimentaire. Toutefois cette méthode est difficile à réaliser avec succès. Compte tenu de la porosité des sédiments, le volume d'eau interstitielle que l'on peut extraire d'une strate sédimentaire est très restreint. La mesure des niveaux d'activité, extrêmement faibles dans de tels échantillons, nécessite des appareils de détection très performants. De plus, le plutonium étant très réactif au contact de l'oxygène, toute exposition à l'air doit être proscrite pour que les résultats soient fiables et en accord avec les conditions environnementales. En effet, si les échantillons d'eaux interstitielles contiennent des espèces fortement réactives au contact de l'oxygène comme Fe^{2+} , Mn^{2+} , S^{2-} ..., il peut y avoir une oxydation favorisant la précipitation de ces composés sous forme d'oxyhydroxides. Dans ces conditions, le Pu peut coprécipiter avec ses oxyhydroxides et ne pas être échantillonné lors de l'extraction. Ce problème méthodologique entraîne alors une sous estimation des concentrations de plutonium dans les eaux interstitielles et donc minimise les flux de remobilisation chimique.

Plusieurs études ont donc été menées pour différents environnements sédimentaires côtiers et profonds avec plus ou moins de réussite (Livingston et Bowen, 1979 ; Nelson et Lovett, 1981 ; Sholkovitz et Mann, 1984 ; Malcolm *et al.*, 1990a ; Livens *et al.*, 1994 ; Morris *et al.*, 2001). D'une manière générale, les profils de concentration de plutonium dans les eaux interstitielles sont parallèles aux concentrations de plutonium dans les sédiments, ce qui suggère un équilibre entre les deux phases. Par ailleurs, les concentrations en Pu dans l'eau interstitielle peuvent être jusqu'à 10 fois plus élevées que celles de l'eau de mer surnageante. Ce gradient de concentration favorise la diffusion du plutonium des sédiments vers la colonne d'eau. Le flux de plutonium dissous vers l'eau surnageante peut être dérivé des profils de concentrations de Pu des eaux interstitielles. Pour les sédiments profonds de l'Atlantique nord, Buesseler et Sholkovitz (1987) estiment un flux de plutonium de 0,5 à 40 $\text{mBq.m}^{-2}.\text{a}^{-1}$, soit approximativement de 0,01 à 0,1 % du stock sédimentaire. Le potentiel de remobilisation des sédiments côtiers a été estimé de la même manière par Sholkovitz *et al.* (1983) et Sholkovitz et Mann, (1984) qui donnent un flux de Pu de 3 à 12 $\text{mBq.m}^{-2}.\text{a}^{-1}$. Pour ces auteurs, le plutonium ne subirait pas la diagenèse précoce et serait quasiment immobile dans les sédiments. Le

taux de redissolution et la vitesse de diffusion du plutonium étant très lents, le potentiel de remobilisation chimique du plutonium des sédiments vers la colonne d'eau est donc extrêmement faible. Si la désorption du plutonium est très lente dans les sédiments, d'autres facteurs peuvent néanmoins accélérer cette redissolution.

2.3.2.2. Les associations géochimiques du plutonium

Au sein de la colonne sédimentaire, la dynamique du plutonium est également influencée par ses associations géochimiques. La technique d'extraction séquentielle (Tessier *et al.*, 1979) permet d'évaluer les différentes phases géochimiques associées au plutonium et ainsi de prédire les conditions environnementales de désorption. D'après McDonald *et al.* (2001), plus de 95 % du plutonium présent dans la vasière centrale de la mer d'Irlande sont associés à des phases difficilement échangeables ou totalement réfractaires comme des fractions organiques, oxydables et résiduelles. Par conséquent, la fraction de plutonium facilement disponible et échangeable est inférieure à 5 % du Pu total. Des résultats similaires ont été obtenus pour des sédiments du prodelta du Rhône où moins de 15 % du plutonium total sont associés à des fractions échangeables (C. Gascó, communication personnelle).

Ces observations sont toutefois à nuancer compte tenu de résultats récents obtenus pour des sédiments de l'estuaire de Ravensglass en mer d'Irlande. En effet, des extractions séquentielles, réalisées en préservant continuellement les conditions d'anoxie des sédiments, montrent que plus de 50% du plutonium seraient associés à des phases réactives et donc facilement oxydables comme celles des carbonates et des sulfures (Lucey *et al.*, 2004). Ces fractions sont facilement échangeables en particulier lors de variations des conditions redox ou de pH. Ces résultats suggèrent alors une réévaluation du plutonium dans la phase échangeable (forme labile) et donc une remobilisation chimique potentiellement plus importante.

2.3.3. Les facteurs contrôlant la remobilisation du plutonium

2.3.3.1. Facteurs chimiques

Différents paramètres chimiques comme la salinité, le pH, le potentiel redox, les conditions d'oxygénation du milieu, la concentration en carbone organique dissous peuvent favoriser la redissolution du plutonium. Parmi ces facteurs, la salinité est sans doute l'un des plus importants vis-à-vis de la dissolution du Pu. En effet, des expériences en laboratoire ont montré que la désorption du plutonium est maximale pour des salinités inférieures à 10. A l'inverse, des salinités plus élevées favorisent la précipitation du plutonium (Burton, 1986 ; Hamilton-Taylor *et al.*, 1987, Hamilton-Taylor *et al.*, 1993). Les systèmes estuariens présentent d'importantes variations de salinité et sont donc particulièrement propices à la dissolution du plutonium (Assinder *et al.*, 1990 ; Garcia *et al.*, 1996 ; Morris *et al.*, 2000).

Par ailleurs, les conditions géochimiques de la colonne sédimentaire jouent un rôle direct sur la spéciation du Pu et donc sur sa mobilité. En effet, le plutonium comme de nombreux contaminants est sensible aux variations redox du milieu environnant. Les variations du potentiel redox (E_h) et du pH entraînent différents états d'oxydation du Pu, comme le montre le diagramme ci-dessous :

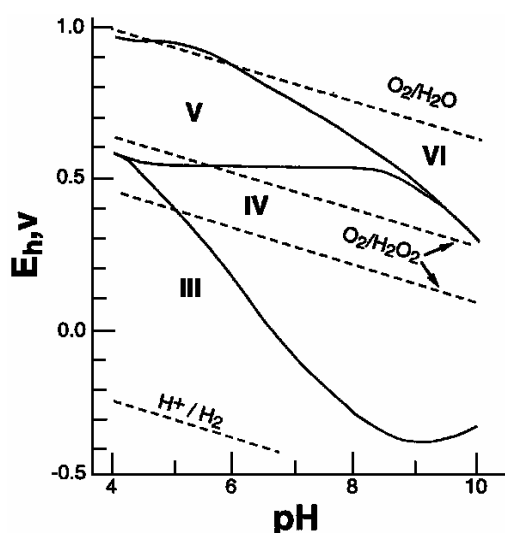


Figure 2-4 : Diagramme potentiel-pH pour la spéciation du plutonium (Choppin et Morgenstern, 2001).

Les eaux interstitielles sont généralement caractérisées par une diminution du pH et de E_h , probablement liée à des concentrations élevées de H_2S et à la reminéralisation de la matière organique par l'activité bactérienne. D'après la Figure 2-4, ces conditions réductrices favorisent les formes les moins mobiles du Pu. De nombreux auteurs évoquent alors l'importance des variations redox dans la remobilisation chimique du plutonium (Buessler *et al.*, 1985 ; Malcolm *et al.*, 1990b ; Choppin et Morgenstern, 2001). La remobilisation du Pu serait liée en partie aux cycles biogéochimiques du fer et du manganèse qui sont reconnus comme étant très réactifs vis-à-vis de nombreux métaux. En effet, les particules sont généralement composées d'une matrice riche en matière organique couverte d'oxydes de fer et de manganèse sur lesquels s'adsorbe le plutonium (Hamilton, 1989). Le mécanisme proposé pour la remobilisation du Pu serait lié à la réduction d'oxyhydroxydes de Fe (III) et Mn (IV) en Fe (II) et Mn (II) solubles. Cette dissolution pourrait entraîner un relargage du plutonium vers l'eau interstitielle et ainsi favoriser la remobilisation chimique du Pu. Cependant, ces réactions sont difficiles à mettre en évidence d'autant plus que d'autres facteurs peuvent intervenir, en particulier des processus microbiens (Morris *et al.*, 2001).

Par ailleurs, le potentiel redox de la colonne sédimentaire est fonction de la concentration en oxygène dissous. Des conditions réductrices, liées à des conditions anoxiques, favorisent les formes Pu (III) et (IV) qui sont très réactives et très peu mobiles. La réactivité du plutonium a donc été testée dans différents sédiments anoxiques et les résultats ne montrent aucun signe probant de désorption

(Alberts et Orlandini, 1981 ; Carpenter et Beasley, 1981 ; Buesseler *et al.*, 1985 ; Ikäheimonen *et al.*, 1996).

De nombreux autres facteurs peuvent entraîner la réduction du Pu (V) en Pu (IV) tels que des concentrations élevées en carbone organique dissous et en carbonates, la présence d'apports terrigènes importants ou d'autres polluants (Mitchell *et al.*, 1995). Ces conditions de réduction favorisent l'adsorption du plutonium sur les particules et participent indirectement au transfert du Pu vers le compartiment sédimentaire.

2.3.3.2. Facteurs physiques

Divers facteurs physiques peuvent conduire à une remobilisation physico-chimique du plutonium. Comme l'indiquent Hunt et Kershaw (1990), la dispersion du plutonium ne se fait pas majoritairement dans la phase dissoute et par conséquent la dynamique sédimentaire est essentielle dans la dissémination du plutonium. La remobilisation physique du plutonium est principalement contrôlée par la remise en suspension et la translocation des sédiments contaminés. En perturbant l'équilibre chimique entre l'eau et les particules, les phénomènes de remise en suspension favorisent également la remobilisation chimique du Pu et ce d'autant plus qu'ils augmentent le temps de contact entre les deux fractions.

D'autres paramètres physiques comme la lumière et la température peuvent favoriser la désorption du plutonium. Leurs effets sur la dynamique du Pu ont été étudiés en laboratoire. La lumière peut influencer directement la remobilisation du plutonium par des réactions de photo-oxydation (McCubbin et Leonard, 1996 ; McCubbin *et al.*, 2002). En laboratoire, la dissolution des formes oxydées du Pu augmente avec la température et l'intensité lumineuse. A l'inverse, les formes réduites ne semblent pas affectées par les rayonnements lumineux et des variations de température dans la gamme 4-25°C (McCubbin *et al.*, 1999).

L'advection d'eau interstitielle (Huettel et Webster, 2001 ; Reimers *et al.*, 2004) pourrait également constituer un transport actif de Pu dissous des sédiments vers la colonne d'eau. Toutefois, l'importance de cette advection serait restreinte aux sédiments perméables et donc aux sédiments non cohésifs.

Enfin, certaines activités anthropiques, comme le chalutage et le dragage, favorisent la remise en suspensions des sédiments et donc potentiellement la remobilisation du plutonium.

2.3.3.3. Facteurs biologiques

La faune et la flore endogées peuvent restreindre ou au contraire favoriser la remobilisation physico-chimique du plutonium de manière directe ou indirecte. En effet, l'activité de bioturbation joue un rôle crucial dans le remaniement sédimentaire et peut favoriser l'incorporation du Pu dans la colonne sédimentaire (Kershaw *et al.*, 1984a ; 1984b). La bioturbation a également un impact direct

sur les conditions du milieu (bioirrigation, bioventilation) qui peut favoriser ou non la remobilisation du Pu en modifiant les paramètres environnementaux (pH, E_h , concentrations en oxygène dissous...).

Par ailleurs, l'activité biologique intervient sur la dynamique des sédiments en stabilisant ou en déstabilisant la colonne sédimentaire (Davis, 1993 ; Graf et Rosenberg, 1997 ; de Deckere *et al.*, 2001). Ainsi, elle contribue indirectement à favoriser ou à lutter contre la remobilisation physique du plutonium.

Enfin, l'activité bactérienne joue un rôle clef dans la remobilisation ou la séquestration du plutonium, même si, à l'heure actuelle, il n'existe que très peu d'informations sur les interactions entre les micro-organismes et le plutonium (Arokiasamy, 2001).

Dans le milieu marin, la dynamique du plutonium est contrôlée par la coexistence et les interactions complexes de l'ensemble des processus décrits ci-dessus. La nature et l'intensité de ces processus sont sans doute très variables et on peut s'attendre à des niveaux de remobilisation physico-chimique du plutonium très contrastés, en fonction des conditions environnementales et de la dynamique du site étudié.

CHAPITRE 3

3. Cadre de l'étude et relations avec le plutonium

Le présent travail se focalise sur le devenir du plutonium dans les sédiments du prodelta du Rhône. Cette unité sédimentaire occupe une place stratégique au sein du golfe du Lion puisqu'elle est soumise aux apports directs du Rhône et à la circulation générale. La première partie de ce chapitre expose dans la continuité les grandes lignes de la dynamique du Rhône, du prodelta du Rhône et du golfe du Lion. La seconde partie présente l'état des connaissances sur le plutonium introduit dans le Rhône et sur son devenir à l'échelle du golfe du Lion.

3.1. Caractéristiques du site d'étude

3.1.1. La dynamique du Rhône

Avec une longueur de 812 km et un bassin versant d'environ 100 000 km², le Rhône est le premier fleuve du bassin méditerranéen (Figure 3-1). Il constitue la principale source d'eau douce, de sédiments mais également de polluants pour l'ensemble du golfe du Lion. Les apports du Rhône jouent un rôle majeur sur la dynamique des écosystèmes du golfe du Lion (Cruzado et Velasquez, 1990).

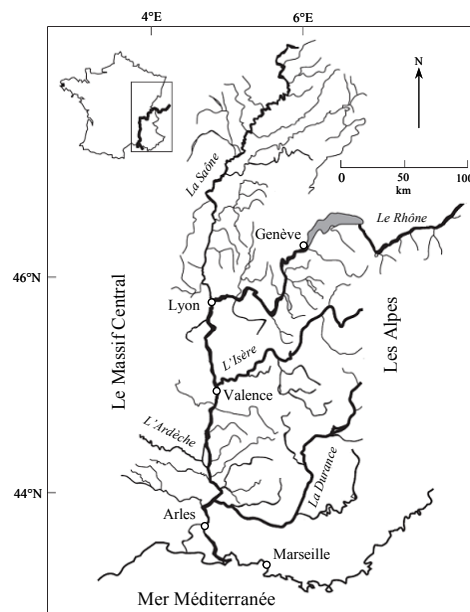


Figure 3-1 : Bassin hydrographique du Rhône.

✓ *Les apports liquides*

Le régime hydraulique du Rhône est caractérisé par d'importantes variations saisonnières et interannuelles. Les débits sont irréguliers avec une période d'étiage en été et des périodes de crue marquées du début de l'automne à la fin de l'hiver. A Beaucaire, le débit moyen annuel du fleuve est de $1\,700\text{ m}^3.\text{s}^{-1}$. Toutefois, en fonction d'événements météorologiques exceptionnels (sécheresse, crue cévenole, crue alpine...), les débits du Rhône peuvent être très contrastés, avec des périodes d'étiage inférieures à $500\text{ m}^3.\text{s}^{-1}$ et des crues exceptionnelles atteignant plus de $10\,000\text{ m}^3.\text{s}^{-1}$ (Figure 3-2). Les crues annuelles sont généralement caractérisées par un débit seuil se situant autour de $3\,000\text{ m}^3.\text{s}^{-1}$. La dernière crue exceptionnelle, avec une période de retour d'environ 100 ans, enregistrée avant le début de ce travail, remonte à janvier 1994 avec un débit maximum de $10\,500\text{ m}^3.\text{s}^{-1}$.

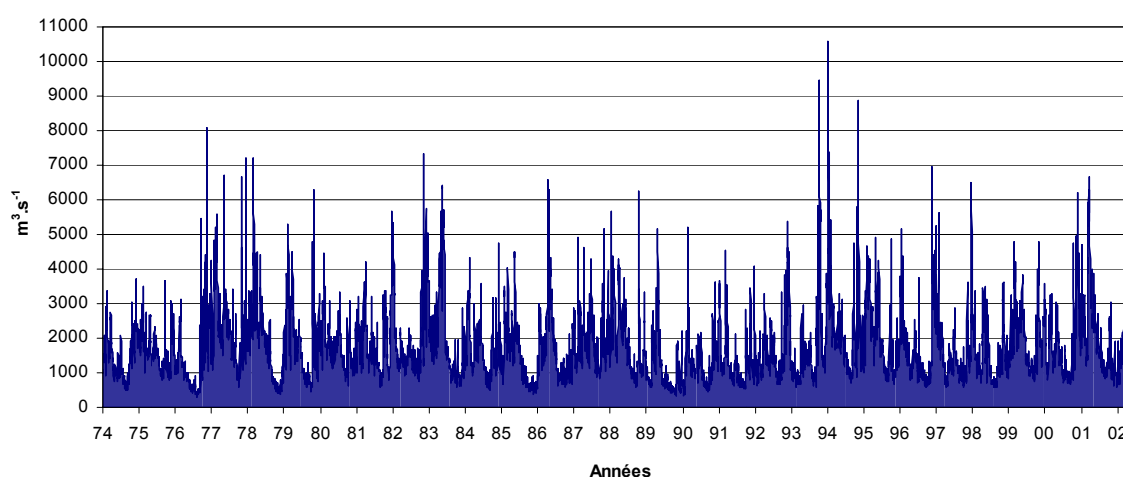


Figure 3-2 : Evolution temporelle des débits moyens journaliers du Rhône mesurés à Beaucaire entre 1974 et 2002 par la Compagnie Nationale du Rhône.

✓ *Les apports solides*

Le bassin versant du Rhône représente plus de 80 % des apports solides terrigènes pour le golfe du Lion (Monaco *et al.*, 1990). Les bassins versants pyrénéo-languedociens, beaucoup plus réduits en taille, viennent compléter ces apports. Les estimations actuelles du débit solide du Rhône sont de l'ordre de 2 à 8 Mt.a^{-1} (Roditis et Pont, 1993 ; Pont, 1997 ; Antonneli, 2002) avec des variations interannuelles très marquées, pouvant atteindre $26,5\text{ Mt.a}^{-1}$ (Antonneli, 2002). Environ 80 % de l'exportation de matières solides s'effectuent lors des épisodes de crue et transitent dans le lit naturel du Rhône. La nature et la quantité du matériel particulaire exportées sont très variables et dépendent principalement du débit et de l'origine des crues (Pont *et al.*, 2002).

3.1.2. Le prodelta du Rhône : une zone stratégique

Le Rhône débouche dans le golfe du Lion par un delta mis en place au cours de l'Holocène sous l'action combinée du niveau de la mer et des apports fluviaux (Vella, 1999). Ainsi, la Camargue forme un vaste complexe sédimentaire encadré par le petit Rhône à l'Ouest et le grand Rhône à l'Est. Le grand Rhône canalise 9/10^{ème} du débit liquide et débouche en Méditerranée par le Grau de Roustan depuis 1893.

A l'embouchure du Rhône, les eaux douces s'épandent sur l'eau de mer plus dense, formant ainsi un panache de dilution. Cette couche de mélange est marquée par d'importants gradients thermohalins entraînant une forte stratification des masses d'eaux. Pendant la phase de mélange, le devenir du matériel particulaire est influencé par de nombreux facteurs : adsorption / désorption, floculation / désagrégation, sédimentation / remise en suspension, production / broutage, absorption / excrétion,... Les études menées sur le comportement dispersif du matériel en suspension ont permis de mettre en évidence un système de transfert multicouche (Aloisi *et al.*, 1982 ; Aloisi, 1986), (Figure 3-3). Face à l'embouchure du Rhône, les structures hydrologiques verticales sont très variables et peuvent former :

- un système bicouche avec un front thermohalin bien marqué
- un système homogène sur l'ensemble de la colonne d'eau
- un système multicouche complexe résultant d'une succession de nappes de dilution superposées

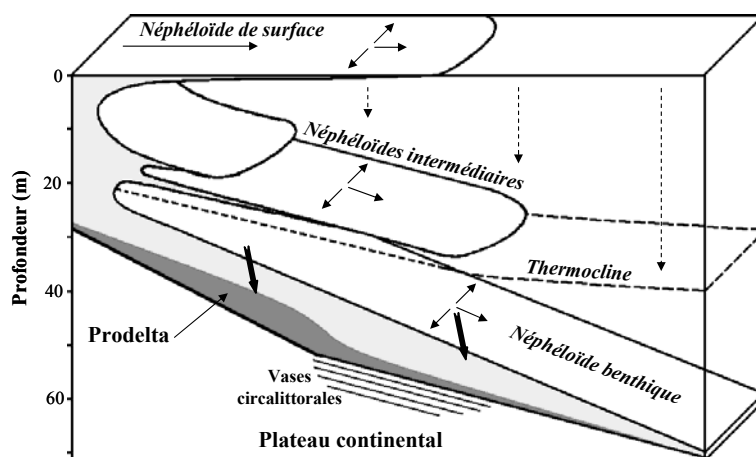


Figure 3-3 : Schéma du système turbide multicouche au large du prodelta du Rhône (Aloisi *et al.*, 1982).

La couche turbide superficielle est généralement peu épaisse et sa turbidité décroît depuis l'embouchure vers le large au profit de la couche de fond. Le néphéloïde de fond plonge rapidement sous la thermocline et peut se stratifier en plusieurs couches intermédiaires jusqu'à atteindre le néphéloïde benthique.

En terme de dynamique sédimentaire, le prodelta du Rhône joue un rôle central au sein du golfe du Lion puisqu'il est le réceptacle direct des apports solides du Rhône et qu'il assure la continuité avec le plateau continental. A l'embouchure, les matières en suspension du Rhône sédimentent en masse sous l'effet de floculations électrochimiques et d'agréations organo-minérales (Aloisi, 1986 ; Thill *et al.*, 2001). Cette accumulation du matériel particulaire entraîne l'édification du prisme sédimentaire épicontinental et en particulier la progradation du prodelta du Rhône.

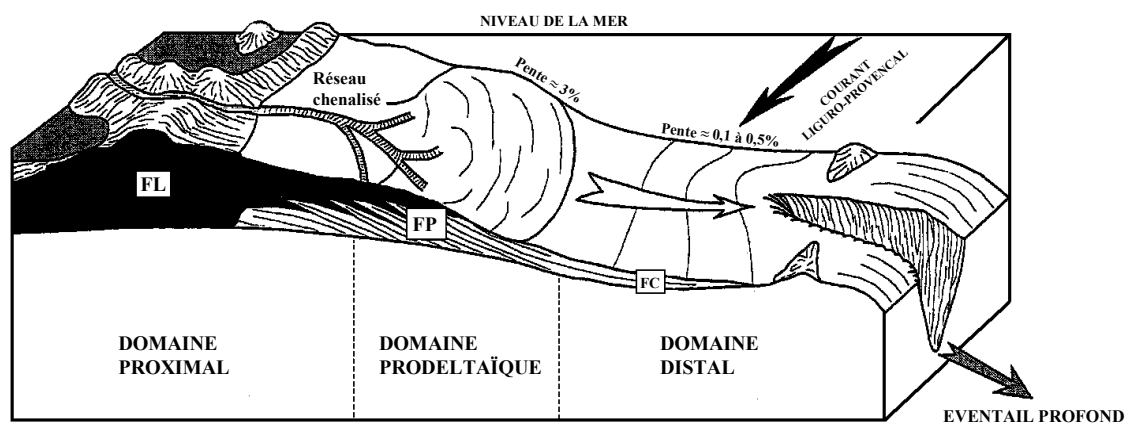


Figure 3-4 : Géométrie du prisme sédimentaire épicontinental, FL : faciès littoral ; FP : faciès prodeltaique ; FC : faciès circalittoral, d'après Aloisi (1986).

En étudiant la structure du prisme sédimentaire épicontinental du golfe du Lion, Aloisi (1986) met en évidence trois domaines bien distincts tant par leur morphologie que par leur caractéristique sédimentaire (Figure 3-4) :

- Le domaine proximal est marqué par une faible pente et par le prolongement du chenal terrestre du Rhône. En raison d'un hydrodynamisme intense, cette zone de faible profondeur est caractérisée par la présence des sables littoraux et pré-littoraux.
- Le domaine prodeltaique s'amorce par une nette rupture de pente et s'étend jusqu'à 60 m de profondeur. Cette zone d'envasement précoce correspond au développement des dépôts silto-argileux. Le domaine prodeltaique est également caractérisé par les plus forts taux de sédimentation du golfe du Lion et les différentes estimations varient de 20 à 50 cm.a⁻¹ (Zuo *et al.*, 1991 ; Zuo *et al.*, 1997 ; Calmet et Fernandez, 1990 ; Charmasson *et al.*, 1998). L'importance de l'accumulation sédimentaire sur le prodelta entraîne le piégeage d'un certain nombre de polluants véhiculés par le Rhône. Cette zone est donc stratégique pour étudier le devenir de nombreux contaminants introduits par le Rhône au golfe du Lion (Fernandez, 1984 ; Span, 1984 ; Lipiatou et Saliot, 1991 ; Charmasson, 1998, 2003 ; Fernex *et al.*, 2001).

- Le domaine distal apparaît après la seconde rupture de pente, en dessous de 60 m de profondeur. Cette zone d'envasement circalittoral est caractérisée par un hydrodynamisme plus clément qui favorise la sédimentation des particules les plus fines (Aloisi, 1986).

Les gradients bathymétriques du prodelta du Rhône témoignent de gradients de sédimentation très contrastés. Si à proximité de l'embouchure, les taux de sédimentation sont supérieurs à 30 cm.a^{-1} , ils ne sont plus que de quelques millimètres par an à quelques milles plus au large (Radakovitch *et al.*, 1999).

3.1.3. La circulation générale du golfe du Lion

Le golfe du Lion se situe dans la partie Nord-Ouest du bassin occidental de la Méditerranée. Il est borné à l'Est par le cap Sicié et à l'Ouest par le cap Creus. Le plateau continental s'étend au maximum sur 70 km de la côte vers le large et jusqu'à 120 m de profondeur (Figure 3-5). Avec une superficie d'environ 6 700 km², le golfe du Lion est le plus important plateau continental de la Méditerranée. C'est une région complexe due à l'action simultanée de nombreux forçages présentant de fortes variations spatiales et temporelles (Raimbault et Durrieu de Madron, 2003).

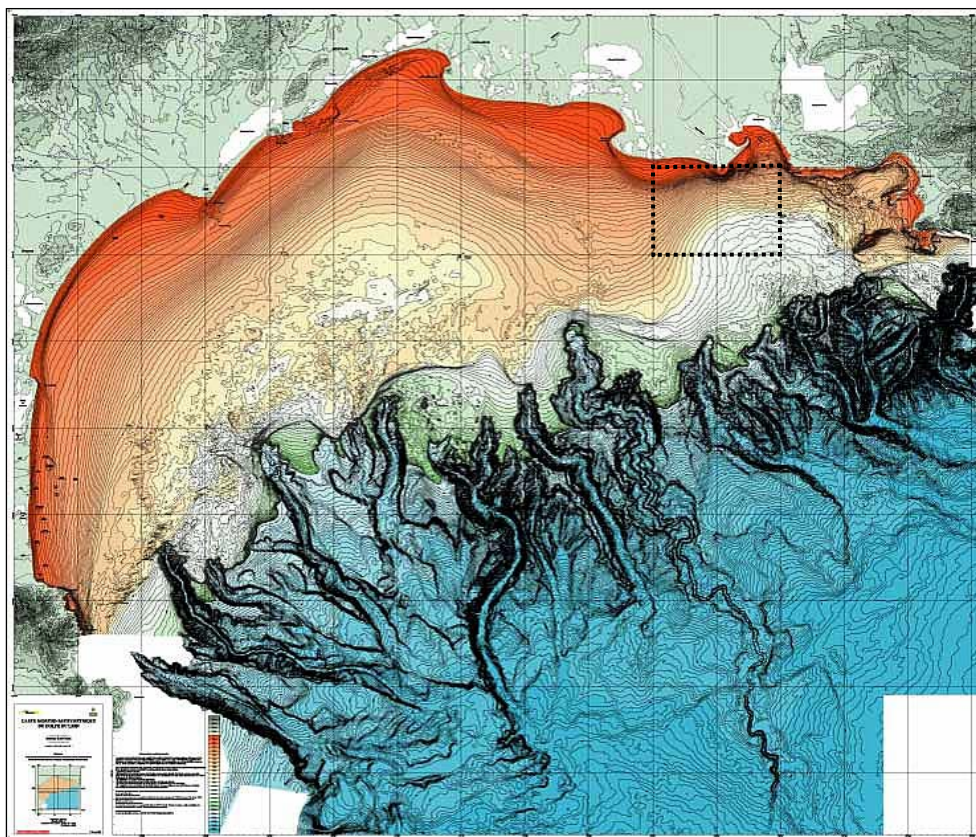


Figure 3-5 : Carte morpho-bathymétrique du golfe du Lion (IFREMER, 2002). La zone face à l'embouchure du Rhône étudiée lors de ce travail y est indiquée en tirets.

✓ *Le courant Nord Méditerranéen*

La circulation générale des masses d'eau sur le golfe du Lion est sous l'influence de la circulation générale anticyclonique du bassin méditerranéen occidental, caractérisée par une composante nord bien marquée : le courant Nord ou courant Liguro-Provençal-Catalan. Ce courant s'étend sur 30 à 50 km de large et longe le talus continental du golfe du Lion à une vitesse moyenne de 30 cm.s^{-1} (Milot, 1990). Le courant Nord présente des structures méso échelles en forme de méandres (Flexas *et al.*, 2002) qui peuvent, en surface, pénétrer sur le plateau continental et induire une circulation géostrophique de type cyclonique du Nord-Est au Sud-Ouest (Milot, 1990), (Figure 3-6).

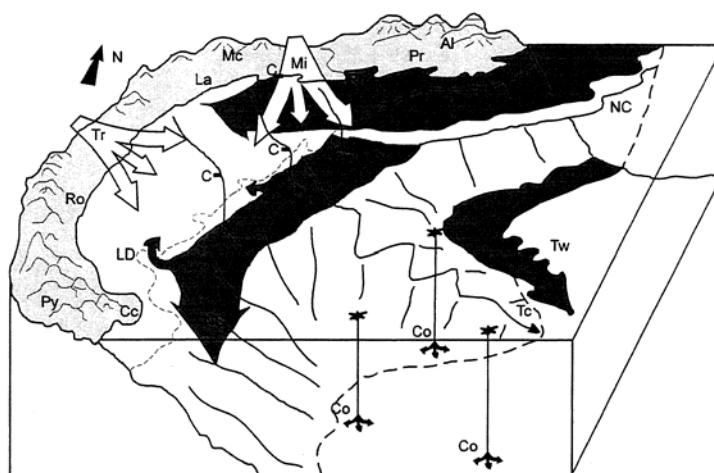


Figure 3-6 : Représentation schématique des principaux phénomènes hydrologiques qui agissent sur le golfe du Lion, tels que : la circulation générale (NC : Courant Nord) ; Tc : les courants de turbidité ; Tw : les ondes topographiques ; et la formation d'eau profonde par l'intermédiaire de cheminées situées au large (Co) et par "cascading" sur le plateau continental (Cs). Avec également, les massifs montagneux (Py : les Pyrénées ; MC : le Massif Central ; Al : les Alpes), les vents (Mi : le Mistral ; Tr : la Tramontane), les régions (Ro : le Roussillon ; La : le Languedoc ; Ca : la Camargue ; Pr : la Provence), le Rhône (Rh), les canyons (LD : Lacaze-Duthiers) et les caps (Cc : Cap Creus) (Milot, 1990).

✓ *Le régime des vents*

La circulation générale du golfe du Lion est également forcée par un régime de vent très contrasté. En raison du caractère impulsionnel des vents, la circulation générale du golfe du Lion présente une forte variabilité spatio-temporelle. En hiver, les vents de terre induisent des upwellings et des downwellings. En été, les conditions de vent favorisent le développement d'une thermocline saisonnière liée à la stratification de la colonne d'eau (Milot, 1990).

L'orographie de la région du golfe du Lion est caractérisée par de nombreux massifs montagneux et conduit à la prédominance des vents de secteur Nord et Nord-Ouest, le Mistral et la Tramontane (Figure 3-6).

- Le Mistral est un vent de terre, froid et sec, de secteur Nord. Il souffle environ 20 % du temps avec une vitesse moyenne de 50 km.h⁻¹ et des rafales maximum pouvant atteindre 120 km.h⁻¹. La Tramontane, de secteur Nord-Ouest, est un vent plus violent qui génère fréquemment du mauvais temps. Au total, l'ensemble Mistral-Tramontane souffle environ 35 % du temps (Millot, 1990). En période de Mistral et de Tramontane, la circulation sur le plateau
- A l'opposé, les vents marins, chauds et humides, sont de secteur Sud à Est. Ces vents, qui représentent environ 25 % du temps, sont fréquemment vecteurs de mauvais temps sur l'ensemble du golfe du Lion (Naudin *et al.*, 1992). Les vents de Sud-Est ont un rôle important dans la dynamique sédimentaire côtière car ils peuvent souffler pendant de longues périodes et générer de violentes tempêtes en direction de la côte.

✓ *Le régime des houles*

La plate-forme continentale du golfe du Lion est caractérisée par un régime hydrodynamique d'énergie modérée et dominé par les houles (Tableau 3-1). Les houles sont généralement de faible amplitude avec cependant des houles de tempêtes susceptibles de modifier les propriétés structuro-sédimentaires des domaines littoraux et infralittoraux.

Tableau 3-1 : Distribution des directions de provenance de la houle mesurées au Cap Couronne, (Vernier, 1972).

Origine de la houle	E	ESE	SE	SSE	S	SSO	SO	OSO	confus	Nuls
Fréquence (%)	0	0	10,5	16,1	9,8	10,5	30,1	9,9	1,7	10,4

- Les houles d'Ouest Sud-Ouest à Sud Sud-Ouest, générées par le Mistral et la Tramontane, sont les plus fréquentes (50 % du temps) notamment à la fin de l'hiver et en été. Ces houles, de faible énergie et orientées vers le large, n'ont pas un fort pouvoir érosif (Millot, 1990).
- Les houles de Sud-Est et de Sud Sud-Est, liées au vent de mer, sont moins fréquentes (25 %) et apparaissent surtout de l'automne au printemps. Ces houles de plus grande amplitude que les précédentes sont dirigées vers la côte et jouent un rôle capital dans la dynamique sédimentaire du golfe du Lion (Blanc, 1985 ; Blanc, 1996).

3.1.4. La dynamique sédimentaire du golfe du Lion

Le Rhône, son prodelta et le plateau continental forment un continuum complexe vis-à-vis de la dynamique sédimentaire. Si le prodelta du Rhône présente les plus forts taux de sédimentation, le plateau continental est lui caractérisé par des taux de sédimentation relativement faibles, de quelques millimètres par an (Zuo *et al.*, 1991 ; Zuo *et al.*, 1997). A l'échelle du golfe du Lion, le néphéloïde benthique constitue la principale voie d'exportation du matériel particulaire. Cette structure turbide complexe, évolutive dans le temps et l'espace, est alimentée directement par les apports solides du Rhône et par de fréquents phénomènes de remise en suspension en zone côtière (Aloisi *et al.*, 1982 ; Chassefiere, 1990 ; Durrieu de Madron *et al.*, 1990 ; Naudin *et al.*, 1992 ; Naudin et Cauwet, 1997). La circulation générale contraint la dynamique sédimentaire et favorise une dispersion du matériel particulaire vers le Sud-Ouest du plateau continental (Monaco *et al.*, 1990 ; 1999 ; Durrieu de Madron *et al.*, 2000 ; Lapouyade et Durrieu de Madron, 2001). Les nombreux canyons qui entaillent le talus continental jouent ensuite un rôle prépondérant dans l'exportation du matériel particulaire du plateau continental vers le bassin Nord méditerranéen (Millot et Monaco, 1984 ; Durrieu de Madron, 1994 ; Berne et Loubrieu, 1999 ; Droz *et al.*, 2001). En effet, ils canalisent une partie des flux de matières particulaires véhiculées par le néphéloïde benthique et ils assurent ainsi la transition avec la plaine abyssale. Toutefois, l'exportation sédimentaire n'est pas homogène à l'échelle du golfe du Lion. A titre d'exemple, les flux annuels exportés au Sud-Ouest au niveau du canyon Lacaze-Duthiers sont de 3 à 10 fois supérieurs à ceux estimés pour le canyon du Grand Rhône (Durrieu de Madron *et al.*, 2000).

3.2. Etat des connaissances sur le plutonium: du Rhône au golfe du Lion

La vallée du Rhône regroupe l'ensemble des activités du cycle du combustible nucléaire et possède une des plus importantes concentrations de centrales électronucléaires au monde. L'usine de retraitement du combustible irradié de Marcoule, situé à 120 km de l'embouchure du Rhône (Figure 3-7), représente la principale source de radionucléides artificiels pour le bassin rhodanien et l'ensemble du golfe du Lion (Charmasson, 1998). Contrairement aux autres sites de retraitements européens (§ 2.1), les rejets de l'usine de Marcoule s'effectuent dans un fleuve. Cette spécificité complique d'autant plus l'étude de la dispersion et du devenir des radionucléides artificiels en mer puisque la dynamique fluviale, en amont, se superpose à la dynamique marine, en aval.

3.2.1. Les rejets passés de l'usine de Marcoule

Entre 1958 et 1997, le complexe de Marcoule (COGEMA) a retraité du combustible nucléaire dans un premier temps à des fins militaires puis pour les besoins de la recherche et enfin pour répondre à une demande civile croissante. Dans le cadre de ces activités et selon la législation en vigueur, l'usine de Marcoule était autorisée à rejeter des effluents liquides faiblement radioactifs directement dans le Rhône. La réglementation imposait à l'usine de Marcoule d'effectuer ses rejets pour des débits du Rhône compris entre 400 et 4000 m³.s⁻¹, ce qui représente tout de même 96 % du temps entre 1974 et 2002. Depuis 1997, l'usine de Marcoule a arrêté définitivement son activité de retraitement, entraînant une diminution significative des rejets. Cet arrêt constitue un signal fort et il apparaissait primordial de suivre la réponse environnementale à cette nouvelle situation.

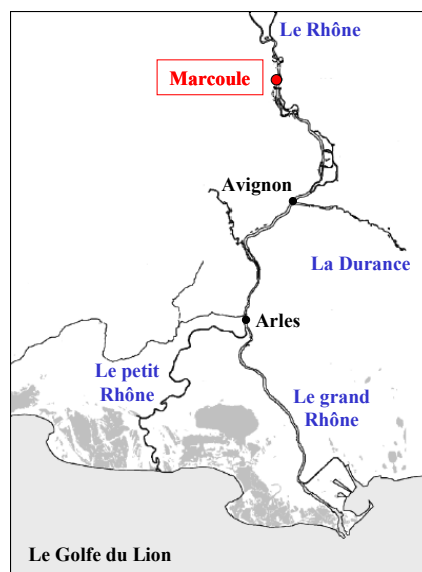


Figure 3-7 : Carte de la basse vallée du Rhône localisant l'usine de Marcoule.

La composition des rejets, effectués par la station de traitement des effluents liquides (STEL) de Marcoule, est fournie par la COGEMA depuis 1964 (Figure 3-8). A l'exception du tritium (^3H) qui participait pour plus de 99 % des rejets, les effluents contenaient essentiellement des produits de fission ($^{106}\text{Ru-Rh}$, ^{137}Cs , $^{90}\text{Sr}\dots$). Par contre, les émetteurs alpha ne représentaient en moyenne que 0,1 % des rejets totaux. Les pourcentages de ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ rejetés parmi les émetteurs alpha étaient respectivement de 8 % et 27 %. Toutefois, les proportions relatives des radionucléides rejetés dans le Rhône ont pu évoluer dans le temps notamment en fonction de la nature du combustible retraité, de son taux d'irradiation mais également de la technique, de la nature et du degré de retraitement des effluents.

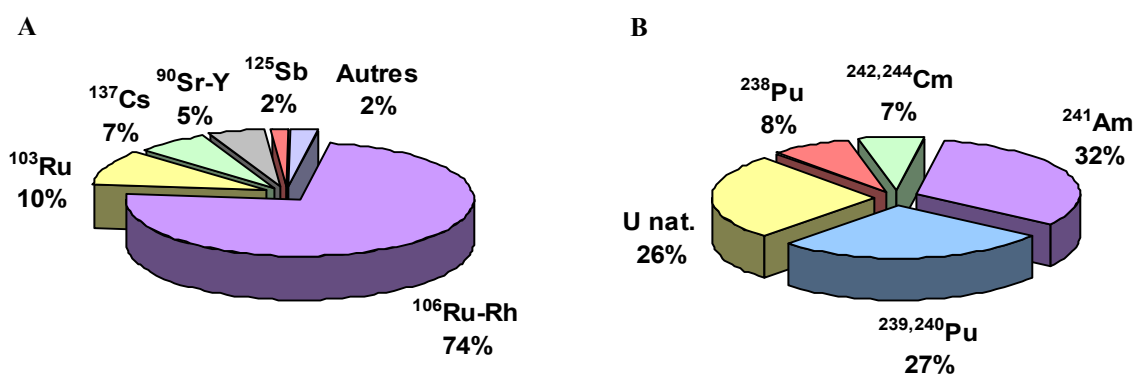


Figure 3-8 : Composition isotopique moyenne des rejets du complexe de Marcoule. (A) Émetteurs beta et gamma excepté le tritium, sur la période 1964-1998, d'après Charmasson (1998). (B) Émetteurs alpha sur la période 1980-1995, d'après Arnaud (1998).

L'historique des rejets de Marcoule montre d'importantes fluctuations annuelles dans les quantités de ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ rejetées dans le Rhône (Figure 3-9). Jusqu'en 1979, les données concernant les émetteurs alpha étaient communiquées sous la forme "alpha total", égale à la somme des rejets de ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, $^{242,244}\text{Cm}$ et ^{241}Am . La composition exacte des rejets avant 1979 n'a jamais été publiée car les rejets étaient issus du retraitement de combustibles militaires. Ces rejets ont cependant été estimés par Duffa (2001). De 1961 à 1965, les activités de ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ rejetées par l'usine de Marcoule variaient respectivement de 0,7 à 4 $\text{GBq}\cdot\text{a}^{-1}$ et de 10 à 70 $\text{GBq}\cdot\text{a}^{-1}$. A cette période succède une période de moindres rejets jusqu'en 1978. Ce n'est qu'après 1979, que la COGEMA dispose de mesures plus précises sur la composition isotopique des rejets. Pendant les années 80, les activités rejetées étaient en moyenne de 6 $\text{GBq}\cdot\text{a}^{-1}$ en ^{238}Pu et de 20 $\text{GBq}\cdot\text{a}^{-1}$ en $^{239,240}\text{Pu}$. En 1990, la mise en service d'une nouvelle STEL couplée à un atelier d'évaporation a permis de diminuer très significativement, d'un facteur 100 pour les émetteurs alpha, les rejets de Marcoule dans l'environnement (Levy *et al.*, 1993). Entre 1961 et 2000, le complexe de Marcoule aurait rejeté 92 ± 5 GBq de ^{238}Pu et 443 ± 72 GBq de $^{239,240}\text{Pu}$ dans le Rhône (Eyrolle *et al.*, 2004). Actuellement, l'usine

de Marcoule est en cours de démantèlement et de faibles rejets en plutonium ont été effectués au moins jusqu'à la fin de l'année 2002.

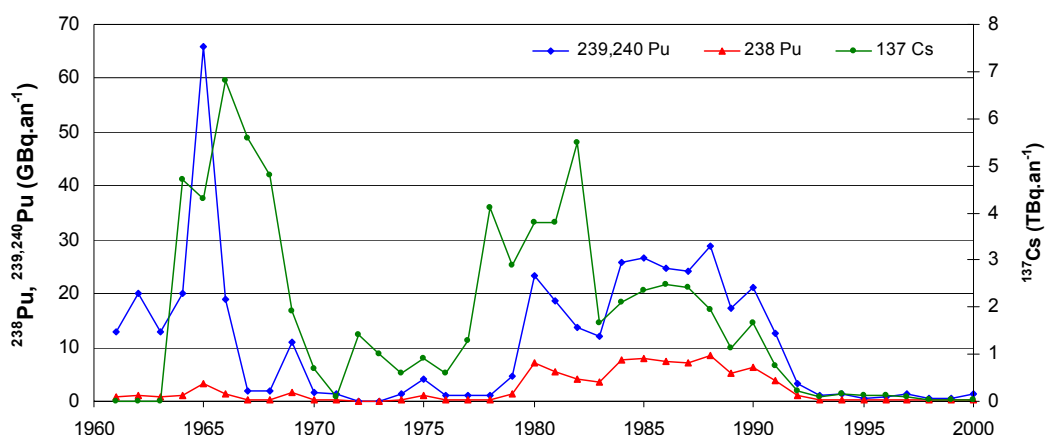


Figure 3-9 : Historique des activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ rejetées annuellement par l'usine de Marcoule, d'après Eyrolle *et al.* (2004).

Si la principale source de plutonium pour le golfe du Lion est bien localisée, elle n'en est pas pour autant parfaitement connue. En effet, les variations temporelles des rejets de Marcoule, tant d'un point de vue qualitatif que quantitatif, sont peu documentées. A titre d'exemple, les rejets en ^{238}Pu n'ont jamais été mesurés et ils ont toujours été déduits des mesures de $^{239,240}\text{Pu}$, en supposant un rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ théorique de 0,3. Or, l'usine de Marcoule a retraité une grande diversité de combustibles provenant à la fois d'activités militaires, civiles mais également liées à la recherche, ce qui suggère une évolution temporelle du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$. Le retraitement de combustible militaire, pauvre en ^{238}Pu , serait caractérisé par un rapport $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ de 0,05 (Duffa, 2001) alors que le retraitement de combustible civil de type MOX pourrait conduire à des rejets marqués par un rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ de 3 à 5 (Charmasson *et al.*, 1996). Les variations temporelles du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ n'étant pas connues, nous admettrons la valeur théorique de 0,3 comme caractéristique des rejets en plutonium de l'usine de Marcoule.

3.2.2. Le devenir du plutonium introduit dans le Rhône

Le plutonium introduit dans le Rhône provient des rejets de l'usine de Marcoule mais également du lessivage du bassin versant contaminé par les retombées atmosphériques (Fukai *et al.*, 1981). Entre 1958 et 1990, les rejets de Marcoule ont contribué pour plus de 80 % des apports de plutonium au Rhône. Cependant depuis 1992, les apports du bassin versant en $^{239,240}\text{Pu}$ sont du même ordre de grandeur que les rejets industriels de Marcoule ($\approx 1 \text{ GBq.an}^{-1}$). Par contre, les rejets en ^{238}Pu de l'usine

de Marcoule sont encore 10 fois plus importants que les apports du bassin versant (Eyrolle *et al.*, 2004).

Une fois introduit dans le Rhône, le devenir du plutonium est dépendant de sa forme physico-chimique. A notre connaissance, il n'existe pas de données sur la spéciation du plutonium rejeté dans le Rhône. En comparaison avec l'usine de Sellafield, on peut raisonnablement penser que le plutonium rejeté par Marcoule est majoritairement à l'état d'oxydation (IV), même si la nature du combustible retraité a varié dans le temps.

Différentes études ont montré que plus de 85 % du $^{239,240}\text{Pu}$ véhiculé par le Rhône est associé à la phase particulaire ($> 0,45 \mu\text{m}$) (Fukai *et al.*, 1981 ; Thomas, 1997 ; Eyrolle et Charmasson, 2004). L'exportation de plutonium sous forme dissoute est donc sans doute minoritaire. Par ailleurs, Eyrolle et Charmasson (2004) montrent qu'environ 60 % du plutonium dissous dans le Rhône est associé à des colloïdes composés principalement de carbone organique, de fer et d'aluminium.

Au sein du cortège de radionucléides artificiels présents dans le Rhône, les isotopes du plutonium sont parmi ceux qui présentent les plus fortes affinités pour le matériel particulaire, avec un K_d compris entre 10^5 et 10^6 , mais également les plus bas niveaux d'activité (Figure 3-10).

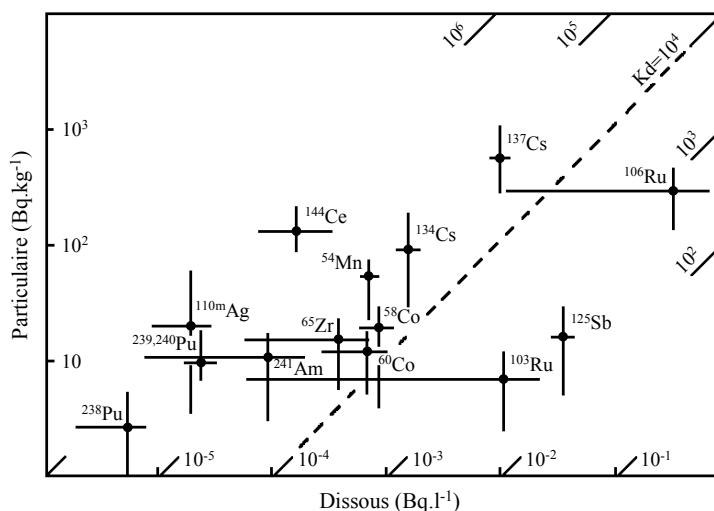


Figure 3-10 : Concentrations moyennes de divers radionucléides artificiels mesurées dans le Rhône à la station d'Arles sur la période 1982-1985 (Martin et Thomas, 1990). Les lignes obliques indiquent les valeurs des coefficients de distribution (K_d).

Compte tenu de sa forte affinité pour la phase particulaire, le plutonium est un radionucléide non conservatif qui constitue un traceur de choix pour suivre la dispersion du matériel particulaire originaire du Rhône sur le golfe du Lion (Noël, 1996 ; Thomas, 1997).

L'exportation du plutonium vers le golfe du Lion est forcée par la dynamique du Rhône. En effet, la dynamique du plutonium est sous la dépendance de processus physiques, chimiques et biologiques (Figure 3-11).

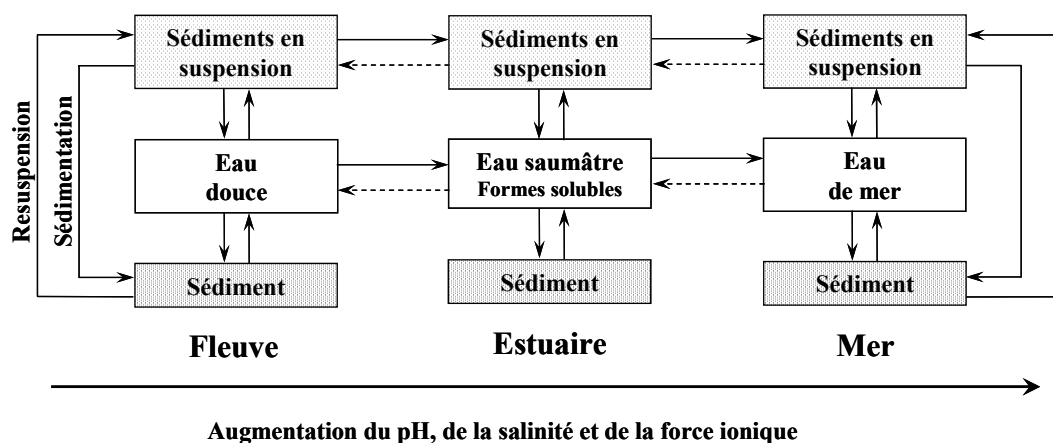


Figure 3-11 : Modes d'exportation des radionucléides introduits dans un système fluvial, d'après Oughton *et al.* (1997).

Le transport sédimentaire et en particulier les phénomènes de remise en suspension, liés aux épisodes de crue ou aux opérations de dragage, constituent la principale voie de transfert du plutonium particulaire. L'exportation du plutonium dissous peut s'opérer par échange d'ions, lessivage ou dissolution. Enfin, la bioturbation peut potentiellement affecter la remobilisation physique et chimique du plutonium.

Par ailleurs, le régime hydraulique du Rhône a une influence directe sur les concentrations des divers radionucléides présents dans le fleuve. D'une manière générale, les périodes d'étiage sont caractérisées par de plus fortes concentrations que les périodes de crue qui entraînent une importante dilution des rejets (Charmasson, 1998). Les épisodes de crue entraînent également une diminution du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$. En effet, les fortes précipitations associées aux crues favorisent le lessivage du bassin versant et donc augmentent la contribution de plutonium originaire des retombées atmosphériques dans les eaux du Rhône, et ce, d'autant plus que les rejets de Marcoule n'étaient pas autorisés pour des débits supérieurs à $4000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. A l'inverse, les périodes d'étiage sont caractérisées par une prédominance des rejets de Marcoule et donc un RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ proche de 0,3. L'évolution temporelle du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ moyen des matières en suspension dans les eaux de la basse vallée du Rhône confirme ces observations (Figure 3-12).

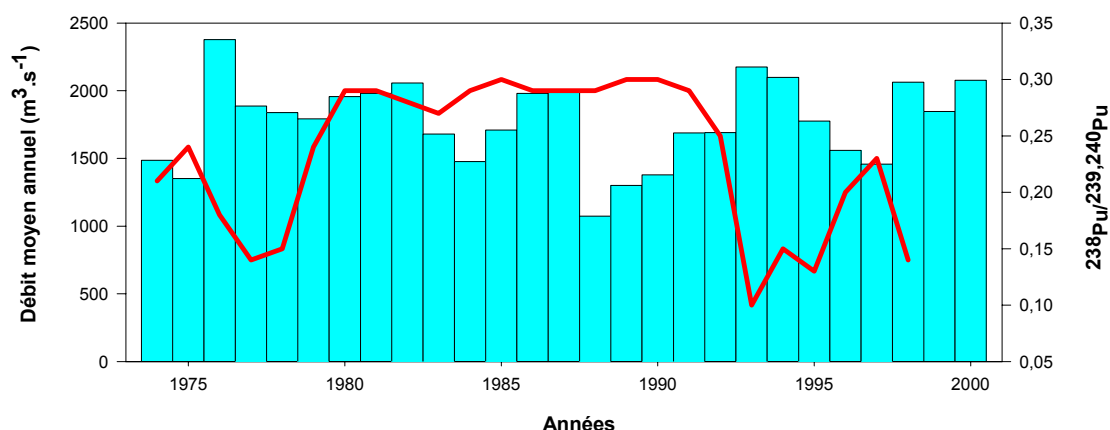


Figure 3-12 : Evolution temporelle du débit moyen annuel du Rhône en Arles et suivi du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ moyen des matières en suspension du Rhône, d'après Duffa (2001).

3.2.3. Le plutonium dans les sédiments du golfe du Lion

Dans la littérature, les données de plutonium pour le golfe du Lion en général et le prodelta du Rhône en particulier sont peu nombreuses. Il s'agit généralement de mesures isolées et ponctuelles difficilement exploitables (Murray et Fukai, 1978 ; Ballestra, 1980). Une synthèse bibliographique sur la distribution et le comportement des transuraniens en Méditerranée résume l'essentiel des mesures de plutonium existantes (Arnaud, 1998).

La première série de mesures de plutonium pour le prodelta du Rhône a été réalisée en 1984 par Martin et Thomas (1990), (Figure 3-13).

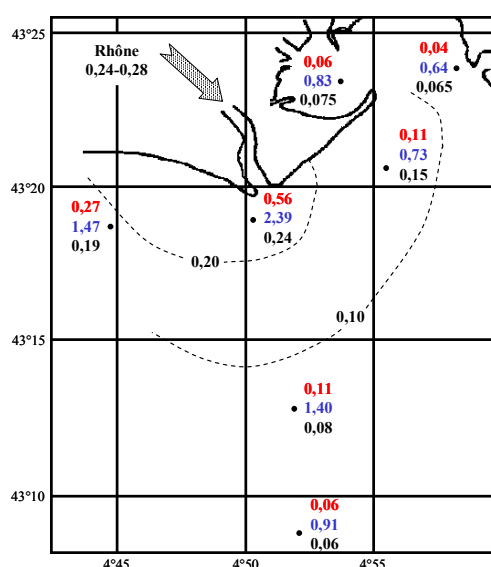


Figure 3-13 : Distribution des activités en ^{238}Pu ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$, en haut), $^{239,240}\text{Pu}$ ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$, au milieu) et du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ (en bas) dans les sédiments de surface (0-2 cm) du prodelta du Rhône en 1984, d'après Martin et Thomas (1990).

Ces données ne permettent pas de décrire précisément la distribution des isotopes du plutonium mais elles mettent en évidence le rôle du prodelta du Rhône dans le piégeage du plutonium. Dans les sédiments de surface, les niveaux d'activité les plus élevés sont observés à l'embouchure. Ensuite les activités en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ diminuent significativement en s'éloignant du débouché du Rhône. Le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ diminue également rapidement lorsque la distance à l'embouchure augmente. Les sédiments des domaines proximal et prodeltaïque sont donc directement et majoritairement influencés par les apports particuliers récents du Rhône qui sont marqués par un rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ de 0,24, proche de celui de Marcoule (0,3). Par contre, les sédiments du large sont de moins en moins influencés par ces apports et leur rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ tend vers la valeur caractéristique du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ des retombées atmosphériques (0,03).

En 1990, d'autres mesures montrent une distribution analogue des isotopes du plutonium avec cependant des activités deux fois plus importantes pour les sédiments de surface du domaine distal (Charmasson, 1995). Cette différence pourrait s'expliquer par la dynamique sédimentaire du prodelta et une translocation des sédiments contaminés vers le domaine distal.

A l'échelle du golfe du Lion, seul le travail de Noël (1996) permet d'étudier la distribution du plutonium dans les sédiments de la marge continentale. Comme précédemment, les activités en plutonium présentent de forts gradients en direction de l'embouchure du Rhône. A l'exception du prodelta du Rhône, les sédiments de surface du golfe du Lion sont caractérisés par des concentrations en plutonium relativement faibles, de l'ordre de 1 Bq.kg^{-1} en $^{239,240}\text{Pu}$ et inférieures à $0,05 \text{ mBq.kg}^{-1}$ en ^{238}Pu . Les sédiments du golfe du Lion sont principalement marqués par du plutonium d'origine atmosphérique. La dispersion du plutonium originaire de Marcoule sur le plateau continental serait donc limitée à une zone située face à l'embouchure du Rhône.

Le travail de Noël (1996) a également permis de dresser un premier bilan sur les flux de plutonium à l'échelle du golfe du Lion (Figure 3-14). L'importance des rejets de Marcoule dans les flux de plutonium varie selon l'isotope considéré. En effet, les rejets de Marcoule participent pour environ 75 % du flux de ^{238}Pu au golfe du Lion et pour seulement 30 % du flux total de $^{239,240}\text{Pu}$. Les retombées atmosphériques directes et indirectes sont donc prédominantes dans les flux de $^{239,240}\text{Pu}$ et viennent compléter ces apports.

En se fondant sur des mesures de plutonium, Noël (1996) estime que le prodelta du Rhône accumule à lui seul, sur une surface de 30 km^2 , plus de 50 % de la quantité totale de sédiments émis par le Rhône au cours des quarante dernières années. Le plateau continental piègerait environ 30 % des apports solides du Rhône. L'exportation des sédiments rhodaniens vers la pente continentale et la plaine abyssale concernerait moins de 20 % des apports totaux. Sur la base de cette estimation, le prodelta du Rhône pourrait donc piéger plus de 50 % du plutonium rejeté par Marcoule dans le Rhône. Cependant, comme le souligne Noël (1996), le nombre de mesures de plutonium pour le prodelta du Rhône est insuffisant si l'on souhaite appréhender correctement la variabilité spatiale de la zone. En

effet, cette estimation pour le prodelta du Rhône a été établie sur 40 mesures de plutonium réparties seulement sur 4 carottes de sédiments. L'efficacité du piégeage du plutonium par les sédiments du prodelta du Rhône reste incertaine et doit être précisée. L'étude de la distribution des isotopes du plutonium à l'échelle du prodelta du Rhône nécessite donc une stratégie d'échantillonnage adaptée à l'hétérogénéité spatiale de cette zone.

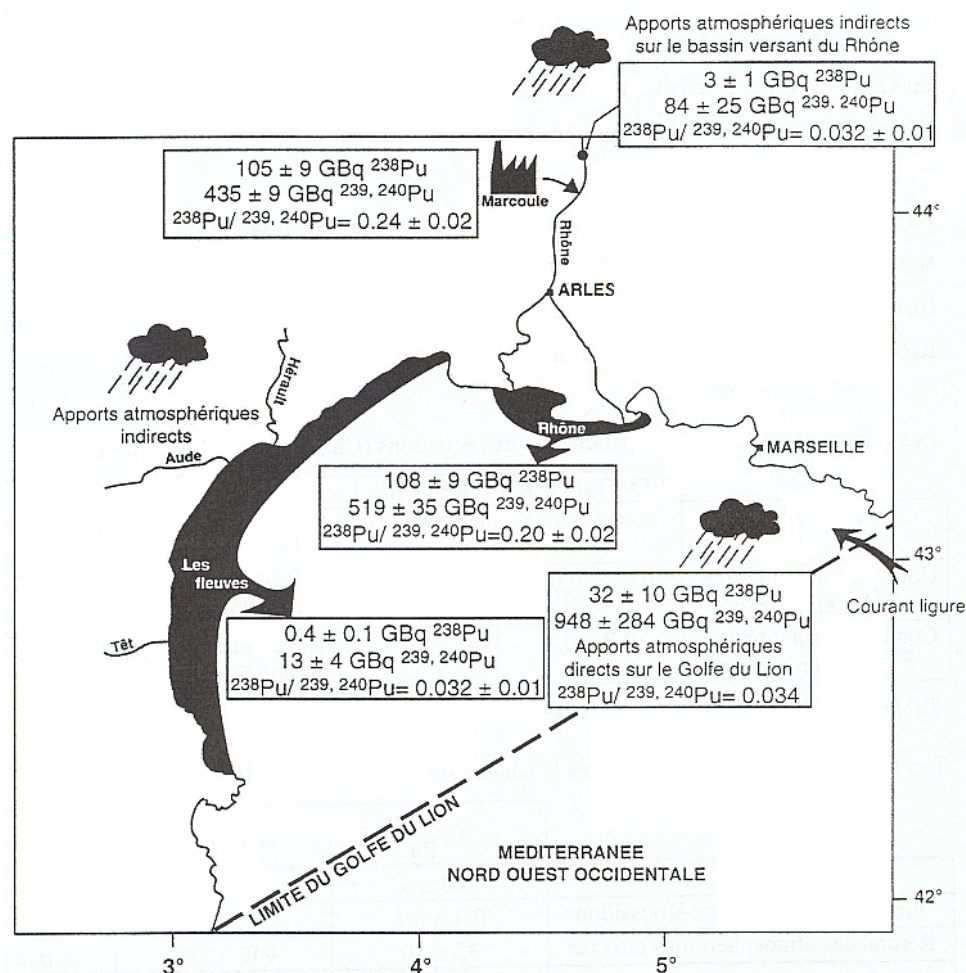


Figure 3-14 : Flux de plutonium pour le golfe du Lion intégrés entre 1954 et 1990 (Noël, 1996).

CHAPITRE 4

4. Stratégie d'échantillonnage, méthodes d'analyse et expérimentations

Pour appréhender la distribution et la remobilisation du plutonium, nous avons souhaité développer une approche originale et pluridisciplinaire s'appuyant sur des méthodes descriptives, analytiques et expérimentales. Ce chapitre présente l'ensemble des travaux, techniques d'analyse et expérimentations réalisées au cours de cette recherche. Toutefois, pour des raisons de clarté et de compréhension, les méthodes utilisées pour étudier in situ la dynamique sédimentaire du prodelta du Rhône sont exposées au Chapitre 7.

4.1. Campagnes océanographiques et matériels mis en œuvre

La bonne réalisation de cette étude reposait avant tout sur un important travail d'échantillonnage en mer. Le Tableau 4-1 résume l'ensemble des campagnes océanographiques réalisées au cours de cette thèse.

Tableau 4-1 : Récapitulatif des campagnes océanographiques et des principales opérations réalisées en mer lors de ce travail.

Mission	Navire	Dates	Zone prospectée	Matériel
<i>REMORA 1</i>	N/O L'Europe	du 17/03/01 au 24/03/01	Prodelta du Rhône <i>24 stations</i>	Carottier multitubes
<i>REMORA 2</i>	N/O L'Europe	du 11/11/01 au 17/11/01	Prodelta du Rhône <i>17 stations</i>	Carottier Kullenberg
<i>INTERPOL</i>	N/O Téthys II	le 22/04/02 le 29/07/02	Large de Sète <i>2 stations</i>	Carottier multitubes
<i>RHONAWAC</i>	N/O Antédon	le 29/04/02 le 19/06/02	Prodelta du Rhône	Mesures in situ : ADCP
<i>MINERCOT</i>	N/O Téthys II	du 17/06/02 au 22/06/02	Prodelta du Rhône <i>3 stations</i>	Carottier multitubes et profileur benthique
<i>REMORA 3</i>	N/O L'Europe	du 12/10/02 au 05/11/02	Golfe du Lion <i>60 stations</i>	Carottier multitubes Carottier USNEL

Dans le cadre du programme européen *REMOTRANS*, trois campagnes océanographiques ont été organisées par l'IRSN sur le golfe du Lion, avec un effort particulier d'échantillonnage sur la zone du prodelta du Rhône. Les carottes de sédiments prélevées lors de ces campagnes ont permis d'étudier la distribution des radionucléides artificiels mais également celles des métaux et des pollens (Beaudouin, 2003). La stratégie d'échantillonnage tenait compte de l'historique des recherches passées sur le prodelta du Rhône et en particulier des précédentes campagnes (DYPOL (1990) ; ECOCOT (1994-96) ; CORAMED (1997)). Compte tenu des spécificités de la zone étudiée, l'utilisation de trois types de carottiers a été nécessaire pour des prélèvements de sédiments dans des horizons bien précis.

4.1.1. Campagne *REMORA 1*

Cette campagne de carottage, effectuée en mars 2001, était dédiée à la zone face à l'embouchure du Rhône. A l'exception de la station Roustan située sur le prodelta, le domaine distal est caractérisé par des taux de sédimentation apparents inférieurs au centimètre par an (Zuo *et al.*, 1991 ; Radakovitch *et al.*, 1999). Le plutonium, introduit depuis 1954 en Méditerranée, devrait donc en théorie être retrouvé au maximum dans les 50 premiers centimètres de la colonne sédimentaire. Pour obtenir l'ensemble du signal recherché, les sédiments ont été prélevés à l'aide d'un carottier multitubes (Figure 4-1).

✓ *Le carottier multitubes*

Le carottier multitubes Minicorer Mark VI est un prototype créé en 1997 par Bowers et Connelly d'après le modèle décrit par Barnett *et al.* (1984). Ce carottier permet de prélever simultanément 4 carottes de sédiment à l'aide de tubes en Plexiglas de 15 cm de diamètre et de 50 cm de hauteur. Ce large diamètre permet de réduire les contraintes de cisaillement liées à la pénétration des tubes dans le sédiment et donc de diminuer l'effet de compaction. Les carottes ainsi prélevées présentent une interface eau-sédiment la mieux préservée possible avec un minimum de perturbations.

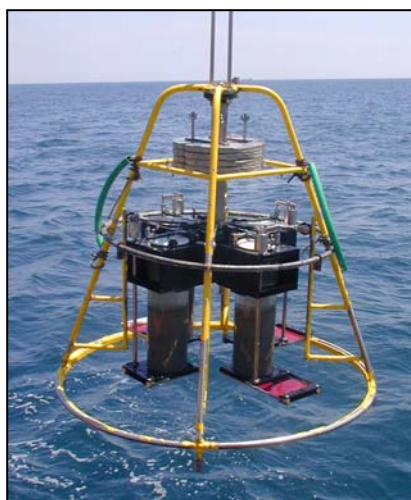


Figure 4-1 : Carottier multitubes après échantillonnage.

Le prélèvement des sédiments est effectué lors de l'enfoncement des tubes par gravité (poids total : 350 kg) à une vitesse de 5 mm par seconde ; l'ensemble étant régulé par un système de piston hydraulique. Lorsque les tubes sont relevés du fond par l'action du treuil, un clapet muni d'un joint torique vient alors fermer hermétiquement le dessus de chaque tube, permettant la prise d'échantillon par effet de succion. Lors de la sortie du sédiment, un système de couperet de type "guillotine" tranche l'excédant de sédiment à l'extrémité inférieure de chaque tube. Au total, un réseau de 24 stations, allant de l'embouchure du Rhône vers le plateau continental et couvrant des horizons bathymétriques de 20 à 110 m de profondeur, a pu être échantillonné (Figure 4-2). Les carottes de sédiment prélevées avaient une épaisseur comprise entre 11 et 30 cm. En fonction des stations, cette épaisseur n'était pas toujours suffisante pour atteindre le "bout du signal", estimé vers 50 cm de profondeur.

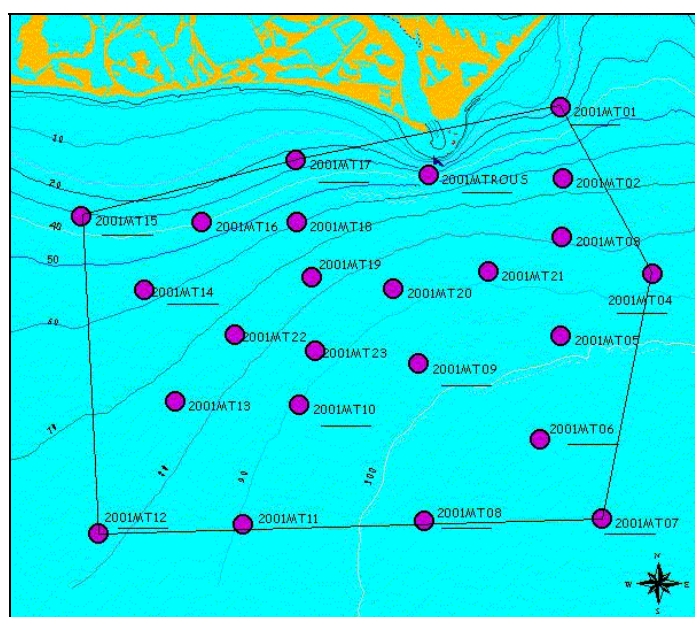


Figure 4-2 : Carte des stations échantillonnées lors de la campagne *REMORA 1*.

Dans l'environnement, les concentrations de plutonium sont généralement faibles et il est nécessaire de collecter suffisamment de matière pour pouvoir détecter les plus bas niveaux d'activité. Pour chaque station et dans la mesure du possible, 3 carottes provenant d'un même lancé de carottier ont été sommées. Les sédiments prélevés avec le carottier multitubes (noté MT) ont été découpés tous les centimètres sur toute la hauteur de la carotte afin d'obtenir une résolution assez fine. Ces échantillons ont directement été lyophilisés en vue de mesures d'émetteurs gamma puis d'émetteurs alpha (§ 4.3).

En parallèle, une autre série d'échantillons a été réalisée pour caractériser l'environnement sédimentaire du prodelta du Rhône. Sur 21 stations, 3 à 5 sous carottes de 2,6 cm de diamètre interne ont été prélevées dans une même carotte puis découpées et sommées de la manière suivante : 10 niveaux de 0,4 cm puis 6 niveaux de 1 cm. Cette technique permet de décrire avec une plus grande

précision les forts gradients géochimiques présents au niveau de l'interface eau-sédiment. Ces échantillons ont servi notamment pour effectuer des mesures de porosité, de granulométrie, de teneur en carbone organique total et en azote total (§ 4.2).

4.1.2. Campagne *REMORA 2*

Cette deuxième campagne de prélèvements se focalisait sur le prodelta du Rhône. Etant donné l'importance des taux de sédimentation sur cette zone, supérieurs à 30 cm.a^{-1} (Calmet et Fernandez, 1990 ; Charmasson *et al.*, 1998), des prélèvements par carottier Kullenberg ont été nécessaires pour essayer de prélever l'ensemble de la colonne sédimentaire marquée par les rejets de Marcoule. Afin de mieux cerner la distribution des radionucléides dans le domaine prodeltaïque, un réseau de 17 carottes Kullenberg a été échantillonné en novembre 2001. Les carottes de sédiment prélevées lors de cette mission avaient une épaisseur comprise entre 172 à 474 cm. Elles ont été découpées en segments de 1 mètre dès leur arrivée sur le pont du navire puis congelées. Au laboratoire, chaque carotte a été ouverte sur toute sa longueur. Dans un premier temps, un log descriptif a été réalisé afin de détailler les structures, les séquences sédimentaires, les perturbations. Puis, les carottes ont été sectionnées tous les 10 cm pour des analyses ultérieures.

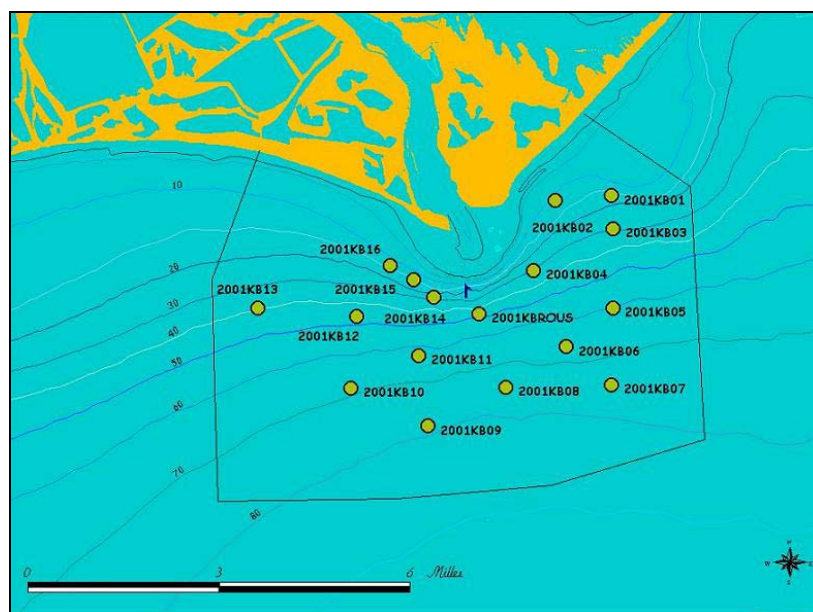


Figure 4-3 : Carte des stations échantillonnées lors de la campagne *REMORA 2*.

✓ *Le carottier Kullenberg*

Les prélèvements par carottier Kullenberg (noté KB) permettent d'obtenir en un point une connaissance de la variabilité de la colonne sédimentaire sur une épaisseur de plusieurs mètres. Il s'agit d'un carottier à piston dont l'enfoncement s'effectue par gravité sous l'action d'un lest de 700

kg. Le fonctionnement de ce type de carottier est décrit sur la Figure 4-4. Le diamètre interne de la chemise (9 cm) conduit généralement à une compaction de la colonne sédimentaire et à une mauvaise restitution des strates superficielles.

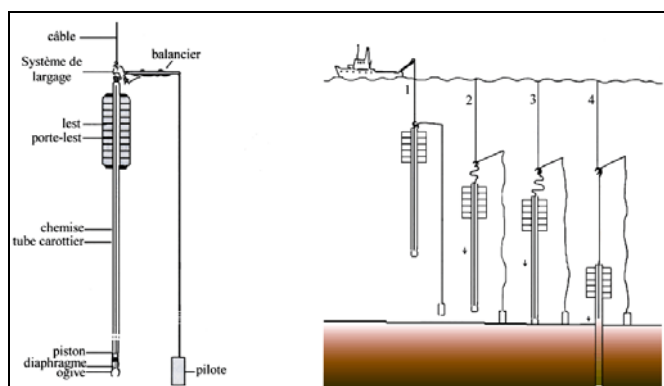


Figure 4-4 : Schéma du fonctionnement d'un carottier de type Kullenberg (www.shom.fr).

4.1.3. Campagne *REMORA 3*

Cette troisième et dernière campagne avait pour principal objectif d'échantillonner l'ensemble des faciès sédimentaires du golfe du Lion. Au total, 67 stations ont pu être échantillonnées, couvrant les prodeltas du grand Rhône, du petit Rhône, de l'Hérault, de l'Aude, de la Têt, l'ensemble du plateau continental et les principaux canyons sous-marins entaillant le talus continental jusqu'à 1200 m de profondeur. Les sédiments ont été prélevés à l'aide du carottier multitubes avec en complément l'utilisation d'un carottier boîte de type *USNEL*.

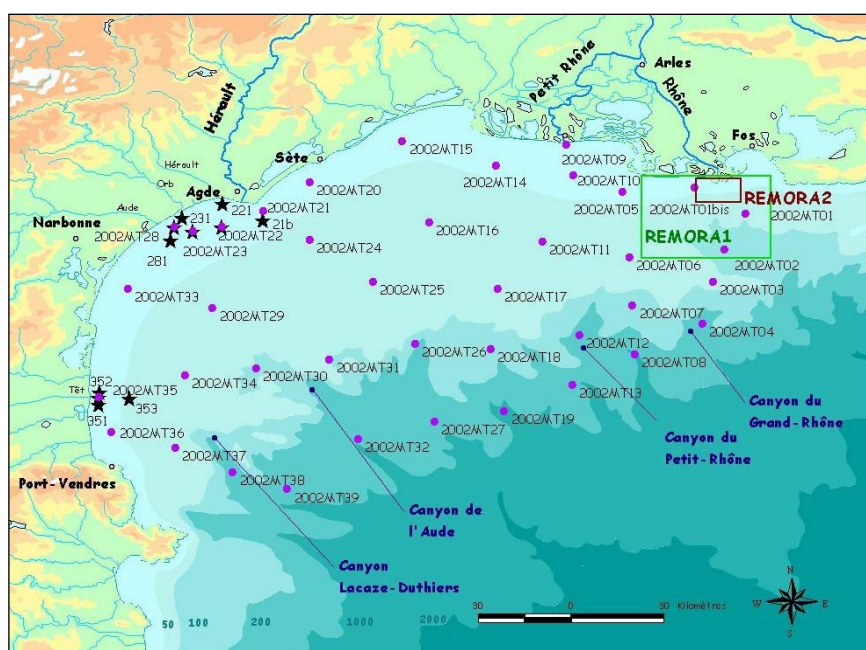


Figure 4-5 : Carte des stations échantillonnées lors de la campagne *REMORA 3*.

✓ *Le carottier USNEL*

Ce carottier est équipé d'une boîte cubique qui permet de prélever des échantillons de sédiment peu perturbés sur une hauteur de 50 cm. Descendue en position ouverte, la boîte de prélèvement s'enfonce par gravité dans le sédiment. La traction exercée sur le câble pour la remontée du carottier actionne la fermeture de la boîte par un système de “couteau”, enfermant ainsi un bloc de sédiment superficiel. Ce carottier a été principalement utilisé pour effectuer les prélèvements au delà de 200 m de profondeur.



Figure 4-6 : Carottier boîte de type *USNEL*.

4.1.4. Les autres campagnes en mer

Trois missions en mer complémentaires nous ont permis d'autres investigations. Tout d'abord, des sédiments ont été prélevés au large de Sète lors de la mission *INTERPOL*, dont l'objectif était d'étudier le relargage de substances dissoutes associées à la remise en suspension des sédiments lors d'un chalutage. Par ailleurs, la mission *MINERCOT*, dédiée à l'étude de la minéralisation de la matière organique dans les sédiments superficiels, nous a permis d'échantillonner plusieurs stations sur le prodelta du Rhône en vue d'expériences de remise en suspension au laboratoire (Chapitre 6). Enfin, la mission *RHONAWAC* constituait une campagne de mesures physiques pour caractériser in situ les processus hydrodynamiques et la dynamique sédimentaire de l'embouchure du Rhône (Chapitre 7).

4.2. Méthodes d'analyse pour caractériser les sédiments

Les propriétés physico-chimiques des sédiments peuvent largement influencer la distribution et la remobilisation du plutonium (Chapitre 2). Il est donc indispensable de caractériser l'environnement sédimentaire du prodelta du Rhône.

4.2.1. La porosité des sédiments

Pour un volume donné de sédiment, la porosité correspond au rapport entre le volume d'eau et le volume de sédiment humide. Pour l'appréhender, il est nécessaire de déterminer auparavant la teneur en eau du sédiment. La teneur en eau est quantifiée par différence de poids entre le poids frais et le poids sec de l'échantillon, après une semaine passée à l'étuve à 60°C. Le calcul de la porosité prend également en compte la masse volumique des deux fractions constituant le sédiment. La masse volumique de l'eau interstitielle est estimée à 1,038 g.cm⁻³ et on supposera que la masse volumique du sédiment est égale à la masse volumique du quartz, soit 2,65 g.cm⁻³. La porosité d'un sédiment se calcule à partir de la formulation suivante :

$$Porosité = \frac{(P_f - P_s) / \rho_{Edm}}{\left((P_f - P_s) / \rho_{Edm} \right) + \left((P_s - tare) / \rho_{Sed} \right)} \quad \text{Équation 4-1}$$

Avec :

P_f : poids de sédiment frais (g)

P_s : poids de sédiment sec (g)

ρ_{Edm} : masse volumique de l'eau de mer (g.cm⁻³)

ρ_{Sed} : masse volumique du sédiment (g.cm⁻³)

La porosité correspond à un rapport de volume et n'a donc pas d'unité. Les sédiments sableux sont caractérisés par une faible porosité de surface, de 0,5 à 0,75, alors que la porosité des sédiments vaseux peut atteindre plus de 0,95 en surface. Au sein de la colonne sédimentaire, la porosité diminue avec la profondeur sous l'effet de la sédimentation puis de la compaction.

4.2.2. Analyses granulométriques

Les analyses granulométriques ont été effectuées à l'aide d'un granulomètre laser Malvern Mastersizer S à banc long. Cet appareil permet de déterminer le pourcentage relatif des différentes fractions granulométriques composant le sédiment. Les fractions, de la plus grossière à la plus fine, sont regroupées par classe de taille selon la classification donnée par Chamley (1987) :

Tableau 4-2 : Distribution granulométrique des sédiments.

Nature	Argiles	Silts	Sables
Classe de taille (µm)	< 4	entre 4 et 63	> 63

Pour un même échantillon, deux mesures, avec et sans ultrasons, ont systématiquement été faites. Les ultrasons, appliqués pendant 1 minute, provoquent la désagrégation des particules et permettent de déterminer, d'une certaine manière, la présence d'agrégats.

4.2.3. Teneur en matière organique totale, carbone organique total et azote total

Le pourcentage de matière organique totale (MO) a été déterminé par la méthode de perte au feu sur des échantillons de sédiment lyophilisés. Cette méthode suppose que la totalité de la matière organique présente dans le sédiment est calcinée pour une température de l'ordre de 500°C. La calcination a été réalisée sur une prise de sédiment d'environ 1 g pendant 6 heures. La différence de poids, avant et après la calcination, correspond au poids de matière organique consommée, qui sera ensuite convertie en pourcentage de poids de sédiment sec.

Les mesures de carbone organique total (COt) et d'azote total (Nt) dans les sédiments superficiels ont été réalisées avec un analyseur SHIMADZU TOC 5050A couplé à un module pour échantillons solides SHIMADZU 5000A. Ces mesures ont été effectuées par le service central d'analyse du CNRS (USR-59) selon le protocole suivant. Le dosage du COt est une mesure indirecte qui s'effectue en deux étapes (King *et al.*, 1998). Dans un premier temps, la concentration en carbone total est déterminée pour un échantillon d'environ 0,5 g de sédiment lyophilisé. Le sédiment à analyser est pesé dans une nacelle de céramique puis introduit dans un four à 900°C contenant un catalyseur de platine et d'oxyde de cobalt. Sous un courant gazeux d'oxygène ultra-pur, la combustion du carbone de l'échantillon donne du CO₂ quantifié dans une cellule infrarouge. Dans un deuxième temps, la concentration de l'échantillon en carbone inorganique est déterminée. L'échantillon de sédiment est acidifié avec de l'acide phosphorique à 50 % puis introduit dans un four à 200°C. Les carbonates présents sont alors transformés en dioxyde de carbone et quantifiés dans une cellule infrarouge. La concentration en COt est obtenue par différence entre les concentrations de carbone total et de carbone inorganique. La précision de cette méthode est de ± 1 %.

Pour déterminer la concentration en Nt, l'échantillon de sédiment subit une combustion totale à 1050°C sous un courant d'hélium et d'oxygène. L'azote de l'échantillon est ainsi transformé en divers oxydes d'azote qui sont ensuite réduits en azote moléculaire avant d'être quantifiés par catharométrie (conductivité thermique).

4.3. Mesures de la radioactivité

Les méthodes et appareils de détection de la radioactivité sont spécifiques des radionucléides recherchés et de la nature de leur rayonnement. Au cours de ce travail, les échantillons de sédiment ont été analysés pour quantifier les émetteurs gamma d'une part et/ou les émetteurs alpha d'autre part.

4.3.1. Détection des émetteurs gamma

Les échantillons de sédiment ont été lyophilisés, homogénéisés puis tamisés à 2 mm et enfin conditionnés dans des géométries de comptage adaptées aux caractéristiques des détecteurs utilisés. Les volumes de sédiments analysés étaient compris entre 200 et 380 cm³. Les mesures par spectrométrie gamma ont été réalisées par le Laboratoire de Mesures de la Radioactivité de l'Environnement (LMRE) de l'IRSN, avec des détecteurs germanium hyper pur. Ce laboratoire souterrain, situé à Orsay, dispose d'installations permettant de mesurer les radionucléides à l'état de traces (activité massique inférieure à 1 Bq.kg⁻¹). Les activités des émetteurs gamma, comme le ¹³⁷Cs et le ²¹⁰Pb, viendront étayer les résultats obtenus pour les isotopes du plutonium.

4.3.2. Détection des émetteurs alpha

Contrairement à la détection des émetteurs gamma, la mesure directe des émissions alpha est impossible car il s'agit d'un rayonnement très peu pénétrant. La détection du plutonium dans une matrice complexe, comme les sédiments, nécessite donc un traitement chimique préalable (radiochimie) indispensable à toute mesure par spectrométrie alpha. Cette technique de mesure est très performante et permet de détecter de très bas niveaux d'activité. Pour donner un ordre de grandeur, les activités en plutonium sont de l'ordre de 1 Bq.kg⁻¹ de sédiment sec à l'embouchure du Rhône (§ 3.3). Sachant que la masse d'un becquerel de ^{239,240}Pu est d'environ 10⁻¹⁰ g, les concentrations en ^{239,240}Pu sont donc à l'état d'ultra traces, inférieures à 1 ppm.

4.3.2.1. La radiochimie du plutonium

Le but de la radiochimie est assez simple et doit aboutir à l'obtention d'une solution extrêmement pure contenant les isotopes du plutonium présents dans l'échantillon (Pentreath, 1995). Par contre, sa mise en oeuvre est beaucoup plus complexe et très délicate. Dans un premier temps, il est nécessaire de séparer les éléments à analyser de la matrice sédimentaire, puis il faut éliminer tous les constituants pouvant interférer lors des mesures, et enfin déposer l'échantillon sous forme de couche mince pour un comptage en spectrométrie alpha.

Le protocole de radiochimie peut se décomposer en 6 grandes étapes (Figure 4-7) :

- ✓ le conditionnement et la calcination des échantillons
- ✓ l'ajout d'un traceur et la minéralisation des sédiments
- ✓ une série de coprécipitations
- ✓ une série de chromatographies sur résines échangeuses d'ions
- ✓ l'électrodéposition
- ✓ et le comptage en spectrométrie alpha haute résolution

Ces techniques chimiques doivent permettre progressivement l'élimination des principaux éléments susceptibles d'interférer lors des mesures, en particulier :

- la matrice sédimentaire et ses principaux constituants (Ca, Fe, K, Si...)
- la charge saline des solutions d'attaques
- les autres radionucléides naturels et artificiels émetteurs alpha, en particulier la chaîne naturelle U-Th, dont les raies d'émissions peuvent interférer avec celles des isotopes du plutonium

✓ *Conditionnement et calcination des échantillons de sédiment*

Les échantillons de sédiment ont été lyophilisés puis homogénéisés et enfin tamisés à 2 mm. Un aliquote d'environ 100 g de sédiment sec a été prélevé dans la fraction inférieure à 2 mm par la technique de quartage. Les échantillons ont ensuite été calcinés à 480°C, selon un cycle de montée en température prédéfini de 52 h, afin d'éliminer la matière organique. Les transuraniens sont des éléments stables à très haute température et ne sont pas affectés par la calcination.

✓ *Ajout des traceurs et minéralisation*

La complexité du protocole de radiochimie ne permet pas de garantir des rendements analytiques élevés et reproductibles. L'ajout d'un traceur est donc indispensable pour déterminer le rendement global d'extraction qui sera spécifique pour chaque analyse (rendements des séparations chimiques, du dépôt en couche mince et de la mesure réunis). Pour être performant, le traceur doit posséder les qualités suivantes (Jerome *et al.*, 1995) :

- ne pas être présent dans l'échantillon à analyser
- avoir le même comportement physico-chimique que les radionucléides recherchés
- avoir une grande pureté radiochimique
- avoir des énergies de désintégration différentes de celles des radioéléments analysés pour éviter toute interférence

Deux isotopes du plutonium, le ^{236}Pu et le ^{242}Pu , présentent l'ensemble de ces caractéristiques (Harvey et Lovett, 1984). Pour les radiochimies, le ^{242}Pu a été préféré au ^{236}Pu qui peut présenter des interférences spectrales avec le ^{238}Pu (Vives i Batlle, 1993). Chaque échantillon a donc reçu environ 30 mBq de ^{242}Pu pour déterminer le rendement global d'extraction de chaque radiochimie.

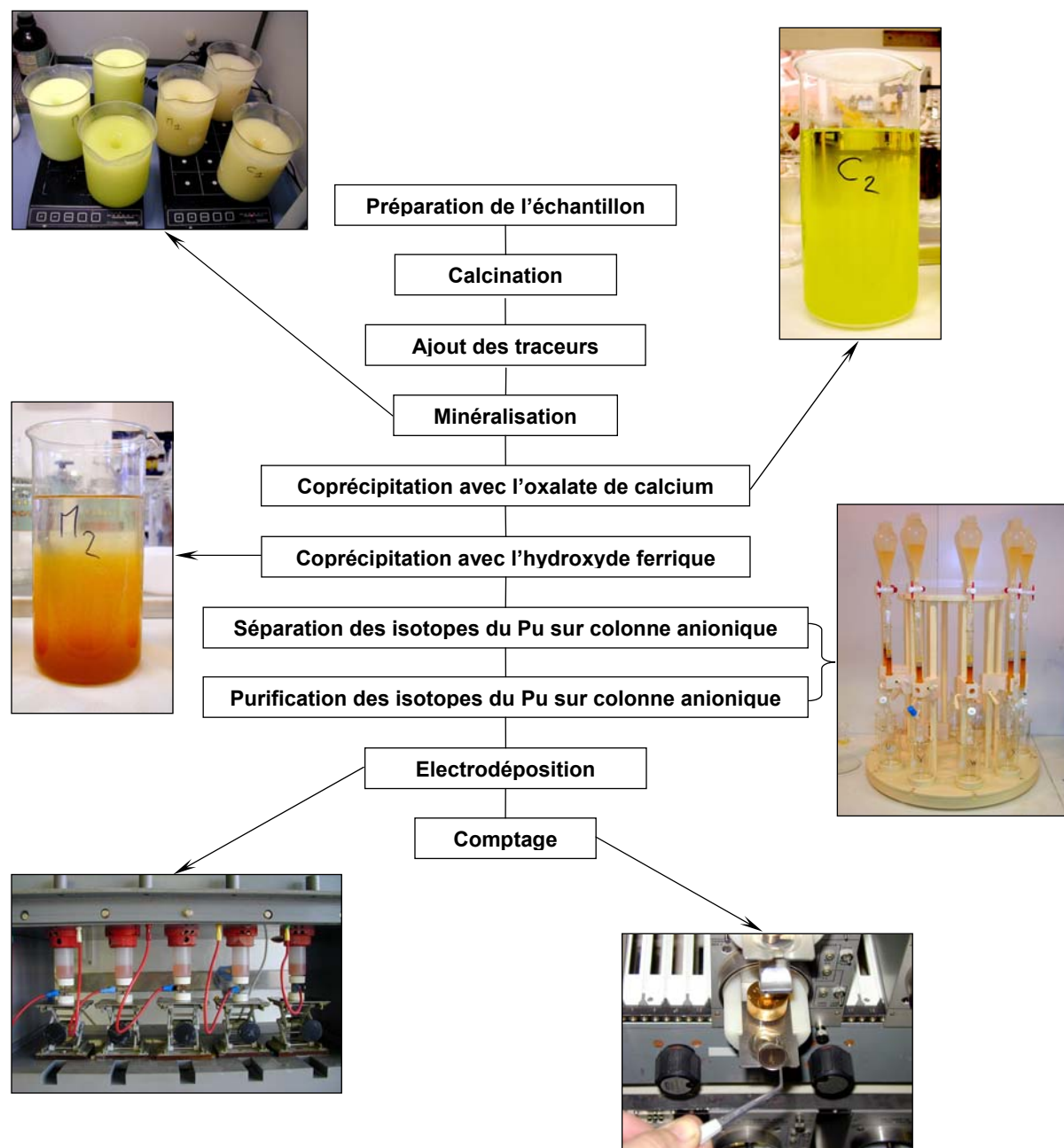


Figure 4-7 : Synoptique et illustrations des principales étapes du protocole de radiochimie du plutonium.

Le but de la minéralisation est de solubiliser par lixiviation les principaux constituants de la matrice sédimentaire. Les sédiments calcinés ont donc subi une série d'attaques acides oxydantes à chaud (acide nitrique : HNO_3 , acide chlorhydrique : HCl , peroxyde d'hydrogène : H_2O_2). Une fraction du sédiment, comprenant entre autres Al_2O_3 et SiO_2 , était tout de même réfractaire aux différentes attaques acides. Cette phase réfractaire n'a pas fait l'objet d'une dissolution totale à l'acide fluorhydrique (HF). D'après Hamilton-Taylor *et al.* (1987), la fraction résiduelle représente moins de 10 % de l'activité totale en plutonium, ce qui justifie l'absence d'une attaque totale des sédiments lors des radiochimies. Par contre, une partie de la silice s'étant solubilisée, il a été nécessaire de la faire flocculer puis de la récupérer sur un filtre en fibre de verre avant de l'attaquer à chaud à l'HF.

✓ *Les coprécipitations*

Les cycles successifs de coprécipitation ont pour objectifs :

- la concentration des isotopes du plutonium
- éliminer la plus grande partie des macrocomposants minéraux (Fe, Ca,...) constituant la matrice de l'échantillon
- éliminer si possible une partie des émetteurs alpha naturels tel que l'uranium
- réduire le volume et la complexité des solutions contenant les actinides

Dans chaque étape, le plutonium n'est extractible en phase aqueuse que s'il est à la valence +4. Dans ces conditions, les ions libres Pu^{4+} forment facilement des complexes qui vont très rapidement co-précipiter. L'utilisation du nitrite de sodium (NaNO_2) permet la réduction du Pu (V) et (VI) en Pu (IV) et l'oxydation du Pu (III) en Pu (IV).

Une première série de coprécipitations a été réalisée en utilisant l'oxalate de calcium comme entraîneur. Cette précipitation en milieu acide (pH 1,5) permet de laisser en solution et d'éliminer les principaux hydroxydes métalliques, en particulier les hydroxydes de fer, dont le pH de précipitation est bien plus élevé. Les précipités d'oxalates de calcium formés lors des coprécipitations sont ensuite transformés en carbonates par calcination à 550°C . Les carbonates de calcium sont, par la suite, dissous par une solution d' HCl . Une seconde série de coprécipitations a été effectuée avec un autre entraîneur : l'hydroxyde ferrique. Cette coprécipitation, réalisée avec quelques mg d'hydroxyde de fer, permet d'éliminer la quasi totalité du calcium et des alcalino-terreux restant.

✓ *Chromatographie sur résine échangeuse d'ions*

Après avoir détruit la matrice organique et attaqué la matrice minérale, la chromatographie sur résine échangeuse d'ions permet une séparation sélective du plutonium. Il s'agit d'une séparation séquentielle où les éléments à séparer doivent être stabilisés à une valence déterminée de manière à

contrôler leur adsorption sur les échangeurs d'ions utilisés. Seul le Pu (IV) peut former des chloro-complexes pouvant être fixés par la résine anionique. Avant la chromatographie, l'échantillon doit donc présenter deux conditions sine qua non pour que le Pu soit fixé sur la résine (Horwitz *et al.*, 1992). La normalité en acide nitrique de l'échantillon doit être ajustée à 8 N et le plutonium doit être réduit pour atteindre le degré d'oxydation (IV). L'addition de H_2O_2 et de NaNO_2 permet des conditions d'oxydoréduction favorables à l'obtention du Pu^{4+} .

Deux chromatographies sur résine anionique échangeuse d'ions (AG1X8, 100-200 mesh) ont été réalisées successivement. La première permet de séparer les différents radionucléides émetteurs alpha (U, Th, Am...) pour obtenir un échantillon où n'apparaît plus que les isotopes du Pu. La seconde chromatographie a été effectuée dans le but de purifier le plutonium des échantillons.

Chaque passage sur colonne échangeuse d'ions, s'opère en 3 étapes :

- les ions solubles et adsorbables de l'échantillon sont dans un premier temps fixés sur la résine en milieu nitrique
- les éléments indésirables sont ensuite éliminés de manière sélective (U, Th, Am, Np, Cm, terres rares et les traces restantes des différents métaux)
- enfin, le plutonium est finalement élué par une solution d'acide nitrique et d'iodure d'ammonium (NH_4I)

✓ ***L'électrodéposition***

L'électrodéposition permet de déposer de manière uniforme sur un disque d'acier inoxydable, les éléments isolés par la radiochimie. La déposition se fait sous un champ électrique de 1 A pendant 2 heures. Au final, l'échantillon est déposé sous forme d'une couche mince, indispensable à la détection des émetteurs alpha par spectrométrie.

4.3.2.2. Détection des isotopes du plutonium par spectrométrie alpha

Les activités des isotopes du plutonium ont été mesurées par spectrométrie alpha haute résolution. Le temps de comptage variait de 7 à 15 jours en fonction du rendement d'extraction et de l'activité de l'échantillon. La limite de détection du plutonium, liée au rendement de détection du spectromètre (23 %), au bruit de fond des chambres de comptage ($<2 \text{ cps.j}^{-1}$) et au rendement moyen d'extraction de nos radiochimies ($67 \pm 14 \%$ pour 80 échantillons), était de l'ordre de 1 mBq.kg^{-1} . Les résultats ont été exprimés en Bq.kg^{-1} de sédiment sec avec une erreur de ± 1 sigma, liée à la propagation de la statistique de comptage. Par ailleurs, la résolution de la spectrométrie alpha ne permet pas de différencier les isotopes ^{239}Pu et ^{240}Pu car leurs énergies d'émission sont très proches. Les résultats de ces 2 isotopes ont donc été donnés sous la forme totale $^{239,240}\text{Pu}$.

D'autres appareils de détection permettent de séparer et de mesurer les isotopes ^{239}Pu et ^{240}Pu , comme l'ICP-MS (spectromètre de masse à plasma couplé inductivement) (Lee *et al.*, 2001 ; Agarande *et al.*, 2004) ou le TIMS (spectromètre de masse à thermo-ionisation) (McCormick, 1992 ; Povinec *et al.*, 2001).

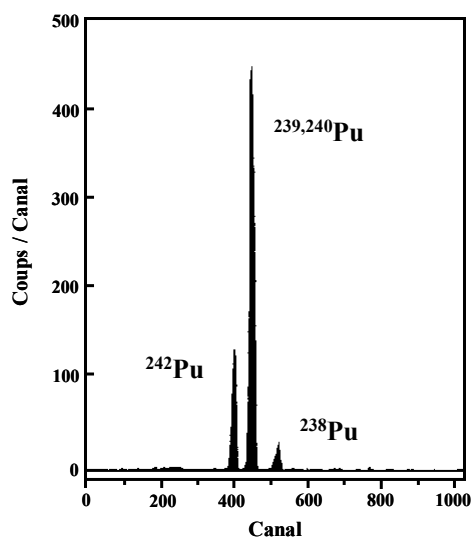


Figure 4-8 : Exemple de spectre obtenu par spectrométrie alpha pour les isotopes du plutonium.

Au total, 80 mesures de plutonium ont été réalisées sur des échantillons de sédiments mais également sur des prélèvements de matières en suspensions et d'eau de mer. Nous avons effectué nos analyses dans les laboratoires de l'IRSN (Cadarache) sous la supervision de Marcel Morello. Pour vérifier la qualité de nos mesures, nous avons analysé deux échantillons issus d'un même standard (AIEA, soil 6 : activité en $^{239,240}\text{Pu} = 1,04 \pm 0,08 \text{ Bq.kg}^{-1}$) fourni et certifié par l'Agence Internationale de l'Energie Atomique (AIEA). Les activités en $^{239,240}\text{Pu}$ mesurées pour ce standard ($1,13 \pm 0,06 \text{ Bq.kg}^{-1}$) sont en accord avec les activités certifiées, garantissant la qualité des mesures effectuées lors de ce travail.

D'autres mesures de plutonium viennent compléter les données présentées dans cette thèse. En collaboration avec le CIEMAT (Centro de Investigaciones Energéticas Medioambientales y Tecnológicas) de Madrid, C. Gascó et M.P. Antón ont analysé 75 échantillons de sédiments et nous ont transmis leur résultats. Enfin, 16 mesures complémentaires ont été réalisées par le LMRE (IRSN).

4.3.3. Intercomparaison des mesures de plutonium

Pour vérifier la cohérence et la qualité des différentes analyses, nous avons comparé nos résultats avec ceux du CIEMAT. Parmi tous les échantillons traités, 11 échantillons en commun ont permis de réaliser une intercomparaison des mesures en plutonium.

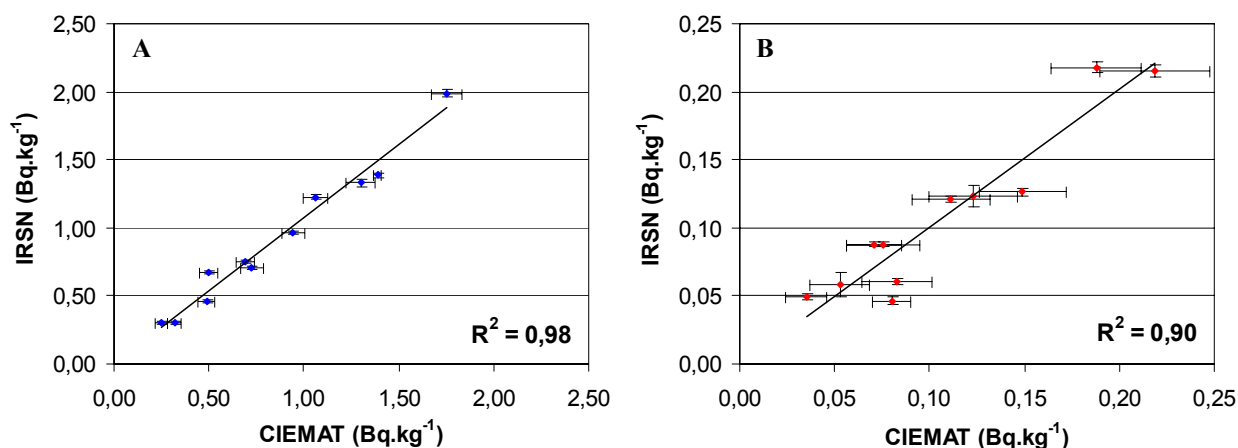


Figure 4-9 : Résultats de l'intercomparaison entre les mesures de ^{239,240}Pu (A) et ²³⁸Pu (B) réalisées par le CIEMAT (en abscisse) et nos mesures (en ordonnée).

Les résultats de cette intercomparaison montrent une bonne adéquation entre les résultats issus des deux laboratoires ($p < 0,05$). Le protocole de radiochimie utilisé au CIEMAT est très proche de celui que nous avons utilisé. Toutefois, deux points de divergence sont à souligner. Tout d'abord, la prise d'échantillon au CIEMAT n'était que de 5 g de sédiment contre 100 g dans notre protocole et le temps de comptage était fixé à une semaine seulement. Dans ces conditions, les résultats du CIEMAT sont entachés d'incertitudes plus importantes, en particulier pour les activités du ²³⁸Pu. En effet, plus les niveaux d'activités sont faibles, plus la quantité de matière à analyser et le temps de comptage doivent être importants pour obtenir une mesure fiable. Néanmoins, l'intercomparaison garantit la cohérence des résultats qui seront ensuite traités comme un seul et même jeu de données. Par ailleurs, en l'absence d'analyse commune, aucune intercomparaison avec les résultats du LMRE n'a pu être effectuée.

4.3.4. Limitations des mesures en plutonium

Le protocole analytique de détection du plutonium est à la fois lourd à mettre en œuvre et long à réaliser ; il constitue un facteur limitant au nombre d'échantillons pouvant être analysés. En effet, la méthodologie, la technologie, le temps nécessaire mais également le coût financier des analyses en

limitent le nombre. A titre indicatif, il faut compter, entre le début de la radiochimie et le résultat final, de 5 à 7 semaines de travail pour une série de 6 échantillons. L'analyse d'un très grand nombre d'échantillons par spectrométrie alpha n'est donc pas envisageable. Dans la mesure du possible, cette limitation implique une sélection d'un nombre restreint d'échantillons. Les profils des émetteurs gamma et en particulier de ^{137}Cs nous ont aidés à sélectionner les sections de carottes les plus pertinentes à mesurer pour réaliser un inventaire relativement précis des isotopes du plutonium contenus dans les sédiments du prodelta du Rhône. En terme de remobilisation et de remise en suspension, les sédiments de surface ont été analysés systématiquement en priorité. Pour de nombreuses carottes, un second niveau a été analysé en plutonium. Ce second niveau correspondait au niveau présentant la plus forte activité sur les profils verticaux de ^{137}Cs . Enfin, le nombre restreint de mesures de Pu peut rendre difficile et délicate l'interprétation des résultats, notamment en terme de bilans.

4.4. Utilisation du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$

Dans le cadre de ce travail, le plutonium sera utilisé comme traceur spécifique des apports solides du Rhône en Méditerranée (Noël, 1996). L'utilisation du rapport d'activité (RA) $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ permet de déterminer l'origine du plutonium. En effet, les différentes sources de plutonium sont caractérisées par des RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ spécifiques. Les retombées atmosphériques globales sont identifiables par un RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ de 0,03 (§ 2.1). A l'opposé, les rejets effectués par le complexe de Marcoule sont marqués par un RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ théorique de 0,3 (§ 3.1). Il existe donc un facteur 10 entre les deux rapports d'activités qui nous permettra de quantifier les proportions relatives de ces deux sources de plutonium.

✓ *Application du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ pour le prodelta du Rhône*

L'utilisation du rapport $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ permet de distinguer deux stocks de sédiments pour le golfe du Lion (Thomas, 1997) :

- Des sédiments marqués par les retombées atmosphériques et caractérisés par un RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ de 0,03. Ces sédiments ont des origines diverses. Ils peuvent provenir d'apports fluviaux du Rhône datant d'avant 1958 (année des premiers rejets de Marcoule) ou d'autres fleuves. Il peut également s'agir d'apports éoliens ou de sédiments transportés par la dynamique sédimentaire.
- Des sédiments récents apportés par le Rhône depuis 1958 et marqués par du plutonium rejeté par Marcoule avec un RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ proche de 0,3.

Le plutonium mesuré pour un sédiment donné correspond en fait à un mélange de ces deux fractions. Le RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ permet alors de calculer le pourcentage de chaque fraction au sein du sédiment. Le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ ne sera pas affecté par le mélange d'un sédiment marqué avec un sédiment non marqué. Dans ce cas, le sédiment non marqué joue le rôle d'un diluant des activités mais le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ reste inchangé. Par ailleurs, les isotopes du plutonium sont supposés avoir le même comportement physico-chimique et par conséquent l'évolution du rapport d'activité est indépendante des facteurs environnementaux. Seules la décroissance radioactive et la dispersion du plutonium peuvent faire varier le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ (Hunt, 1985). L'évolution du RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ suit une loi de mélange donnée par l'équation ci dessous (Noël, 1996 ; Thomas, 1997 ; Duffa, 2001) :

$$\left(\frac{^{238}\text{Pu}}{^{239,240}\text{Pu}} \right)_{\text{Séd}} = \frac{\left(^{238}\text{Pu} \right)_{\text{Mar}} + \left(^{238}\text{Pu} \right)_{\text{Atm}}}{\left(^{239,240}\text{Pu} \right)_{\text{Mar}} + \left(^{239,240}\text{Pu} \right)_{\text{Atm}}} \quad \text{Équation 4-2}$$

A partir du développement mathématique de cette expression, il est alors possible d'estimer le pourcentage de plutonium originaire de Marcoule en utilisant les relations suivantes :

$$\% ^{239,240}\text{Pu}_{\text{Mar}} = \frac{(R_{\text{Séd}} - R_{\text{Atm}})}{(R_{\text{Mar}} - R_{\text{Atm}})} \times 100$$

Équations 4-3

$$\% ^{238}\text{Pu}_{\text{Mar}} = \% ^{239,240}\text{Pu}_{\text{Mar}} \times \frac{(R_{\text{Mar}})}{(R_{\text{Séd}})} \times 100$$

Avec : $R = \left(\frac{^{238}\text{Pu}}{^{239,240}\text{Pu}} \right)$

$R_{\text{Séd}}$: rapport d'activité mesuré pour le sédiment

R_{Mar} : rapport d'activité théorique de Marcoule (0,3)

R_{Atm} : rapport d'activité des retombées atmosphériques globales (0,03)

La Figure 4-10 illustre l'application des équations 4-3 pour déterminer le pourcentage de plutonium originaire de Marcoule en fonction du RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ mesuré dans les échantillons. L'évolution du pourcentage de $^{239,240}\text{Pu}$ issu de Marcoule est une fonction linéaire du RA, alors que celle du ^{238}Pu suit une fonction logarithmique.

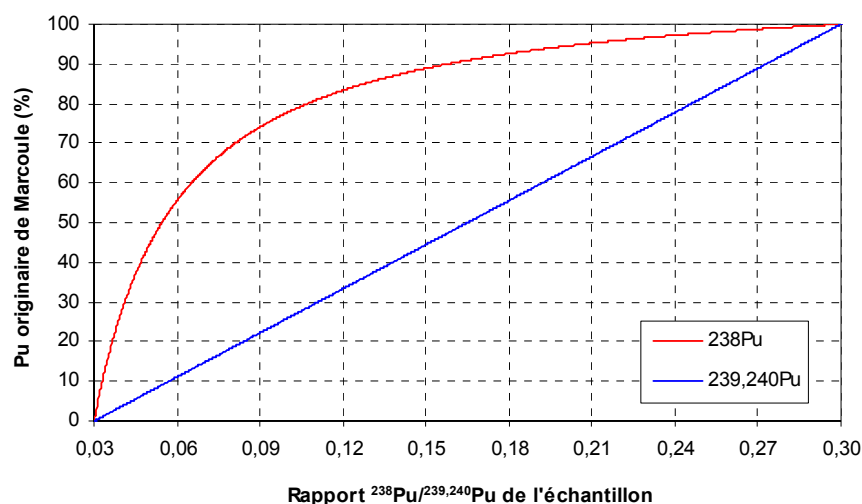


Figure 4-10 : Evolution des pourcentages de ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ issus des rejets de Marcoule en fonction du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$.

Au cours de ce travail, le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ sera utilisé pour déterminer l'origine du plutonium et il permettra ainsi de tracer la dispersion des sédiments rhodaniens.

4.5. Expériences de remise en suspension en canal à courant

Comme nous l'avons expliqué au Chapitre 2, la remobilisation physique du plutonium est principalement gouvernée par la dynamique sédimentaire. Or, à notre connaissance, il n'existe pas, dans la littérature, d'expérience permettant de relier directement la remobilisation du plutonium et la dynamique sédimentaire. Les mécanismes intervenant dans ce processus, en particulier les seuils hydrodynamiques déclenchant l'érosion, ainsi que les flux, tant particuliers que dissous, sont encore méconnus. Pourtant, ces paramètres sont des paramètres clefs dans la dispersion du plutonium en milieu marin. Pour répondre à cette question, nous avons réalisé des expériences innovantes, basées sur la remise en suspension en canal à courant de sédiments contaminés prélevés face à l'embouchure du Rhône. Ces expériences ont été effectuées en essayant de reproduire le plus fidèlement possible les conditions environnementales. Elles permettent non seulement de déterminer les paramètres de l'érosion (contrainte critique d'érosion, flux d'érosion) mais également un flux potentiel de plutonium remobilisé. Le protocole expérimental et les méthodes utilisées lors de ces expériences sont exposés au cours de ce paragraphe.

4.5.1. Le dispositif expérimental

Afin d'étudier la réponse de différents types de sédiment aux stress hydrodynamiques liés à des intensités variables de courant, des expériences de remise en suspension ont été réalisées en canal à courant (Figure 4-11).

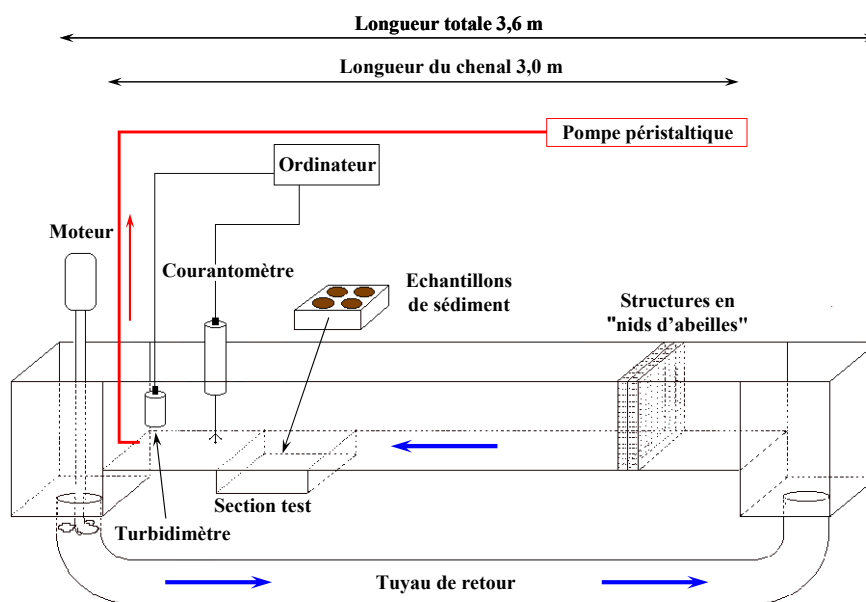


Figure 4-11 : Schéma du canal à courant utilisé pour les expériences de remise en suspension.

Ce canal linéaire a été construit par Denis *et al.* (1996) en se basant sur le modèle décrit par Cole *et al.*, (1992) et en tenant compte des critères physiques donnés par Nowell et Jumars, (1987) et par Munschenheim *et al.*, (1986). Le canal est constitué d'un chenal principal de 3 m de longueur pour une largeur et une hauteur de 0,4 m. Pour l'expérimentation, le canal est rempli avec 300 litres d'eau de mer brute permettant d'obtenir une hauteur d'eau de 10 cm dans le chenal principal. L'eau de mer est directement prélevée en mer à l'aide d'une pompe in situ placée à 3 m de profondeur. Un moteur électrique d'une puissance de 0,75 kW entraîne une hélice située à l'entrée du tuyau de retour. L'eau de mer circule alors en circuit fermé et de façon continue au-dessus d'une section test accueillant 4 carottes de sédiment, représentant une surface de 707 cm².

Si l'on souhaite obtenir des résultats les plus réalistes possibles, il est essentiel que les sédiments conservent les mêmes propriétés que celles existant dans le milieu naturel (Sutherland *et al.*, 1998). Juste après leur prélèvement, les carottes de sédiment sont conservées entre 12 et 72 h maximum à l'abri de la lumière et à une température de 12°C afin de préserver les structures du sédiment et de minimiser tout changement dans la distribution des états d'oxydation du plutonium (§ 2.3). De plus,

toutes les expériences ont été réalisées dans une pièce sombre pour prévenir toute désorption éventuelle liée à la lumière (McCubbin *et al.*, 2002). Par ailleurs, la mise en place des échantillons dans le canal à courant est une étape fondamentale. La technique utilisée pour le transfert des sédiments en préservant l'interface eau-sédiment a été décrite par Schaaff *et al.*, (2002). Une fois en place dans la section test, les sédiments viennent affleurer le plancher du chenal principal (Figure 4-12).

Comme le soulignent Muschenheim *et al.* (1986), les conditions hydrodynamiques d'entrée et de sortie sont très importantes pour le développement de l'écoulement. Deux plaques constituées d'alvéoles hexagonales, de type "nids d'abeilles", sont placées en aval de la boîte d'entrée (Figure 4-11). Ces structures permettent de dissiper la turbulence produite à grande échelle et d'uniformiser les vitesses d'écoulement. La vitesse du courant dans le chenal principal est régulée par l'intermédiaire d'un variateur. La vitesse du courant est mesurée à une fréquence de 10 Hz par un courantomètre à effet Doppler (ADV : Acoustic Doppler Velocimetre, Sontek®) dont la précision est de $0,1 \text{ cm.s}^{-1}$. Ce courantomètre peu intrusif est placé au centre de la section test et sa cellule de mesure se situe à 4 cm du fond.



Figure 4-12 : Section test du canal à courant avant une expérience de remise en suspension.

Au cours des expériences, des prélèvements d'eau sont effectués à l'aide d'une pompe péristaltique placée 30 cm en aval de la section test. Le point de pompage est situé à 2 cm du fond et le débit est fixé à son maximum (1 l.mn^{-1}) afin d'obtenir une réponse quasi-instantanée à l'augmentation de la concentration en matières en suspension (MES). Un turbidimètre Aanderaa, de type T/T sensor 3712 de gamme 0 à 20 NTU, est placé au même niveau que la pompe péristaltique et permet l'enregistrement en continu de la turbidité (Figure 4-12).

Les expériences de remise en suspension en canal à courant réalisées lors de ce travail s'appuient sur le protocole expérimental et les résultats obtenus par Schaaff (2003). Les caractéristiques hydrodynamiques du canal (nature de l'écoulement, développement de la couche limite, distribution des vitesses...) ainsi que l'ensemble de l'appareillage permettant de suivre les expériences de remise en suspension y sont décrits.

4.5.2. Expérimentation pour étudier la remobilisation du plutonium

Dans le cadre des expériences de remise en suspension en canal à courant, nous avons développé un volet spécifique pour l'étude des radionucléides. En effet, pour appréhender la remobilisation du plutonium lors des phénomènes de remise en suspension, nous avons mis au point l'approche expérimentale suivante. Les carottes de sédiment subissent une augmentation linéaire du courant pendant 45 minutes jusqu'à une vitesse maximale d'environ 35 cm.s^{-1} (Figure 4-13). L'intensité maximale du courant est ensuite maintenue constante sur une période de 30 minutes, dans le but d'augmenter la charge en MES car les activités attendues en Pu sont très faibles.

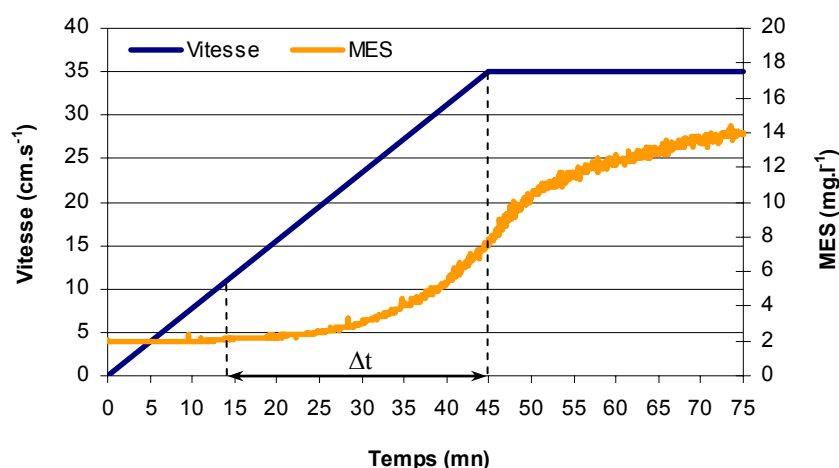


Figure 4-13 : Exemple type d'une expérience de remise en suspension en canal à courant.

Au bout de 75 minutes, les sédiments sont recouverts d'une plaque en Plexiglas pour stopper l'érosion et isoler les sédiments de l'eau surnageante. Les 300 litres d'eau de mer sont ensuite maintenus en circulation et filtrés en totalité. La filtration a été effectuée par filtration tangentielle sur une cartouche millipore de $0,5 \mu\text{m}$, à la vitesse de 2 à 3 litres par minute.

- Le filtre et la fraction particulaire ont été séchés pendant 1 semaine à l'étuve (60°C) dans le but d'estimer la masse totale de sédiments remis en suspension.
- La fraction dissoute a été récupérée dans trois bidons de 120 litres.

4.5.2.1. Détermination des paramètres de l'érosion

✓ Les caractéristiques de l'écoulement turbulent

La dynamique des sédiments est sous la dépendance des conditions hydrodynamiques de l'écoulement. D'une manière générale, l'écoulement turbulent au voisinage d'une paroi peut se diviser en deux zones distinctes (Figure 4-14), (Soulsby, 1983). La première est située à proximité du fond où l'écoulement est directement influencé par les conditions du fond. Cette zone est appelée couche limite de fond et représente entre 10 et 20 % de la colonne d'eau. La seconde située au dessus n'est affectée qu'indirectement par le fond et correspond à la zone de vitesse libre.

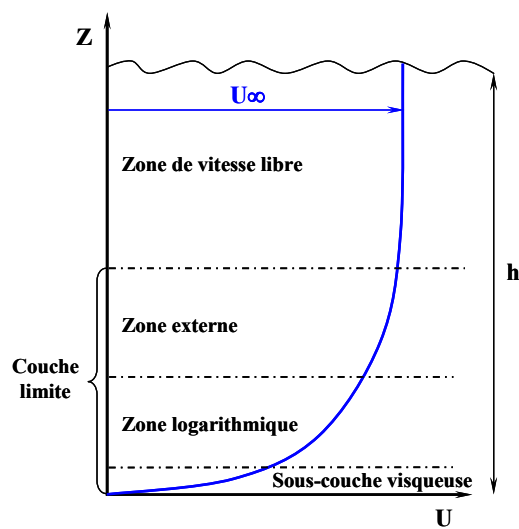


Figure 4-14 : Représentation schématique des différentes zones formant la couche limite de fond.

Dans le cadre de ce travail, nous nous focaliserons sur la couche limite de fond qui est le siège des processus turbulents contrôlant à la fois l'érosion et le dépôt des particules. Pour un fond lisse, la couche limite peut être sub-divisée en trois sous-couches :

- la sous-couche visqueuse
- la zone logarithmique
- la zone externe

Dans le canal à courant, la couche limite se développe sur une hauteur d'environ 4 cm au-dessus de la section test (Schaaff, 2003).

Dans le cas d'une couche limite turbulente, uniforme, à l'état d'équilibre, le profil de vitesse suit une distribution logarithmique sur la verticale qui est décrit par la loi de Von Karman-Prandtl (Dyer, 1976) :

$$\bar{u}_{(z)} = \frac{u_*}{k} \ln \left(\frac{z}{z_0} \right)$$

Équation 4-4

Avec : $\bar{u}_{(z)}$: vitesse moyenne du courant à la distance z (m) par rapport au fond (m.s^{-1})

u_* : vitesse de cisaillement sur le fond (m.s^{-1})

k : constante de Von Karman (0,4)

z_0 : longueur de rugosité du sédiment (m)

Parmi ces paramètres, la longueur de rugosité du lit sédimentaire est le paramètre le plus difficile à déterminer avec précision. En effet, la longueur de rugosité est une variable complexe, fonction de la nature du sédiment, de la taille des grains mais aussi de la microtopographie du fond. Dans la littérature, les sédiments fins ont généralement les valeurs de z_0 les plus faibles, de l'ordre de 10^{-4} à 10^{-5} m (Soulsby, 1997). Pour les sédiments du prodelta du Rhône, Schaaff (2003) a déterminé des valeurs de z_0 comprises entre 4.10^{-6} et 4.10^{-5} m. Une valeur moyenne de 10^{-5} m a été retenue pour l'ensemble de ce travail et ce quel que soit la station considérée.

✓ ***La contrainte de cisaillement sur le fond***

La contrainte de cisaillement associé au courant, notée τ_c , correspond à la force de friction par unité de surface (N.m^{-2}) qu'exerce le courant sur le fond. C'est un paramètre essentiel pour l'étude de la dynamique sédimentaire car il représente la force induite par l'écoulement sur les grains du lit sédimentaire. De cette valeur dépend un grand nombre de phénomènes comme la remise en suspension, le charriage, la saltation ou encore la sédimentation. La contrainte de cisaillement exercée par le courant sur le lit sédimentaire a été calculée par :

$$\tau_c = \rho u_*^2$$

Équation 4-5

Avec : ρ : masse volumique de l'eau de mer (1038 kg.m^{-3})

✓ ***Le seuil de mise en mouvement***

Le seuil de mise en mouvement est caractérisé par une vitesse de cisaillement critique à partir de laquelle les particules commencent à se déplacer ; on parle alors de mouvement naissant. La vitesse critique d'érosion est déterminée graphiquement en suivant l'évolution du signal de turbidité qui est

corrélée à l'évolution des concentrations en MES. Au cours de ce travail, la vitesse critique d'érosion a été déterminée lorsque la concentration en MES, moyennée sur 30 secondes, atteint la concentration initiale moyenne + 5 %. A cette vitesse est associée une contrainte critique d'érosion qui dépend des caractéristiques de l'écoulement (turbulent, laminaire) mais aussi de la nature des grains (densité, taille, forme...) et du fluide (densité, viscosité). Les sédiments sont susceptibles d'être érodés si et seulement si la contrainte appliquée est supérieure à la contrainte critique d'érosion. La détermination de la contrainte critique d'érosion est généralement empirique, basée sur des expérimentations en laboratoire, et elle nécessite dans la mesure du possible une validation in situ (Chapitre 7).

✓ *Quantification des flux d'érosion*

Lorsque la contrainte critique d'érosion est dépassée, la concentration de matière particulaire dans l'eau du canal augmente. Le flux d'érosion est défini comme étant la quantité de matière introduite dans la colonne d'eau par unité de surface et par unité de temps (Parchure et Mehta, 1985). Dans le cadre de nos expériences en canal à courant et en se basant sur les mesures de MES, le flux d'érosion peut être calculé de la manière suivante (Tolhurst *et al.*, 2000).

$$F_x = \frac{(C_{(t)} - C_{(t_{crit})}) \times V_c}{S_{sed} \times \Delta t} \quad \text{Équation 4-6}$$

Avec : F_x : flux d'érosion de la matière particulaire ($\text{g.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$)

$C_{(t)}$: concentration en MES (g.l^{-1}) au temps t (h)

V_c : volume total d'eau de mer dans le canal (300 l)

S_{sed} : surface de sédiment ($0,0707 \text{ m}^2$)

$\Delta t = t - t_{crit}$ avec t_{crit} temps correspondant au début de la phase d'érosion

Le flux d'érosion est calculé pour la période de temps comprise entre le début de l'érosion et le palier de vitesse atteint au bout de 45 minutes. Le pourcentage d'erreur calculé pour le flux d'érosion est de $\pm 10 \%$.

Analyses des activités de plutonium remobilisé

Les échantillons solides et liquides, obtenus à la fin des expériences de remise en suspension, ont fait l'objet d'analyses en plutonium. Les activités en Pu des matières remises en suspension ont été mesurées en suivant le même protocole que les échantillons de sédiment (§ 4.3). Par contre, l'analyse

du plutonium dissous, dilué dans les 300 litres d'eau de mer, nécessitait avant tout une première étape de concentration (Annexe 1). Après la filtration, les échantillons d'eau de mer ont été immédiatement acidifiés jusqu'à atteindre un $\text{pH} < 1$ par addition directe d' HNO_3 concentré. Puis, un spike de ^{236}Pu a été ajouté dans le but de déterminer le rendement d'extraction de cette étape. Le plutonium dissous a ensuite été concentré par co-précipitation en utilisant la technique standard aux hydroxydes de fer (Vives i Batlle, 1993). Le pH a été ajusté à 8,5, par ajouts successifs de soude (NaOH), afin de faire co-précipiter les hydroxydes de fer. Après une nuit de décantation, les précipités ont été récupérés en siphonnant le surnageant. Par la suite, l'ensemble des échantillons dissous ont été traités en radiochimie et mesurés par spectrométrie alpha comme les autres prélèvements.

✓ **Détermination des activités de plutonium de l'eau de mer**

Pour quantifier les activités de plutonium remobilisé lors des expériences de remise en suspension, il était indispensable de déterminer préalablement les activités de Pu dans l'eau de mer introduite dans le canal. En Méditerranée, les concentrations en plutonium sont généralement faibles (Mitchell *et al.*, 1995 ; León Vintrol *et al.*, 1999). La détection des isotopes du Pu nécessite donc la collecte d'échantillons d'un volume de l'ordre de 10^2 à 10^3 litres (Vives i Batlle, 1993). Avant chaque série d'expériences, environ 600 litres d'eau de mer ont été prélevés puis filtrés afin de déterminer les activités dites de "bruit de fond" pour les phases particulaire et dissoute. Les activités de l'eau de mer ont été calculées pour la phase dissoute et la phase particulaire par :

$$Pu_{BF} = Pu / V_{EDM} \quad \text{Équation 4-7}$$

Avec : Pu_{BF} : activité Pu dans la phase considérée par unité de volume d'eau de mer (Bq.l^{-1})

Pu : activité totale mesurée dans la phase considérée (Bq)

V_{EDM} : volume d'eau de mer filtrée (l)

Par ailleurs, l'activité en Pu dans la phase particulaire est fonction de la concentration en MES de l'eau de mer. Les concentrations en MES ont été déterminées par la filtration de plusieurs échantillons d'un litre d'eau de mer sur des filtres GFF ($0,7 \mu\text{m}$). L'activité du plutonium particulaire pourra donc également être exprimée en Bq.g^{-1} de sédiment remis en suspension.

✓ **Détermination des activités de plutonium remobilisé**

Les activités de Pu remobilisé dans les phases particulaire et dissoute à la fin des expériences de remise en suspension ont été déterminées selon la formule suivante :

$$Pu_{REM} = Pu_{TOT} - (Pu_{BF} \times V_C) \quad \text{Équation 4-8}$$

Avec : Pu_{REM} : activité en Pu remobilisé dans la phase considérée (Bq)
 Pu_{TOT} : activité totale de la phase considérée (Bq)
 Pu_{BF} : activité de la phase considérée par unité de volume d'eau de mer (Bq.l⁻¹)

✓ *Détermination de la quantité de matière remise en suspension*

Pour la fraction particulaire, l'activité de plutonium remobilisé est fonction de la quantité de matière remise en suspension. Il est donc essentiel d'avoir une bonne estimation de la masse totale de matière récupérée sur le filtre. Il est également nécessaire de faire la distinction entre les matières en suspension (MES) initialement dans l'eau de mer et le sédiment réellement remis en suspension (MRS) au cours de l'expérience. La masse de sédiment resuspendu est calculée de la manière suivante :

$$M_{MRS} = M_{TOT} - (M_{SEL} + (C_{MES} \times V_C)) \quad \text{Équation 4-9}$$

Avec M_{MRS} : masse de sédiment resuspendu (g)
 M_{TOT} : masse totale retenue sur le filtre (g)
 M_{SEL} : masse de sel retenue sur le filtre (g)
 C_{MES} : concentration moyenne des MES dans l'eau de mer (g.l⁻¹)

✓ *L'effet de sel*

Pour éviter toute désorption artificielle du plutonium, nous avons fait le choix de ne pas rincer les filtres Millipore à l'eau douce. En effet, les niveaux d'activité attendus étant relativement faibles, nous voulions éviter d'introduire des artéfacts pouvant favoriser la redissolution du Pu. En contre partie, une masse de sel non négligeable était retenue sur le filtre. Cet effet de sel nous porte malheureusement préjudice pour donner une estimation précise de la masse de sédiment resuspendu (M_{RES}). Néanmoins, des tests ont été réalisés sur des filtres témoins plongés dans de l'eau de mer artificielle à 38 g.l⁻¹. Dans ces conditions, l'effet de sel moyen a été quantifié à 10,70 ± 1,80 g.

CHAPITRE 5

5. Le plutonium dans les sédiments du prodelta du Rhône

Etant donné l'influence des caractéristiques physico-chimiques des sédiments sur la distribution du plutonium, il nous a semblé nécessaire de caractériser dans un premier temps l'environnement sédimentaire face à l'embouchure du Rhône. Les résultats sur le plutonium seront exposés par la suite.

5.1. Caractéristiques des sédiments sous l'influence du Rhône

5.1.1. Distribution granulométrique des sédiments superficiels

Les sédiments de surface d'une quinzaine de stations ont fait l'objet d'analyses granulométriques. Les résultats présentés sur la Figure 5-1 ont été interpolés avec une fonction spline.

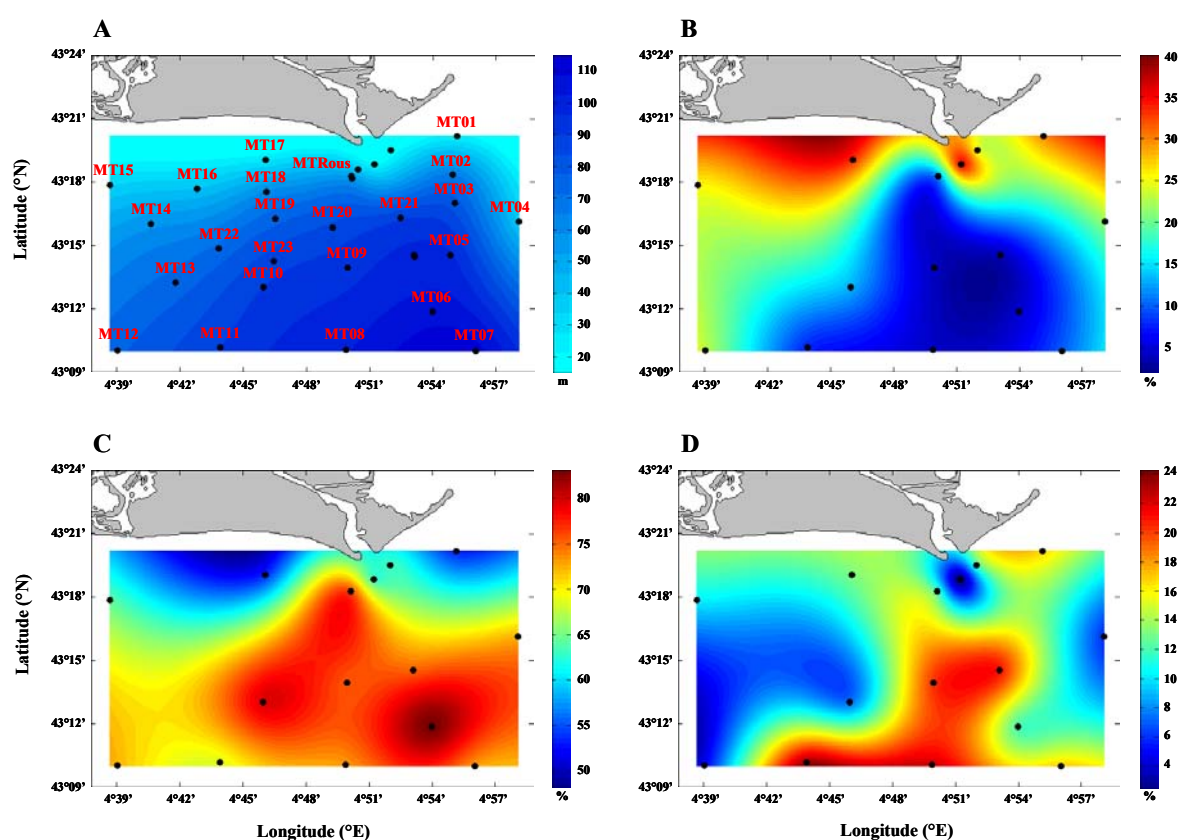


Figure 5-1 : Bathymétrie (A) et distribution granulométrique des sédiments de surface : pourcentage de sables (>63μm) (B), de silts (entre 63 et 4μm) (C) et d'argiles (<4μm) (D).

Le prodelta du Rhône est une zone d'accumulation préférentielle de sédiments fins, caractérisée par plus de 70 % de silts et d'argiles (Aloisi, 1986). Globalement, le pourcentage de la fraction fine (<63µm) augmente avec la profondeur en raison d'une diminution de la turbulence qui favorise la décantation des particules les plus fines. Les zones de décantation sont principalement localisées au Sud-Ouest de l'embouchure du Rhône. Ainsi, le domaine distal, situé en dessous de 60 m de profondeur, présente une fraction d'argile supérieure à 20 %. A l'opposé, le domaine proximal est marqué par la présence des sables littoraux et pré littoraux jusqu'à l'isobathe 20 m. Les stations situées près de l'embouchure du Rhône, face aux plages de Piemanson et de Faraman à l'Ouest (MT15 et MT17) et sur le prodelta fossile de Pégoulie à l'Est (MT01), sont caractérisées par une proportion plus importante de sable (>30 %). La dérive littorale et la dynamique des sédiments grossiers charriés par le Rhône permettent d'expliquer cette distribution (Vella, 1999 ; Sabatier, 2001).

5.1.2. La porosité des sédiments

Les résultats de porosité issus des prélèvements de *REMORA 1* sont présentés sur la Figure 5-2.

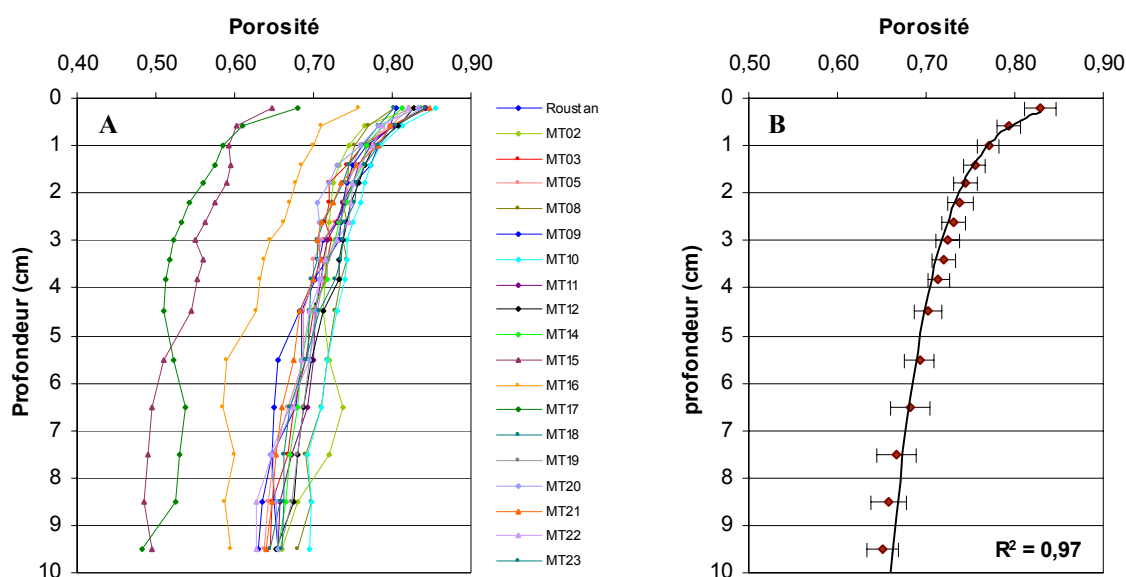


Figure 5-2 : Profils de porosité pour 19 stations situées face à l'embouchure du Rhône (A) et profil type de porosité calculé sans tenir compte des stations MT15, 16 et 17 (B).

D'après les profils de porosité, les stations MT15, MT16 et MT17 sont bien distinctes des autres. En effet, ces trois stations présentent une porosité de surface, comprise entre 0,65 et 0,75, plus faible que l'ensemble des autres stations (>0,80). Ces stations côtières, situées à l'Ouest de l'embouchure du Rhône, correspondent à des sédiments mixtes dont le pourcentage de sable peut atteindre 30 %. Toutes les autres stations possèdent un profil de porosité semblable, permettant d'attester d'une certaine homogénéité des sédiments échantillonnés. De manière à synthétiser les résultats et sans tenir compte des trois précédentes stations, nous proposons un profil type de porosité pour les sédiments de la zone

étudiée (Figure 5-2, B). La porosité décroît selon une exponentielle de la surface vers le fond traduisant ainsi l'état de consolidation des sédiments.

5.1.3. Distribution de la matière organique

Les apports terrigènes du Rhône véhiculent également d'importantes quantités de matières organiques. Les teneurs en matière organique (MO), carbone organique total (Cot) et azote total (Nt) ont été mesurées dans les sédiments de surface avec une résolution de 4 mm. Les pourcentages de MO, Cot et Nt présentés sur la Figure 5-3 correspondent à la moyenne des 5 premiers niveaux analysés, c'est à dire aux 2 premiers centimètres de la colonne sédimentaire.

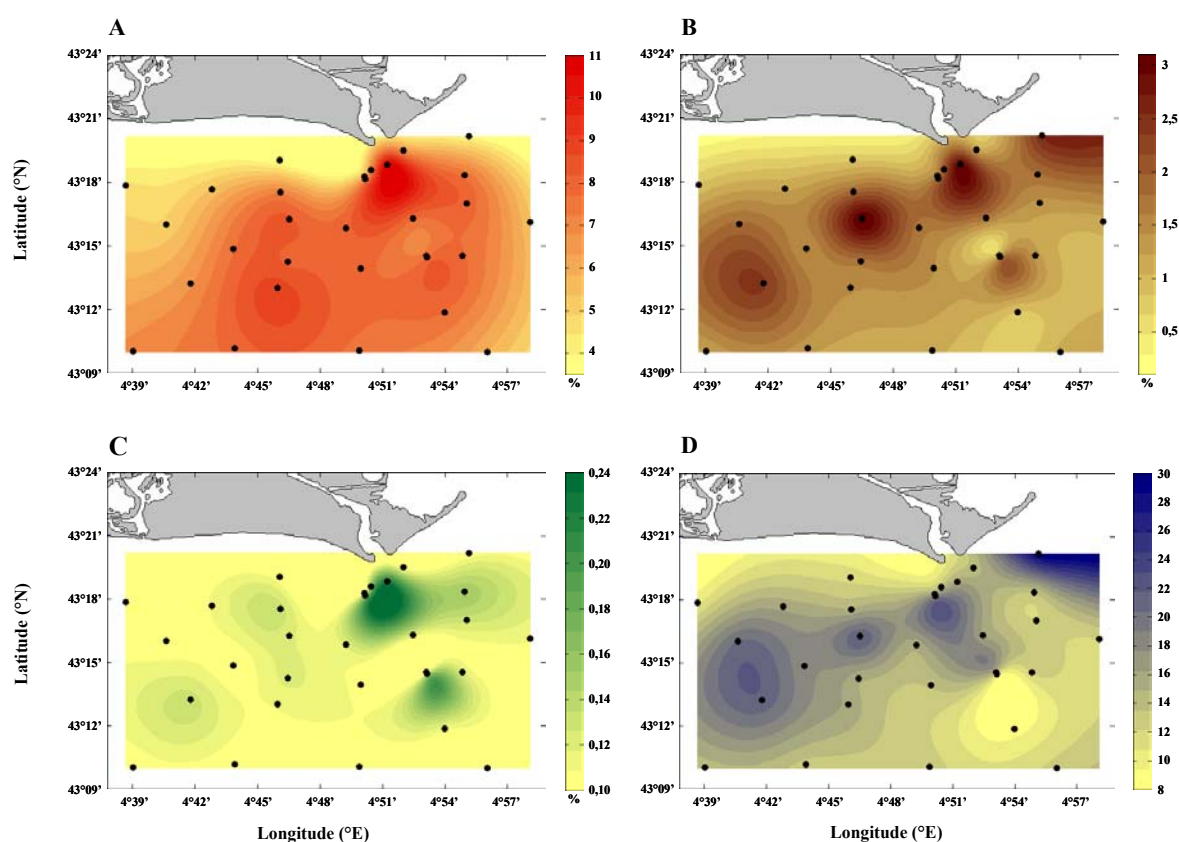


Figure 5-3 : Distribution de la matière organique (A), du carbone organique total (B), de l'azote total (C) et du rapport C/N (D) dans les sédiments de surface (% du poids sec de sédiment).

A l'échelle du golfe du Lion, les sédiments du prodelta du Rhône font partis des sédiments les plus riches en matière organique (Denis, 1999). En effet, les sédiments situés à l'embouchure du Rhône présentent des teneurs en MO supérieures à 10 %. A l'opposé, les sédiments mixtes des stations MT01, MT15 et MT17 sont moins riches en MO avec des teneurs plus faibles de l'ordre de 5 %.

En terme de COt, les sédiments du prodelta ont une teneur moyenne de 1,6 %. Cette valeur moyenne de COt est en accord avec les données fournies par la littérature (Buscail *et al.*, 1995 ; Durrieu de Madron *et al.*, 2000). Toutefois, la distribution du COt est très hétérogène et montre une répartition en forme de patch. En effet, certaines stations présentent des points chauds de COt où les teneurs atteignent presque 3 %. Ces stations sont localisées à proximité de Roustan et sont distribuées selon un axe privilégié orienté du Nord-Est au Sud-Ouest. Cette répartition spatiale du COt dans les sédiments de surface reflète d'une certaine manière la distribution des apports rhodaniens. Elle pourrait également traduire des différences dans les activités microbiennes vis-à-vis de la dégradation de la matière organique.

Les pourcentages en azote total sont fréquemment inférieures à 0,1 %, qui correspond à la limite de détection des techniques et appareils utilisés. Seules les stations proches de l'embouchure du Rhône présentent des teneurs significatives de l'ordre de 0,2 %.

Le rapport C/N traduit l'état de fraîcheur ou de dégradation de la matière organique. D'un côté, des valeurs inférieures à 10 marquent la présence d'une matière fraîche, de l'autre, des valeurs supérieures à 10 indiquent une importante dégradation de la matière organique et donc la présence d'un matériel détritique. Pour les sédiments de la zone étudiée, le rapport C/N varie de 8 à 30 avec une moyenne de 15. La matière organique est donc dans un état avancé de dégradation, reflétant l'importance de la minéralisation bactérienne dans ces sédiments.

5.1.4. Distribution de l'oxygène à l'interface eau-sédiment

Au sein de la colonne sédimentaire, la dynamique du plutonium peut être directement influencée par la dynamique de l'oxygène (§ 2.3). En collaboration avec C. Rabouille du Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, des mesures d'oxygène in situ ont été réalisées à la station Rhône par 63 m de fond (43°18'4 N, 4°53'1 E). Ces mesures ont été effectuées à l'aide d'un profileur benthique autonome dont les premiers essais ont eu lieu en 2001 dans le golfe de Fos (Lansard *et al.*, 2003). Equipé de microélectrodes à oxygène, cet appareil mesure avec une très grande résolution les concentrations d'oxygène dissous dans les sédiments superficiels.

Les profils d'oxygène mettent en évidence le caractère anoxique des sédiments du prodelta du Rhône (Figure 5-4). En effet, les concentrations en oxygène diminuent rapidement sous l'interface eau-sédiment, témoignant de l'intense demande en oxygène du milieu. Cette très forte demande en oxygène s'explique par une activité microbienne accrue dans un milieu riche en matière organique. Pour ces sédiments, la profondeur maximum de pénétration de l'oxygène n'est que de 8 mm. Par ailleurs, un des profils met en évidence l'activité de bioturbation et notamment par la présence d'une galerie marquée par un pic d'oxygène dont la concentration équivaut à la saturation de l'eau de fond (Figure 5-4, A).

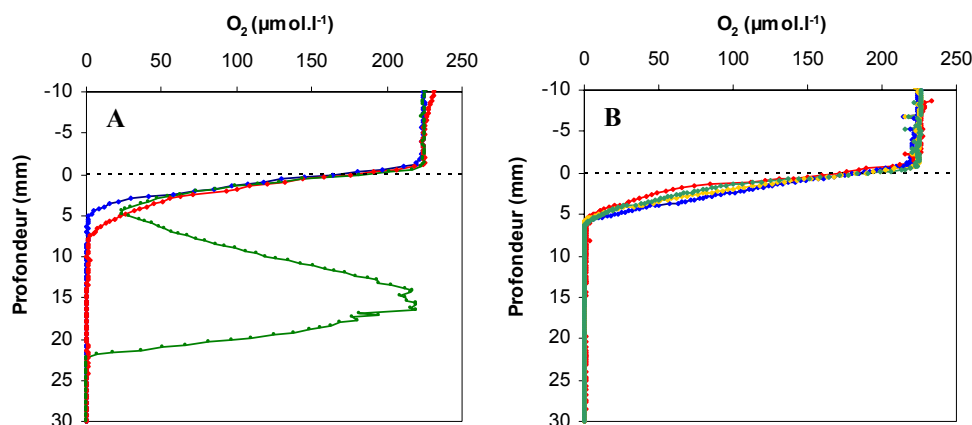


Figure 5-4 : Profils d'oxygène à l'interface eau-sédiment mesurés à la station Rhône (43°18'4 N, 4°53'1 E, 63 m) les 18 (A) et 19 (B) juin 2002, lors de la campagne MINERCOT (données C. Rabouille).

En terme de dynamique du plutonium, la présence d'oxygène dans les premiers millimètres de la colonne sédimentaire pourrait favoriser l'existence de Pu oxydé soluble et donc potentiellement remobilisable. Par contre, en dessous de l'interface oxie-anoxie, les conditions redox devraient favoriser et maintenir le plutonium sous une forme réduite et peu mobile. Toutefois, des mesures sur l'état d'oxydation et la spéciation du Pu dans ces sédiments seraient nécessaires pour confirmer ces hypothèses ainsi qu'un travail plus poussé sur l'incidence de la bioturbation.

5.1.5. Estimation des taux de sédimentation pour le domaine distal

La distribution du plutonium dans les sédiments face à l'embouchure du Rhône est également contrainte par la dynamique sédimentaire, d'où l'importance d'étudier les taux de sédimentation. Sur la zone prospectée, les taux de sédimentation sont très contrastés puisqu'ils diminuent de 2 à 3 ordres de grandeur entre l'embouchure du Rhône et le plateau continental (Zuo *et al.*, 1991 ; Radakovitch *et al.*, 1999). Pour déterminer les taux de sédimentation, l'approche la plus couramment utilisée repose sur la méthode du ^{210}Pb en excès (Cochran, 1985 ; Anderson *et al.*, 1987).

Le ^{210}Pb est un radionucléide naturel (émetteur gamma) appartenant à la famille de l' ^{238}U . Dans les sédiments, le ^{210}Pb a deux origines bien distinctes. Il est tout d'abord produit continuellement in situ par la décroissance radioactive du ^{226}Ra (famille de l' ^{238}U) ; cette fraction est appelée ^{210}Pb supporté. Le ^{210}Pb est également adsorbé sur les particules qui sédimentent dans la colonne d'eau ; cette fraction est dénommée ^{210}Pb en excès (noté $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$).

La fraction en excès déposée à l'interface eau-sédiment décroît exponentiellement avec le temps selon la relation :

$$A_{(z)} = A_{(0)} e^{-(\lambda t)} \quad \text{Équation 5-1}$$

Avec $A_{(0)}$: concentration en $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ à l'interface eau-sédiment
 λ : période radioactive du ^{210}Pb ($\lambda=22,3$ ans)

Les concentrations en $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ont été déterminées en soustrayant aux valeurs de ^{210}Pb total celles des concentrations en ^{238}U , en équilibre avec les concentrations en ^{214}Pb . En se basant sur les profils de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, les taux de sédimentation peuvent être calculés en formulant les hypothèses suivantes :

- l'apport en ^{210}Pb et le taux de sédimentation sont constants
- la concentration en ^{210}Pb à l'interface (A_0) est constante dans le temps

Ces conditions d'état stationnaire ne sont pas vérifiées à proximité de l'embouchure du Rhône car les taux de sédimentation y sont trop importants et discontinus. Pour cette zone, la méthode du $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ n'est donc pas utilisable. Par contre, nous ferons l'hypothèse que ces conditions sont vérifiées pour des stations plus au large car les taux de sédimentation sont beaucoup moins élevés et surtout plus continus dans le temps. Dans ces conditions, le taux de sédimentation, noté S , est déterminé par la relation suivante (Appleby et Oldfield, 1978 ; Oldfield et Appleby, 1984) :

$$S = -\lambda z / (\ln(A_{(z)} / A_{(0)})) \quad \text{Équation 5-2}$$

Un taux de mélange maximum peut également être déterminé d'après la formulation :

$$D = \lambda (z / (\ln(A_{(z)} / A_{(0)})))^2 \quad \text{Équation 5-3}$$

Les profils de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ mesurés pour 14 stations de la zone étudiée sont présentés sur la Figure 5-5. Les stations les plus côtières (MTRous, MT17 et MT01) présentent des profils de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ rectilignes et quasiment homogènes sur l'ensemble de la colonne sédimentaire. Ces profils ne sont pas exploitables car les activités en $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ne montrent pas de décroissance exponentielle. Des taux de sédimentation trop importants et la présence de sédiments sableux sont probablement les causes des profils observés à ces stations. Les autres profils présentent généralement une couche homogène de sub-surface suivie d'une décroissance exponentielle caractéristique. La couche de mélange, d'une épaisseur de 5 cm environ, reflète l'activité de bioturbation qui tend à homogénéiser la colonne sédimentaire. Par conséquent, les taux de sédimentation ont été déterminés en dessous de cette couche mélangée (Tableau 5-1).

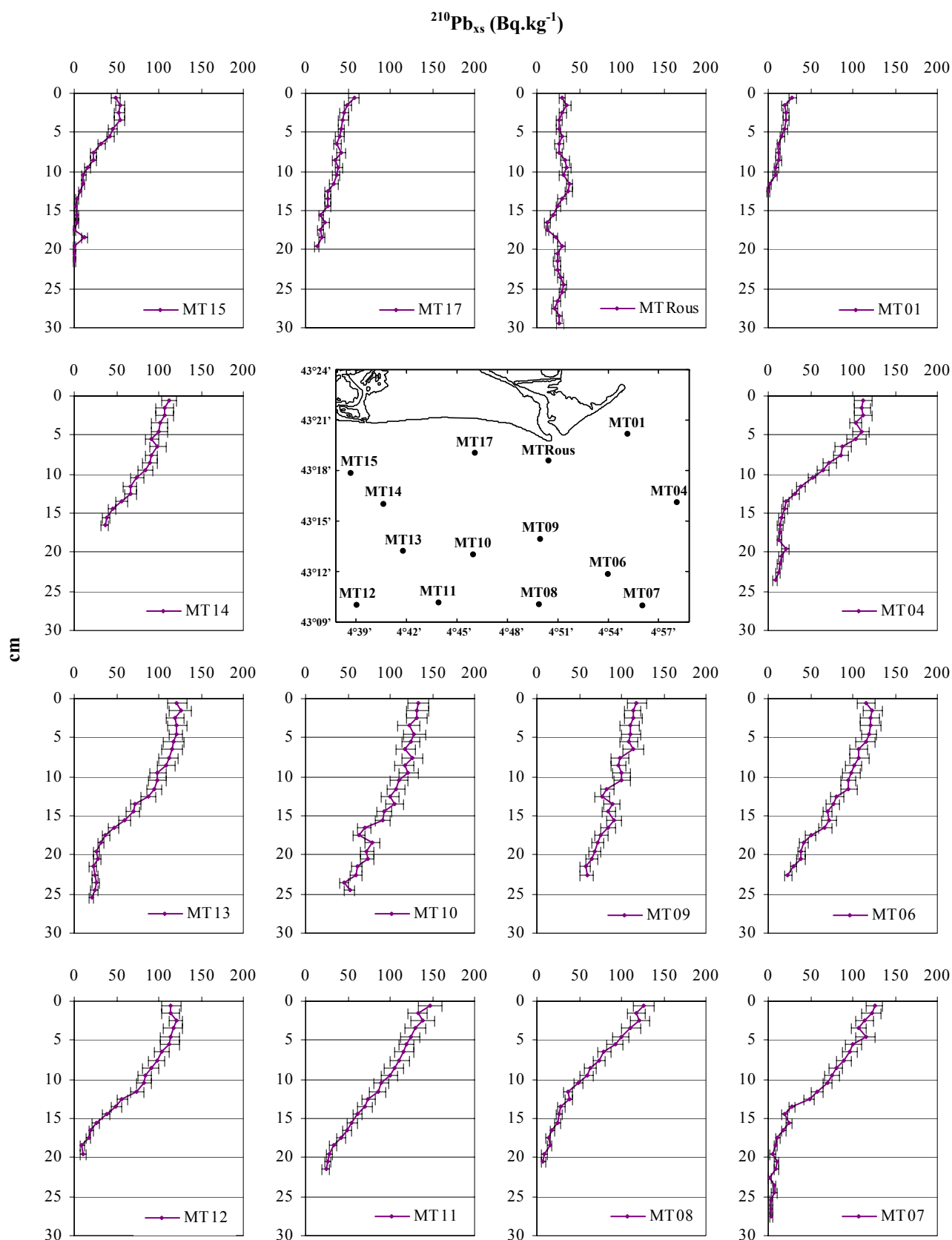


Figure 5-5 : Concentrations en $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ (Bq.kg⁻¹) dans les sédiments face à l'embouchure du Rhône.

Tableau 5-1 : Estimations des taux de sédimentation apparents maximums (S) et des taux de mélange maximums (D) pour certaines stations face à l'embouchure du Rhône en 2001. Comparaison avec les résultats obtenus en 1991 par Radakovitch *et al.* (1999).

2001	Niveau (cm)	S (cm.an ⁻¹)	D (cm ² .an ⁻¹)	1991	Niveau (cm)	S (cm.an ⁻¹)	D (cm ² .an ⁻¹)
MT04	0-5	nd	nd	BF2	0-23	0,36	4,80
	5-17	0,15	0,76				
	17-24	nd	nd				
MT06	0-5	nd	nd	BF4	0-3	nd	nd
	5-17	0,60	11,67		3-17	0,26	3,10
	17-23	nd	nd				
MT07	0-11	0,51	8,20	BF3	0-3	nd	nd
	11-23	0,10	0,32		3-17	0,21	0,84
MT08	0-2	nd	nd	BF8	0-3	nd	nd
	2-19	0,22	1,53		3-34	0,29	2,60
MT09	0-10	nd	nd	BF9	0-6	0,75	6,20
	10-23	0,63	12,82		6-32	0,54	10,10
MT10	0-10	nd	nd	BF13	0-34	0,42	5,40
	10-23	0,59	11,02				
MT11	0-11	0,67	14,52				
	11-22	0,10	0,32				
MT12	0-5	nd	nd				
	5-11	0,46	6,78				
	11-20	0,11	0,42				
MT13	0-4	nd	nd				
	4-13	0,75	18,01				
	13-20	0,17	0,98				
MT14	0-10	0,98	30,66	BF10	0-36	0,65	12,70
	10-17	0,24	1,81				
MT15	0-4	nd	nd	BF11	0-7	2,60	41,60
	4-13	0,14	0,59		7-27	0,25	2,50

nd : non déterminé

Pour le domaine distal, les taux de sédimentation sont inférieurs à 1 cm.a⁻¹. Compte tenu de la sensibilité de la méthode du ²¹⁰Pb_{xs}, les taux de sédimentation déterminés en 2001 sont en accord avec les résultats de 1991. Par ailleurs, le taux de mélange traduit d'une certaine manière les effets de la bioturbation dans la colonne sédimentaire mais aucune tendance significative n'apparaît.

Nos résultats confirment donc les forts gradients des taux de sédimentation entre le domaine distal (<1cm.an⁻¹) et le domaine prodeltaïque (>30cm.an⁻¹). En fonction de leur profondeur et de leur orientation, les sédiments situés face à l'embouchure du Rhône présentent des dynamiques très différentes. Par conséquent, une tranche de sédiment de 1 cm prélevée à l'embouchure intégrera une période de sédimentation de l'ordre du mois alors qu'une strate identique échantillonnée plus au large pourra représenter plusieurs années de sédimentation.

5.2. Distribution du plutonium dans les sédiments face à l'embouchure du Rhône

L'étude de la distribution du plutonium présente un intérêt radioécologique certain mais également un intérêt pour la compréhension de la dynamique sédimentaire du prodelta du Rhône. En effet, les isotopes du plutonium seront utilisés pour tracer la dispersion des rejets de Marcoule mais également pour suivre le devenir des apports solides du Rhône sur le golfe du Lion.

5.2.1. Variations temporelles du plutonium à proximité de l'embouchure

Dans la littérature, les données de plutonium pour le prodelta du Rhône sont peu nombreuses. Cependant, depuis 1982 une série de 9 mesures permet de mettre en évidence une tendance générale sur les vingt dernières années (Tableau 5-2).

Tableau 5-2 : Inventaire des mesures de plutonium réalisées à proximité de l'embouchure du Rhône sur la période 1982-2001.

Date	Carotte	Lat. (°N)	Long. (°E)	Prof. (m)	Niveau (cm)	²³⁸ Pu		^{239,240} Pu		²³⁸ Pu/ ^{239,240} Pu		Référence
						Bq.kg ⁻¹	±	Bq.kg ⁻¹	±		±	
1982	D82	43°19'2	4°52'1	32	0-0,2	1,27	0,16	5,74	0,33	0,22	0,03	(Noël, 1996)
1984	D49	43°18	4,52	25	0-2	0,92	0,03	4,25	0,07	0,22	0,01	(Martin et Thomas, 1990)
1988	MA6	43°17'0	4°51'0	65	0-0,5	0,96	0,11	3,56	0,25	0,27	0,04	(Noël, 1996)
1989	89K04	43°18'8	4°51'5	33	0-3	0,84	0,12	4,28	0,41	0,20	0,03	(Noël, 1996)
1990	BC2A	43°19'	4°51'	44	0-0,5	0,70	0,06	2,18	0,13	0,32	0,03	(Noël, 1996)
1990	BFRous	43°19'0	4°50'1	30	0-1	0,96	0,07	2,41	0,10	0,40	0,03	(Charmasson, 1995)
1991	KLRous	43°18'5	4°51'0	30	0-10	0,32	0,02	1,17	0,07	0,27	0,02	Cette étude
2001	KBRous	43°18'5	4°51'0	43	0-10	0,04	0,01	0,26	0,01	0,14	0,01	Cette étude
2001	MTRous	43°18'6	4°50'5	38	0-1	0,05	0,01	0,30	0,01	0,16	0,01	Cette étude

Malgré des différences de localisation, de méthodes de prélèvement et d'analyses, ces résultats traduisent néanmoins l'évolution temporelle du Pu dans les sédiments de l'embouchure du Rhône. De 1982 à 2001, les activités de surface ont significativement diminuées (Figure 5-6). Les activités en ²³⁸Pu et ^{239,240}Pu sont passées respectivement de 1,2 à 0,05 Bq.kg⁻¹ et de 6 à 0,3 Bq.kg⁻¹, soit une diminution d'un facteur 20. Cette tendance s'accélère dès 1991 suite à la diminution des rejets du

complexe de Marcoule et probablement depuis l'arrêt du retraitement en 1997. A notre connaissance, il n'y aurait pas eu de mesure de plutonium entre 1991 et 2001.

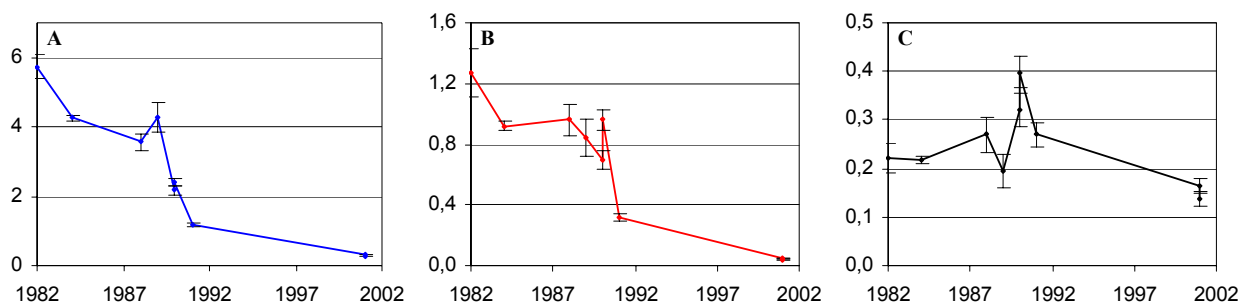


Figure 5-6 : Evolution temporelle des activités en $^{239,240}\text{Pu}$ (A), ^{238}Pu (B) (Bq.kg^{-1}) et du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ (C) dans les sédiments de surface à proximité de l'embouchure du Rhône entre 1982 et 2001.

Si avec le temps, les activités de surface ont nettement diminué, cela ne signifie pas pour autant que le plutonium n'est plus présent dans les sédiments. En effet, le devenir du plutonium est principalement gouverné par la dynamique sédimentaire avec deux phénomènes antagonistes : la sédimentation et la remise en suspension. D'un côté, l'accumulation sédimentaire favorise l'enfouissement du plutonium et de l'autre la remise en suspension assure la dispersion du Pu par la translocation des sédiments contaminés. Dans un premier temps, nous testerons l'hypothèse de l'enfouissement du plutonium en étudiant la distribution verticale du Pu dans la colonne sédimentaire du prodelta du Rhône. Puis, nous discuterons de la distribution spatiale du Pu dans les sédiments de surface de la zone étudiée. Enfin, nous essayerons d'estimer un stock de plutonium pour l'ensemble de la zone étudiée. L'hypothèse d'une dispersion du Pu liée à la remise en suspension des sédiments de surface sera abordée dans les chapitres suivants.

5.2.2. Distribution verticale du plutonium dans le domaine prodeltaïque

En raison de sa dynamique, le domaine prodeltaïque est particulièrement difficile à étudier. En effet, l'importance des taux de sédimentation favorise l'accrétion et la progradation du prodelta du Rhône. A l'opposé, des phénomènes de remise en suspension, d'effondrement, de chasse... viennent contrebalancer l'accumulation sédimentaire. La distribution du plutonium dans la colonne sédimentaire permet alors d'appréhender d'une manière indirecte la dynamique sédimentaire sur le long terme. Dans ce but et pour tester l'hypothèse de l'enfouissement du plutonium, deux carottes Kullenberg ont été prélevées en mars 1991 et novembre 2001 à la station Roustan (Tableau 5-3).

Tableau 5-3 : Caractéristiques des carottes Kullenberg prélevées à la station Roustan en 1991 et 2001.

Date	Carotte	Lat. (°N)	Long. (°E)	Prof. (m)	Hauteur (cm)
16/03/1991	KL Rous	43°18'51	4°51'02	30	450
12/11/2001	KBRous	43°18'48	4°50'96	43	473

Les profils de ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ et de ^{137}Cs réalisés en 1991 et 2001 sont présentés ci dessous.

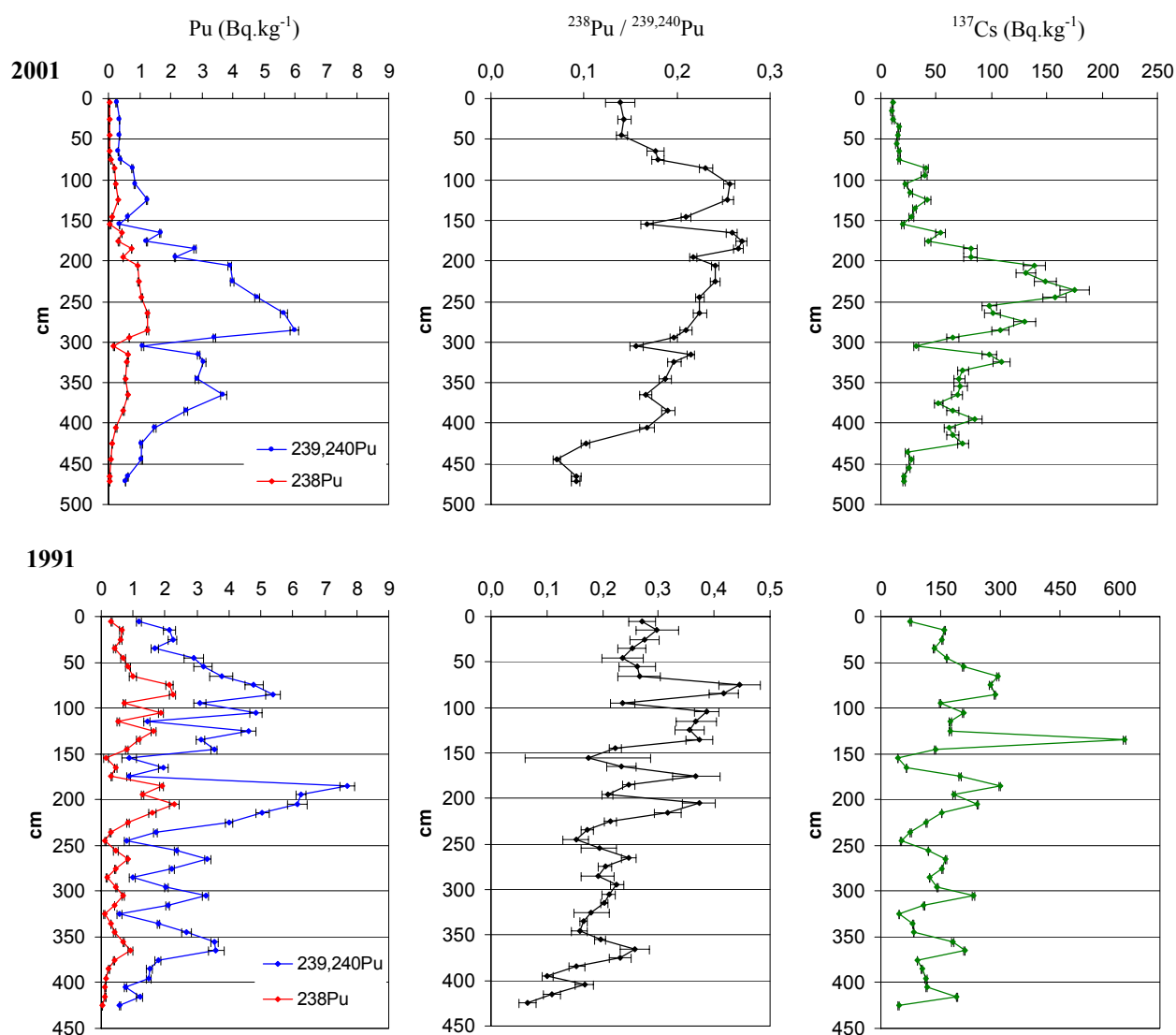


Figure 5-7 : Profils des activités en ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{137}Cs et du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ dans les carottes Kullenberg prélevées à Roustan en 1991 et 2001.

L'interprétation et la comparaison des différents profils sont rendues difficiles par plusieurs points. Tout d'abord, les carottes Kullenberg ne reflètent vraisemblablement pas un processus de sédimentation continu, vu le caractère impulsif des apports solides du Rhône mais également des crues et des tempêtes. De plus, la hauteur des carottes ne permet pas une discrétisation fine de la colonne sédimentaire. La résolution des profils est de 10 cm et chaque point intègre une période de sédimentation qui peut être très contrastée (de quelques semaines à plusieurs mois). Par ailleurs, tous les niveaux de la carotte KBRous 2001 n'ont pas pu être analysés (31 niveaux mesurés sur 48). Il est donc possible qu'un pic observé en 1991 soit complètement dilué et masqué en 2001 et vice versa. Enfin, l'importance des taux de sédimentation et l'absence de mesures de plutonium sur une période de plus de 10 années rendent incertaine la comparaison des profils.

✓ *Distribution des isotopes du plutonium*

En 2001, la tendance la plus remarquable sur les profils de Pu concerne la diminution des activités dans les sédiments de surface. En effet, la colonne sédimentaire est caractérisée jusqu'à 150 cm de profondeur par des niveaux d'activités relativement faibles et inférieurs à $0,3 \text{ Bq.kg}^{-1}$ en ^{238}Pu et à $1,2 \text{ Bq.kg}^{-1}$ en $^{239,240}\text{Pu}$. Conformément à l'historique des rejets de Marcoule, cette baisse des activités sédimentaires est la conséquence directe des diminutions des rejets depuis 1991 et de l'arrêt du retraitement du combustible en 1997. En dessous de 150 cm, les activités augmentent rapidement pour atteindre des valeurs maximums de $1,3 \text{ Bq.kg}^{-1}$ en ^{238}Pu et 6 Bq.kg^{-1} en $^{239,240}\text{Pu}$ à 280 m de profondeur. A l'exception de la strate 305 cm, les activités restent élevées jusqu'à 400 cm puis elles diminuent progressivement avec la profondeur. Si on intègre les activités sur la verticale, on constate que plus de 90 % du plutonium se trouve en dessous de 1,5 m de profondeur. Depuis la diminution des rejets de Marcoule, l'accumulation de sédiments récents recouvre des strates sédimentaires plus anciennes et plus contaminées. Ces résultats permettent alors de confirmer l'enfouissement d'une quantité significative de plutonium dans le domaine prodeltaïque.

✓ *Evolution du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$*

L'évolution du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ au sein de la colonne sédimentaire reflète également l'historique des rejets du complexe de Marcoule. En effet, le bas de la carotte KBRous 2001 est caractérisé par des RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ compris entre 0,07 et 0,09. Ces rapports d'activité relativement faibles pourraient correspondre à des rejets de plutonium d'origine militaire. Au dessus, le RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ présente une augmentation croissante jusqu'à atteindre une valeur maximum de 0,27, caractéristique des rejets civils de Marcoule. A partir de l'horizon 80-90 cm, le RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ diminue pour tendre vers une valeur de 0,14. Cette évolution du RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ dans les sédiments de surface signe l'arrêt du retraitement du combustible irradié en 1997.

En dehors de cette évolution générale, les horizons 150-160 et 300-310 cm mettent en évidence des diminutions temporaires et épisodiques du RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$. Ces réductions du RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ s'expliquent par une diminution plus marquée des activités en ^{238}Pu qu'en $^{239,240}\text{Pu}$. Seules les périodes de crue, qui favorisent le lessivage du bassin versant, peuvent expliquer ces différences (§ 3.2). En particulier, le RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ de 0,17 pour la strate 150-160 cm pourrait correspondre aux crues d'octobre 1993 et janvier 1994.

En parallèle, l'utilisation du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ permet de calculer pour les différents horizons sédimentaires le pourcentage de plutonium originaire de Marcoule (§ 4.4).

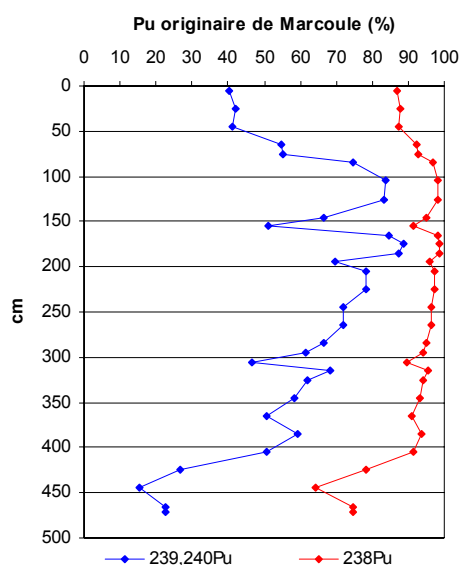


Figure 5-8 : Pourcentages de ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ originaire de Marcoule au sein de la carotte KBRous 2001 calculé d'après l'évolution du rapport $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$.

La Figure 5-8 permet d'attester que plus de 90 % du ^{238}Pu et plus de 60 % du $^{239,240}\text{Pu}$ présents dans la carotte KBRous 2001 sont originaires de Marcoule. Par conséquent, le plutonium séquestré dans le prodelta du Rhône est majoritairement issu des rejets de Marcoule.

✓ **Distribution du ^{137}Cs**

Parmi les émetteurs gamma, le ^{137}Cs est le radionucléide artificiel qui possède les plus fortes activités dans le compartiment sédimentaire (Charmasson *et al.*, 1998). La présence du ^{137}Cs s'explique par une abondance relative dans les rejets de Marcoule, une forte affinité pour les particules et une période radioactive suffisamment longue (30,2 ans) pour persister plusieurs années. L'évolution des activités en ^{137}Cs présente dans l'ensemble les mêmes tendances que celles des isotopes du Pu. En surface, les activités sont actuellement de 10 Bq.kg^{-1} alors qu'elles étaient d'environ 70 Bq.kg^{-1} en

1991. Comme pour le Pu, les activités les plus élevées en ^{137}Cs sont localisées entre 2 et 4 m de profondeur, attestant également d'un stockage important du ^{137}Cs à l'embouchure du Rhône.

En 1991, Charmasson (1998) mettait en évidence un pic de ^{137}Cs qui pouvait correspondre aux retombées de l'accident de Tchernobyl. Ce pic mesuré sur un niveau de 10 cm n'est pas retrouvé dans les mesures de 2001 car la probabilité d'échantillonner exactement le même niveau à 10 ans d'intervalle est très faible. De ce fait, le signal de 1991 est sans doute "dilué" sur 2 voir 3 niveaux de la carotte KBRous 2001. Cet exemple illustre la complexité pour comparer deux profils sédimentaires à 10 ans d'intervalle dans un système aussi dynamique et complexe que le prodelta du Rhône.

✓ *Distribution granulométrique*

Les analyses granulométriques de la carotte KBRous 2001 sont présentées sur la Figure 5-9. La distribution granulométrique des sédiments est dominée par une forte abondance de silts, entre 55 et 80 %. En parallèle, la fraction sableuse occupe en moyenne 20 % et peut atteindre un maximum de 35 %. Enfin les argiles représentent toujours moins de 20 % des sédiments en place.

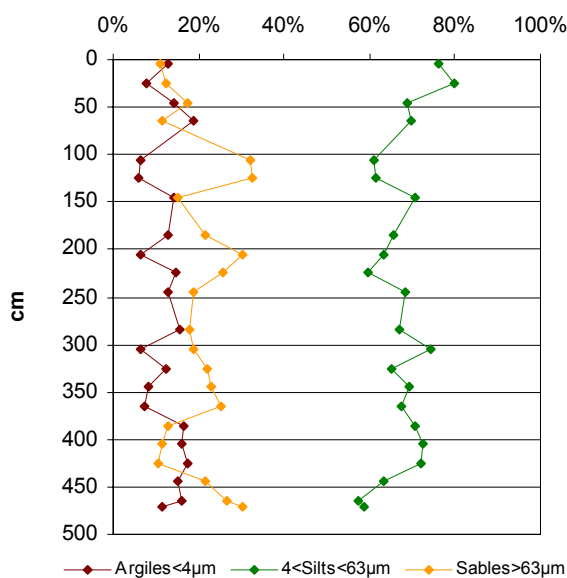


Figure 5-9 : Distribution granulométrique des sédiments de la carotte KBRous 2001.

Aucune corrélation significative entre la taille des particules et les activités en Pu n'a pu être mise en évidence. Le contrôle des concentrations de plutonium par la taille des particules n'est donc pas un facteur prédominant. L'existence d'autres facteurs comme la variabilité temporelle des rejets de Marcoule ou des débits du Rhône sont sans doute plus importants (Charmasson *et al.*, 1998).

5.2.3. Estimation des taux de sédimentation à Roustan

Compte tenu de sa dynamique, il est particulièrement difficile d'estimer avec précision les taux de sédimentation à l'embouchure du Rhône. Jusqu'à présent, les taux de sédimentation au niveau de Roustan étaient déterminés par l'utilisation du rapport d'activité $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$. En effet, ces deux isotopes du césium ont des périodes radioactives bien différentes (^{137}Cs : 30,2 ans ; ^{134}Cs : 2,1 ans) et l'évolution temporelle de leur rapport d'activité constitue un géochronomètre de choix pour l'estimation des taux de sédimentation (Aston et Stanners, 1979 ; Stanners et Aston, 1981, 1984).

En utilisant le rapport spécifique de l'accident de Tchernobyl, Calmet et Fernandez (1990) estiment pour le prodelta du Rhône un taux de sédimentation apparent pouvant atteindre 35 cm.a^{-1} en 1986. Ces estimations sont confirmées par Charmasson *et al.* (1998) qui donnent des valeurs comprises entre 37 et 48 cm.a^{-1} . En 2001, suite à la diminution des rejets de Marcoule et compte tenu de sa période radioactive, les activités en ^{134}Cs sont quasiment toutes inférieures à la limite de détection. Le géochronomètre formé par le rapport d'activité $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$ n'est donc plus utilisable.

En l'absence d'un géochronomètre performant, les mesures de plutonium peuvent fournir des informations intéressantes sur les taux de sédimentation moyens. Pour cela, nous avons essayé de comparer l'enregistrement sédimentaire à Roustan par rapport à l'historique des rejets de Marcoule. Cette approche permet en particulier d'estimer la représentativité de l'inventaire en Pu et d'une manière indirecte d'appréhender la chronologie des dépôts. La meilleure corrélation entre la distribution du $^{239,240}\text{Pu}$ dans la carotte KBRous 2001 et l'historique des rejets en $^{239,240}\text{Pu}$ de Marcoule est obtenue en faisant l'hypothèse d'un taux de sédimentation moyen et constant de 17 cm.a^{-1} pour les quarante dernières années (Figure 5-10).

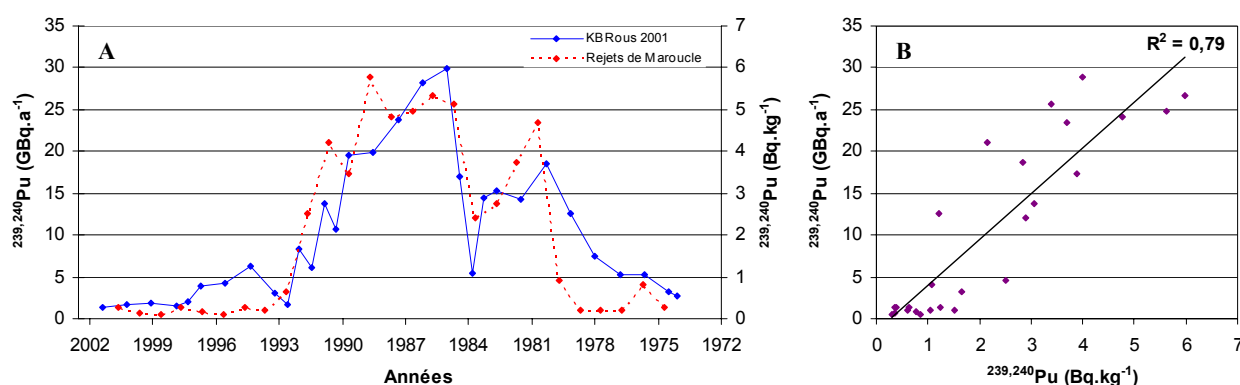


Figure 5-10 : Comparaison entre le profil des activités en $^{239,240}\text{Pu}$ de la carotte KBRous 2001 et l'historique des rejets annuels de $^{239,240}\text{Pu}$ par l'usine de Marcoule. Cette comparaison est effectuée en supposant un taux de sédimentation moyen de 17 cm.a^{-1} (A). Régression linéaire entre les activités en $^{239,240}\text{Pu}$ de la carotte KBRous 2001 et les rejets de $^{239,240}\text{Pu}$ de Marcoule (n=26), (B).

L'ajustement de la droite de régression par la méthode des moindres carrés donne un coefficient de détermination de 0,79 et une corrélation significative ($p < 0,05$). Les rejets de Marcoule en $^{239,240}\text{Pu}$ expliquent donc 79 % de la variance des activités en $^{239,240}\text{Pu}$ dans la carotte KBRous 2001. Il existe par conséquent une relation entre les activités rejetées par Marcoule dans le Rhône et les activités enregistrées par les sédiments à Roustan. Ces résultats permettent alors d'attester que les sédiments à l'embouchure du Rhône préservent un enregistrement intégrant dans le temps les variations des rejets du complexe de Marcoule. Par ailleurs, d'après cette comparaison, la carotte KBRous 2001 intégrerait les 27 dernières années de sédimentation puisque la strate 460-470 cm correspondrait à des sédiments déposés aux environs de 1974.

Le même essai d'ajustement a été entrepris entre le profil du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ de la carotte KBRous 2001 et l'historique du rapport d'activité moyen $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ des matières en suspension du bas Rhône (§ 3.2.). En imposant de nouveau un taux de sédimentation moyen de 17 cm.an^{-1} , on obtient les résultats de la Figure 5-11.

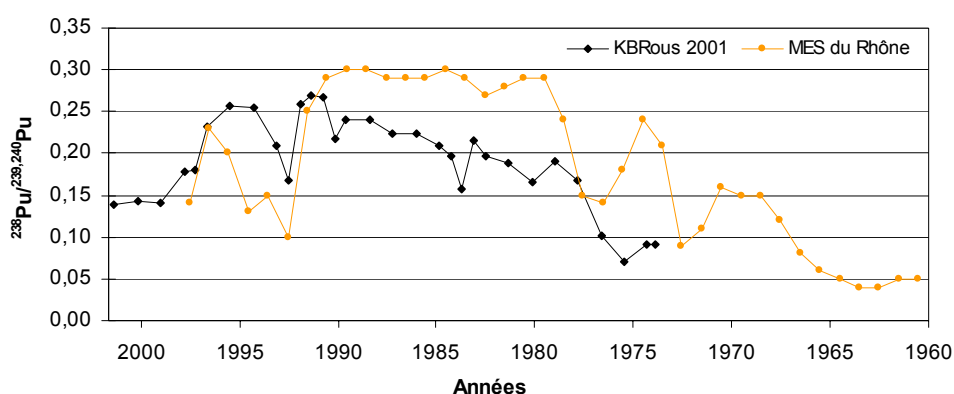


Figure 5-11 : Comparaison entre l'évolution du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ dans la carotte KBRous 2001 et celle du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ moyen des matières en suspension du bas Rhône, d'après Duffa (2001), en supposant un taux de sédimentation moyen de 17 cm.a^{-1} .

Dans ce second cas, aucune corrélation significative n'a pu être mise en évidence. Toutefois, deux points forts ressortent de cette comparaison. D'une part, le signal des crues de 1993-1994, caractérisé par une diminution brutale du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ dans les MES du Rhône (0,10), est retrouvé en phase avec une diminution du RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ (0,17) dans la colonne sédimentaire. D'autre part, la diminution du RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ dans les MES avant 1979 se retrouve également dans la colonne sédimentaire. Cette comparaison renforce les résultats précédents sur le fait que la carotte KBRous 2001 couvre approximativement les 30 dernières années.

Ces deux essais de recalage montrent qu'en l'absence d'un géochronomètre fiable, il est tout de même possible d'identifier des événements clefs pour retracer l'historique des dépôts. En posant l'hypothèse simple d'un taux de sédimentation moyen constant de 17 cm.a^{-1} sur les 40 dernières années, il semble que de nombreuses données concordent même s'il est difficile de se prononcer catégoriquement sur l'exactitude de cette démarche. Ce taux de sédimentation moyen, déterminé pour la carotte KBRous 2001, est toutefois inférieur aux précédentes estimations faites pour la zone du prodelta du Rhône. Ce résultat pourrait s'expliquer par :

- des différences de localisation et de bathymétrie entre les carottes ayant servi aux différentes estimations
- des phénomènes de compaction qu'il est difficile d'apprécier
- des phénomènes de chasse importants, comme en 1993-1994 où les crues auraient érodées plus de 40 cm de sédiment sur des fonds de 20-30 m de profondeur (Charmasson, communication personnelle).

5.2.4. Variabilité spatiale du plutonium dans les sédiments de surface

Dans le but d'étudier la remobilisation du plutonium, notre intérêt s'est porté dans un premier temps sur la distribution du plutonium dans les sédiments de surface. Au total, 21 échantillons ont été analysés permettant de caractériser la distribution des isotopes du plutonium (Figure 5-13).

Sur la zone étudiée, les activités de surface varient de 35 à 166 mBq.kg⁻¹ en ²³⁸Pu et de 300 à 1700 mBq.kg⁻¹ en ^{239,240}Pu. La distribution spatiale des isotopes du plutonium diffère légèrement en fonction de l'isotope considéré. Les plus fortes concentrations en ^{239,240}Pu sont localisées au Sud-Ouest du domaine distal. A l'opposé la proche embouchure présente des activités en ^{239,240}Pu relativement faibles de l'ordre de 600 mBq.kg⁻¹. La distribution du ²³⁸Pu se distingue par des activités élevées face à l'embouchure du Rhône. En effet, 2 stations, situées dans le domaine proximal par 20 m de profondeur, présentent des activités de 130 et 166 mBq.kg⁻¹. Par contre, comme pour le ^{239,240}Pu, de fortes activités en ²³⁸Pu sont également retrouvées dans les sédiments de surface localisés au Sud-Ouest du domaine distal. A l'exception des 2 stations du domaine proximal, les activités en ²³⁸Pu et ^{239,240}Pu ont tendance à augmenter avec la distance à l'embouchure (Figure 5-12).

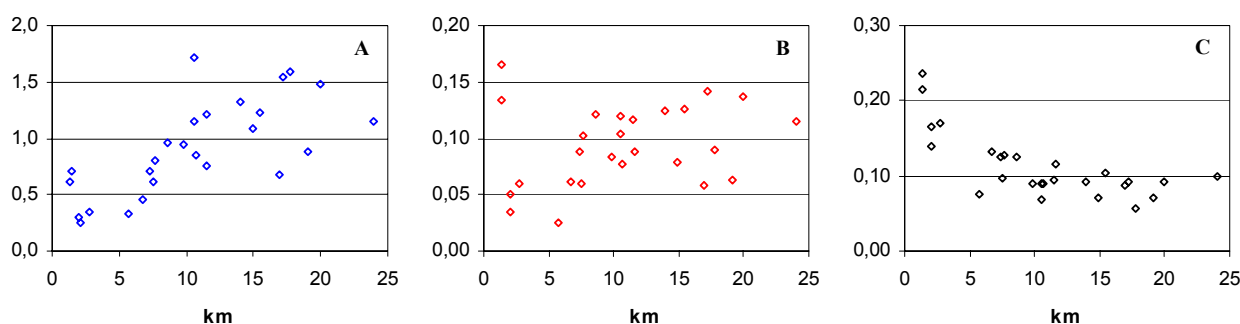


Figure 5-12 : Evolution des activités en ^{239,240}Pu (A), ²³⁸Pu (B) en (Bq.kg⁻¹) et du rapport d'activité ²³⁸Pu/^{239,240}Pu (C) dans les sédiments de surface en fonction de la distance à l'embouchure.

Cette distribution des isotopes du plutonium pourrait s'expliquer, du moins en partie, par la sédimentation différentielle des apports particuliers du Rhône. A proximité de l'embouchure, les particules les plus grossières s'accumulent en masse sous l'effet de la floculation. Par contre, la sédimentation des particules les plus fines sur le domaine distal entraîne l'accumulation du plutonium au niveau des zones de décantation.

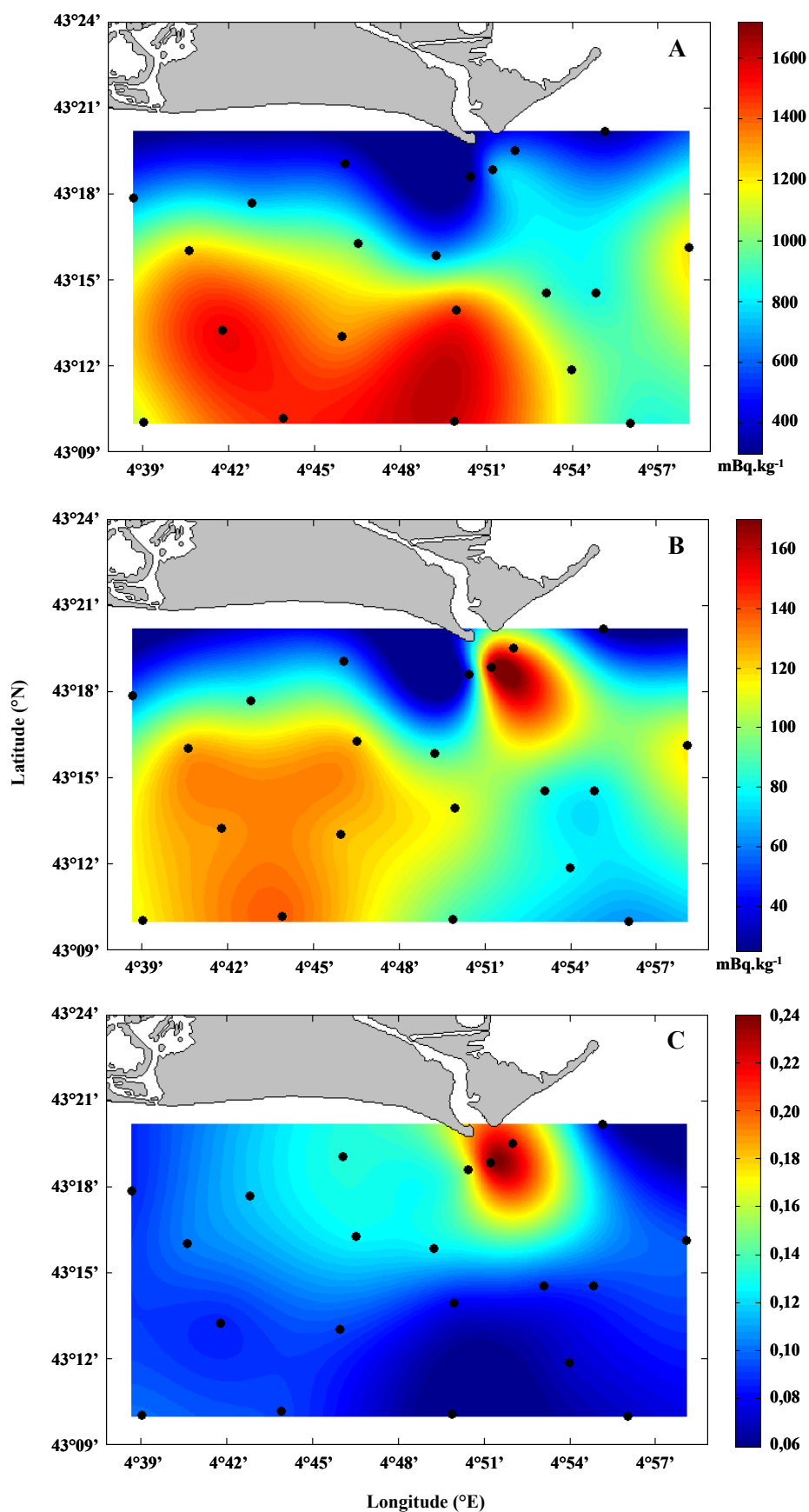


Figure 5-13 : Distribution spatiale des activités en $^{239,240}\text{Pu}$ (A), ^{238}Pu (B) et du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ (C) dans les sédiments de surface face à l'embouchure du Rhône en 2001.

L'utilisation du RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ est plus appropriée que les activités en Pu pour tracer la dynamique sédimentaire (Thomas, 1997). Rappelons que la diminution du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ traduit la dilution des sédiments du Rhône marqués par du Pu de Marcoule avec des sédiments marqués par du Pu issu des retombées atmosphériques (§ 4.4). Les rapports d'activités $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ les plus élevés atteignent 0,24 et sont localisés face à l'embouchure du Rhône (Figure 5-13). Sur l'ensemble des mesures réalisées, seuls certains niveaux de la carotte KBRous 2001 atteignent un rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ aussi élevé. L'influence des rejets de Marcoule se fait donc principalement sentir à l'embouchure du Rhône. Dès que l'on s'éloigne de l'embouchure, le rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ des sédiments de surface décroît selon une fonction exponentielle de 0,24 à 0,06 (Figure 5-13).

Les résultats obtenus sur la distribution du RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ à l'embouchure du Rhône viennent corroborer les résultats obtenus par Martin et Thomas (1990) et Charmasson (1995). En effet, la distribution du RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ ne montre pas de profond bouleversement entre 1984, 1991 et 2001. En 1984, les valeurs maximales, supérieures à 0,2, étaient également localisées à Roustan, puis elles diminuaient rapidement en s'éloignant de l'embouchure pour tendre vers une valeur de 0,06 (§ 3.2). Par contre, il en est tout autrement concernant la distribution des activités de surface. Certes en 1984 et 1991, les données étaient peu nombreuses mais la tendance générale était à la diminution des activités en s'éloignant de l'embouchure du Rhône. En 2001, la tendance est inversée puisque les activités augmentent avec la distance à l'embouchure. Cette inversion peut s'expliquer par l'accumulation récente de sédiments moins contaminés depuis la réduction des rejets de Marcoule et par la translocation des sédiments marqués du domaine proximal vers le domaine distal.

Par ailleurs, si on s'intéresse plus spécifiquement à la dissémination du plutonium issu des rejets de Marcoule, la distribution du RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ révèle la dispersion suivante.

Pour la zone étudiée, le plutonium originaire de Marcoule contribue respectivement de 63 à 97 % du ^{238}Pu et de 12 à 70 % du $^{239,240}\text{Pu}$ mesurés dans les sédiments de surface. Dans les deux cas, l'influence des rejets de Marcoule se fait sentir sur l'ensemble de la zone avec toutefois une influence plus prononcée à l'embouchure du Rhône. La Figure 5-14 met en évidence une structure bilobée qui reflète la dispersion du matériel particulaire rhodanien. Fernandez (1984) a déjà décrit cette structure bilobée en étudiant la distribution du ^{137}Cs . Le ^{238}Pu étant spécifique des apports particuliers du Rhône, nos résultats confirment alors l'existence d'une exportation préférentielle du matériel particulaire en direction du Sud-Ouest et une exportation secondaire vers le Sud-Est.

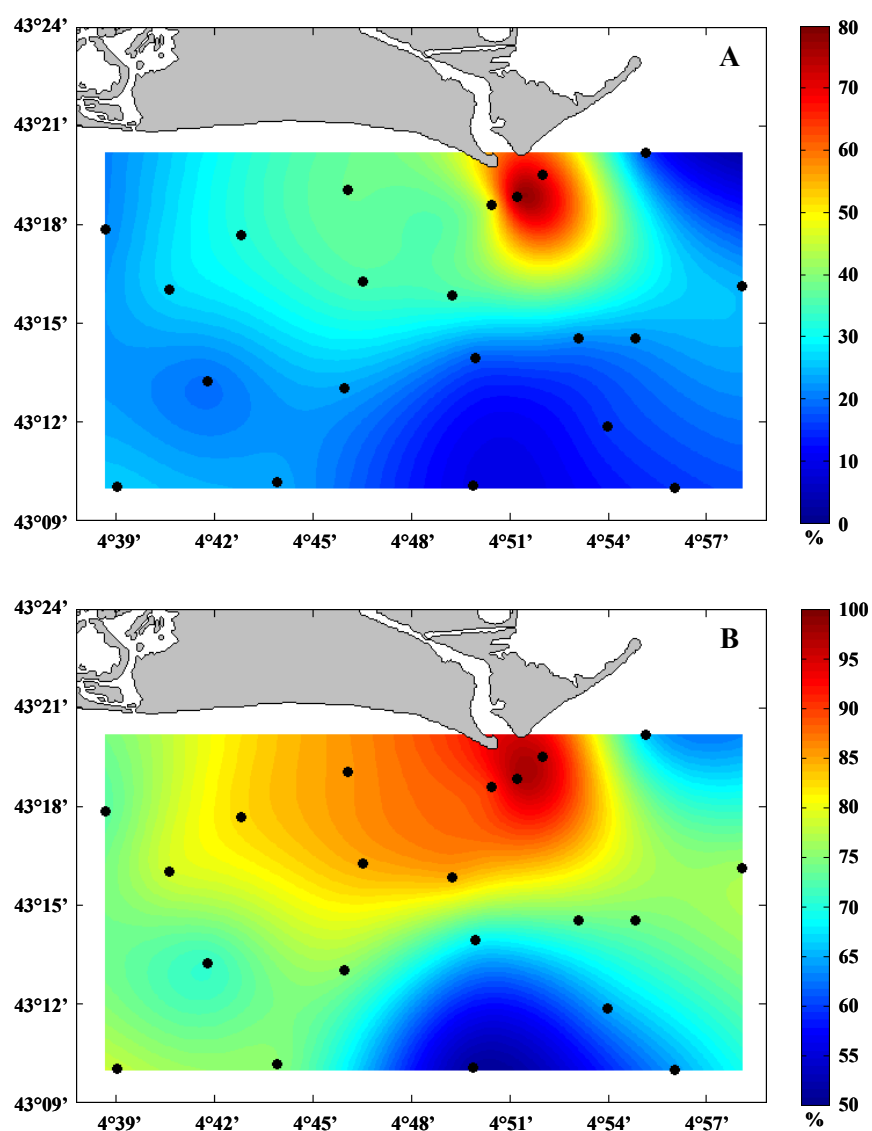


Figure 5-14 : Pourcentages de ^{238}Pu (A) et $^{239,240}\text{Pu}$ (B) originaires de Marcoule dans les sédiments superficiels face à l'embouchure du Rhône.

5.3. Estimation des stocks de plutonium

Un des objectifs de ce travail est d'aboutir à une première estimation des stocks de plutonium contenus dans les sédiments de la zone sous influence directe du Rhône. Cependant, comme le souligne Kershaw *et al.* (1999a), il est particulièrement difficile d'estimer précisément un stock à partir de quelques points de mesure dans un environnement aussi hétérogène que les systèmes côtiers. Le nombre de mesures de Pu réalisées au cours de ce travail est conséquent mais il ne permet pas d'appréhender la distribution tridimensionnelle du plutonium dans le compartiment sédimentaire. Il n'est donc pas envisageable de calculer directement un stock de plutonium sur l'ensemble de la zone étudiée. Pour pallier à ce manque de données, nous nous sommes appuyés sur les résultats des émetteurs gamma et en particulier sur les mesures de ^{137}Cs . En effet, les activités en ^{137}Cs peuvent, dans certaines conditions, servir à estimer les activités en plutonium. Sur la zone étudiée, le césium et les isotopes du plutonium présentent des distributions similaires. Les distributions verticales du ^{137}Cs nous serviront donc de support pour estimer les profils de Pu. Et ces mêmes profils seront ensuite utilisés pour calculer d'une manière indirecte les stocks de plutonium.

5.3.1. Intérêt du ^{137}Cs pour estimer les activités en plutonium

Comparé au plutonium, le ^{137}Cs est un émetteur gamma et il présente donc l'avantage d'être facilement et rapidement détectable. Dans ces conditions, de nombreuses mesures sont envisageables permettant ainsi d'accéder à la distribution tridimensionnelle du ^{137}Cs dans la colonne sédimentaire. Les activités en ^{137}Cs ont été mesurées pour 14 stations réparties sur l'ensemble de la zone sous influence rhodanienne (Figure 5-15).

Les profils de ^{137}Cs présentent pour la plupart un pic de sub-surface situé vers 10-15 cm de profondeur. Depuis la diminution des rejets de Marcoule, l'accumulation de sédiments récents et peu contaminés a entraîné une diminution des activités des sédiments de surface. Comme pour le Pu, la distribution des activités en ^{137}Cs met en évidence deux gradients bien marqués : un premier gradient côte-large et un second gradient Est-Ouest. Selon le premier gradient, les activités en ^{137}Cs augmentent avec la distance à la côte, puisqu'elles varient de 5 Bq.kg⁻¹ aux stations MT01 et MT15 à plus de 20 Bq.kg⁻¹ pour les stations du large. Le gradient Est-Ouest est également bien net et les activités en ^{137}Cs varient du simple au double entre les stations les plus à l'Est et celle les plus à l'Ouest. D'une certaine manière, les deux gradients décrits ci-dessus reflètent la variabilité spatiale des apports rhodaniens.

Par ailleurs, l'épaisseur des sédiments prélevés ne permet pas toujours d'atteindre le bout du signal en ^{137}Cs , c'est-à-dire d'arriver à des niveaux d'activité nuls pour les niveaux les plus profonds. Dans ces cas, il n'est pas possible de calculer un inventaire complet en ^{137}Cs . A titre d'exemple, la profondeur de pénétration du ^{137}Cs est plus importante aux stations MT09 et MT10 que sur les autres stations puisqu'à 25 cm de profondeur les activités sont de 20 Bq.kg⁻¹. Une sédimentation accrue aux niveaux de ces 2 stations est sans doute l'explication de ces observations (§ 5.1).

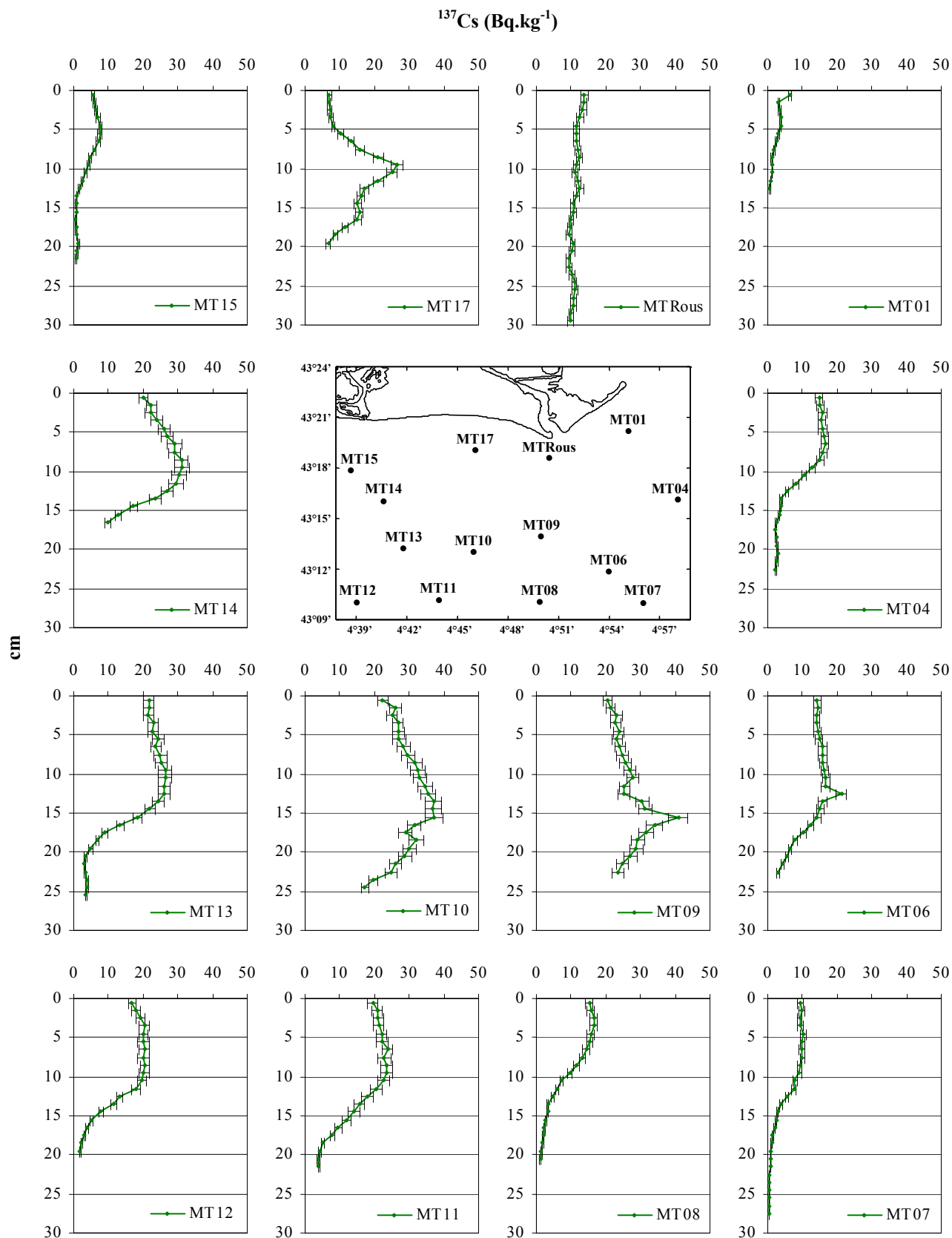


Figure 5-15 : Distribution du ^{137}Cs (Bq.kg^{-1}) dans les sédiments situés face à l'embouchure du Rhône.

5.3.1.1. Corrélations entre le ^{137}Cs et les isotopes du plutonium

Sur l'ensemble des prélèvements de *REMORA 1*, au total 52 échantillons de sédiment ont fait l'objet d'une double analyse en émetteurs gamma et en émetteurs alpha. Ces échantillons regroupent les mesures de Pu dans les sédiments de surface mais également d'autres mesures au sein de la colonne sédimentaire. La Figure 5-16 présente les activités en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ en fonction des activités en ^{137}Cs mesurées pour ces échantillons.

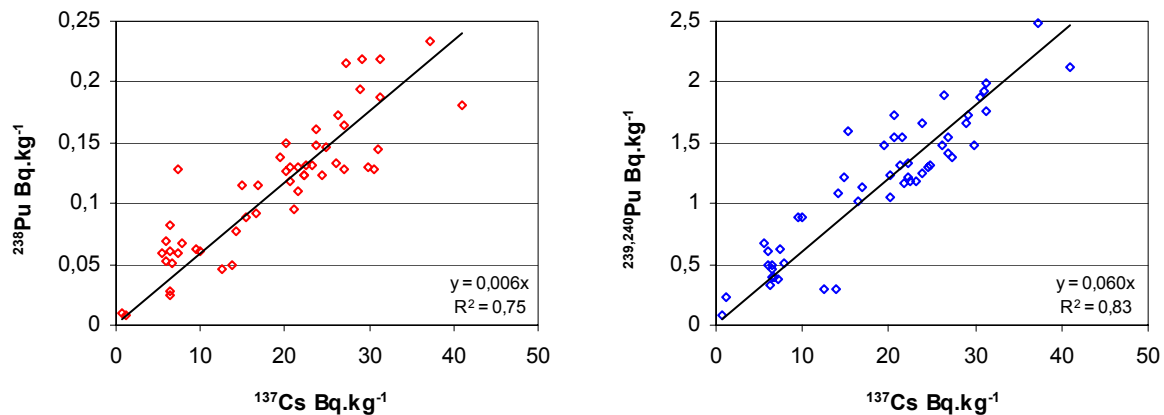


Figure 5-16 : Régressions linéaires entre les activités en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ et les activités en ^{137}Cs mesurées pour les sédiments de *REMORA 1* (n=52).

L'ajustement de la droite de régression par la méthode des moindres carrés donne un coefficient de détermination de 0,75 pour la relation ^{137}Cs - ^{238}Pu et de 0,83 pour la relation ^{137}Cs - $^{239,240}\text{Pu}$ ($p < 0,05$). Les variations des activités en ^{137}Cs permettent donc d'expliquer à elles seules respectivement 75 et 83 % de la variance des activités en ^{238}Pu et en $^{239,240}\text{Pu}$. Par ailleurs, les limites de confiance sur le coefficient directeur de la droite de régression sont de $\pm 6\%$ pour le ^{238}Pu et de $\pm 5\%$ pour le $^{239,240}\text{Pu}$, ($p < 0,05$) (Dagnelie, 1998).

D'après les mesures de ^{137}Cs et les corrélations obtenues ci-dessus, il est alors possible de calculer les concentrations en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ pour 14 stations de la zone échantillonnée (Figures 5-17 et 5-18). Dans la plupart des cas, les activités en Pu calculées permettent de reproduire fidèlement les mesures effectuées. L'erreur moyenne obtenue entre les activités estimées et les activités mesurées est de $\pm 20\%$.

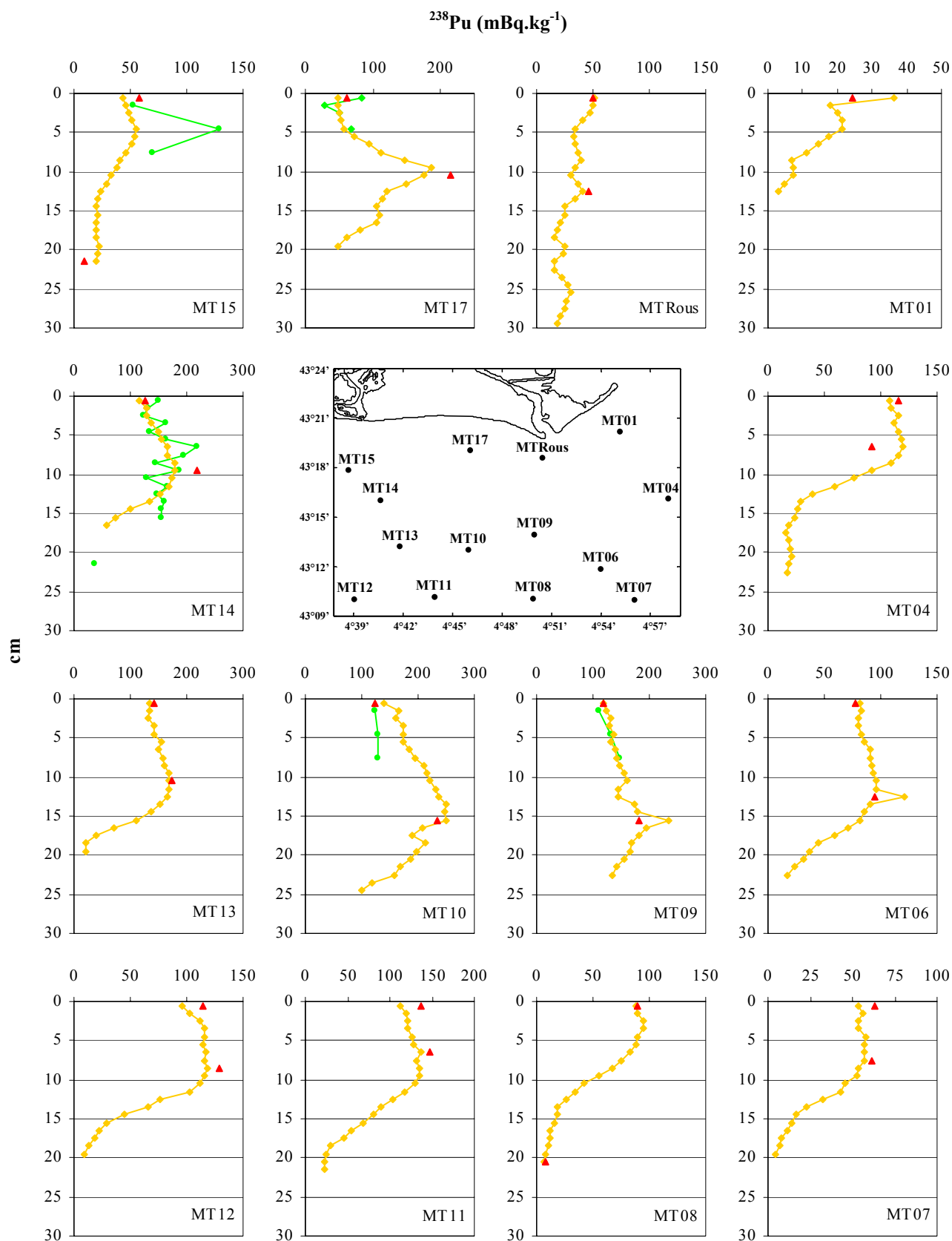


Figure 5-17 : Comparaison entre les profils de ^{238}Pu calculés, d'après les mesures en ^{137}Cs et la relation ^{137}Cs - ^{238}Pu (en orange), nos mesures de ^{238}Pu (en rouge) et celles du CIEMAT (en vert).

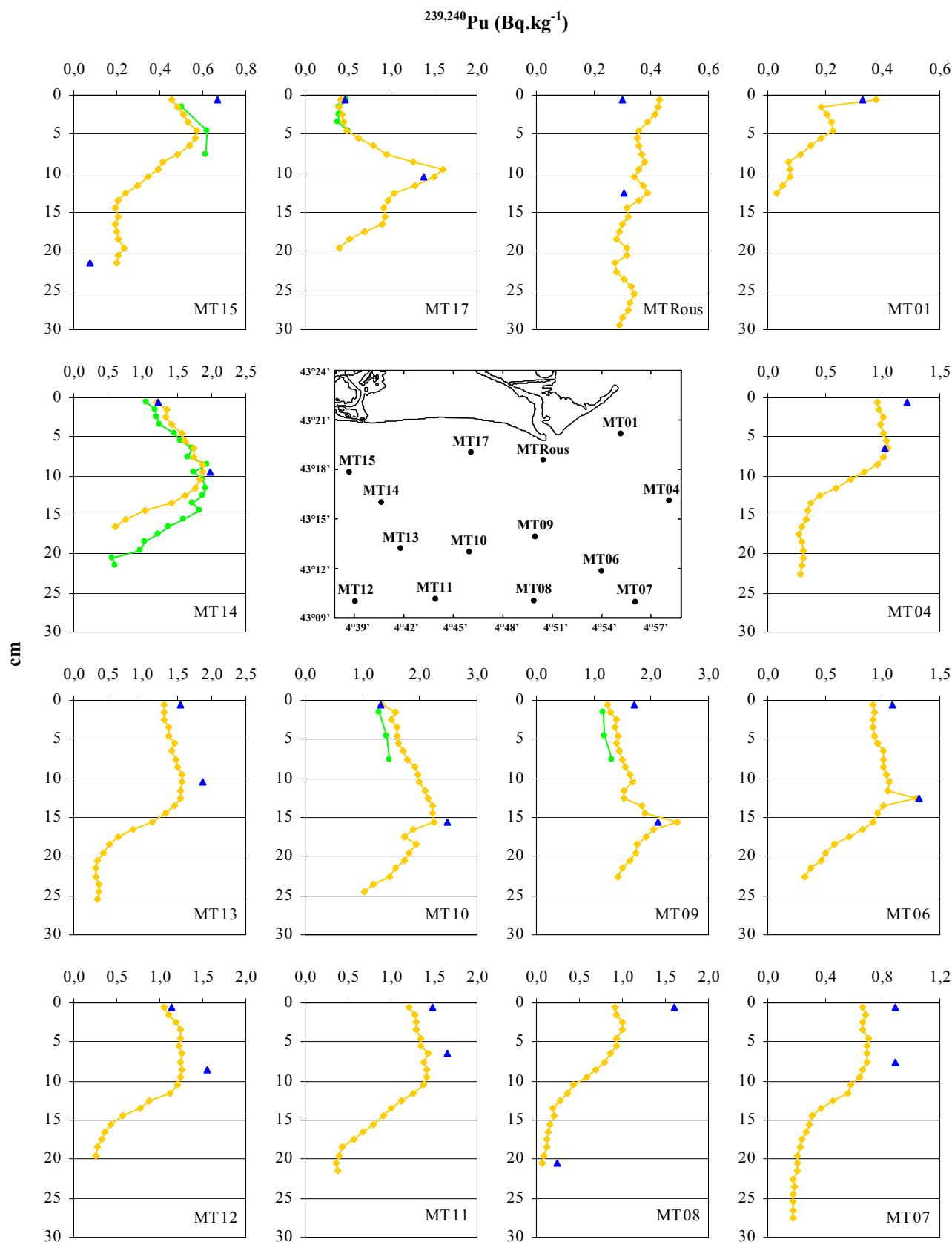


Figure 5-18 : Comparaison entre les profils de $^{239,240}\text{Pu}$ calculés, d'après les mesures en ^{137}Cs et la relation ^{137}Cs - $^{239,240}\text{Pu}$ (en orange), nos mesures de $^{239,240}\text{Pu}$ (en bleu) et celles du CIEMAT (en vert).

5.3.1.2. Remarques sur l'utilisation de cette méthode

Sur la zone étudiée, les distributions du césium et du plutonium présentent de grandes similitudes et plusieurs facteurs peuvent expliquer les corrélations obtenues. Tout d'abord, les deux radionucléides sont principalement issus d'une seule et même source, liée aux rejets de l'usine de Marcoule. En effet, les droites de régression ne passeraient pas par l'origine si le césium et le plutonium provenaient de différentes sources, caractérisées chacune par leurs propres rapports d'activité $^{137}\text{Cs}/^{238}\text{Pu}$ et $^{137}\text{Cs}/^{239,240}\text{Pu}$ (Mackenzie *et al.*, 1987). Ces corrélations s'expliquent également par la dynamique sédimentaire à l'embouchure du Rhône qui force et limite la dispersion des radionucléides véhiculés par le Rhône. En effet, ces corrélations sont significatives pour la zone située face à l'embouchure du Rhône en raison de la proximité de la source principale de Cs et Pu, mais elles ne sont sans doute plus vraies pour des stations plus au large. Leur utilisation se limitera donc au domaine de variation de notre zone d'étude et ne pourra pas s'appliquer en dehors. Il est cependant surprenant d'observer de telles ressemblances pour deux radionucléides comme le césium et le plutonium qui ont des comportements physico-chimiques très différents (Hetherington *et al.*, 1975). Contrairement au plutonium, plusieurs études ont montré que le ^{137}Cs est un élément mobile au sein de la colonne sédimentaire (Livingston et Bowen, 1979 ; Sholkovitz *et al.*, 1983) et qu'il est sujet à une importante remobilisation (Cook *et al.*, 1997 ; Oughton *et al.*, 1997). Si une fraction du ^{137}Cs particulière est susceptible de se désorber facilement, une autre fraction reste néanmoins irréversiblement liée aux particules. Au même titre que le plutonium, le ^{137}Cs constitue donc un bon traceur de la dynamique des apports solides du Rhône (Calmet et Fernandez, 1990 ; Fernandez *et al.*, 1991).

En mer d'Irlande, d'excellentes corrélations sont également retrouvées entre le ^{137}Cs et les isotopes du plutonium pour les sédiments situés à proximité des rejets de Sellafield (Mackenzie *et al.*, 1987). Par contre, la qualité des corrélations diminue lorsque la distance à l'émissaire augmente. Cette diminution s'explique par une contribution relative plus importante du Cs et du Pu issus des retombées atmosphériques.

Toujours en mer d'Irlande, Jones *et al.* (1999) ont déjà testé la méthode d'estimation des inventaires en plutonium en se basant sur les corrélations entre l' ^{241}Am et les isotopes du plutonium. Dans notre cas, seules les activités en ^{137}Cs présentent une corrélation significative avec les isotopes du plutonium. Connaissant les limites de cette méthode et à défaut d'une meilleure solution, nous avons utilisé les relations Cs-Pu pour estimer les inventaires de plutonium.

5.3.2. Calculs des inventaires en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$

Pour une carotte donnée, l'inventaire en plutonium permet d'exprimer une activité en Pu par unité de surface (Bq.m^{-2}). Les inventaires ont été calculés en intégrant sur la verticale les profils de plutonium obtenus par les relations Cs-Pu (Figures 5-17 et 5-18) et en utilisant l'équation 5-4.

$$I = \frac{\sum_{i=1}^n A_i \times m_i}{S} \quad \text{Équation 5-4}$$

Avec : A_i : activité de l'échantillon i (Bq.kg^{-1})

m_i : masse de l'échantillon i (kg)

S : surface échantillonnée (m^2)

Les inventaires sont calculés sur la totalité de la colonne sédimentaire échantillonnée. Par conséquent, si la carotte prélevée n'intègre pas la totalité du signal alors l'inventaire en Pu sera sous-estimé. A l'exception de la station MTRous située près de l'embouchure du Rhône, les inventaires en plutonium des autres stations sont donnés dans le tableau 5-4.

Tableau 5-4 : Estimation des inventaires en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ (Bq.m^{-2}) calculés d'après les profils de ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ obtenus par les relations Cs-Pu. L'incertitude associée aux calculs des inventaires est estimée à $\pm 20\%$

	M01	MT04	MT06	MT07	MT08	MT09	MT10	MT11	MT12	MT13	MT14	MT15	MT17
^{238}Pu	2,4	13,3	16,4	6,7	10,2	32,0	36,0	17,6	13,6	21,7	26,5	8,8	25,8
$^{239,240}\text{Pu}$	24,8	134,2	188,9	103,8	107,5	336,1	378,2	195,7	155,7	240,0	278,5	90,6	220,3

Dans le domaine distal, les inventaires en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ varient respectivement de 2 à 36 Bq.m^{-2} et de 25 à 378 Bq.m^{-2} . D'un côté, les stations côtières MT01 et MT15 présentent les inventaires les plus faibles. De l'autre, les stations MT09 et MT10 situées au Sud Sud-Ouest de l'embouchure du Rhône possèdent les inventaires les plus élevés.

Par ailleurs, l'inventaire représentatif du domaine prodeltaïque a été calculé à partir des mesures effectuées sur la carotte KBRous 2001. Même si tous les échantillons n'ont pas pu être analysés, nous disposons de suffisamment de mesures pour calculer directement un inventaire. Par défaut, l'activité en Pu des strates non mesurées a été fixée à l'activité moyenne des niveaux adjacents. Dans ces conditions, la précision sur l'inventaire a été estimée à $\pm 5\%$. En 2001, les inventaires à Roustan sont

de $2,0 \pm 0,1 \text{ kBq.m}^{-2}$ en ^{238}Pu et de $10,0 \pm 0,5 \text{ kBq.m}^{-2}$ en $^{239,240}\text{Pu}$. Ces inventaires sont minimum puisque la carotte KBrous 2001 n'était pas suffisamment longue pour atteindre le bout du signal en Pu.

Les résultats des inventaires ont été interpolés en vue d'estimer les stocks de plutonium. Dans ce but, nous avons testé les différentes méthodes d'interpolation proposées par le logiciel Surfer®. Sur 9 méthodes d'interpolation, seules 3 méthodes (Krigage linéaire, Inverse distance to a power, Radial basis function) donnent une représentation satisfaisante des inventaires en plutonium. Les représentations graphiques obtenues avec une interpolation par krigage à variogramme linéaire sont présentées sur les Figures 5-19 et 5-20. Ces représentations graphiques (2D+1D) permettent d'appréhender la distribution tridimensionnelle du plutonium dans les sédiments face à l'embouchure du Rhône.

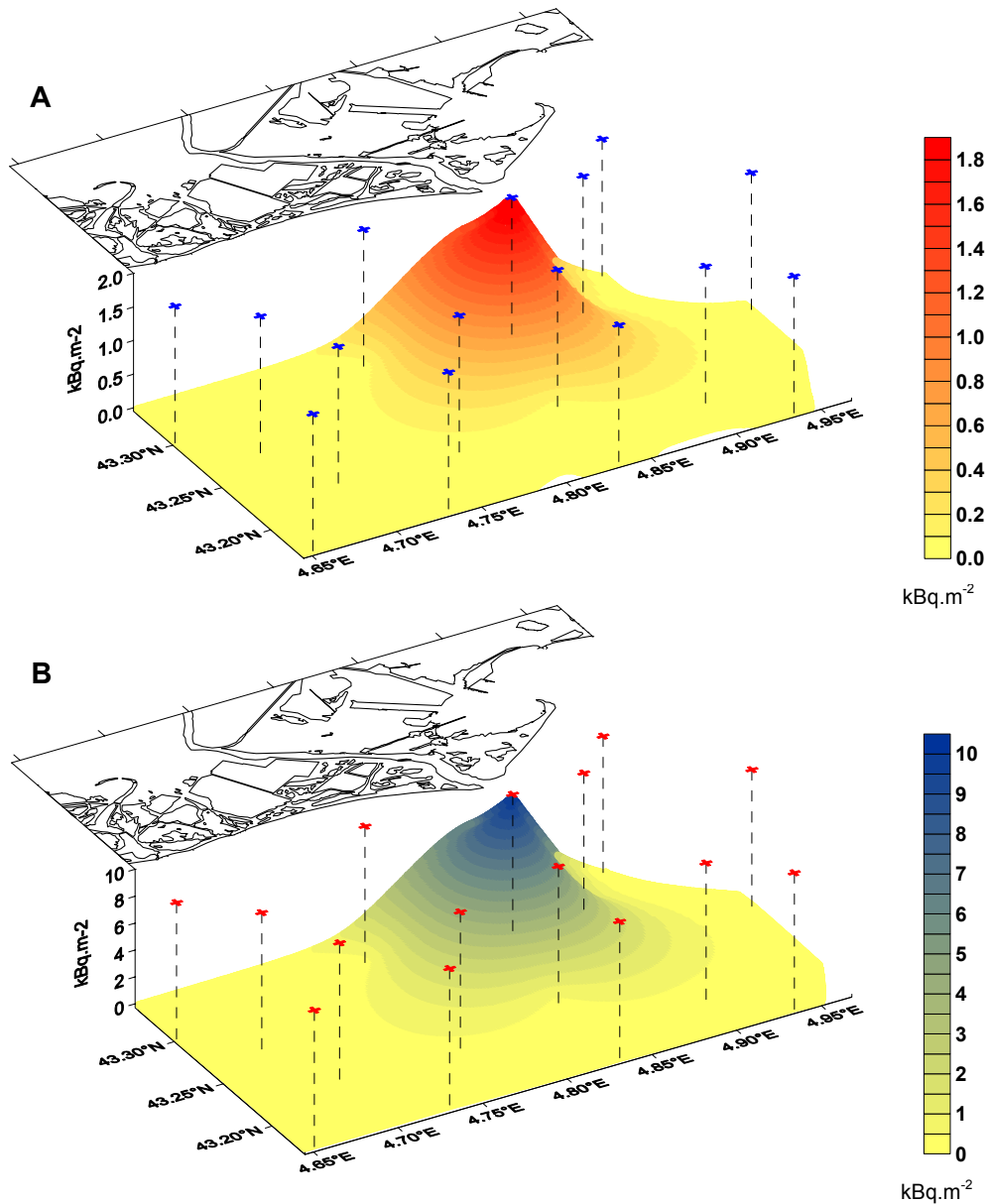


Figure 5-19 : Représentation tridimensionnelle des inventaires en ^{238}Pu (A) et $^{239,240}\text{Pu}$ (B) en kBq.m^{-2} dans les sédiments situés face à l'embouchure du Rhône en 2001. La projection des croix indique la localisation des stations prises en compte pour l'interpolation.

Comme pour les taux de sédimentation, les inventaires de la carotte KBRous 2001 contrastent très fortement avec ceux des autres stations. En effet, à proximité de l'embouchure du Rhône, les inventaires en ^{238}Pu et en $^{239,240}\text{Pu}$ sont respectivement et au minimum de 60 et 30 fois plus élevés que sur les autres stations. Dans ces conditions, l'inventaire de la carotte KBRous 2001 tire à lui l'ensemble de l'interpolation et les résultats ne sont alors contraints que par la méthode d'interpolation. La couverture spatiale des différents points de mesure n'est donc pas assez dense pour forcer les gradients dans le domaine prodeltaïque. Cette difficulté pour cerner la distribution du plutonium dans cette zone pourrait entraîner une surestimation des stocks de Pu.

Dans un deuxième temps, si on ne tient plus compte de la carotte KBRous 2001, qui masque les autres résultats, on constate que les inventaires les plus élevés sont localisés au Sud-Ouest de l'embouchure du Rhône (Figure 5-20).

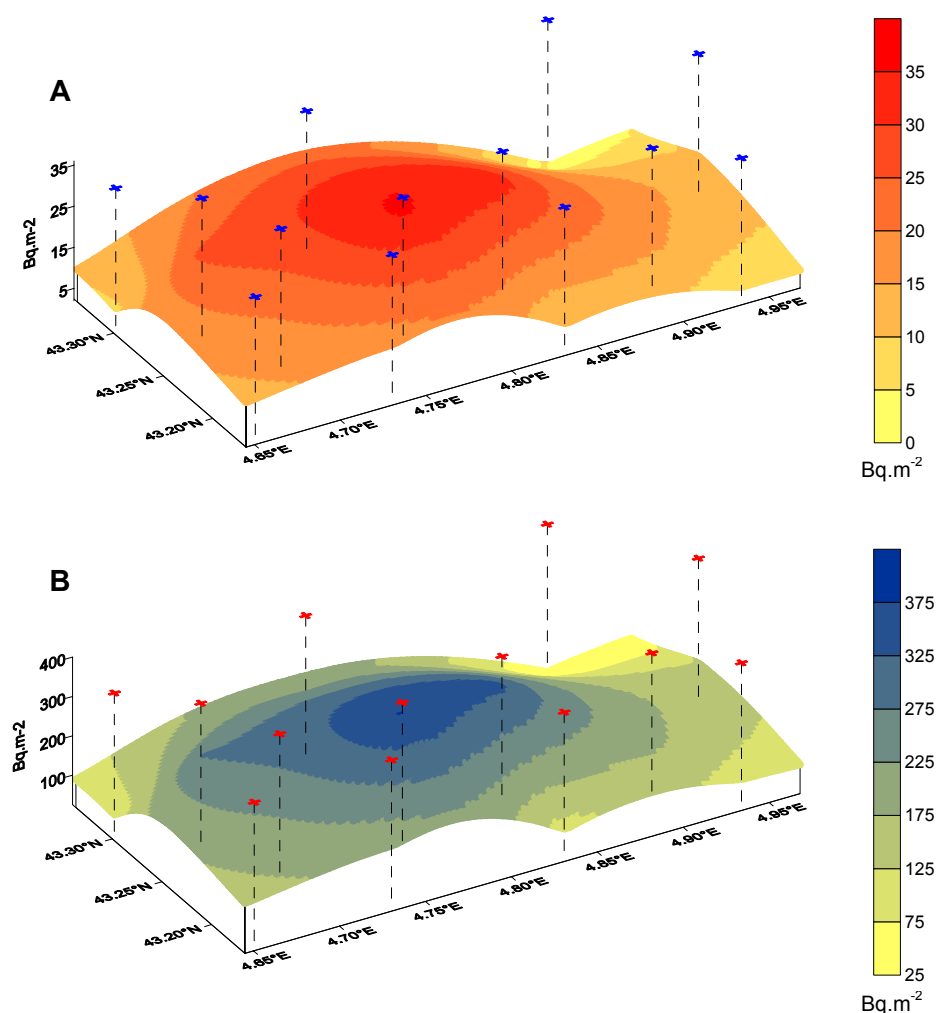


Figure 5-20 : Représentation tridimensionnelle des inventaires en ^{238}Pu (A) et $^{239,240}\text{Pu}$ (B) en Bq.m⁻² dans les sédiments situés face à l'embouchure du Rhône en 2001. Cette représentation ne tient pas compte des inventaires de la carotte KBRous 2001.

La distribution des inventaires de Pu montre également une nette dissymétrie entre le coté Est de la zone qui est peu contaminé en plutonium et le coté Ouest qui présente les inventaires les plus élevés. Les stations MT09, MT10 et MT14 apparaissent comme des zones préférentielles d'accumulation de plutonium. Etant donné que la colonne sédimentaire intègre sur le long terme les fluctuations des apports rhodaniens, alors ces stations situées au Sud-Ouest de l'embouchure sont des zones privilégiées pour le dépôt des apports particuliers du Rhône. Ces observations sont en accord avec les taux de sédimentation apparents déterminés précédemment puisque ces stations présentaient des taux de sédimentation apparent relativement élevés pour la zone distale (§ 5.1).

5.3.3. Calculs des stocks de plutonium

Les stocks de plutonium ont été calculés à partir des grilles d'interpolation réalisées sur tous les inventaires (Roustan compris) en utilisant diverses méthodes d'intégrations numériques : loi trapézoïdale, loi de Simpson et loi de Simpson 3/8 (Press *et al.*, 1988). Ces trois méthodes numériques donnent des résultats très proches, avec des différences inférieures à 0,01 %. Les estimations des stocks de plutonium données dans le tableau 5-5 correspondent à la moyenne des trois méthodes de calcul. Les stocks de Pu ont également été calculés en tenant compte des incertitudes sur les inventaires (± 5 % pour la carotte KBrous 2001 et ± 20 % pour les autres stations) et sont donc donnés avec une limite inférieure et une limite supérieure.

Tableau 5-5 : Estimations des stocks de ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ dans les sédiments face à l'embouchure du Rhône pour une aire de 495 km².

Méthode d'interpolation	Stock de Pu (GBq)	
	^{238}Pu	$^{239,240}\text{Pu}$
Inverse distance to a power	85 - 96	475 - 555
Krigeage linéaire	88 - 100	491 - 570
Radial basis function	86 - 98	480 - 560
Moyenne	92 $\pm$ 7	522 $\pm$ 44

Des différents calculs, il ressort que la méthode d'interpolation n'influence que peu les estimations des stocks de Pu. En tenant compte des incertitudes, les stocks sont estimés à 92 ± 7 GBq de ^{238}Pu et à 522 ± 44 GBq de $^{239,240}\text{Pu}$ pour une aire de 495 km² face à l'embouchure du Rhône. 50 % de ces stocks sont contenus dans l'aire prodeltaïque sur une aire de 100 km², soit 20 % de la zone étudiée.

En raison de l'importance des taux de sédimentation, le prodelta du Rhône joue donc un rôle fondamental dans l'accumulation et l'enfouissement du plutonium introduit dans le Rhône. En première approximation, si on compare les stocks de Pu par rapport aux rejets de Marcoule cumulés sur la période 1954-2000 (92 ± 5 GBq de ^{238}Pu et 443 ± 72 GBq de $^{239,240}\text{Pu}$), on constate que les sédiments face à l'embouchure du Rhône auraient accumulé la totalité du plutonium rejeté par Marcoule sur les 36 dernières années. Ces résultats suggèrent alors une faible dispersion du matériel particulaire apporté par le Rhône puisqu'elle se limiterait dans l'espace aux 495 km² de notre zone d'étude. Cette première étape dans l'élaboration d'un bilan sera reprise au cours du Chapitre 8 pour établir un bilan plus détaillé sur le devenir du Pu face à l'embouchure du Rhône.

CHAPITRE 6

6. Etude expérimentale de la remobilisation du plutonium

A court terme, le plutonium introduit dans le Rhône se retrouve majoritairement piégé dans les sédiments situés face à l'embouchure du Rhône. En 2001, les stocks sédimentaires de plutonium sont estimés à 92 ± 7 GBq de ^{238}Pu et 522 ± 44 GBq de $^{239,240}\text{Pu}$ sur une aire d'environ 500 km^2 . Ce n'est pas tant la présence de plutonium dans les sédiments qui est problématique, mais le fait que cette contamination soit potentiellement remobilisable et donc qu'elle risque d'affecter des populations exposées. La connaissance des mécanismes de remobilisation et de transfert joue à cet égard un rôle largement aussi important que l'identification de la présence d'un contaminant à un endroit donné.

Si les sédiments sont capables de fixer les radionucléides, ils sont aussi en mesure de les relarguer en réponse à des modifications physico-chimiques du milieu environnant. Dans ces conditions, les sédiments contaminés du prodelta du Rhône pourraient agir comme des sources secondaires de plutonium pour le golfe du Lion. Il est donc essentiel d'identifier les processus clefs impliqués dans le transfert et la dispersion du plutonium temporairement piégé au large de l'embouchure du Rhône.

6.1. La dynamique des sédiments cohésifs

La dynamique des sédiments est une problématique complexe qui fait intervenir un grand nombre de paramètres dont la nature et la taille des particules, la nature de l'écoulement, la topographie du fond, l'intensité de l'hydrodynamisme... De même, plusieurs phénomènes régissent les mouvements sédimentaires comme la remise en suspension, la dispersion des particules sous l'action turbulente de l'écoulement, mais également la chute des particules sous l'effet de leur inertie et de leur poids et la déposition sur le fond. Si les sédiments grossiers se déplacent principalement par charriage et saltation sur le fond, le transport des sédiments fins se fait essentiellement en suspension dans la colonne d'eau sous l'effet des courants. La dynamique des sédiments est donc fonction de la taille granulométrique des particules mais elle dépend également de leurs propriétés physico-chimiques. Il faut alors faire la distinction entre les sédiments fins et grossiers et les sédiments cohésifs et non cohésifs.

Les sédiments sont dits cohésifs lorsqu'il existe des forces d'attraction entre les grains. D'une manière générale, plus les particules sont fines plus les forces de cohésion biologiques et électrochimiques sont fortes. Les particules fines, généralement inférieures à $63 \mu\text{m}$, n'ont pas toutes des propriétés de cohésion. Il n'existe pas de taille limite de particule pour qualifier un sédiment de

cohésif mais il est généralement admis que les forces de cohésion ne sont plus négligeables pour des particules inférieures à 30 μm (Mehta et Lee, 1994). Par exemple, un sédiment mixte comportant une fraction d'argiles ($<4 \mu\text{m}$) supérieure à 10 % présentera des propriétés cohésives en raison de forces électrostatiques comparables, voir supérieures, aux forces de gravité.

La dynamique des sédiments cohésifs est d'une importance capitale en terme d'environnement. En effet, les sédiments fins présentent une importante surface d'échange spécifique et constituent le matériel de prédilection pour l'adsorption et le transport de nombreux contaminants. L'érosion des sédiments cohésifs est un processus complexe qui fait intervenir de très nombreux paramètres (Berlamont *et al.*, 1993). Contrairement aux sédiments non cohésifs, l'état des connaissances sur la dynamique des sédiments cohésifs ne permet pas de prédire la contrainte critique d'érosion à partir de paramètres simples (Teisson, 1991 ; Teisson *et al.*, 1993). Actuellement, il n'existe aucune théorie analytique générale permettant de décrire le comportement des sédiments cohésifs et plus particulièrement leur remise en suspension (Black *et al.*, 2002). Par conséquent, les mesures de terrain et les expériences en laboratoire, généralement à l'aide d'un canal à courant in situ ou au laboratoire, sont incontournables. Les expérimentations en canal à courant permettent de recréer un phénomène de remise en suspension dans un environnement contrôlé en essayant de reproduire le plus fidèlement possible les conditions environnementales.

6.2. Expériences de remise en suspension en canal à courant

La remobilisation du plutonium est une question difficile qui doit faire face aux problèmes liés à la détection du plutonium et à l'étude de la dynamique des sédiments cohésifs. Compte tenu de ces difficultés, l'étude in situ de la remobilisation du plutonium est difficilement envisageable. Jusqu'à présent, les principaux résultats sur la remobilisation du plutonium ont été obtenus à l'aide d'expériences en batch, qui permettent d'étudier les équilibres à l'interface solide/solution (Burton, 1986 ; Hamilton-Taylor *et al.*, 1987 ; Assinder *et al.*, 1990 ; McDonald *et al.*, 2001). Ces expériences consistent à introduire une quantité de sédiments contaminés dans un volume d'eau de mer et de suivre la cinétique de désorption du plutonium pour différentes conditions expérimentales. Si les expériences en batch fournissent des résultats indispensables sur le comportement du plutonium, elles sont tout de même très éloignées des conditions environnementales.

Dans le cadre de ce travail, nous avons développé une approche plus réaliste basée sur des expériences de remise en suspension en canal à courant. Ces expériences permettent notamment de déterminer les principaux paramètres d'érosion (contrainte critique d'érosion, flux d'érosion) et de quantifier les activités de plutonium remobilisées dans les phases dissoute et particulaire.

6.2.1. Caractéristiques des stations échantillonnées

Les caractéristiques des différentes stations échantillonnées pour les expériences de remise en suspension sont présentées dans le tableau 6-1.

Tableau 6-1 : Caractéristiques des stations échantillonnées pour les expériences de remise en suspension.

Station	Mission	Date	Lat. (°N)	Long. (°E)	Prof. (m)
Fos	REMORA 2	17/11/01	43°23'41	4°52'83	8
Sète	INTERPOL	22/04/02	43°21'20	3°55'25	67
Roustan Est	MINERCOT	18/06/02	43°19'50	4°52'01	16
Roustan Ouest	MINERCOT	18/06/02	43°18'26	4°50'14	53
Rhône	MINERCOT	18/06/02	43°14'53	4°53'10	95
Chenal	REMORA 3	04/11/02	43°18'85	4°51'22	20
Delta	REMORA 3	04/11/02	43°13'95	4°49'96	92

Au total, 9 expériences de remise en suspension ont été réalisées en canal à courant. Dans un premier temps, 3 essais ont été menés sur des sédiments de la station Fos, dans le but de tester la faisabilité et la reproductibilité du protocole expérimental. Par la suite, 5 expériences de remise en suspension ont été conduites sur 5 stations situées face à l'embouchure du Rhône (Figure 6-1).

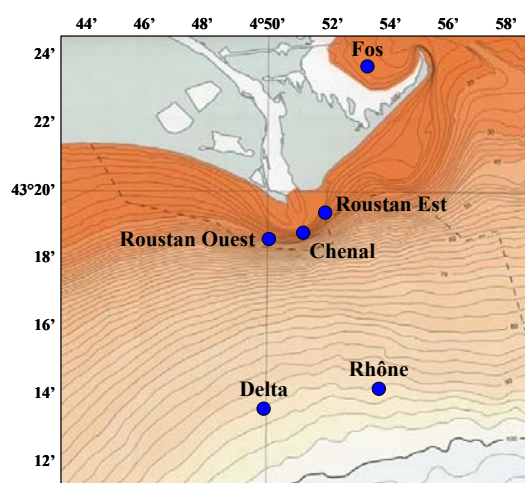


Figure 6-1 : Carte morpho-bathymétrique de la zone située face à l'embouchure du Rhône présentant les stations échantillonnées pour les expériences de remise en suspension.

Enfin, une dernière station, localisée à proximité de Sète, a servi de station de référence car elle se situe en dehors de l'influence directe du Rhône.

Pour chaque expérience, une carotte de sédiment a été découpée sur les deux premiers centimètres dans le but de déterminer les concentrations en plutonium dans les sédiments de surface. Les résultats de ces analyses sont présentés dans le tableau 6-2.

Tableau 6-2 : Activités en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ ($\text{mBq.kg}^{-1} \pm 1\sigma$) dans les sédiments de surface (0-2 cm) des stations échantillonnées pour les expériences de remise en suspension.

Station	^{238}Pu	$^{239,240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$
Fos	60 ± 3	618 ± 15	$0,10 \pm 0,01$
Roustan Est	134 ± 4	618 ± 12	$0,22 \pm 0,01$
Chenal	166 ± 4	706 ± 11	$0,24 \pm 0,01$
Roustan Ouest	59 ± 2	349 ± 10	$0,17 \pm 0,01$
Sète	45 ± 2	904 ± 16	$0,05 \pm 0,01$
Delta	104 ± 3	1151 ± 18	$0,09 \pm 0,01$
Rhône	83 ± 2	940 ± 14	$0,09 \pm 0,01$

Les sédiments introduits dans le canal à courant ont des activités comprises entre 45 et 166 mBq.kg^{-1} en ^{238}Pu et entre 349 et 1151 mBq.kg^{-1} en $^{239,240}\text{Pu}$. D'un côté, les stations proches de l'embouchure du Rhône possèdent un RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ supérieur à 0,22 et sont donc sous l'influence directe des rejets de Marcoule. De l'autre, la station Sète, située à 80 km à l'Ouest de l'embouchure du grand Rhône, est caractérisée par un RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ de 0,05, proche du RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ des retombées atmosphériques. Cette station n'est donc pas sous l'influence directe des apports solides du Rhône et sera considérée comme représentative du plateau continental.

Par ailleurs, la distribution granulométrique des sédiments de surface, nous renseigne sur le caractère cohésif ou non cohésif des sédiments (Figure 6-2).

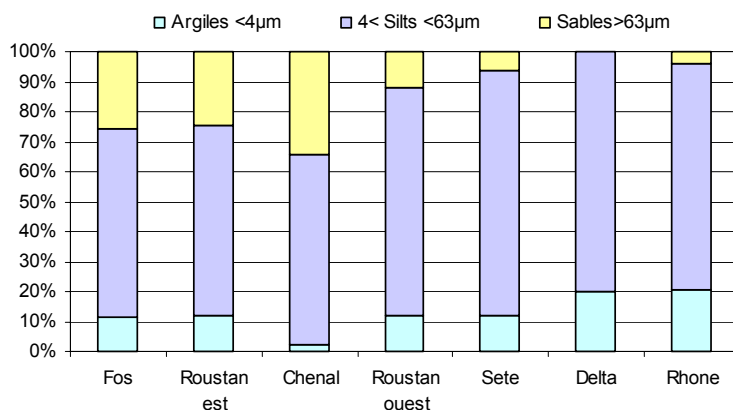


Figure 6-2 : Distribution granulométrique des sédiments de surface des stations échantillonnées pour les expériences de remise en suspension.

A l'exception de la station Chenal, tous les sédiments prélevés pour les expériences de remise en suspension sont des sédiments cohésifs avec une fraction silto-argileuse supérieure à 70 %. La station Chenal, située face à l'embouchure du Rhône, présente une fraction sableuse plus importante (35 %) accompagnée d'une déplétion d'argile. Cette situation résulte des apports de sédiment grossier par le Rhône et d'un hydrodynamisme intense à l'embouchure qui s'oppose à la déposition des particules les plus fines.

6.2.2. Résultats sur l'érodabilité des sédiments

Dans un premier temps, nous avons testé la faisabilité et la reproductibilité des expériences de remise en suspension. Lors de la campagne *REMORA 2*, plusieurs carottes ont été prélevées sur un même site du golfe de Fos, permettant d'effectuer au total 3 expériences successives. Pour chaque expérience, le signal de turbidité (NTU) a été calibré à partir des mesures de concentrations de matières en suspension ($r^2 > 0,94$; $p < 0,05$). Cette calibration permet ainsi de suivre l'évolution temporelle de la charge particulaire (mg.l^{-1}) dans l'eau du canal (Figure 6-3).

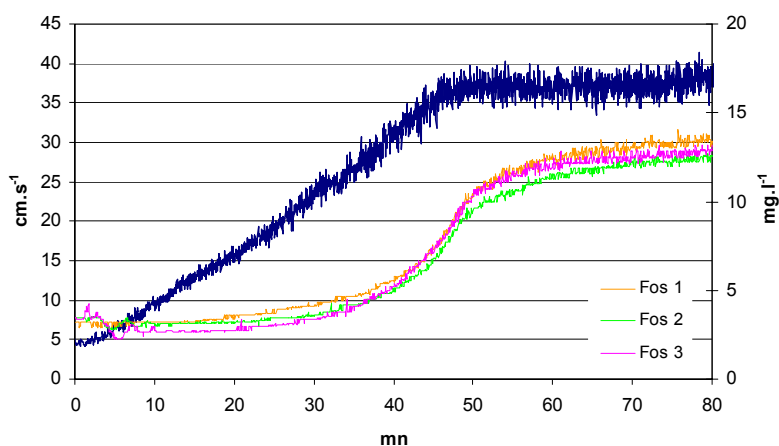


Figure 6-3 : Résultats des 3 expériences de remise en suspension réalisées successivement sur des sédiments de la station Fos.

D'un point de vue hydrodynamique, les conditions expérimentales sont bien reproductibles avec toutefois quelques différences sporadiques. Le stress hydrodynamique imposé dans le canal à courant correspond à une accélération du fluide de $0,01 \text{ cm.s}^{-2}$. En terme de contrainte de cisaillement sur le fond, les conditions expérimentales couvrent une gamme de 0 à $0,31 \text{ N.m}^{-2}$. D'un point de vue dynamique sédimentaire, l'évolution de la charge particulaire lors des expériences Fos 1, 2 et 3 confirme la bonne reproductibilité des expériences de remise en suspension. En effet, les corrélations entre les 3 signaux de MES sont hautement significatives ($r^2 > 0,99$, $p < 0,05$). Cette concordance est également retrouvée pour la détermination des vitesses critiques d'érosion, des contraintes critiques d'érosion et pour les flux d'érosion. On peut donc conclure que l'érodabilité des sédiments d'un même site, soumis à même stress hydrodynamique, est bel et bien reproductible.

Dans un deuxième temps, nous nous sommes intéressés aux résultats des 6 autres expériences de remise en suspension (Figure 6-4).

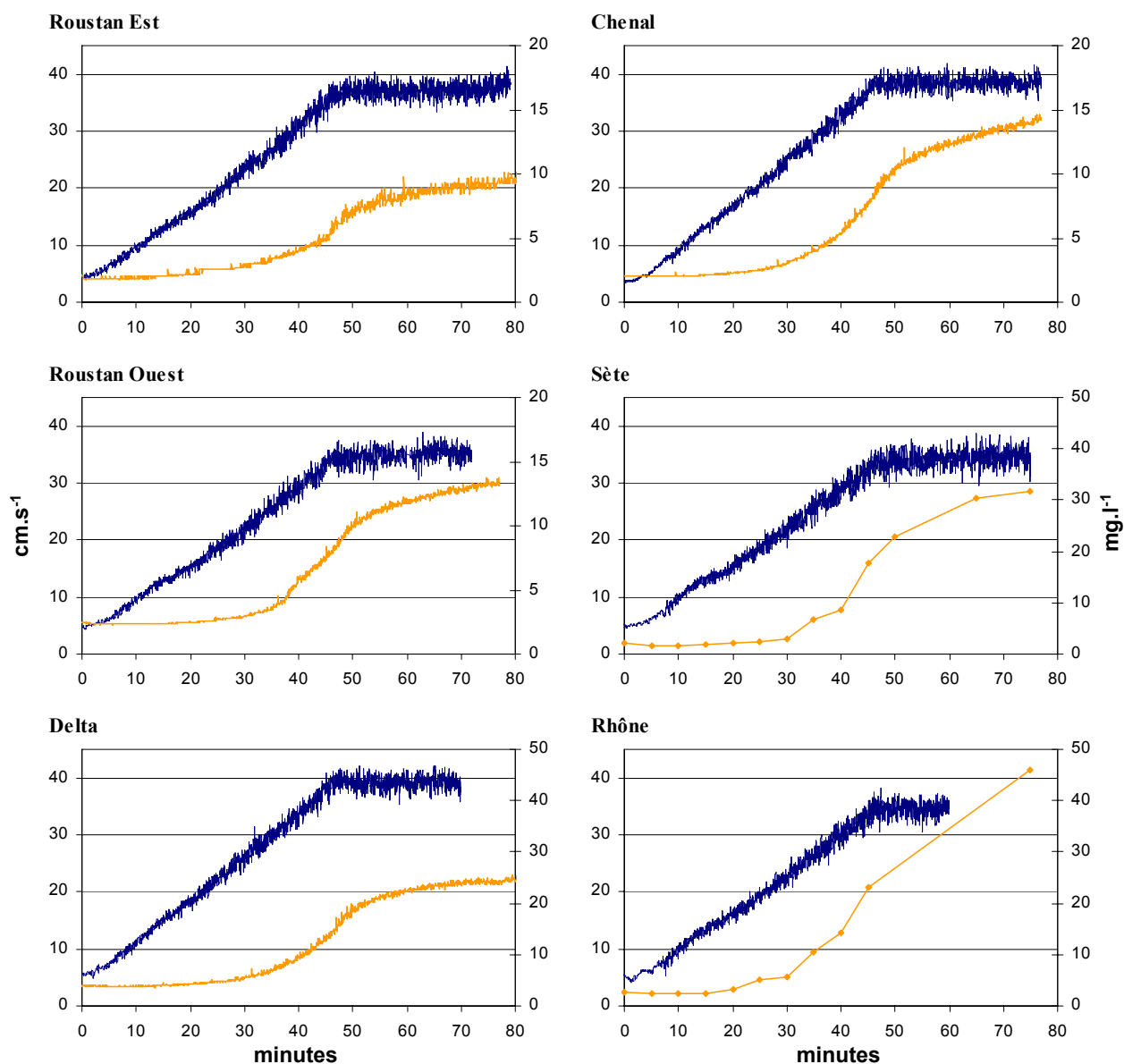


Figure 6-4 : Résultats des différentes expériences de remise en suspension (vitesse de l'écoulement en bleu et concentrations des matières en suspension en orange).

Lors des expériences Rhône et Sète, une coupure électrique a entraîné la perte des données acquises par le turbidimètre. L'évolution temporelle de la charge particulaire dans l'eau du canal n'est donc connue que sur la base des mesures ponctuelles des concentrations en MES. Dans ces conditions, il est difficile de déterminer la contrainte critique d'érosion avec la même précision que pour les autres stations.

Les résultats des expériences de remise en suspension permettent de déterminer les principaux paramètres de l'érosion (Tableau 6-3).

Tableau 6-3 : Résultats des vitesses critiques d'érosion, des contraintes critiques d'érosion et des flux d'érosion déterminés lors des expériences de remise en suspension.

Station	Vitesse critique d'érosion (cm s ⁻¹)	Contrainte critique d'érosion (N.m ⁻²)	Flux d'érosion (g.m ⁻² .h ⁻¹)
Fos	15,8 ± 0,6	0,06 ± 0,01	55 ± 6
Roustan Est	17,2 ± 0,5	0,08 ± 0,01	41 ± 4
Chenal	15,6 ± 0,5	0,06 ± 0,01	97 ± 10
Roustan Ouest	15,8 ± 0,4	0,06 ± 0,01	84 ± 8
Sète	14,0 ± 0,5	0,05 ± 0,01	162 ± 16
Delta	15,0 ± 0,3	0,06 ± 0,01	135 ± 14
Rhône	14,6 ± 0,5	0,05 ± 0,01	177 ± 18

Les contraintes critiques d'érosion varient de 0,05 à 0,08 N.m⁻² et montrent une faible variabilité spatiale. En raison d'une fraction plus importante de particules fines, les stations les plus profondes présentent une contrainte critique d'érosion légèrement plus faible que les stations les plus côtières. Schaaff (2003) montre qu'à cette contrainte de cisaillement des particules d'environ 10 µm sont remises en suspension. Par ailleurs, les sédiments des stations Chenal et Roustan Est possèdent une seconde contrainte critique d'érosion respectivement de 0,10 et 0,12 N.m⁻². Cette seconde contrainte critique d'érosion correspond à la remise en suspension d'une seconde classe de particules (Amos *et al.*, 1992) comprises entre 30 et 50 µm (Schaaff, 2003).

Pour un stress hydrodynamique donné, le flux d'érosion constitue un meilleur indicateur de l'érodabilité des sédiments que la contrainte critique d'érosion (Houwing, 1999). Pour l'ensemble de nos expériences, nous avons toujours appliqué le même stress hydrodynamique. Il est donc possible de comparer en relatif les flux d'érosion. Si la contrainte critique d'érosion ne varie pas significativement d'une station à une autre, il n'en est pas de même pour le flux d'érosion qui varie d'un facteur 4. Le flux d'érosion est inversement proportionnel à la contrainte critique d'érosion. Plus la contrainte critique est faible plus le flux d'érosion est élevé. En général, le flux d'érosion augmente avec la profondeur en raison d'un pourcentage plus élevé de silts et d'argiles.

6.2.3. Résultats sur la remobilisation du plutonium

Cette partie présente les résultats concernant la remobilisation du plutonium lors des expériences de remise en suspension en canal à courant.

6.2.3.1. Activités en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ dans l'eau de mer

Dans un premier temps, les activités en plutonium dans l'eau de mer, introduite dans le canal à courant, ont été déterminées pour quantifier le "bruit de fond" de chaque expérience de remise en suspension. Cependant, des problèmes analytiques nous ont conduits à déterminer un bruit de fond moyen pour l'ensemble des expériences de remise en suspension (Tableau 6-4). La concentration moyenne en MES de l'eau de mer introduite dans le canal était de $1,2 \pm 0,5 \text{ mg.l}^{-1}$ ($n=20$).

Tableau 6-4 : Activités moyennes en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ dans l'eau de mer (phases dissoute et particulaire). Activités moyennes déterminées sur 3 échantillons de 600 litres d'eau de mer prélevés à la station marine d'Endoume.

Eau de mer		^{238}Pu	$^{239,240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$
Phase particulaire	($\text{mBq.m}^{-3} \pm 1\sigma$)	$0,9 \pm 0,1$	$10,8 \pm 0,4$	$0,08 \pm 0,01$
	($\text{mBq.kg}^{-1} \pm 1\sigma$)	178 ± 22	2120 ± 82	$0,08 \pm 0,01$
Phase dissoute	($\text{mBq.m}^{-3} \pm 1\sigma$)	$1,0 \pm 0,2$	$13,0 \pm 0,9$	$0,08 \pm 0,02$
Total	($\text{mBq.m}^{-3} \pm 1\sigma$)	$1,9 \pm 0,3$	$23,8 \pm 1,3$	$0,08 \pm 0,01$
Kd		$1,8 \pm 0,4 \cdot 10^5$	$1,6 \pm 0,1 \cdot 10^5$	

Comme attendu, les activités de l'eau de mer sont très faibles avec $1,9 \pm 0,3 \text{ mBq.m}^{-3}$ en ^{238}Pu et $23,8 \pm 1,3 \text{ mBq.m}^{-3}$ en $^{239,240}\text{Pu}$. Les incertitudes liées à la statistique de comptage sont relativement importantes en particulier pour les activités en ^{238}Pu où elles atteignent $\pm 20 \%$.

Pour vérifier la qualité de nos mesures, nous avons comparé nos résultats aux données de la littérature. Il existe très peu de données sur les concentrations en ^{238}Pu en Méditerranée car les concentrations sont très faibles. Les résultats les plus récents donnent une activité moyenne extrêmement faible de $0,47 \pm 0,09 \text{ mBq.m}^{-3}$ en ^{238}Pu dissous (León Vintro *et al.*, 1999). De même, le rapport d'activité moyen $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ pour les eaux de surface est de $0,035 \pm 0,017$, indiquant une contamination par les retombées atmosphériques globales. Comparé à ces données, nos mesures mettent en évidence un léger "enrichissement" en ^{238}Pu dans les eaux de surface prélevées à Marseille. D'après le rapport d'activité moyen $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ de $0,08 \pm 0,01$, ces concentrations peuvent être imputées à une faible influence des rejets de Marcoule.

Les activités en $^{239,240}\text{Pu}$ dissous en Méditerranée sont plus élevées que celles en ^{238}Pu et les données dans la littérature sont donc plus nombreuses. León Vintó *et al.* (1999) font la synthèse des mesures en $^{239,240}\text{Pu}$ dissous pour les eaux méditerranéennes sur la période 1970-1995 (Figure 6-5). En 1995, l'activité en $^{239,240}\text{Pu}$ dissous était d'environ 10 mBq.m^{-3} . L'activité moyenne en $^{239,240}\text{Pu}$ dissous que nous avons mesurée ($13 \pm 0,9 \text{ mBq.m}^{-3}$) est donc en adéquation avec ces précédents résultats.

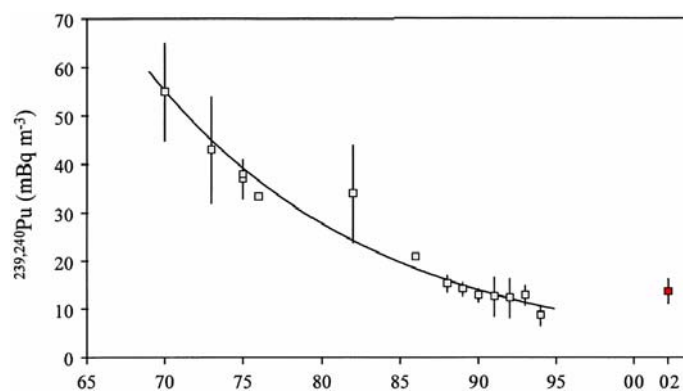


Figure 6-5 : Evolution temporelle des concentrations de $^{239,240}\text{Pu}$ dissous dans les eaux de surface de la Méditerranée occidentale entre 1970 et 2002, modifié d'après León Vintó *et al.* (1999).

Par ailleurs, nos mesures soulignent un fort pourcentage de plutonium dans la phase particulaire qui atteint presque 50 % de l'activité totale. Cette proportion est particulièrement élevée pour la Méditerranée puisqu'en général le pourcentage de Pu particulaire est inférieur à 10 % (Molero *et al.*, 1995 ; Mitchell *et al.*, 1995). Cette valeur inhabituelle s'explique par un prélèvement en milieu littoral et une concentration en MES relativement élevée dans l'eau de mer filtrée. En général, les données de la littérature sont issues de prélèvements d'eau de mer effectués plus au large dont les concentrations en MES étaient bien inférieures à 1 mg.l^{-1} . Par contre, les activités en Pu que nous avons mesurées pour l'eau de mer donnent des valeurs de K_d de $1,8 \cdot 10^5$ et $1,6 \cdot 10^5$ respectivement pour le ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$, en accord avec les valeurs données par l'AIEA (1985) et Mitchell *et al.* (1995).

6.2.3.2. La remobilisation chimique du plutonium

Pour appréhender la remobilisation chimique du plutonium à la fin de chaque expérience, les 300 litres d'eau de mer du canal à courant ont été filtrés puis analysés (Tableau 6-5). Les résultats de la station Delta n'ont pas pu être exploités et ont été écartés. En effet, les mesures par spectrométrie alpha ont donné des spectres inexploitable sans doute liés à un problème lors des radiochimies.

Tableau 6-5 : Activités en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ remobilisées dans la phase dissoute du canal à courant (300 l) à la fin de chaque expérience de remise en suspension (mBq)

Station	^{238}Pu	$^{239,240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$
Fos	0,4	34,3	0,01
Roustan Est	1,4	0,9	1,46
Chenal	2,5	0,8	3,10
Roustan Ouest	2,7	1,3	2,17
Sète	0,9	7,1	0,13
Rhône	1,2	1,4	0,88

Dans l'ensemble, les activités en plutonium remobilisées dans la phase dissoute sont très faibles et souvent proches de notre limite de détection. A l'exception de la station Fos, les activités remobilisées sont inférieures à 3 mBq pour le ^{238}Pu et à 8 mBq pour le $^{239,240}\text{Pu}$. Les résultats sont tout de même très surprenants puisque quasiment tous les échantillons dissous présentent des rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ inhabituels. Le RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ varie de 0,01 pour la station Fos à plus de 3 pour la station Chenal. Ballestra (1980) avait déjà obtenu des RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ supérieurs à 1 pour des échantillons d'eau du Rhône et du Var mais sans donner d'explication.

Dans notre cas, nous suspectons des problèmes analytiques liés entre autres à l'utilisation de ^{236}Pu pour déterminer le rendement de coprécipitation du plutonium en phase dissoute (§ 4.5). Comme le souligne Harvey et Lovett (1984), l'utilisation de ^{236}Pu comme traceur de rendement d'extraction demande une attention toute particulière. En effet, le ^{236}Pu a une période radioactive relativement courte (2,85 ans) et ses produits fils (^{232}U , ^{228}Th) peuvent créer des interférences spectrales par chevauchement avec le pic du ^{238}Pu . De plus, la source de ^{236}Pu utilisée pour préparer les traceurs doit présenter une grande pureté (Jerome *et al.*, 1995). En effet, la formation de ^{236}Pu à partir de ^{237}Np est accompagnée d'impuretés de ^{238}Pu (Yamana *et al.*, 2001). Les traceurs de ^{236}Pu que nous avons utilisés possédaient moins de 0,2 % d'impuretés en ^{238}Pu (AEA-Technology®). Mais, l'effet potentiel de ces impuretés est d'autant plus important que les échantillons d'eau de mer sont très peu actifs. Par ailleurs, pour éviter des interférences trop importantes, les niveaux d'activité du traceur doivent être appropriés aux activités de l'échantillon. A titre d'exemple, l'introduction d'un spike de ^{236}Pu dont l'activité est vingt fois plus importante que l'activité en ^{238}Pu de l'échantillon, entraîne une surestimation de 3 % du pic de ^{238}Pu (Harvey et Lovett, 1984). Les activités de ^{236}Pu introduites dans les échantillons dissous variaient de 5 à 96 mBq. Les rapports entre le nombre de coups du ^{236}Pu et ceux du ^{238}Pu de du $^{239,240}\text{Pu}$ étaient de 11 à 85 pour le rapport $^{236}\text{Pu}/^{238}\text{Pu}$ et de 2 à 20 pour le rapport $^{236}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$.

L'erreur de comptage liée au niveau d'activité d'un traceur vis-à-vis d'un isotope donné peut être quantifié par la relation suivante (Harvey et Lovett, 1984) :

$$\text{Erreur totale \%} = 100 \times \left(\frac{1}{\text{nombre de coups de l'échantillon}} + \frac{1}{\text{nombre de coups du traceur}} \right)^{\frac{1}{2}} \quad \text{Équation 6-1}$$

Pour nos mesures, les erreurs cumulées liées à l'addition des deux traceurs (^{236}Pu et ^{242}Pu) sont de 12 à 16 % pour le $^{239,240}\text{Pu}$ et de 17 à 40 % pour le ^{238}Pu . Par conséquent, les résultats sur la remobilisation du Pu en phase dissoute sont à prendre avec une extrême précaution et seront écartés pour la suite de ce travail.

6.2.3.3. La remobilisation physique du plutonium

Les activités remobilisées dans la phase particulaire à la fin de chaque expérience de remise en suspension ont été calculées d'après l'équation 4-8 et sont présentées dans le tableau 6-6.

Tableau 6-6 : Activités en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ remobilisées dans la phase particulaire du canal à courant à la fin des expériences de remise en suspension (mBq) et estimations des masses de matières remises en suspension M_{RES} d'après les filtres GF/F (0,5 μm) et la cartouche Millipore (0,7 μm).

Station	^{238}Pu	$^{239,240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$	M_{RES} (GF/F)	M_{RES} (Millipore)
Fos	0,3	3,8	0,07	3,84	4,4
Roustan Est	5,7	32,1	0,18	2,64	1,24
Chenal	1,7	7,9	0,21	6,74	14,7
Roustan Ouest	0,5	2,7	0,17	5,76	7,4
Sète	0	0	/	9,51	26,2
Rhône	3,7	44,9	0,08	13,80	37,0

Les activités remobilisées dans la phase particulaire sont généralement faibles, en particulier pour l'isotope 238. Aucune remobilisation du plutonium n'a pu être mise en évidence à la station Sète. Par contre, les stations Roustan Est et Rhône présentent une remobilisation significative atteignant 5,7 mBq en ^{238}Pu et 45 mBq en $^{239,240}\text{Pu}$. Les rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ remobilisés sont en accord avec les rapports d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ mesurés dans les sédiments de surface (Tableau 6-2). La bonne concordance des RA $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ permet d'attester de l'origine sédimentaire du Pu remobilisé dans la colonne d'eau.

Une des difficultés des expériences en canal à courant réside dans la détermination précise de la masse de sédiments remis en suspension (M_{MRS}). En effet, la masse de sel retenue sur le filtre Millipore ($10,70 \pm 1,80$ g ; § 4.5) représente dans certains cas plus de 8 fois la masse de sédiment remis en suspension. Compte tenu de cette différence, nous avons estimé la charge particulaire totale dans l'eau du canal en utilisant les mesures de concentrations en MES. L'estimation faite à partir des filtres GF/F a été obtenue en multipliant la charge particulaire de l'eau du canal à la fin des expériences de remise en suspension par le volume total d'eau de mer (Tableau 6-6). Les estimations de M_{MRS} faites soit sur les filtres Millipore soit sur les filtres GF/F montrent de grandes différences pouvant atteindre un facteur 3. La taille des pores des filtres GF/F est de $0,7 \mu m$ alors que celle des cartouches Millipore est de $0,5 \mu m$. Cette différence peut expliquer une partie seulement des différences observées. L'effet de sel pour chaque expérience est impossible à quantifier précisément et il est probablement responsable d'une grande partie des différences observées. En raison des incertitudes liées au sel, nous avons fait le choix de retenir les masses de sédiment remis en suspension déterminés par les filtres GF/F.

A l'exception des stations Roustan Est et Sète, la remobilisation physique du plutonium est proportionnelle au flux d'érosion et donc à la masse de MRS (Figure 6-6). Le nombre de mesure est limité mais les corrélations sont significatives ($p < 0,05$).

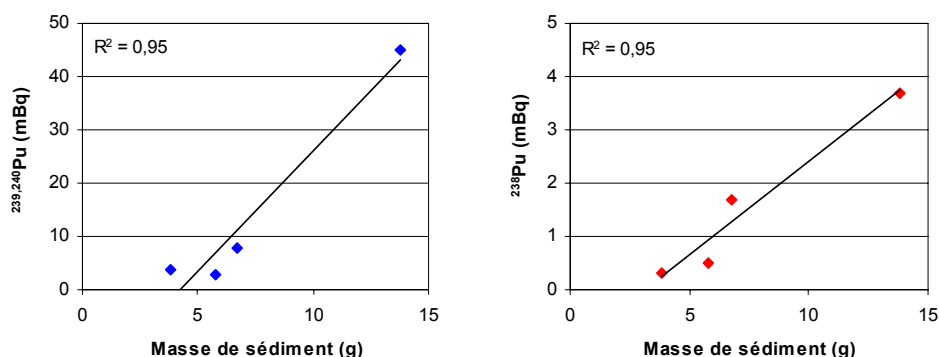


Figure 6-6 : Activités en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ remobilisées en fonction de la masse de sédiment remis en suspension (à l'exception des station Roustan Est et Sète).

Par contre, les deux exceptions présentent deux situations très contrastées.

- Les résultats de la station Roustan Est sont très différents des résultats des autres stations du prodelta du Rhône. En effet, le flux d'érosion à cette station est le plus faible de tous ($41 \text{ g.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$) et pourtant l'activité remobilisée est l'une des plus élevées. Cette différence pourrait s'expliquer par une forte activité spécifique des particules les plus fines qui sont préférentiellement remises en suspension. Dans ce cas, la remise en suspension d'une faible quantité de matière pourrait entraîner une remobilisation importante du plutonium.

- La station Sète, située en dehors de l'influence directe du Rhône, donne des résultats opposés. En effet, le flux d'érosion à cette station est l'un des plus importants ($162 \text{ g.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$) et on pouvait s'attendre à une importante remobilisation puisque les concentrations des sédiments de surface (0-2 cm) étaient de 45 mBq.kg^{-1} en ^{238}Pu et de 904 mBq.kg^{-1} en $^{239,240}\text{Pu}$. Or, l'activité remobilisée est nulle. Il existe donc un décalage entre l'activité spécifique des sédiments en place et celle des sédiments remis en suspension. Cette différence pourrait s'expliquer par l'accumulation récente de sédiments très faiblement marqués qui recouvrent des sédiments plus anciens marqués par les retombées atmosphériques. Ces résultats mettent en évidence un problème de résolution spatiale entre la hauteur de sédiment érodé, de quelques millimètres tout au plus, et la hauteur de sédiment échantillonnée pour mesurer les concentrations en Pu (2 cm). Par ailleurs, Zuo *et al.* (1991) estiment un taux de sédimentation apparent inférieur à 2 mm.a^{-1} pour la partie de plateau continental où est localisée la station Sète. D'un côté, la remise en suspension pourrait donc éroder l'équivalent d'une année de sédimentation, alors que de l'autre, le terme source en Pu est déterminé sur plus de 10 années d'accumulation sédimentaire. Il n'est donc pas surprenant d'observer une différence des activités spécifiques puisque les sédiments en place et remis en suspension ne correspondent pas aux mêmes périodes de sédimentation.

Ces deux exemples montrent que la quantité de plutonium remobilisée n'est pas toujours proportionnelle au flux d'érosion et qu'il faut tenir compte de l'historique des dépôts. En effet, l'accumulation récente de sédiments peu contaminés recouvre des sédiments anciens et plus contaminés. Cette sédimentation récente forme une sorte de chape sédimentaire qui s'oppose à la remobilisation du plutonium.

Malgré les incertitudes sur les masses (M_{MRS}), nous avons calculé les activités spécifiques des sédiments remis en suspension (Tableau 6-7).

Tableau 6-7 : Comparaison des concentrations en ^{238}Pu et en $^{239,240}\text{Pu}$ (mBq.kg^{-1}) entre les matières remises en suspension (MRS) et les sédiments (SED).

Station	^{238}Pu		$^{239,240}\text{Pu}$	
	MRS	SED	MRS	SED
Fos	78	60 ± 3	990	618 ± 15
Roustan Est	2159	134 ± 4	12159	618 ± 12
Chenal	252	166 ± 4	1172	706 ± 11
Roustan Ouest	87	59 ± 2	469	349 ± 10
Sète	0	45 ± 2	0	904 ± 16
Rhône	268	83 ± 2	3254	940 ± 14

Les particules remises en suspension présentent une activité spécifique en générale supérieure à celle des sédiments en place. Les activités spécifiques des sédiments remis en suspension peuvent être jusqu'à 20 fois plus élevées que celles mesurées pour les sédiments de surface. Ces résultats suggèrent alors l'existence d'un tri granulométrique et les particules les plus fines, remises en suspension, seraient "plus riches" en plutonium que les particules plus grossières. En mer d'Irlande, MacKenzie *et al.* (1999) montrent que le plutonium est principalement associé aux particules fines (argiles et silts) même si les particules plus grossières peuvent jouer un rôle aussi important. Dans notre cas, compte tenu des incertitudes sur les masses, d'autres mesures seront nécessaires pour préciser l'existence d'un tri granulométrique.

Les expériences de remise en suspension permettent pour la première fois d'estimer des flux de remobilisation du Pu dans des conditions proches des conditions environnementales. Le flux de remobilisation a été calculé à partir de la quantité de Pu remobilisé dans la phase particulaire rapportée à une unité de surface de sédiment et à unité de temps ($\text{mBq.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$). Ces flux ont été déterminés pour un stress hydrodynamique bien précis et ils correspondent donc à des flux potentiels de remobilisation (Tableau 6-8).

Tableau 6-8 : Flux de ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ remobilisés avec la phase particulaire lors des expériences de remise en suspension ($\text{mBq.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$)

Station	^{238}Pu	$^{239,240}\text{Pu}$
Fos	3	55
Roustan Est	81	455
Chenal	23	113
Roustan Ouest	6	39
Sète	0	0
Rhône	52	635

Les flux de plutonium associés à la remise en suspension des sédiments de surface sont au maximum de $81 \text{ mBq.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ en ^{238}Pu pour Roustan Est et de $635 \text{ mBq.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ en $^{239,240}\text{Pu}$ pour la station Rhône. Compte tenu de l'hétérogénéité des résultats, les flux moyens pour la zone du prodelta du Rhône sont de $40 \text{ mBq.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ en ^{238}Pu et de $310 \text{ mBq.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ en $^{239,240}\text{Pu}$. En raison de la superficie étudiée (environ 500 km^2), ces flux potentiels pourraient représenter une source secondaire non négligeable de plutonium pour le golfe du Lion.

6.3. Synthèse des résultats

L'expérimentation en canal à courant est une première approche permettant de relier la remobilisation du plutonium à l'érosion des sédiments contaminés, tout en respectant des conditions expérimentales aussi réalistes que possible.

Pour différents sites, nous avons testé l'érodabilité des sédiments en réponse à un même stress hydrodynamique. Les sédiments cohésifs du prodelta du Rhône présentent tous une contrainte critique d'érosion comprise entre 0,05 et 0,08 N.m⁻². Ces valeurs sont légèrement supérieures à celles déterminées précédemment par Schaaff (2003). Cette différence s'explique essentiellement par le critère utilisé pour déterminer la contrainte critique d'érosion (§ 4.5). Par contre, la gamme de variation des flux d'érosion est tout à fait en accord avec les résultats antérieurs. Les flux d'érosion montrent une importante variabilité spatiale qui est probablement liée à la taille des particules mais pas exclusivement. D'autres paramètres contrôlent l'érodabilité des sédiments et les forces de cohésion entre les particules doivent être prises en considération. En effet, la résistance d'un sédiment cohésif vis-à-vis de l'érosion est une fonction complexe de paramètres physiques, physicochimiques et biologiques interdépendants comme la porosité, la densité du sédiment, la taille des grains (Jepsen *et al.*, 1997), l'historique des dépôts (Droppo *et al.*, 2001), la température, la salinité (McCave, 1984) et la faune endogée (Meadows *et al.*, 1990 ; Paterson *et al.*, 2000).

6.3.1. La remobilisation du plutonium

En ce qui concerne la remobilisation chimique du plutonium, des problèmes analytiques nous empêchent de conclure précisément sur la désorption du plutonium suite à la remise en suspension des sédiments contaminés. Néanmoins, les niveaux d'activité remobilisés dans la phase dissoute sont très faibles et ne montrent pas de désorption significative du plutonium. McDonald *et al.* (2001) ont testé la redissolution du plutonium sur des sédiments de la mer d'Irlande dont les activités en ^{239,240}Pu étaient au minimum 100 fois plus élevées que celles du prodelta du Rhône. Après 5 semaines d'expérience en batch, la fraction de Pu remobilisée était inférieure à 0,1 % du stock de ^{239,240}Pu présents dans les sédiments. Dans le même sens, McCubbin *et al.* (1999) estiment qu'en moyenne 0,4 % du Pu porté par les MES sont susceptibles de se désorber. En se basant sur ces estimations, la redissolution du plutonium lors des expériences de remise en suspension devrait atteindre au maximum 0,5 mBq en ^{239,240}Pu, ce qui est inférieure à notre limite de détection. Par ailleurs, la redissolution du plutonium dans des conditions marines strictes est un processus relativement lent (Cook *et al.*, 1997 ; Leonard *et al.*, 1999). Hamilton-Taylor *et al.* (1993) et McCubbin *et al.* (1999 ; 2002) montrent que l'état d'équilibre entre la phase dissoute et la phase particulaire est atteint rapidement pour le Pu (IV) (environ une heure) alors que le temps d'équilibre du Pu (V) est considérablement plus élevé, de l'ordre du mois. La durée des expériences en canal à courant n'était

donc pas suffisamment longue pour atteindre l'état d'équilibre du Pu entre la phase dissoute et la phase particulaire. Pour l'ensemble de ces raisons, la redissolution du Pu lors des expériences en canal à courant était sans doute très faible. Compte tenu des problèmes analytiques rencontrés (§ 6.2.3), nos mesures sont entachées d'une trop grande incertitude pour pouvoir être exploitées.

Les expériences en canal à courant sont mieux adaptées pour étudier la remobilisation physique du plutonium. La remise en suspension des particules les plus fines et la remobilisation du Pu débute pour des contraintes inférieures à $0,1 \text{ N.m}^{-2}$. Les flux potentiels de plutonium atteignent au maximum $81 \text{ mBq.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ en ^{238}Pu et $635 \text{ mBq.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ en $^{239,240}\text{Pu}$. En général, le flux de plutonium remobilisé est proportionnel au flux d'érosion. Toutefois dans certains cas, un flux d'érosion élevé peut entraîner une faible remobilisation du plutonium et vice et versa. L'historique des dépôts joue alors un rôle clef vis-à-vis de la remobilisation du Pu. Depuis la diminution des rejets de Marcoule, l'accumulation de sédiments récents et peu marqués recouvre des sédiments plus anciens et plus contaminés. Par conséquent, la sédimentation s'oppose à la remobilisation du plutonium et favorise son enfouissement.

6.3.2. Améliorations des expériences en canal à courant

Les expériences de remise en suspension constituent une approche innovante pour quantifier les flux de remobilisation du plutonium. Cependant, nous nous sommes heurtés à plusieurs problèmes analytiques et expérimentaux :

- Tout d'abord, les niveaux d'activité en Pu des sédiments de surface introduits dans le canal sont relativement faibles ($\approx 1 \text{ Bq.kg}^{-1}$). Le signal remobilisé est encore plus faible et de surcroît extrêmement dilué dans un volume de 300 litres. Le facteur de dilution est très important et rend difficile la détection des activités remobilisées. A l'avenir, les sédiments devront être sélectionnés en fonction de leurs niveaux d'activité si l'on souhaite avoir un signal de remobilisation significatif. En parallèle, il faudrait faire diminuer le rapport solide/solution tout en préservant des conditions hydrodynamiques réalistes.
- Par ailleurs, le protocole expérimental devra être modifié en particulier si l'on s'intéresse à la désorption du plutonium. Des expériences plus longues dans le temps devraient permettre d'atteindre l'état d'équilibre du Pu entre la phase dissoute et la phase particulaire. La distribution des états d'oxydation du Pu dans les différentes phases est également une voie d'investigation pour de futures expérimentations en canal à courant.
- En terme de remise en suspension, il est essentiel de mettre au point une méthode optimale pour quantifier précisément la masse de sédiment remis en suspension. Cette étape permettra de préciser les activités spécifiques des particules remobilisées et de confirmer l'existence d'un tri granulométrique.

Au final, les flux de remobilisation du plutonium sont contraints par les conditions expérimentales et en particulier par l'intensité et la durée du stress hydrodynamique. On peut donc se poser la question si le stress imposé dans le canal à courant est en accord avec les conditions environnementales rencontrées face à l'embouchure du Rhône. Par ailleurs, l'extrapolation des flux de remobilisation dépend essentiellement de la fréquence et de l'intensité des phénomènes de remise en suspension. Or, dans ce domaine, il existe très peu de données sur la dynamique sédimentaire du prodelta du Rhône. Pour tenter de répondre à ces questions, nous avons organisé une campagne de mesures in situ face à l'embouchure du Rhône.

CHAPITRE 7

7. Campagne de mesures in situ à l'embouchure du Rhône

Le prodelta du Rhône est une zone préférentielle d'accumulation de sédiments fins qui agit, dans un premier temps, comme un terme puits majeur vis-à-vis du plutonium. Le devenir du plutonium ainsi piégé dépend alors de la dynamique des sédiments face à l'embouchure du Rhône. L'érodabilité des sédiments prodeltaïques est principalement gouvernée par l'hydrodynamisme local résultant de l'action des vents (Mistral, Tramontane et vents d'Est), des courants de fond et des houles (Sud-Est à Sud-Ouest). Or, si la dynamique de surface, associée au panache de dilution des eaux rhodaniennes, est relativement bien connue, les courants à proximité du fond et l'effet de la houle sur le lit sédimentaire restent méconnus.

L'embouchure du Rhône est un milieu fortement stratifié en raison des différences de densité entre l'eau douce du Rhône qui s'écoule en surface et l'eau de mer sous-jacente. La dynamique du panache de dilution a fait l'objet de nombreuses recherches. Demarcq et Wald (1984) montrent par l'étude d'images satellites que cette dynamique est étroitement liée aux conditions météorologiques et au régime hydraulique du Rhône. Ces observations ont été confirmées par différentes mesures eulériennes (courantomètre, radar VHF) (Broche *et al.*, 1998 ; Estournel *et al.*, 2001) et lagrangiennes (bouée dérivante) (Naudin *et al.*, 1997 ; 2001). L'ensemble de ces mesures a également permis de développer des modèles hydrodynamiques et de transport sédimentaire pour le golfe du Lion (Johns *et al.*, 1992 ; Casitas, 1999 ; Estournel *et al.*, 2003) et plus particulièrement pour la zone du prodelta du Rhône; (Kondrachoff, 1995 ; Estournel *et al.*, 1997 ; Marsaleix *et al.*, 1998 ; Arnoux-Chiavassa *et al.*, 1999, 2003).

Si de nombreuses études se sont intéressées à la dynamique de surface, il existe proportionnellement beaucoup moins de données sur la dynamique de fond. Les mesures de courant et de néphélogéométrie face à l'embouchure du Rhône ont montré l'existence d'un néphéloïde benthique qui représente la principale voie d'exportation du matériel particulaire sur le fond (Aloisi *et al.*, 1982 ; Aloisi, 1986 ; Naudin *et al.*, 1992 ; Naudin et Cauwet, 1997). Cependant, les conditions de formation du néphéloïde benthique et en particulier les phénomènes de remise en suspension qui l'alimentent sont méconnus. Il est donc essentiel de déterminer in situ les conditions environnementales, les courants de fond et les contraintes de cisaillement susceptibles de déclencher l'érosion des sédiments prodeltaïques. Pour combler ce manque de données, une campagne de mesures in situ a été réalisée face à l'embouchure du Rhône au printemps 2002.

Cette campagne avait pour objectifs de :

- mesurer les courants de fond face à l'embouchure du Rhône afin de valider le protocole expérimental des expériences en canal à courant
- mettre en évidence les différents facteurs intervenant dans la dynamique sédimentaire en se focalisant sur les phénomènes de remise en suspension
- étudier le couplage entre les différents forçages et leurs interactions vis-à-vis de la dynamique sédimentaire

Ce chapitre s'articule autour de quatre parties. La première partie présente la campagne de mesure in situ, le matériel mis en oeuvre et le traitement des données. La deuxième partie décrit la méthode utilisée pour estimer la contrainte de cisaillement sur le fond due à l'interaction houle-courant. La troisième partie expose l'ensemble des résultats. Enfin la dernière partie est une discussion sur la dynamique sédimentaire à l'embouchure du Rhône.

7.1. Instrumentation mise en œuvre

Pour étudier la dynamique du prodelta du Rhône, un mouillage autonome capable de mesurer simultanément les courants, les caractéristiques des vagues (hauteur, période et direction) et la turbidité au niveau du fond a été réalisé pour la mission *RHONAWAC*. En collaboration avec l'IRSN et la société Thetis, un ADCP de type AWAC (Acoustic Wave and Current, Nortek®) a été mouillé à la station Roustan Est. Cette station est située entre les bouées cardinales de Roustan et l'embouchure du Rhône sur le flanc Est du prodelta (43°19'4 N ; 4°52'0 E, Figure 7-1). L'ADCP a été immergé sur un fond de 16 m en visée verticale ascendante du 29 avril au 4 juin 2002.

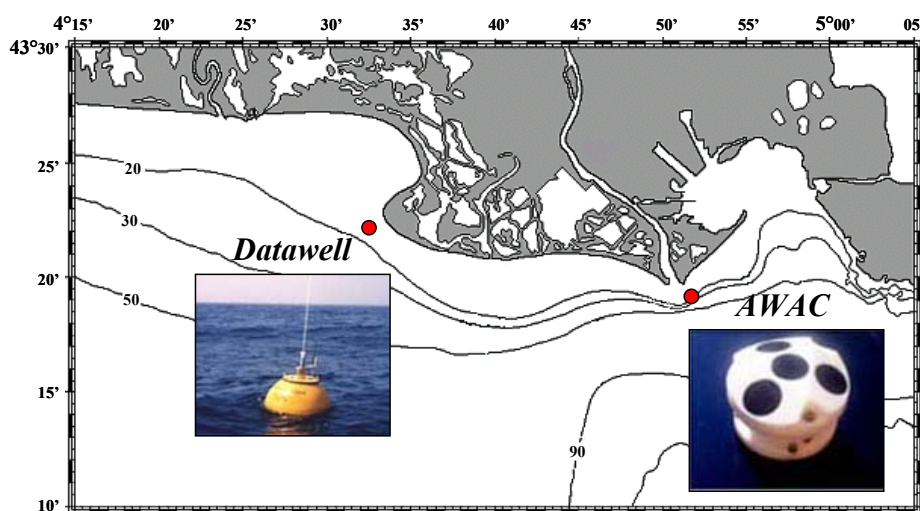


Figure 7-1 : Carte du delta du Rhône présentant les stations de mouillage de l'AWAC et de la Datawell

L'AWAC est un courantomètre acoustique à effet Doppler (ADCP) qui mesure des profils de courant sur l'ensemble de la colonne d'eau. Les transducteurs acoustiques émettent des impulsions à fréquence fixe (1 MHz). Ces ondes acoustiques sont en partie réfléchies par les particules en suspension dans l'eau qui se déplacent à la même vitesse que le fluide. Le déplacement des particules entraîne un effet Doppler sur les signaux retrodiffusés (changement de fréquence d'une onde, lié à la vitesse de déplacement d'un émetteur ou d'un récepteur). Les capteurs mesurent les variations de fréquence qui sont directement liées à la vitesse des particules et donc à celle de l'eau. La combinaison des informations obtenues par les transducteurs permet ainsi de mesurer la vitesse et la direction du courant (Figure 7-2).

L'AWAC fait partie de la nouvelle génération d'ADCP qui couple en un seul appareil les performances d'un ADCP classique et d'une bouée de houle directionnelle (Terray *et al.*, 1999 ; Rørbaek et Anderson, 2000 ; Strong *et al.*, 2000 ; Gordon et Lohrmann, 2001).

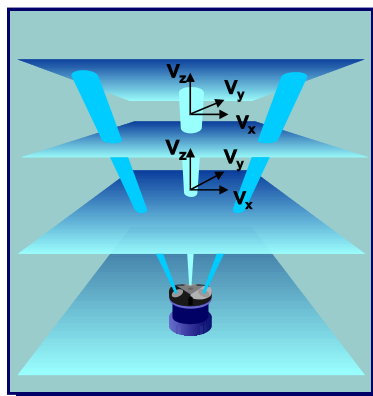


Figure 7-2 : Représentation schématique des mesures ADCP

Ces mesures sont rendues possibles par la combinaison de quatre transducteurs, dont un sur la verticale, couplée à un capteur de pression. Typiquement, l'AWAC est utilisé pour l'enregistrement à long terme du spectre de vagues et des courants entre 5 et 30 m de profondeur. Il a été inséré dans une cage anti-chalutage équipée d'un largeur acoustique permettant de localiser le mouillage sans bouée en surface. L'AWAC a été programmé de la manière suivante :

- Les courants ont été mesurés sur l'ensemble de la colonne d'eau avec une résolution de 1 m de hauteur. La durée d'intégration des mesures de courant était d'une minute avec une fréquence d'acquisition de 1 Hz, au rythme d'une mesure toutes les dix minutes. La précision des mesures de courant est de $\pm 0,5 \text{ cm.s}^{-1}$. La première cellule de mesure se situait entre 1 et 2 m au dessus du fond.
- Les vitesses orbitales des vagues ont été mesurées pour une cellule de 2 m de hauteur située sous la surface. Simultanément, le capteur de pression enregistrait l'évolution de la pression hydrostatique. Ces mesures ont été faites à la fréquence de 2 Hz sur une période de 17 minutes (burst) au rythme d'un burst toutes les deux heures.

L'AWAC dispose de deux mesures différentes et indépendantes du champ de vague, basées sur les mesures du capteur de pression et les composantes des vitesses orbitales. Il est donc possible d'estimer de deux manières différentes les caractéristiques des vagues. Les données ont été traitées avec le logiciel Wavepro (version 1.24 Beta4, Nortek®). Ce logiciel de visualisation et de traitement du signal réalise simultanément deux spectres d'énergie :

- ▲ 1 spectre non directionnel des vagues basé sur les mesures haute fréquence du capteur de pression.
- ▲ 1 spectre directionnel des vagues basé sur les mesures de vitesses orbitales.

Après l'élaboration des spectres (Figure 7-3 et Annexe 7), Wavepro estime la hauteur significative des vagues (H_s) et la période du pic (T_p). La direction moyenne de provenance de la houle ($\bar{\theta}$) est déterminée par l'élaboration de spectres croisés en utilisant une version itérative de la méthode des vraisemblances maximums de Capon (1969), connue sous le nom de IMLM (Krogstad *et al.*, 1988). L'ensemble de cette procédure s'effectue en routine pour la totalité des bursts. En fonction du traitement, les résultats seront dénommé ADCP vitesse et ADCP pression selon qu'ils proviennent du spectre réalisé à partir des données de vitesse orbitale ou des mesures de pression.

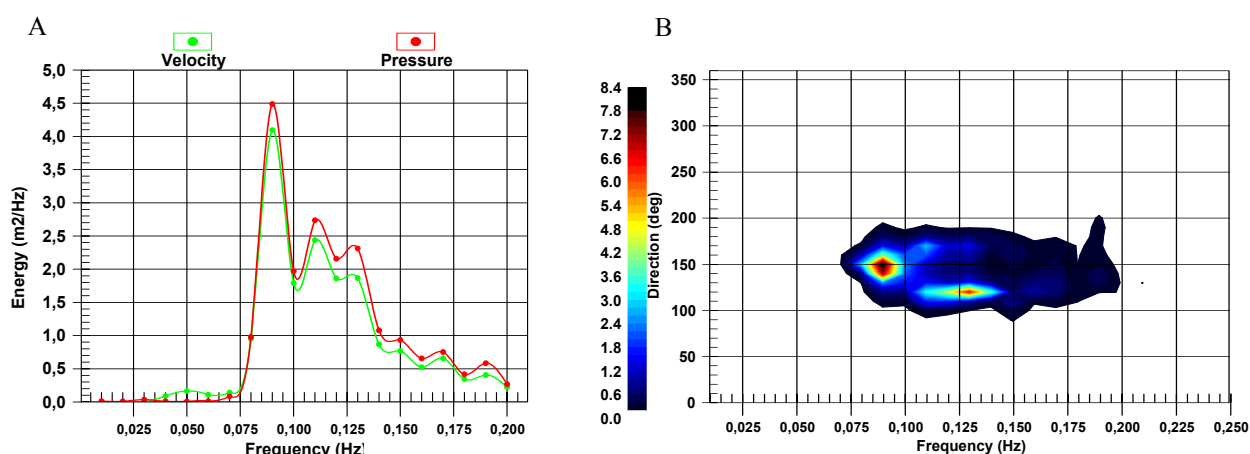


Figure 7-3 : Exemple d'analyse spectrale réalisée pour le 08/05/02 à 7h30 : spectre d'énergie (A) et spectre directionnel d'énergie (B)

Afin de vérifier les résultats obtenus par le logiciel Wavepro, les données brutes du capteur de pression ont été traitées séparément avec le logiciel Matlab. Pour chaque burst, des analyses spectrales nous ont permis d'avoir une seconde estimation des paramètres H_s et T_p .

Pour valider les caractéristiques des vagues mesurées par l'AWAC, nous avons fait référence à une bouée de houle directionnelle située à environ 25 km à l'Ouest de notre point de mesure (Figure 7-1). En effet, le CETMEF (Centre d'Etudes Techniques Maritimes et Fluviales), qui gère le réseau CANDHIS (Centre d'Archivage National de Données de Houle In-Situ), dispose d'une bouée de houle directionnelle (Wave Rider Datawell) mouillée sur un fond de 17 m au large de la pointe de Beauduc (43°21' N ; 04°34' E). Les paramètres des vagues ont été calculés par le CETMEF avec le logiciel Houle 4 à partir du signal de pilonnement de la Datawell enregistré entre le 29 avril et le 4 juin 2002.

Un des intérêts de l'instrumentation ADCP s'est la concomitance, en temps et en espace, des mesures de vitesse de courant et de backscatter (intensité acoustique du signal rétrodiffusé par les particules en suspension). Il est ainsi possible d'étudier de manière indirecte la dynamique des matières en suspension dans la colonne d'eau et en particulier les phénomènes de remise en suspension (Hay et Sheng, 1992 ; Thorne *et al.*, 1993 ; Holdaway *et al.*, 1999 ; Thorne et Hanes, 2002 ; Gartner, 2002).

L'amplitude brute du signal rétrodiffusé de l'AWAC a été corrigée afin d'obtenir un signal de backscatter normalisé (en dB) selon la formulation donnée par Lohrmann (2001) :

$$backscatter = \overbrace{(Amp \times 0,43)}^{(a)} + \overbrace{20 \log_{10}(R)}^{(b)} + \overbrace{(2\alpha_w \times R)}^{(c)} + (20R \int \alpha_p \times dr) \quad \text{Équation 7-1}$$

Avec : Amp : amplitude brute du signal (coups)
 R : distance selon l'axe du beam (m)
 α_w : coefficient d'absorption de l'eau de mer (dB.m⁻¹)
 α_p : coefficient d'atténuation lié aux particules (dB.mg.l⁻¹)

Le backscatter est fonction de la distance de propagation acoustique (a), de l'absorption de l'eau de mer (b) et de l'atténuation du signal par les particules en suspension (c). Dans notre cas, $R = z / \cos(25)$ avec z distance entre les cellules de mesure et l'AWAC ; α_w est fonction de la fréquence d'émission, de la salinité, de la température et de la pression et est égal à 0,46. Par contre, le signal n'a pas pu être corrigé de l'atténuation liée aux particules. Ne disposant pas de données nécessaires pour calibrer le signal du backscatter en fonction de la concentration en matière en suspension, nous avons limité notre approche à un aspect qualitatif. Le backscatter a donc été utilisé pour estimer l'évolution relative de la quantité de matière en suspension.

En parallèle, deux turbidimètres optiques, de type Seapoint[®], ont été connectés à l'AWAC et placés au niveau de la tête de l'ADCP, soit 60 cm au dessus du fond. Compte tenu des fortes variations de turbidité liées à la présence ou non d'un néphéloïde benthique et ou de phénomènes de remises en suspension, deux gammes différentes ont été choisies : 0-25 FTU et 0-125 FTU.

7.2. Estimation de la contrainte de cisaillement due à l'interaction houle-courant

La dynamique sédimentaire est due aux interactions entre l'hydrodynamisme et les structures côtières. Elle passe essentiellement par la prédiction du transport solide qui nécessite une bonne connaissance du frottement de fond. En effet, la contrainte de cisaillement de fond est un paramètre fondamental pour l'étude du transport sédimentaire (§ 4.5). En milieu côtier, cette contrainte résulte de l'action combinée des vagues et des courants (Figure 7-4).

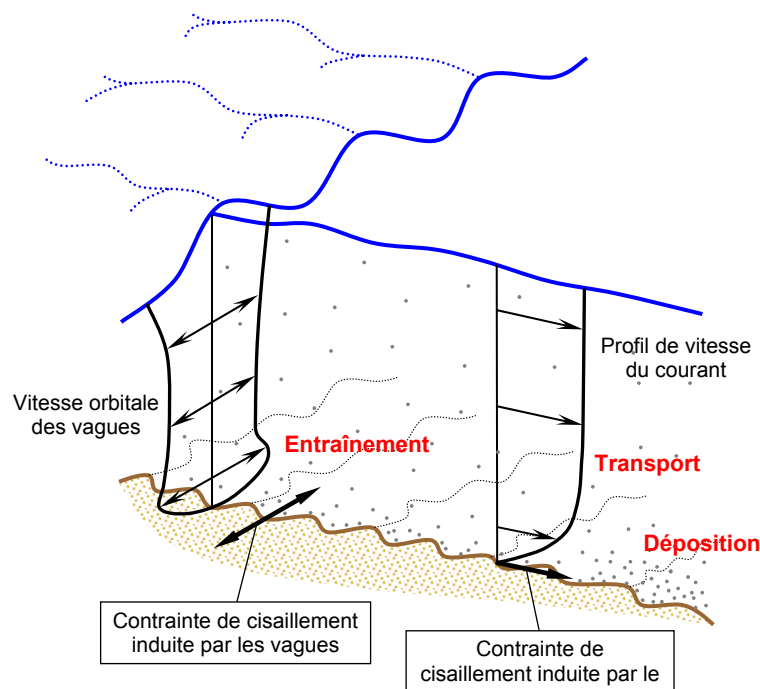


Figure 7-4 : Processus de transport sédimentaire en zone côtière

A l'exception des conditions extrêmes, l'action des vagues est dominante dans les zones de déferlement, c'est-à-dire pour des fonds inférieurs à 5 m. L'interaction houle-courant est prépondérante pour des fonds compris entre 5 et 50 m. Enfin, l'effet du courant devient prédominant pour des fonds supérieurs à 50 m.

Il existe différentes approches pour l'étude du transport sédimentaire mais aucune procédure standard ne fait référence. Dans la plupart des cas, les études sont incomplètes compte tenu du très grand nombre de paramètres à considérer. De plus, ces paramètres sont souvent difficiles à quantifier. Par conséquent, des hypothèses ont dû être formulées et des valeurs par défaut ont été utilisées.

Le présent travail s'inspire de l'approche proposée par Soulsby (1997). Cette partie décrit la procédure et les méthodes utilisées pour l'estimation de la contrainte de cisaillement sur le fond. Cette contrainte résulte de l'action simultanée du courant et de la houle et son estimation s'effectue en trois étapes. Dans un premier temps, les mesures de courant à proximité du fond ont permis d'estimer la contrainte de cisaillement liée au courant seul (τ_c). Puis les mesures de vagues (hauteur, période et direction) ont servi pour estimer les vitesses orbitales sur le fond et les contraintes maximales qu'elles génèrent (τ_w). Enfin, les estimations de τ_c et τ_w ont été couplées afin d'estimer la contrainte maximale de cisaillement de fond résultant de l'interaction entre la houle et le courant ($\tau_{cw \max}$).

7.2.1. Estimation de la contrainte de cisaillement liée au courant seul

Nous avons vu au cours du Chapitre 4 que la contrainte de cisaillement de fond associée au courant seul peut être déterminée par la loi logarithmique, en utilisant les équations 4-4 et 4-5. Il est généralement admis que la couche limite du courant moyen se développe sur 10 à 20 % de la hauteur d'eau (Grant et Madsen, 1986). Nous ferons donc l'hypothèse que la première cellule de mesure de l'AWAC se situe dans la couche limite de fond. Les mesures de courant à 1,5 m du fond permettent alors d'estimer l'évolution temporelle de la contrainte de cisaillement sur le fond. Wang *et al.* (2001) estiment que sans mesure très proche du fond, le calcul de la contrainte de cisaillement par la loi logarithmique donne des résultats avec une erreur relative de 6 %.

7.2.2. Estimation de la contrainte de cisaillement générée par les vagues seules

Les vagues sont des ondes de gravité forcées par le vent et elles sont généralement classées en fonction de leur période. Les vagues de vent, formées par les vents locaux, ont une période courte, de quelques secondes, alors que les houles, formées par un champ de vent éloigné de la zone d'observation, ont une période plus élevée, de l'ordre de 10 s. Les caractéristiques des vagues sont donc étroitement liées au régime de vent (durée, intensité et direction) mais aussi et surtout au fetch du vent, c'est à dire à la longueur d'action du vent sur la surface de la mer.

Les perturbations produites par les vagues en surface sont rapidement atténuées avec la profondeur. En zones côtières, seules les vagues dont la période est suffisamment élevée pourront avoir un effet sur le fond. Soulsby (1997) donne le critère suivant pour que l'effet des vagues puisse toucher le fond.

$$h < 0,1gT^2 \quad \text{Équation 7-2}$$

Avec

- h : hauteur de la colonne d'eau (m)
- g : accélération due à la gravité ($9,81 \text{ m.s}^{-2}$)
- T : période des vagues (s)

Sur le fond, les vagues génèrent un mouvement oscillatoire caractérisé par une vitesse orbitale. L'effet de friction à proximité du fond produit une couche limite oscillante à l'intérieure de laquelle l'amplitude de la vitesse orbitale augmente avec la distance par rapport au fond. Dans la plupart des cas, cette couche limite est turbulente mais elle peut être laminaire pour de faibles vitesses orbitales sur un fond lisse. La couche limite des vagues se développe sur quelques centimètres tout au plus, alors que celle du courant peut atteindre une hauteur de plusieurs mètres. L'énergie des vagues est donc concentrée dans une fine couche limite où le cisaillement et la turbulence sont très intenses. Dans ces conditions, la contrainte de cisaillement générée par les vagues pour une vitesse orbitale donnée sera nettement supérieure à celle créée par un courant ayant une vitesse similaire. Les vagues jouent par conséquent un rôle prépondérant dans la mise en mouvement et l'entraînement des sédiments.

Il existe dans la littérature différentes approches et formulations pour déterminer l'effet des vagues sur le fond. Quelque soit l'approche considérée, il faut dans un premier temps estimer les vitesses orbitales à proximité du fond puis déterminer les contraintes de cisaillement qu'elles exercent sur le lit sédimentaire.

Le cas le plus simple serait de considérer un champ de vagues régulières. Dans ce cas, les vagues peuvent être approximées par une onde monochromatique sinusoïdale (théorie de Airy, du premier ordre). Les vagues sont alors caractérisées par une hauteur (H) et une période (T) unique. La vitesse orbitale de vague (U_w) pour une onde monochromatique peut, en première approximation, être calculée d'après la théorie linéaire par :

$$U_w = \frac{\pi H}{T \sinh(kh)} \quad \text{Équation 7-3}$$

Avec : U_w : vitesse orbitale sur le fond (m.s^{-1})

H : hauteur des vagues (m)

k : nombre d'onde

En réalité, les vagues naturelles sont formées par la superposition de nombreuses ondes périodiques, de fréquences et d'amplitudes différentes. Les vagues sont donc irrégulières et décrivent tout un spectre de hauteur, période et direction en fonction de leur fréquence.

Actuellement, l'ensemble des modèles de vagues utilise des paramétrisations empiriques pour décrire l'évolution de la surface libre. Les spectres les plus couramment utilisés sont le spectre Pierson-Moskowitz (1964) et le spectre JONSWAP (Hasselmann *et al.*, 1973). Le premier est utilisé pour les vagues complètement développées en océan ouvert et le second, qui présente un pic plus marqué, s'applique principalement aux vagues grandissantes sur le plateau continental (Figure 7-5). Le

spectre JONSWAP est plus approprié pour l'étude du transport sédimentaire car il s'applique à des zones peu profondes où l'action des vagues se fait sentir sur le fond. Cette paramétrisation empirique suppose que la dissipation de l'énergie est proportionnelle au spectre de variance de vitesse au fond, mais elle ne prend pas en compte la nature du fond.

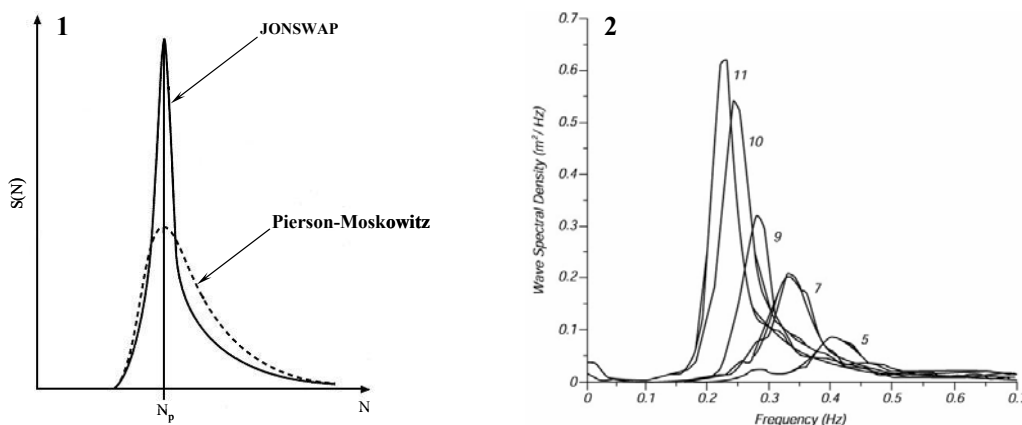


Figure 7-5 : Comparaison des spectres Pierson-Moskowitz et JONSWAP (1) et résultats du spectre JONSWAP pour différents fetchs (2), d'après Hasselmann *et al.*, (1973).

Le spectre d'un champ de vague ($S(N)$) est utilisé pour représenter la répartition de l'énergie des vagues en fonction de leur fréquence (N). L'analyse spectrale est une analyse statistique qui permet de déterminer la fréquence qui concentre l'énergie maximale. Elle permet ainsi de caractériser un champ de vague par une hauteur significative (H_s) et une période du pic (T_p). De cette manière, les vagues naturelles sont fréquemment décrites par un triplet : H_s , T_p , $\bar{\theta}$.

- H_s est une estimation spectrale de la hauteur significative, elle est définie par $H_s = \sqrt{4m_0}$ où m_0 correspond au moment d'ordre zéro de la densité spectrale, égale à la variance de l'élévation de la surface libre.
- T_p représente la période du pic c'est-à-dire la période correspondant au maximum de la densité spectrale ($T_p = 1/N_p$).
- $\bar{\theta}$ correspond à la direction moyenne de propagation de la houle.

A partir de ces paramètres, il est alors possible d'estimer les vitesses orbitales des vagues au niveau du fond. Madsen *et al.* (1988) présentent un modèle de couche limite de fond pour des vagues irrégulières décrites par un spectre de vitesses orbitales sur le fond. Ils montrent qu'une vague périodique caractéristique peut donner une couche limite proche de celle des vagues irrégulières. Cette

vague caractéristique a une hauteur égale à la déviation standard de la hauteur significative des vagues irrégulières (H_{rms}) et une période égale à la période du pic T_p .

$$H_{rms} = H_s / \sqrt{2} \quad \text{Équation 7-4}$$

Sur le fond, les variations de H_{rms} produisent une série temporelle aléatoire de vitesses orbitales. Dans le même sens, Ockenden et Soulsby (1994) montrent que la vitesse de frottement instantanée d'une onde irrégulière peut être calculée en définissant un équivalent pour une onde monochromatique, de la forme :

$$U_w = U_{rms} \times \sqrt{2} \quad \text{Équation 7-5}$$

Avec : U_{rms} : vitesse orbitale calculée par la méthode des moindres carrés (m.s^{-1})

Dans le cadre de ce travail, les vitesses orbitales sur le fond ont été calculées de la manière suivante. Tout d'abord, on détermine une échelle de période de vague qui est fonction de la profondeur, par la relation (Soulsby, 1997) :

$$T_n = (h/g)^{1/2} \quad \text{Équation 7-6}$$

En se basant sur les résultats du spectre JONSWAP et connaissant T_n , T_p et H_s , il est alors possible de déterminer la vitesse orbitale U_{rms} , d'après la Figure 7-6.

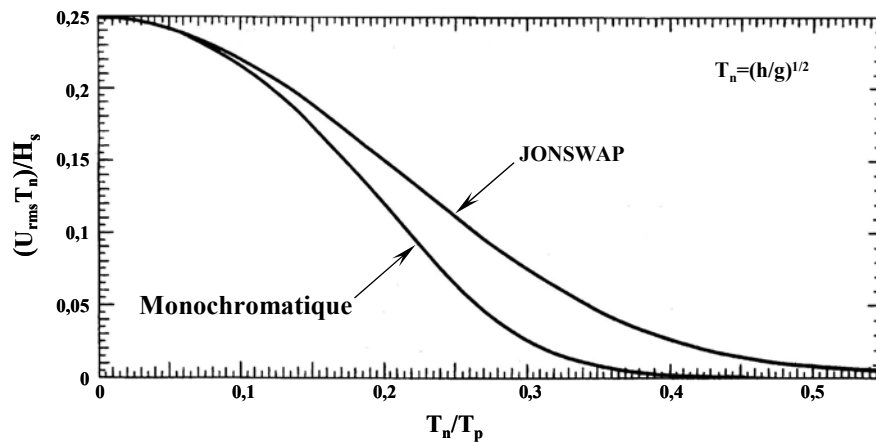


Figure 7-6 : Vitesse orbitale sur le fond pour des vagues monochromatiques et des vagues aléatoires (JONSWAP), d'après Soulsby (1987).

Il est ensuite nécessaire de déterminer la contrainte de cisaillement associée à la vitesse orbitale sur le fond. La contrainte de cisaillement dépend essentiellement de la nature du fond et de sa topographie. Pour estimer la contrainte de cisaillement générée par les vagues (τ_w), nous avons utilisé la formulation donnée par Grant et Madsen (1979) :

$$\tau_w = \frac{1}{2} \rho f_w U_w^2 \quad \text{Équation 7-7}$$

Avec : f_w : facteur de frottement sur le fond associé aux vagues.

Le facteur de frottement des vagues tient compte de la nature de l'écoulement (laminaire ou turbulent) et de la nature du fond (rugueux ou lisse). Le nombre de Reynolds de la houle (R_w) permet de caractériser la nature de l'écoulement au sein de la couche limite.

$$R_w = \frac{U_w A}{\nu} \quad \text{Équation 7-8}$$

Avec A : excursion semi orbitale ; $A = (U_w \times T_p) / 2\pi$
 ν : viscosité cinématique de l'eau de mer ($10^{-6} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$)

Pour des valeurs de R_w inférieures à $5 \cdot 10^5$ l'écoulement est supposé laminaire, dans le cas contraire l'écoulement est turbulent.

Il est également nécessaire de déterminer un coefficient de friction pour un fond rugueux (f_{wr}) et un autre pour un fond lisse (f_{ws}). Ces coefficients de frottement sur le fond ont été calculés à partir de formulations empiriques faisant appel soit à U_w soit à R_w . Dans le cas d'un fond rugueux, plusieurs formules ont été proposées pour calculer le facteur f_{wr} . Pour ce travail, nous avons utilisé la formule donnée par Soulsby *et al.* (1994) :

$$f_{wr} = 1.39 \left(\frac{A}{z_0} \right)^{-0.52} \quad \text{Équation 7-9}$$

Par ailleurs, le coefficient de friction pour un fond lisse a été calculé d'après :

$$f_{ws} = BR_w^{-N} \quad \text{Équation 7-10}$$

Où B et N sont des constantes empiriques qui dépendent de la nature de l'écoulement. Il existe également plusieurs jeux de constantes et nous avons fait le choix d'utiliser les constantes proposées par Soulsby *et al.* (1994) :

B=2	N=0,5	pour $R_w \leq 5 \cdot 10^5$ (écoulement laminaire)
B=0,052	N=0,187	pour $R_w > 5 \cdot 10^5$ (écoulement turbulent)

Dans notre cas, les valeurs maximales de R_w atteignent $2 \cdot 10^5$. Elles sont par conséquent toujours inférieures à $5 \cdot 10^5$, et donc caractéristique d'un écoulement laminaire. De plus, pour le site étudié et sur l'ensemble de la période de mesure, les valeurs de f_{ws} sont toujours supérieures à celles de f_{wr} . Le coefficient de frottement rugueux a donc été négligé par rapport au coefficient de frottement lisse, qui s'exprime alors sous la forme :

$$f_{ws} = 2R_w^{-0.5} \quad \text{Équation 7-11}$$

Au final, la contrainte de cisaillement de fond liée à l'action des vagues seules a été calculée selon la formule :

$$\tau_w = \frac{1}{2} \rho f_{ws} U_w^2 \quad \text{Équation 7-12}$$

7.2.3. Estimation de la contrainte de cisaillement due à l'interaction houle courant

Les zones côtières sont dans la plupart des cas soumises à une action combinée de la houle et des courants qui joue un rôle prépondérant dans la dynamique sédimentaire. Les interactions entre la houle et le courant, notées IHC, peuvent intervenir à plusieurs niveaux :

- modification de la vitesse et de la longueur d'onde des vagues par le courant, pouvant entraîner la réfraction des vagues
- interactions des couches limites dues aux vagues et au courant, ayant pour effet l'augmentation des contraintes de cisaillement sur le fond
- développement de courants long shore (parallèle à la côte) et cross shore (perpendiculaire à la côte) par l'action des vagues

Dans la littérature, différentes approches, formulations et modèles existent pour décrire l'effet combiné des vagues et des courants sur le lit sédimentaire. Jusqu'à la fin des années 70, la plupart des études considéraient l'interaction houle-courant comme linéaire et elles additionnaient simplement le stress lié aux vagues et celui lié au courant. Or, Smith (1977) puis Grant et Madsen (1979) ont montré qu'il s'agissait d'interactions non linéaires. La valeur de la contrainte de cisaillement sur le fond résultant de la superposition de la houle et du courant conduit à une valeur supérieure à celle obtenue par l'addition de τ_c et τ_w (Figure 7-7)

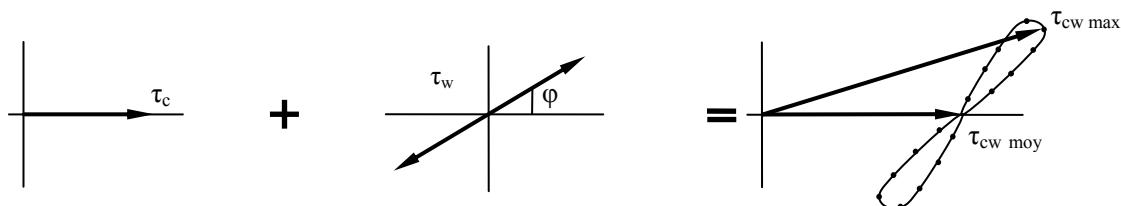


Figure 7-7 : Représentation schématique des interactions non linéaires entre les contraintes de cisaillement du courant (τ_c) et de la houle (τ_w), d'après Soulsby *et al.* (1994)

La première approche de Smith (1977) faisait l'hypothèse que la houle et le courant avaient la même direction et le même sens. En raison de cette hypothèse peu réaliste, Grant et Madsen, 1979 ont proposé une formulation plus générale :

$$\tau_{cw \max} = |\bar{\tau}_c + \bar{\tau}_w| \quad \text{Équation 7-13}$$

Où τ_c est la contrainte liée au courant, τ_w est la contrainte liée à la houle et $\tau_{cw \max}$ est la contrainte maximale associée à l'IHC, exprimée sur une période de vague. La valeur de $\tau_{cw \max}$ est particulièrement importante puisqu'elle permet de déterminer le seuil de mise en mouvement des sédiments.

Soulsby *et al.* (1994) ont dénombré plus d'une vingtaine de modèles et théories différentes pour décrire les interactions houle-courant. Ils ont également comparé les résultats de huit modèles de couche limite de fond à des données expérimentales. La Figure 7-8 présente les résultats de cette intercomparaison, où ϕ est l'angle d'interaction entre le courant moyen et la direction de propagation des vagues, τ_m et $\tau_{\max}$ sont respectivement les contraintes moyenne et maximale résultant de l'interaction houle-courant.

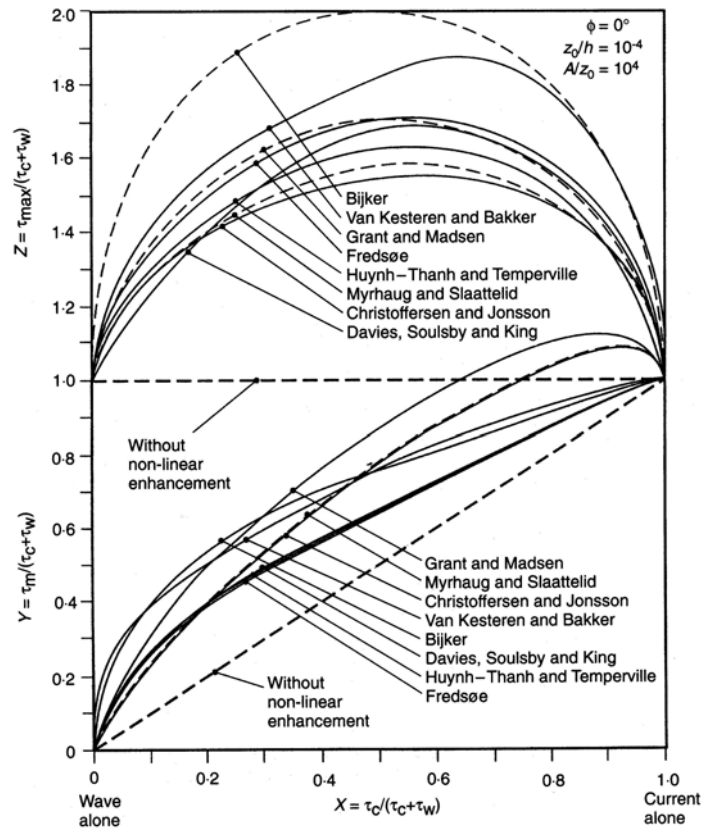


Figure 7-8 : Intercomparaison de différents modèles d'interaction houle-courant (Soulsby *et al.*, 1994).

L'effet de l'IHC s'observe sur la Figure 7-8 par l'écart entre les résultats des différents modèles et les résultats obtenus sans interaction (lignes pointillées). Ces résultats sont calculés en fonction de l'importance relative des vagues et du courant. L'amplification de la contrainte de cisaillement liée à l'IHC est maximale lorsque les actions du courant et des vagues sont du même ordre de grandeur. Par ailleurs, des différences de l'ordre de 30 à 40 % sont fréquemment observées entre ces modèles, et elles dépassent un facteur 2 lors de conditions de fortes houles.

Soulsby *et al.* (1994) proposent des paramétrisations algébriques pour simuler les résultats de différents modèles avec une précision d'environ 5%. Pour ce travail, nous avons testé les paramétrisations de :

- deux modèles analytiques : Grant et Madsen (1979) et Fredsøe (1984)
- deux modèles numériques : Davies *et al.* (1988) et Huynh-Thanh et Temperville (1991)

Ces modèles prennent en considération l'intensité du courant, les caractéristiques des vagues (H_s et T_p), le déphasage entre la direction de propagation de la houle et celle du courant moyen (ϕ), la rugosité du fond (z_0) et la hauteur de la colonne d'eau (h).

Les contraintes de cisaillement moyenne et maximum ont été calculées selon les formulations suivantes :

$$\begin{aligned}\tau_{cw_{moy}} &= Y(\vec{\tau}_c + \vec{\tau}_w) \\ \tau_{cw_{max}} &= Z(\vec{\tau}_c + \vec{\tau}_w) \\ X &= \frac{\vec{\tau}_c}{\vec{\tau}_c + \vec{\tau}_w}\end{aligned}\quad \text{Équations 7-14}$$

Où Y et Z sont des paramètres adimensionnels qui sont exprimés en fonction de X à l'aide de fonctions polynomiales du type :

$$\begin{aligned}Y &= X(1 + bX^p(1 - X)^q) \\ Z &= 1 + aX^m(1 - X)^n\end{aligned}\quad \text{Équations 7-15}$$

Les coefficients a (idem pour les analogues m et n) et b (idem pour les analogues p et q) sont déterminés par les relations suivantes :

$$\begin{aligned}a &= a_1 + a_2|\cos\phi|^I + (a_3 + a_4|\cos\phi|^I) \times \log_{10}(f_w / C_D) \\ b &= b_1 + b_2|\cos\phi|^J + (b_3 + b_4|\cos\phi|^J) \times \log_{10}(f_w / C_D)\end{aligned}\quad \text{Équations 7-16}$$

Selon le modèle considéré, les valeurs des coefficients de paramétrisations sont données dans le Tableau 7-1.

Tableau 7-1 : Coefficients donnés par Soulsby *et al.*, (1994) pour paramétrer différents modèles de couche limite dans le cas des interactions houle-courant.

Modèle*	a_1	a_2	a_3	a_4	m_1	m_2	m_3	M_4	n_1	n_2	n_3	n_4	I
F 84	-0,06	1,70	-0,29	0,29	0,67	-0,29	0,09	0,42	0,75	-0,27	0,11	-0,02	0,80
GM 79	0,11	1,95	-0,49	-0,28	0,65	-0,22	0,15	0,06	0,71	-0,19	0,17	-0,15	0,67
HT 91	-0,07	1,87	-0,34	-0,12	0,72	-0,33	0,08	0,34	0,78	-0,23	0,12	-0,12	0,82
D 88	0,05	1,62	-0,38	0,25	1,05	-0,72	-0,08	0,59	0,66	-0,25	0,19	-0,03	0,82
	b_1	b_2	b_3	b_4	p_1	p_2	p_3	p_4	q_1	q_2	q_3	q_4	J
F 84	0,29	0,55	-0,10	-0,14	-0,77	0,10	0,27	0,14	0,91	0,25	0,50	0,45	3,00
GM 79	0,73	0,40	-0,23	-0,24	-0,68	0,13	0,24	-0,07	1,04	-0,56	0,34	-0,27	0,50
HT 91	0,27	0,51	-0,10	-0,24	-0,75	0,13	0,12	0,02	0,89	0,40	0,50	-0,28	2,70
D 88	0,22	0,73	-0,05	-0,35	-0,86	0,26	0,34	-0,07	-0,89	2,33	2,60	-2,50	2,70

* F 84 : Fredsøe (1984) ; GM 79 : Grant et Madsen (1979) ; HT 91 : Huynh-Thanh et Temperville (1991) ; D 88 : Davies *et al.* (1988)

Pour calculer l'interaction houle-courant, les hypothèses suivantes ont été posées :

- ♣ le courant est homogène en vitesse et en direction sur l'ensemble de la colonne d'eau
- ♣ les vagues ne déferlent pas
- ♣ le fond est lisse et sans ride
- ♣ la longueur de rugosité du lit sédimentaire est égale à 10^{-5} m.

7.3. Résultats de la campagne de mesures in situ

Avant d'aborder les résultats des mesures in situ, nous présentons les conditions environnementales rencontrées lors de la campagne *RHONAWAC* et en particulier les différents forçages externes.

7.3.1. Les forçages environnementaux

7.3.1.1. Evolution des conditions météorologiques

Les données météorologiques ont été enregistrées à Port de Bouc par Météo France. Cette station de mesure est située à moins de 10 km du mouillage de l'AWAC et nous ferons l'hypothèse que ces données sont représentatives des conditions météorologiques rencontrées face à l'embouchure du Rhône. La Figure 7-9 présente les conditions météorologiques enregistrées du 29 avril au 04 juin 2002. Le régime de vent est dominé par le Mistral dont l'orientation varie du Nord au Nord-Ouest. Les rafales de Mistral les plus fortes ont été enregistrées le 27 mai avec des pointes à 90 km.h^{-1} . Ce régime est contrebalancé par de fréquentes renverses de vents au Sud-Est. Le coup de vent de Sud-Est le plus remarquable atteint en rafales 70 km.h^{-1} entre les 21 et 23 mai. Par ailleurs, les précipitations sont généralement suite à une renverse des vents passant du Sud-Est au Nord-Ouest. Les précipitations cumulées les plus abondantes ont été enregistrées les 2 et 3 mai.

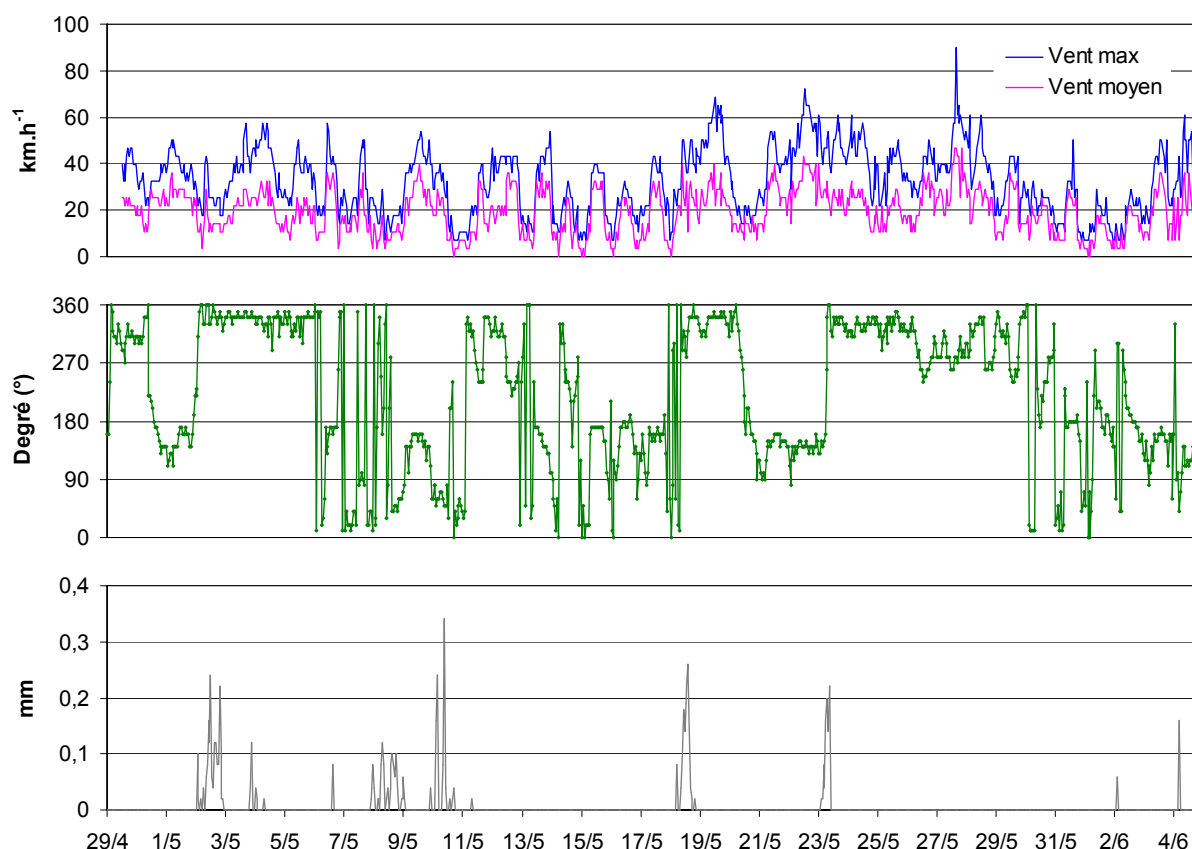


Figure 7-9 : Evolution temporelle des vents maximum et moyen (vitesse et direction) et des précipitations.

Durant la période de mesure, toutes les conditions de vents caractéristiques de la zone d'étude ont été observées (Figure 7-10).

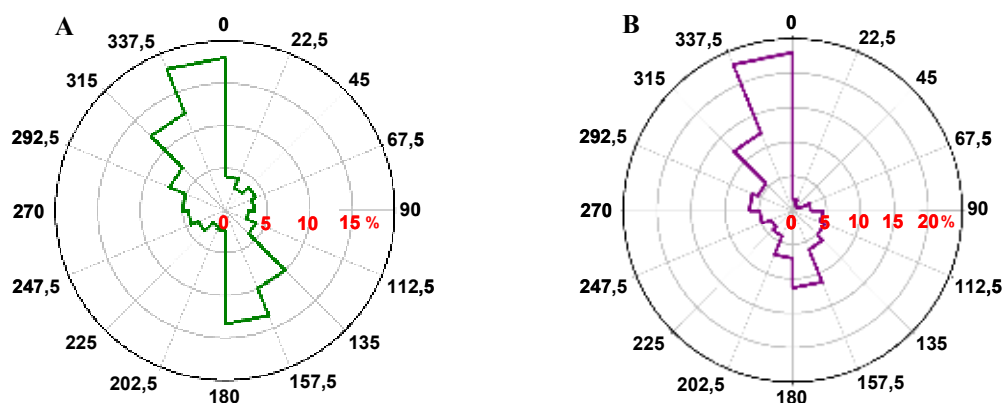


Figure 7-10 : Roses des vents enregistrés à Port de Bouc durant la campagne *RHONAWAC* (A) et à Marignane de 1984 à 1994 (B).

Sur les 37 jours de mesures, les vents de secteur Nord à Ouest représentent presque 45 % des observations et les vents de Sud à Sud-Est environ 30 %. Ces fréquences sont en accord avec les observations à plus long terme qui donnent environ 50 % pour l'ensemble Mistral-Tramontane et 25 % pour les vents de Sud-Est. Les conditions de vent rencontrées lors de la campagne de mesure seront donc considérées comme caractéristiques des conditions météorologiques locales.

7.3.1.2. Evolution du débit du Rhône

Les débits du Rhône ont été mesurés en Arles, soit 70 km en amont de l'embouchure, par la Compagnie Nationale du Rhône (Figure 7-11).

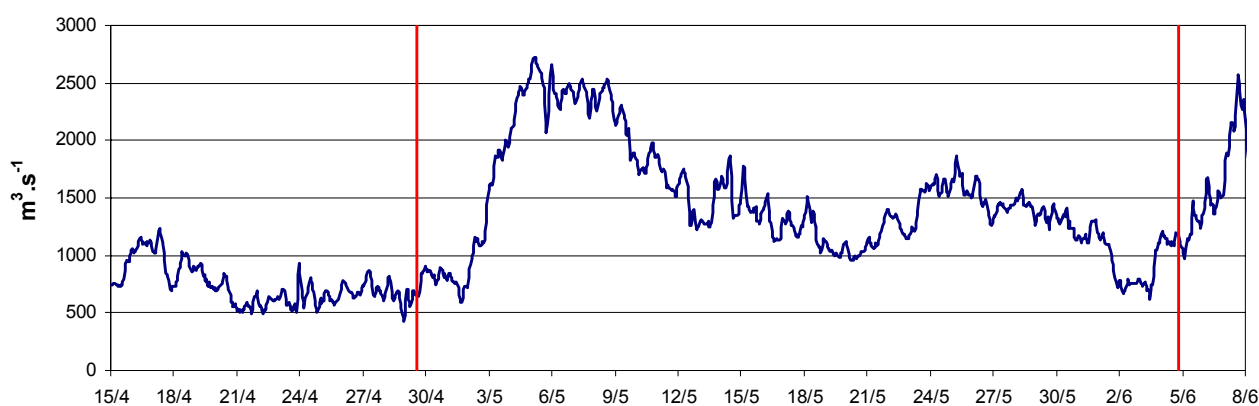


Figure 7-11 : Débits du grand Rhône enregistrés en Arles par la Compagnie Nationale du Rhône du 15/04 au 15/06/02. Les dates de la campagne *RHONAWAC* sont rappelées en rouge.

La période précédant la campagne de mesure est caractérisée par plus de 15 jours d'étiage avec un débit moyen de l'ordre de $700 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$. En concomitance avec les précipitations, le débit du Rhône augmente subitement le 2 mai pour atteindre un débit de $2700 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$ le 5 mai. En 3 jours, le débit du fleuve est multiplié par un facteur 4. Il se maintient aux alentours de $2500 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$ jusqu'au 8 mai puis diminue pour atteindre un débit moyen de $1300 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$ jusqu'au 4 juin, date de la fin des mesures.

Si nous replaçons les débits du Rhône mesurés lors de cette étude dans un contexte plus général, nous constatons qu'entre 1974 et 2002, les débits inférieurs à $3000 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$ représentent 90 % des observations (§ 3.2). En effet, si le régime de crue est fixé au seuil de $3000 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$, il apparaît alors que les crues représentent moins de 10 % du temps. Le régime hydraulique de $2700 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$ du 5 mai ne peut donc pas être considéré comme une crue du Rhône. Cette augmentation rapide du débit sera considérée comme un signal fort mais non exceptionnel.

7.3.1.3. Influence de la marée

Le capteur de pression mesure les variations de la pression hydrostatique liées à la hauteur d'eau et fournit des informations sur le signal de marée.

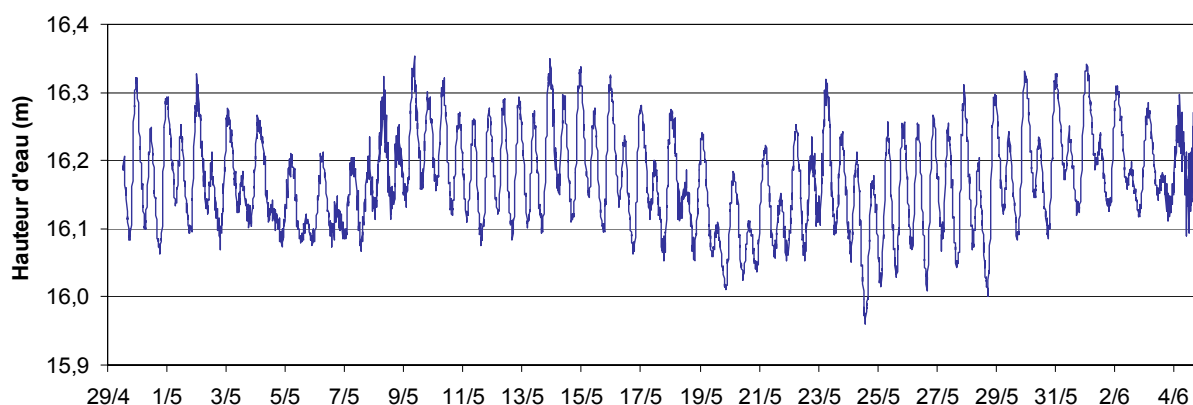


Figure 7-12 : Evolution temporelle de la hauteur d'eau mesurée par la capteur de pression de l'AWAC.

La Figure 7-12 met en évidence un cycle de marée de type semi-diurne à inégalité diurne. La période principale du signal est de 12 h 10 mn, ce qui correspond à la composante principale de la lune. L'alternance entre la période de mortes-eaux et la période de vives-eaux est d'environ 15 jours. Au niveau de l'embouchure du Rhône, l'amplitude de marée est comprise entre 10 et 15 cm de hauteur. Par conséquent, les courants de marée sont extrêmement faibles (Lamy *et al.*, 1981 ; Alberola *et al.*, 1995) et ils seront négligés pour la suite de ce travail.

7.3.2. Résultats des mesures de courant, de backscatter et de turbidité

La Figure 7-13 présente l'ensemble des mesures de vitesse et de direction du courant faites par l'AWAC ainsi que l'intensité du signal rétrodiffusé. Les cellules situées au dessus de 14 m de hauteur par rapport au fond ont été supprimées en raison des interférences de lobes secondaires liées à la proximité de la surface.

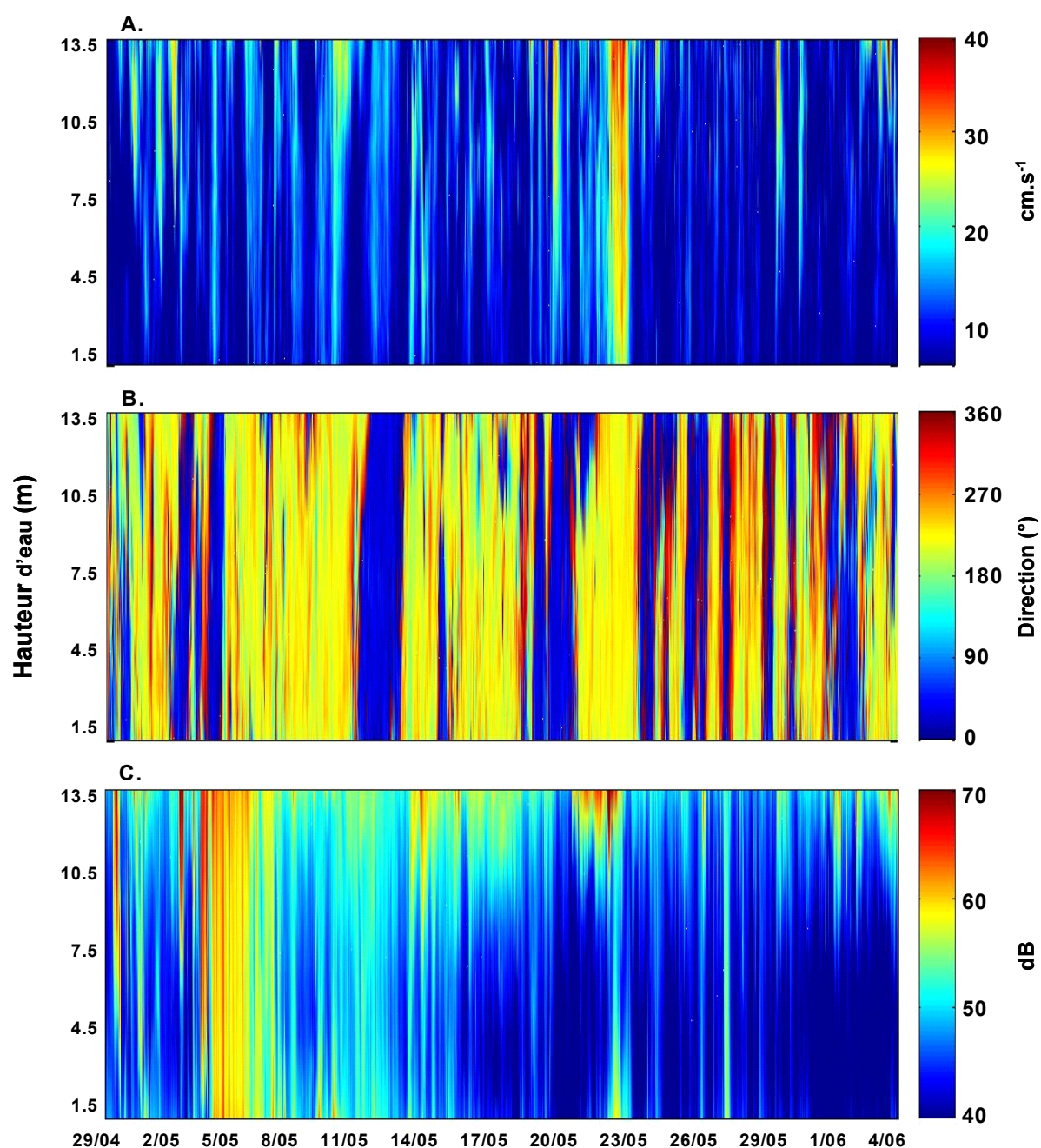


Figure 7-13 : Evolution temporelle de la vitesse du courant (A), de la direction du courant (B) et du backscatter (C) enregistrées à la station Roustan Est pendant la campagne *RHONAWAC*.

Le courant apparaît homogène sur l'ensemble de la colonne d'eau avec des phénomènes épisodiques comme les 22 et 23 mai où les vitesses atteignent plus de 30 cm.s^{-1} . La direction du courant est également bien homogène et les cas de stratification avec le développement d'un système bi-couche sont rares. A l'embouchure du Rhône, le courant dominant porte au Sud-Ouest de 180° à 270° (en jaune). Un courant secondaire dirigé vers le Nord-Est (en bleu) se manifeste épisodiquement.

Le signal rétrodiffusé présente une succession d'augmentations avec en particulier une période bien marquée de fortes intensités à partir du 4 mai. Cette augmentation touche l'ensemble de la colonne d'eau et fait suite à l'augmentation du débit du Rhône. D'autres signaux secondaires, plus éphémères dans le temps, apparaissent notamment les 1, 10, 23 et 28 mai. Ces pics d'intensités, qui sont généralement accompagnés d'une augmentation du courant comme le 22 mai, suggèrent le développement de phénomènes de remise en suspension.

✓ *Les mesures de courants et de turbidité à proximité du fond*

Vis-à-vis de la dynamique sédimentaire et des phénomènes de remise en suspension, notre intérêt s'est focalisé sur la dynamique des courants de fond (Figure 7-14). La vitesse moyenne du courant à 1,5 m du fond n'est que de 7 cm.s^{-1} . Les vitesses supérieures à 15 cm.s^{-1} représentent environ 5 % des observations (Figure 7-15). Les courants de fond montrent également deux directions privilégiées avec un courant de fond dominant orienté au Sud-Ouest et un courant secondaire portant au Nord-Est. En effet, 55 % des observations sont comprises entre 180° et 270° et seulement 30 % comprises entre 0° et 90° . Cette distribution s'accroît au regard des courants supérieurs à 15 cm.s^{-1} puisque 86 % sont orientés au Sud-Ouest contre seulement 10 % dirigés vers le Nord-Est. Les directions du courant sont clairement contraintes par la topographie du fond et généralement parallèles aux isobathes.

L'augmentation du backscatter traduit une augmentation de la charge particulaire qui pourrait être liée aux apports solides du Rhône ainsi qu'à des phénomènes de remise en suspension. Nous verrons par la suite (§ 7.5) si les augmentations du backscatter peuvent être expliquées par l'évolution de la contrainte de cisaillement sur le fond en essayant de déterminer l'occurrence des phénomènes de remise en suspension.

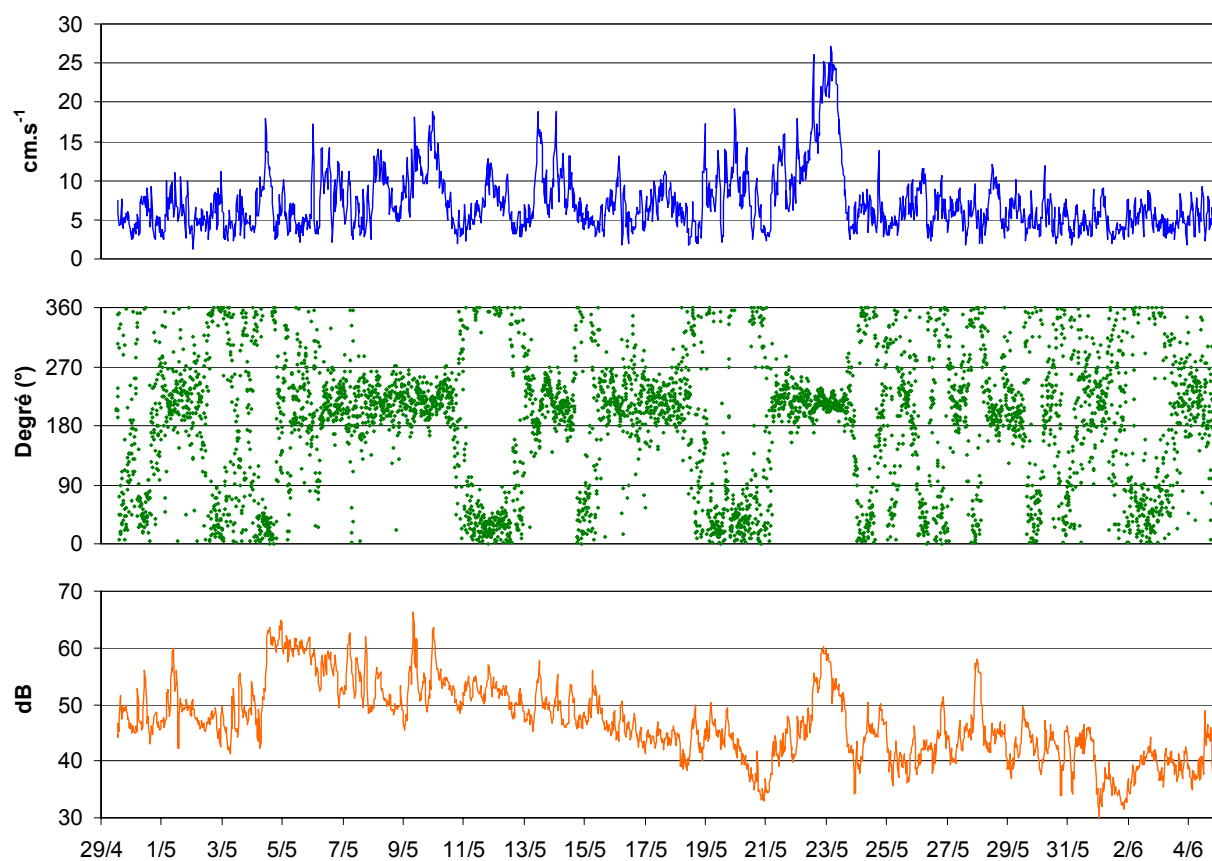


Figure 7-14 : Evolution temporelle de la vitesse et de la direction du courant de fond et du backscatter à 1,5 m du fond (moyennés sur 30 mn)

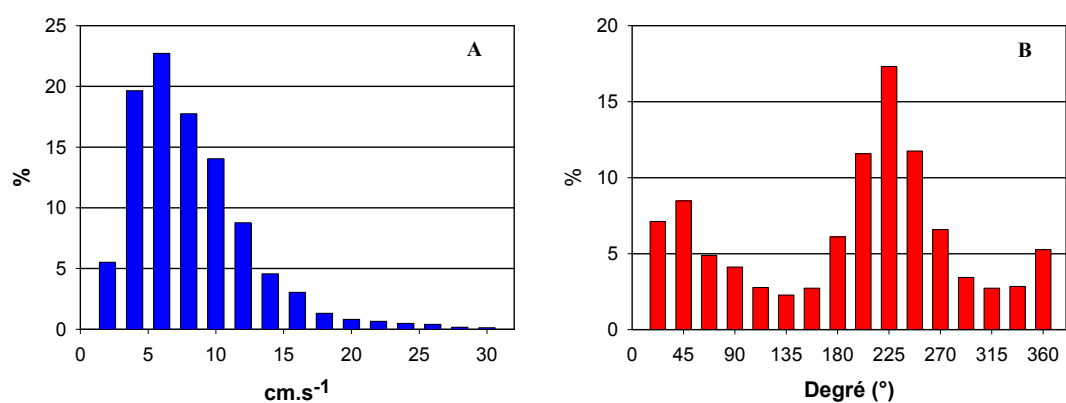


Figure 7-15 : Histogrammes des vitesses (A) et directions (B) du courant de fond (1,5 m) à l'embouchure du Rhône sur la période du 29 avril au 5 juin 2002.

En parallèle des données acquises par l'AWAC et en complément du backscatter, nous comptons sur les mesures de 2 turbidimètres pour suivre indirectement la concentration des matières en suspension au niveau du fond. Malheureusement, les données de turbidité présentent de nombreux phénomènes de saturation qui rendent une grande partie des données inexploitable (Figure 7-16). Ces phénomènes de saturation peuvent être imputés à une très forte augmentation de la turbidité de l'eau de fond. Cette augmentation pourrait s'expliquer par la présence d'un néphéloïde benthique liée aux apports du Rhône et à des phénomènes locaux de remise en suspension.

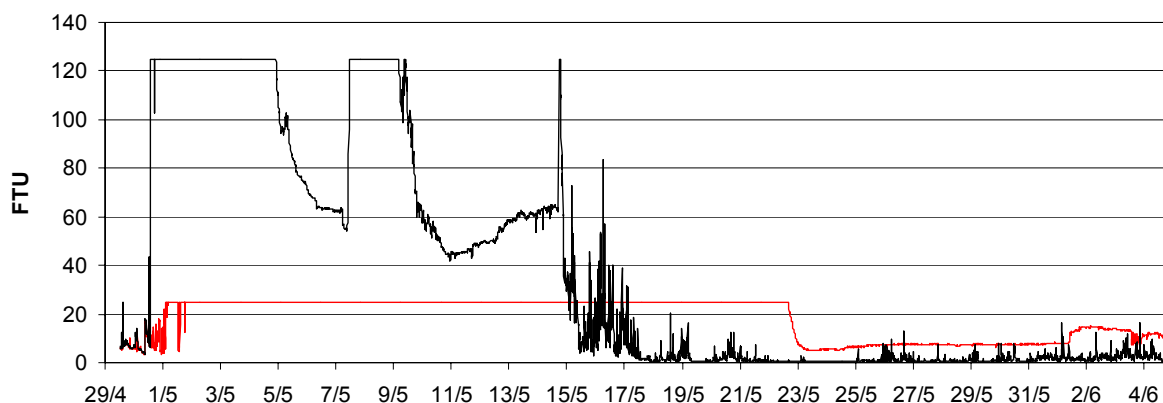


Figure 7-16 : Evolution temporelle des mesures de turbidité à 0,6 m du fond

7.3.3. Détermination des caractéristiques des vagues

Les résultats des différentes estimations de H_s , T_p et $\bar{\theta}$ sont présentés sur la Figure 7-17.

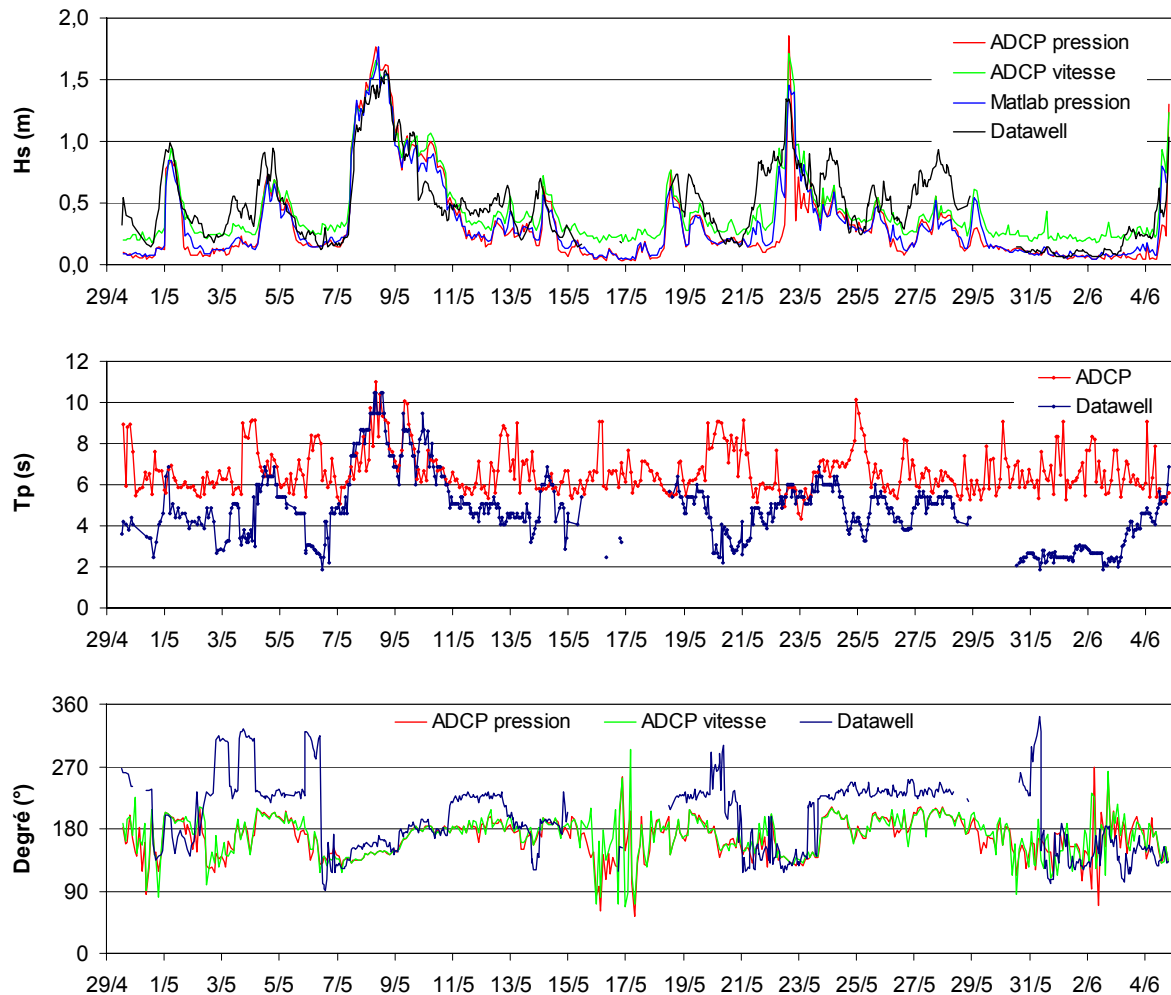


Figure 7-17 : Evolution temporelle de la hauteur significative des vagues (H_s), de la période du pic (T_p) et de la direction de provenance de la houle (θ), obtenues d'après les données de l'ADCP, de Matlab et de la Datawell.

Dans l'ensemble, les estimations de la hauteur significative des vagues montrent une bonne adéquation entre les sorties du logiciel Wavepro et le traitement des mesures de pression avec Matlab. Pour réaliser les analyses spectrales, nous avons utilisé un filtre car l'estimation de la hauteur significative dépend des fréquences de vagues considérées. La meilleure correspondance a été obtenue en utilisant un filtre passe-bas à 0,2 Hz, c'est-à-dire en supprimant les vagues de vent dont la période est inférieure à 5 secondes (Annexe 8). Seules les vagues possédant une longueur d'onde et donc une période suffisamment grande par rapport à la profondeur pourront avoir un impact sur le fond. Les vagues de vent n'auront par conséquent aucun effet sur un fond de 16 m. D'une manière générale, le

spectre basé sur la vitesse est plus sensible aux vagues de vent et par conséquent surévalue la hauteur significative des vagues et de même sous estime la période du pic. Par contre, le capteur de pression est plus fiable pour les vagues dont la période est supérieure à 7 s.

Globalement, les mesures de vagues réalisées par l'AWAC sont cohérentes avec celles de la Datawell, malgré quelques divergences imputées aux méthodes de mesure d'une part et à la différence de localisation d'autre part. Les différences sont plus marquées pour les mesures de T_p que de H_s . En fait, la Datawell, qui mesure l'élévation de la surface libre, est plus sensible aux vagues de vents que l'ADCP, mouillé par 16 m de fond. De plus, les différences entre les 2 appareils sont observées pour des houles de Sud-Ouest. La Datawell située à la pointe de Beauduc était plus exposée aux houles venant du Sud-Ouest que l'AWAC. D'autant plus, que l'AWAC était mouillé sur le flanc Est du prodelta du Rhône et donc vraisemblablement abrité des houles de Sud-Ouest. Dans l'ensemble, les mesures de la Datawell viennent valider les mesures de vagues réalisées par l'AWAC et elles seront utilisées pour estimer les contraintes de cisaillements sur le fond.

Les houles enregistrées du 29 avril au 4 juin 2002 correspondent à un régime de la houle "significative" tel que le décrit Blanc (1996). Ce régime est caractérisé par une hauteur significative comprise entre 1,5 et 1,75 m pour une période moyenne d'environ 6 secondes. Blanc (1996) estime que la probabilité d'apparition de ce régime est de 53 % du temps annuel. Par contre, nos données ne sont pas représentatives d'un régime de tempête dont la fréquence d'apparition est inférieur à 3 % du temps.

7.4. Validation du protocole des expériences de remise en suspension

Un des objectifs des mesures in situ était de comparer le stress hydrodynamique imposé dans le canal à courant par rapport à celui mesuré à l'embouchure du Rhône. Pour faire cette comparaison, il faut tenir compte non seulement des vitesses du courant mais également de ses accélérations.

A l'embouchure du Rhône, les courants de fond atteignent une vitesse maximum de 30 cm.s^{-1} (Figure 7-18, A). En comparaison, la vitesse maximum imposée dans le canal à courant au niveau de la section test était de 35 cm.s^{-1} . La gamme de vitesse appliquée dans le canal à courant est donc en accord avec les mesures de terrain.

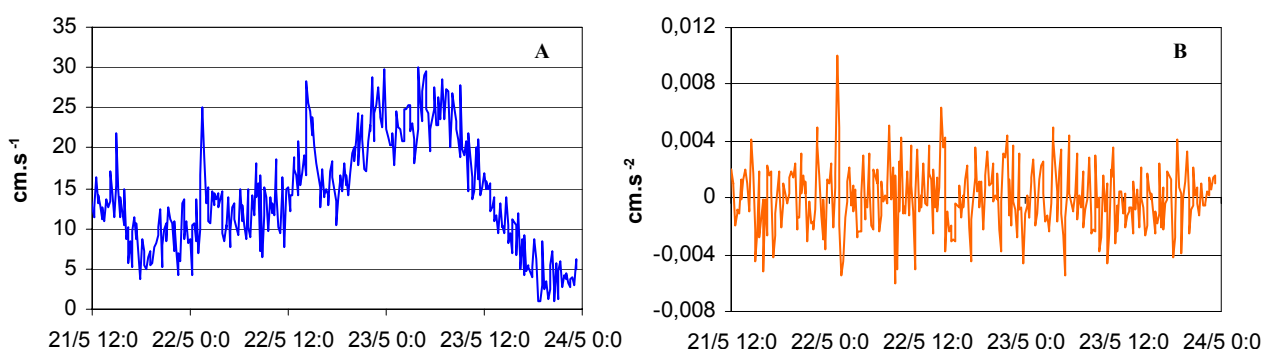


Figure 7-18 : Vitesses (A) et accélérations (B) du courant de fond pour la période du 21 au 24/05/02

Par ailleurs, le protocole expérimental impose dans le canal une accélération constante du courant égale à $0,01 \text{ cm.s}^{-2}$ (§ 6.2). Or, dans le milieu les accélérations du courant fluctuent en permanence (Figure 7-18, B). Sur les 37 jours de mesure, l'accélération moyenne du courant de fond est de $0,004 \text{ cm.s}^{-2}$ avec des maximums pouvant atteindre $0,02 \text{ cm.s}^{-2}$ (Figure 7-19). L'accélération du courant dans le canal est donc deux fois supérieure à l'accélération moyenne des courants de fond. Cependant, dans certains cas, des accélérations deux fois plus importantes peuvent être observées à l'embouchure du Rhône.

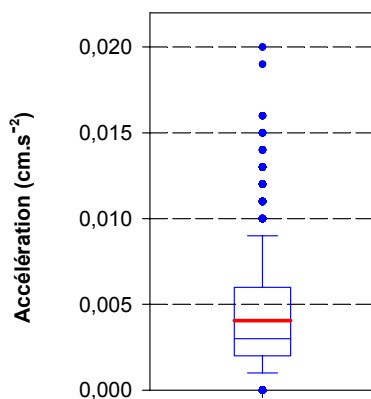


Figure 7-19 : Diagramme de Tuckey représentant les accélérations du courant mesurées par l'AWAC (moyenne $0,004 \text{ cm.s}^{-2}$)

Dans l'ensemble, on constate une bonne adéquation entre les conditions expérimentales et les conditions in situ. Les mesures ADCP permettent donc de valider le protocole mis en place lors des expériences de remise en suspension puisque les paramètres imposés (vitesse, accélération) correspondent bien à une réalité terrain. Dans ce cas, les flux d'érosion et de remobilisation du Pu déterminées en canal à courant ont une vraie légitimité.

7.5. Etude des contraintes de cisaillement sur le fond

L'étude de la dynamique sédimentaire à partir de mesures in situ passe par l'estimation de la contrainte de cisaillement sur le fond.

7.5.1. Résultats de la contrainte de cisaillement liée au courant seul

A partir des mesures de courant à 1,5 m au dessus du fond, nous avons calculé la contrainte de cisaillement lié au courant seul, d'après l'équation 4-5.

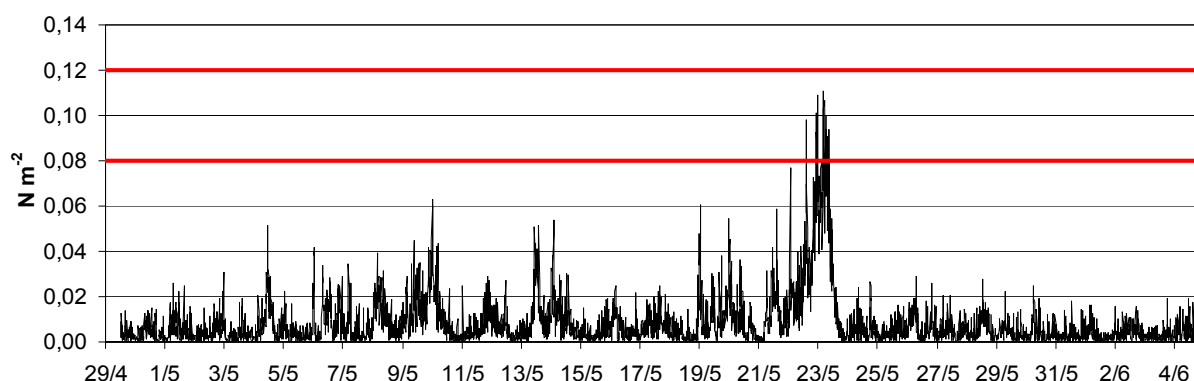


Figure 7-20 : Evolution temporelle de la contrainte de cisaillement de fond liée au courant seul

Sur la période de mesure, la contrainte moyenne de cisaillement sur le fond exercé par le courant n'est que de $2,4 \cdot 10^{-3} \text{ N.m}^{-2}$. Par contre, la contrainte maximum imposée par le courant sur le lit sédimentaire atteint le 23 mai un maximum de $0,11 \text{ N.m}^{-2}$. Sur la Figure 7-20 sont reportées les valeurs minimum et maximum de la contrainte critique d'érosion déterminées expérimentalement pour la station Roustan Est au cours du Chapitre 6 ($\tau_{\text{ero min}} = 0,08 \text{ N.m}^{-2}$ et $\tau_{\text{ero max}} = 0,12 \text{ N.m}^{-2}$). Sur l'ensemble de la période, la valeur de $\tau_{\text{ero min}}$ est dépassée sur 0,3 % du temps et la valeur de $\tau_{\text{ero max}}$ n'est jamais atteinte. A cette station, la remise en suspension des sédiments liée à l'action du courant seul n'est donc pas un phénomène fréquent et ne permet pas d'expliquer, à l'exception du 23 mai, les augmentations de turbidité mises en évidence par le backscatter.

7.5.2. Résultats de la contrainte de cisaillement liée aux vagues seules

En zones côtières, l'action des vagues joue un rôle prépondérant dans la dynamique sédimentaire. Ayant plusieurs estimations cohérentes des paramètres des vagues, il est alors possible de calculer la contrainte de cisaillement imposée par les vagues sur le fond (Figure 7-21).

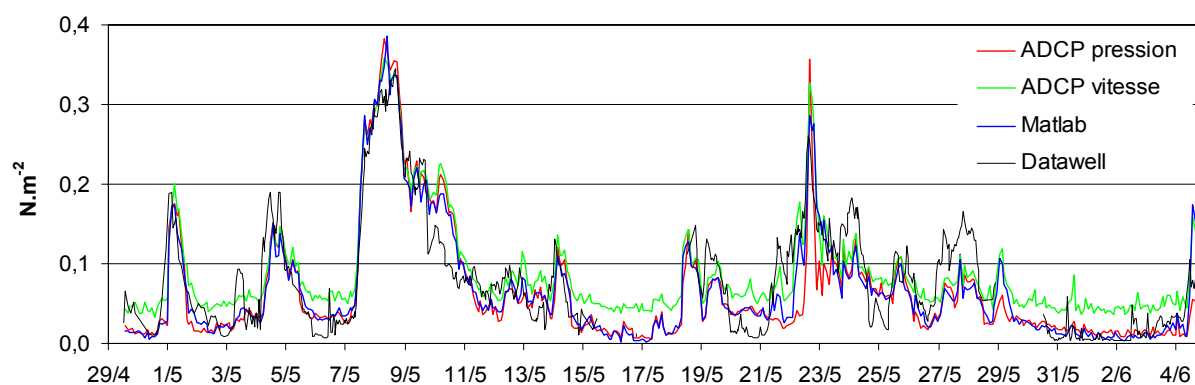


Figure 7-21 : Estimations des contraintes de cisaillement sur le fond liées aux vagues (τ_w) pour les différentes mesures (ADCP, capteur de pression Matlab et Datawell)

Comme pour les caractéristiques des vagues, les différentes estimations de τ_w sont en accord les unes avec les autres. Les contraintes imposées par la houle sont beaucoup plus importantes que celles imposées par le courant, avec un maximum approchant $0,4 \text{ N.m}^{-2}$. Dans ces conditions, les contraintes critiques d'érosion déterminées expérimentalement sont fréquemment dépassées. Sur la période de mesure, τ_w est supérieure à $0,08 \text{ N.m}^{-2}$ et à $0,12 \text{ N.m}^{-2}$ respectivement pour 30 et 15 % du temps. Ces mesures mettent en évidence le rôle déterminant des vagues dans la remise en suspension des sédiments.

7.5.3. Résultats de la contrainte de cisaillement liée à l'interaction houle-courant

Compte tenu de l'ensemble des données acquises, il est possible d'estimer la contrainte de cisaillement liée à l'IHC ($\tau_{cw \text{ max}}$). Cette interaction repose principalement sur la différence d'angle, appelé déphasage (ϕ), entre la direction de propagation de la houle et la direction du courant moyen. Si le courant et la houle ont la même direction et le même sens alors le déphasage est nul. Par contre s'ils ont la même direction mais un sens contraire alors le déphasage est de 180° . L'évolution temporelle du déphasage entre la houle et le courant moyen est présentée sur la Figure 7-22.

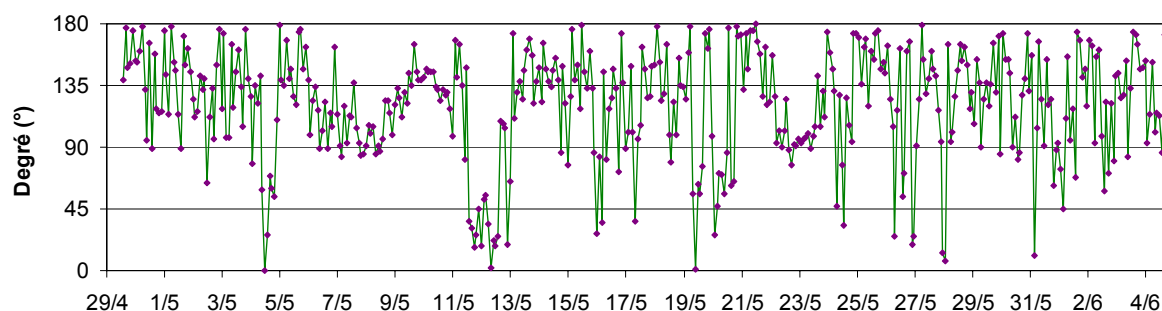


Figure 7-22 : Variations temporelles du déphasage entre la direction de propagation de la houle et la direction du courant moyen.

La houle et le courant sont très rarement superposés et présentent un déphasage moyen de 120° . Par la suite, nous avons calculé les valeurs de $\tau_{cw \max}$ à l'aide des paramétrisations données par Soulsby *et al.* (1994) pour 4 modèles d'interactions houle-courant. Les résultats obtenus pour les différents modèles sont très proches (Annexes 9 et 10) et nous avons considérés un résultat moyen correspondant à la moyenne des résultats des 4 modèles. La Figure 7-23 présente l'évolution temporelle de $\tau_{cw \max}$ moyen, calculée pour les différentes séries de mesures.

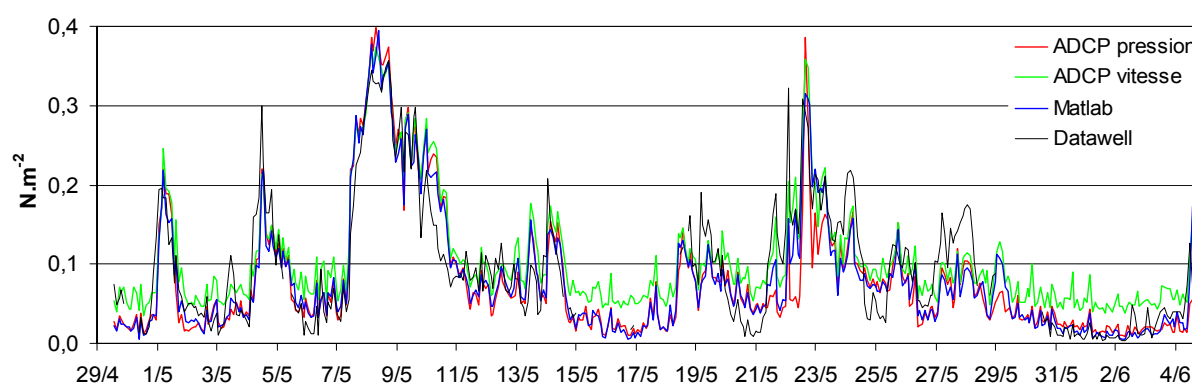


Figure 7-23 : Estimations des contraintes de cisaillement sur le fond liées aux interactions houle-courant

L'interaction houle-courant augmente d'autant plus la contrainte de cisaillement de fond que le déphasage est faible. Dans le cas du 5 mai, l'interaction houle-courant augmente la contrainte de cisaillement de près de $0,1 \text{ N.m}^{-2}$. Néanmoins, les résultats obtenus pour $\tau_{cw \max}$ diffèrent peu des résultats obtenus précédemment pour τ_w . Si l'on considère l'ensemble des résultats de la Figure 7-23, l'estimation de $\tau_{cw \max}$ faite à partir des données traitées sous Matlab représente une solution moyenne et nous avons fait le choix de la retenir pour la suite de ce travail.

Pour étudier la dynamique sédimentaire du prodelta du Rhône et en particulier les phénomènes de remise en suspension, nous avons comparé l'évolution temporelle de $\tau_{cw \max}$ et celle du backscatter sur le fond (Figure 7-24).

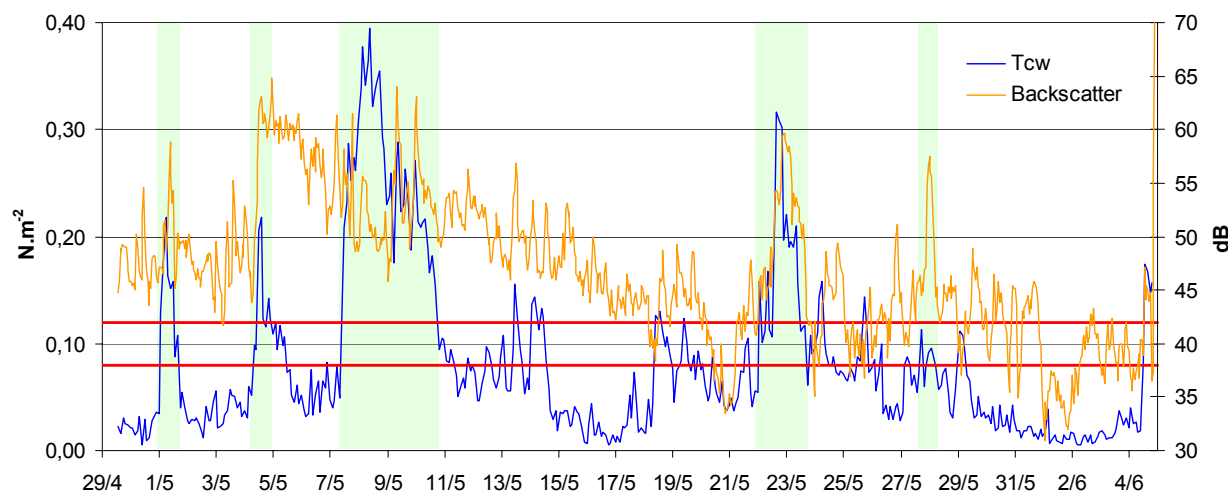


Figure 7-24 : Comparaison du backscatter et de $\tau_{cw \max}$ vis-à-vis des contraintes critiques d'érosion déterminées en canal à courant pour la station Roustan Est.

D'une manière générale, les augmentations de $\tau_{cw \max}$ permettent d'expliquer les augmentations du backscatter. Dans la plupart des cas, les valeurs maximums de $\tau_{cw \max}$ sont en phase avec de fortes intensités du backscatter. Ce synchronisme s'explique par de fréquents épisodes de remise en suspension. En effet, dès que $\tau_{cw \max}$ atteint la valeur de la contrainte critique d'érosion, la remise en suspension des sédiments de surface débute et entraîne l'augmentation de l'intensité du backscatter. Les contraintes critiques d'érosion déterminées par l'expérience en canal à courant sont cohérentes avec les résultats des mesures in situ. Cependant, il apparaît difficile d'estimer avec précision la contrainte critique d'érosion à partir des données in situ, car non seulement le signal du backscatter est très bruité mais de plus il n'est pas possible de distinguer des particules advectées, provenant par exemple d'apports solides du Rhône, de particules remises en suspension.

Sur l'ensemble de la période de mesure, les contraintes critiques d'érosion minimum et maximum sont respectivement dépassées pour 36 % et 19 % du temps. Sur un fond de 16 m, la remise en suspension des sédiments du prodelta du Rhône est donc un phénomène fréquent. Cette étude met en évidence le rôle prépondérant de la houle dans la dynamique sédimentaire du prodelta. La houle intervient principalement dans la mise en mouvement du sédiment alors que le courant participe au transport et à la dispersion des sédiments à plus grande échelle.

7.5.4. Etude de cas caractéristiques

En terme de dynamique sédimentaire, différentes situations ont été rencontrées au cours de la période de mesure. Certaines de ces situations sont discutées ci-dessous.

✓ *Influence du débit du Rhône*

Dans un premier temps, la situation du 2 au 5 mai nous permet de discuter l'influence du débit du Rhône sur la dynamique des sédiments face à l'embouchure. L'augmentation du débit du Rhône la plus significative est observée à partir du 2 mai et le débit maximum de $2700 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ en Arles est atteint le 5 mai (§ 7.3). En concomitance avec l'augmentation du débit, le signal du backscatter augmente sur l'ensemble de la colonne d'eau. Cependant, on observe un temps de latence, d'environ deux jours, entre le début de l'augmentation du débit en Arles (le 2 mai vers 8h) et l'augmentation du signal du backscatter (le 4 mai vers 8h). Ce délai s'explique par le temps de transit des eaux du Rhône entre Arles et l'embouchure. Pour un débit d'environ $2000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, Naudin *et al.* (1997) estime ce temps de transit aux alentours de 24 h. Il faut également tenir compte du temps nécessaire pour que le débit atteigne un niveau seuil susceptible de remettre en suspension les stocks sédimentaires du lit du Rhône et ainsi entraîner l'exportation de matières solides. Le signal du backscatter montre que l'exportation s'effectue sur toute la hauteur de la colonne d'eau. Cet exemple met en évidence le caractère impulsif de l'exportation du matériel particulaire rhodanien.

Sur cette période, le Mistral souffle en moyenne à $30 \text{ km} \cdot \text{h}^{-1}$ avec des rafales atteignant les $60 \text{ km} \cdot \text{h}^{-1}$. La direction de provenance de la houle passe du Sud-Est au Sud-Ouest et la contrainte de cisaillement sur le fond atteint $0,2 \text{ N} \cdot \text{m}^{-2}$. Cette contrainte est suffisante pour éroder le lit sédimentaire et les sédiments remis en suspension sont advectés par un courant de fond qui porte au Nord-Est. Dans ce cas, l'exportation du matériel particulaire rhodanien est donc accompagnée de remises en suspension locales.

✓ *Cas d'un coup de vent de Sud-Est*

Au total, trois périodes bien marquées de vent de Sud-Est ont pu être enregistrées :

- Le 1^{er} mai, une renverse de vent au Sud-Est favorise l'apparition d'une houle de Sud-Est dont la hauteur significative est inférieure à 1 m. Néanmoins, cette houle suffit pour produire une contrainte de cisaillement de $0,2 \text{ N} \cdot \text{m}^{-2}$ et donc pour déclencher la remise en suspension des sédiments.
-
- A partir du 8 mai, les vents de Sud-Est génèrent pendant 3 jours une houle bien développée de Sud-Est ($H_s=1,8\text{m}$ et $T_p=10\text{s}$). Sur le fond, cette houle crée une contrainte de cisaillement maximum d'environ $0,4 \text{ N} \cdot \text{m}^{-2}$. Pour une telle contrainte, la remise en suspension des sédiments de surface ne fait

pas de doute, même si l'augmentation du backscatter n'est pas proportionnelle au niveau de cette contrainte.

- Du 22 au 24 mai, le vent de Sud-Est favorise le développement d'une houle significative ($H_s=1,5\text{m}$) dont la période du pic n'est que de 6 secondes. En parallèle, on observe un courant longshore dirigé au Sud-Ouest dont la vitesse atteint 30 cm.s^{-1} . La contrainte de cisaillement liée à l'IHC atteint une valeur de $0,3\text{ N.m}^{-2}$. Simultanément le backscatter augmente rapidement témoignant d'une intense remise en suspension des sédiments prodeltaïques.

Il est à noter que pour les périodes de vent de Sud-Est, les courants de fond sont quasiment toujours orientés au Sud-Ouest. Dans ces conditions, la translocation des sédiments remis en suspension s'effectuera dans cette direction privilégiée.

✓ *Cas d'un coup de Mistral*

Le coup de Mistral le plus significatif est enregistré le 27 mai avec des rafales à 90 km.h^{-1} . A cette date, on observe uniquement des vagues de vent provenant du sud-Ouest ($H_s=0,5\text{cm}$ et $T_p=6\text{s}$). Au niveau de l'embouchure du Rhône, le fetch du Mistral est bien trop limité pour générer une houle significative. Sur le fond, le signal du backscatter augmente significativement tandis que la contrainte de cisaillement atteint tout juste $0,1\text{ N.m}^{-2}$. L'augmentation du signal du backscatter pourrait correspondre à des phénomènes de remise en suspension sur le flanc Sud-Ouest du prodelta. Les sédiments remis en suspension seraient alors "rabattus" vers notre point de mesure par les courants de fond dirigés au Nord-Est.

✓ *Comparaison entre un Mistral et un vent de Sud-Est de 40 km.h^{-1}*

A titre d'exemple, nous avons comparé les effets sur le fond exercés par un Mistral et un vent de Sud-Est d'une vitesse moyenne de 40 km.h^{-1} . Cette situation est rencontrée du 19 au 25 mai (Figure 7-25). Le début de la période est marqué par un coup de Mistral. Les courants de fond varient alors entre 5 et 15 cm.s^{-1} et portent au Nord-Est. La contrainte de cisaillement, de l'ordre de $0,1\text{ N.m}^{-2}$, est accompagnée d'une légère hausse du backscatter. A partir du 21 mai, le vent tourne au Sud-Est et provoque un changement de direction du courant au Sud-Ouest. Le temps de réponse du courant de fond, vis-à-vis du changement de direction du vent, est de l'ordre de 12 h . Le courant de fond augmente rapidement pour atteindre un maximum de 30 cm.s^{-1} . La contrainte de cisaillement atteint alors plus de $0,3\text{ N.m}^{-2}$ et le signal du backscatter atteint quasiment son maximum. Le 23 mai au soir est caractérisé par une renverse de vent au Mistral. Le courant de fond s'oriente rapidement au Nord-Est et diminue de 25 à 5 cm.s^{-1} en quelques heures. En parallèle, on observe une forte diminution de la contrainte de cisaillement accompagnée d'une baisse significative du backscatter.

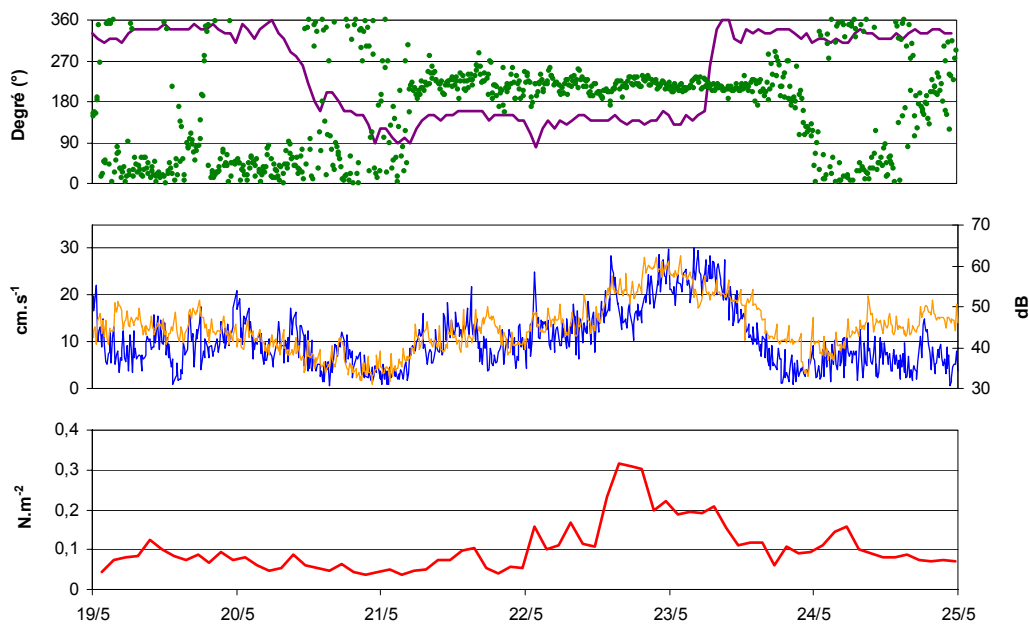


Figure 7-25 : Evolution de la direction du vent (violet), de la direction du courant de fond (vert), de la vitesse du courant de fond (bleu), du backscatter (orange) et de la contrainte de cisaillement de fond due à l'interaction houle-courant (rouge).

Pour une force de vent similaire, les vents de Sud-Est créés une contrainte sur le fond 3 fois plus importante que celle générée par le Mistral. La remise en suspension des sédiments prodeltaïques est donc très contrastée et dépend essentiellement de la direction du vent. Ces exemples mettent en évidence l'importance des vents et des houles de Sud-Est dans la dynamique sédimentaire face à l'embouchure du Rhône et leur implication dans l'érosion des sédiments du prodelta du Rhône.

7.6. Résumé des mesures in situ

Pour une compréhension globale de la dynamique du prodelta du Rhône, nous avons regroupé les principaux résultats de cette campagne de mesures in situ sur la Figure 7-26. Ces résultats nous permettent de discuter l'influence des conditions environnementales sur la dynamique des sédiments à l'embouchure du Rhône.

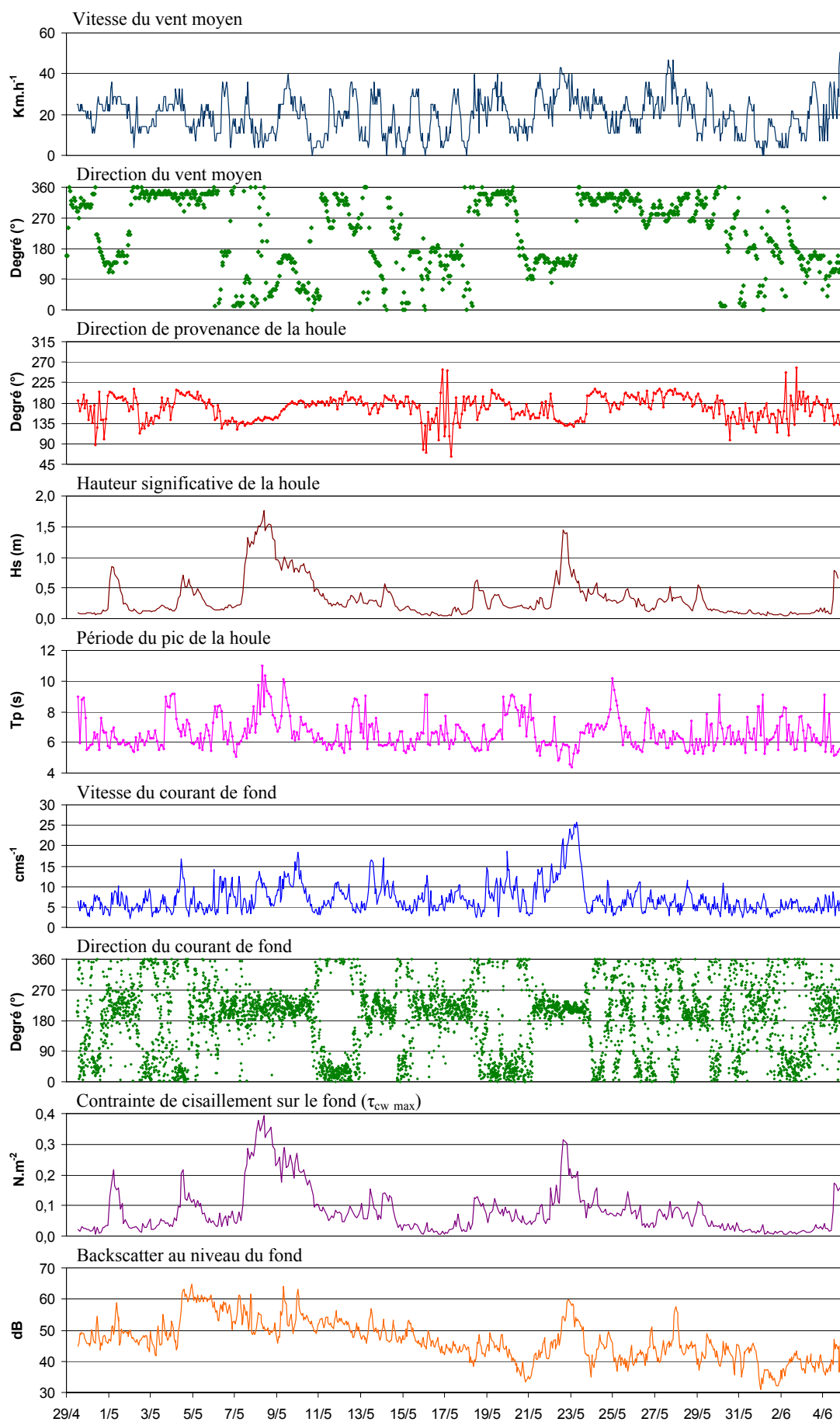


Figure 7-26 : Synthèse des principaux paramètres mesurés et calculés lors de la mission *RHONAWAC*.

Les conditions de vents, le débit du Rhône et la circulation locale sont les principaux forçages de l'embouchure du Rhône. En surface, la dynamique du panache de dilution des eaux rhodaniennes est directement liée aux conditions météorologiques et au débit du Rhône (Demarcq et Wald, 1984). Sur le fond, la dynamique des courants est également sous la dépendance directe des conditions de vent. Le Mistral induit principalement un courant de fond dirigé au Nord-Est alors que les vents de Sud-Est génèrent un courant portant au Sud-Ouest (Figure 7-27).

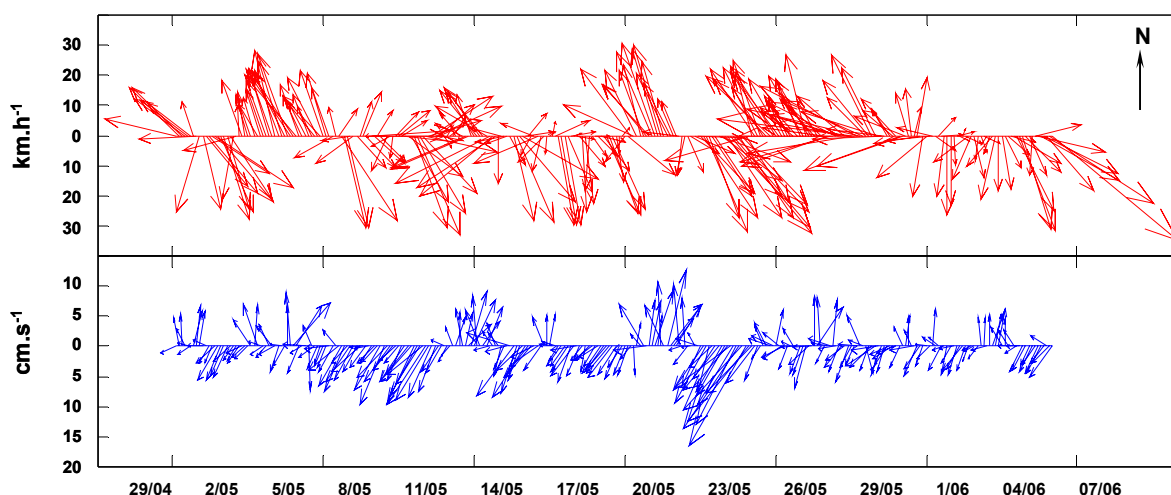


Figure 7-27 : Représentation vectorielle du vent moyen horaire (A) et du courant de fond moyen horaire (B) sur l'ensemble de la période de mesure.

A l'embouchure du Rhône, la dynamique hydro-sédimentaire présente donc deux situations bien contrastées, en fonction de la direction du vent.

7.6.1. Dynamique à l'embouchure du Rhône par Mistral et Tramontane

Le Mistral et la Tramontane sont des vents de terre qui possèdent des fetchs restreints en direction du prodelta du Rhône. A l'embouchure du Rhône, ils génèrent principalement des vagues de vents et parfois des houles courtes provenant du Sud Sud-Ouest. Ces houles se forment épisodiquement lors des renverses de vents de Sud-Est au Nord-Ouest avec une dépression située au niveau des Baléares. Les houles de Sud-Ouest engendrent un faible courant de dérive car il est réfracté par le haut fond du prodelta du Rhône (Kondrachoff, 1995). Par vent de Nord Nord-Ouest, Demarcq et Wald (1984) ont montré par l'étude d'images satellitales que le panache du Rhône s'oriente au Sud Sud-Ouest (Figure 7-28). Ils estiment que le panache est fréquemment dévié à 50° sur la droite du vent. Ces premiers résultats ont été confortés par de nombreuses études (Naudin *et al.*, 1997 ; Broche *et al.*, 1998) qui ont permis de développer la modélisation (Kondrachoff, 1995 ; Marsaleix *et al.*, 1998 ; Estournel *et al.*, 1997, 2001 ; Arnoux-Chiavassa *et al.*, 1999, 2003).

Le Mistral et la Tramontane ont tendance à “décoller” le panache de la côte et à l’entraîner en direction du Sud. Plus au large, le panache est dévié vers le Sud-Ouest sous l’effet de la force de Coriolis et repris par la circulation générale imposée par le courant nord. Ce régime de vent favorise ainsi l’exportation directe des apports solides du Rhône en surface vers le plateau continental.

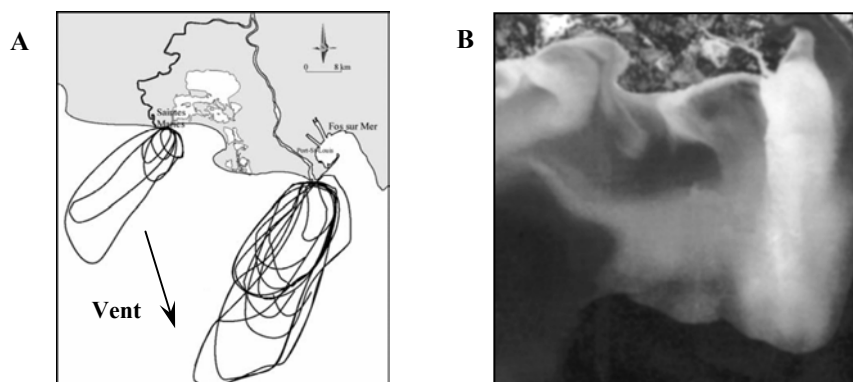


Figure 7-28 : Dynamique du panache du Rhône pour un régime de vent de Nord Nord-Ouest (A), d’après Demarcq et Wald (1984). Image du Satellite SPOT (B) prise le 11/11/94 pour un Mistral de 10 m.s^{-1} et un débit du Rhône de $5500 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$, d’après Estournel *et al.* (2001).

En parallèle, ces vents sont à l’origine d’une décote du niveau marin à la côte et favorisent le développement d’un courant de compensation sous le panache (upwelling). Sur le fond, ce contre courant est orienté au Nord Nord-Est et n’excède que très rarement les 10 cm.s^{-1} . Les mesures in situ sont en accord avec les premières observations de Pauc (1970) face au grau de Roustan. Il décrit un déplacement des eaux marines profondes en sens inverse du courant d’eau douce superficiel. Ce courant dont la vitesse n’est que de quelques cm.s^{-1} est dévié vers le Nord-Est par la barre d’embouchure (Figure 7-29).

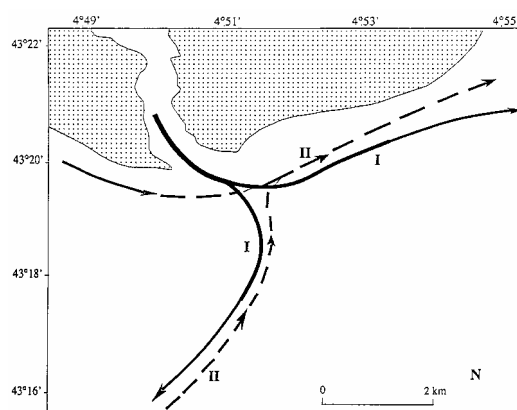


Figure 7-29 : Dynamique des courants de surface (I) et des courants de fond (II) à l’embouchure du Rhône pour un vent de Nord-Ouest (Pauc, 1970)

Par Mistral, Sabatier (2001) montre que les houles de Sud-Ouest génèrent 2 dérives littorales :

- la première longe les côtes de Camargue, d'Ouest en Est, en direction du prodelta
- la seconde est parallèle au they de la Gracieuse et se dirige vers l'Est en direction du golfe de Fos

En terme de dynamique sédimentaire, les contraintes de cisaillement de fond associées aux vents de Nord-Ouest sont généralement faibles. Sur notre période de mesure, elles atteignent un maximum de $0,2 \text{ N.m}^{-2}$. Dans ces conditions, les sédiments remis en suspension sont advectés par un courant de fond dirigé au Nord-Est.

7.6.2. Dynamique de l'embouchure du Rhône par vent de Sud-Est

Les vents de secteur Sud-Est ont tendance à plaquer le panache du Rhône à la côte (Figure 7-30) et donc à s'opposer à l'exportation de matières solides vers le large. Dans ces conditions, la dessalure gagne la pointe de Beauduc et les côtes de Camargue. Une composante du panache peut également longer le they de la Gracieuse et pénétrer dans le golfe de Fos (Marsaleix *et al.*, 1998).

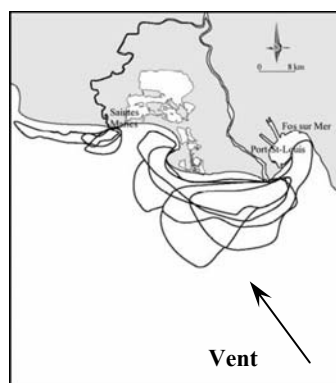


Figure 7-30 : Dynamique du panache du Rhône pour un régime de vent d'Est à Sud-Est, d'après Demarcq et Wald (1984).

Les vents de Sud-Est possèdent des fetchs importants et génèrent des houles longues ($T_p > 10 \text{ s}$) bien développées à l'approche de la côte. Les houles de Sud-Est produisent des courants longshores orientés au Sud-Ouest et dont la vitesse peut atteindre 30 cm.s^{-1} . Les contraintes de cisaillement les plus élevées atteignent $0,4 \text{ N.m}^{-2}$ et elles sont toutes associées à des houles de Sud-Est (Figure 7-31, A). De plus, toutes les fortes contraintes sont observées pour un courant de fond orienté au Sud-Ouest (Figure 7-31, B) qui favorise la dispersion vers le large du matériel particulaire remis en suspension.

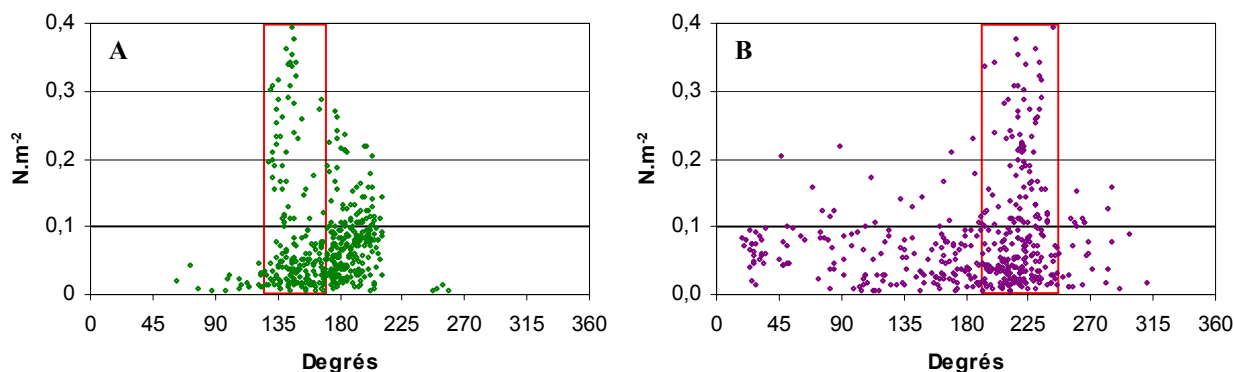


Figure 7-31 : Distribution des contraintes de cisaillement de fond liée à l'interaction houle courant ($\tau_{cw \max}$) en fonction de la direction de la houle (A) et du courant de fond (B).

Par ailleurs, les mesures in situ ont permis de mettre en évidence l'importance des phénomènes de remise en suspension face à l'embouchure du Rhône. En considérant une contrainte critique d'érosion moyenne de $0,1 \text{ N.m}^{-2}$ pour les sédiments de la station Roustan Est, les phénomènes de remise en suspension représentent alors 30 % du temps d'observation. La Figure 7-32 résume la dynamique de fond mesurée lors de la campagne *RHONAWAC*.

Mistral et Tramontane

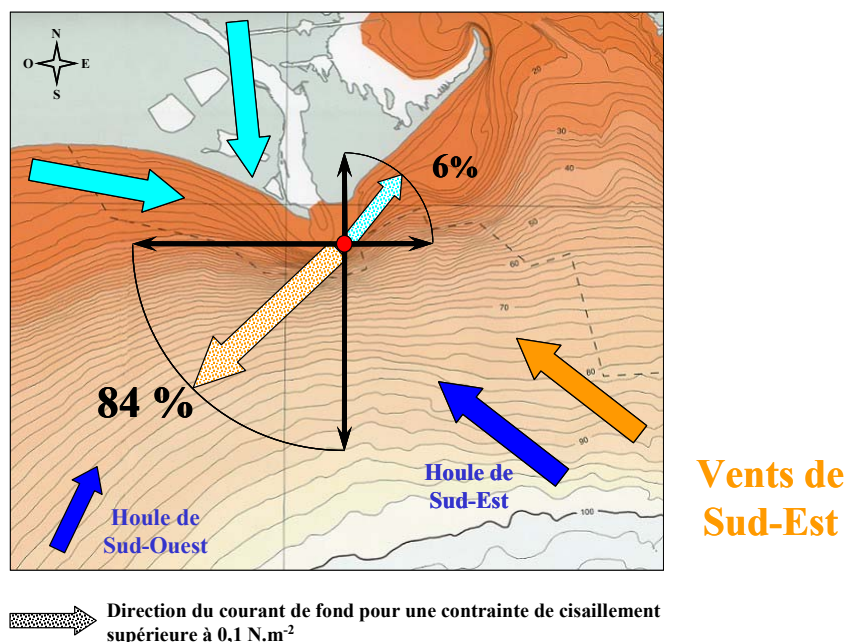


Figure 7-32 : Illustration de la dynamique de fond à l'embouchure du Rhône en fonction de la direction du vent.

Le Mistral et la Tramontane sont parfois accompagnés d'une houle de Sud-Ouest et ils génèrent un courant de dérive orienté au Nord-Est. Dans ces conditions, les contraintes de cisaillement sur le fond liées à l'IHC atteignent au maximum $0,2 \text{ N.m}^{-2}$. Sur les 37 jours de mesure, seuls 6 % des contraintes de cisaillement supérieures à $0,1 \text{ N.m}^{-2}$ sont associées à un courant qui porte au Nord-Est. A l'opposé les vents de Sud-Est favorisent le développement de houles longues provenant également du Sud-Est. Ces houles sont déterminantes pour la remise en suspension des sédiments du prodelta du Rhône. Dans ces conditions, un courant longshore favorise la dispersion des sédiments remis en suspension à plus de 80% en direction du Sud-Ouest.

En fonction de la direction du vent, il existe donc un découplage entre la dispersion du matériel particulaire en surface et celle sur le fond. En effet, les vents de Nord Nord-Ouest favorisent la dispersion des apports solides du Rhône en surface alors que la dynamique de fond s'oppose à la dispersion du matériel particulaire. A l'inverse, les vents de Sud-Est freinent la dispersion de surface en confinant le panache à la côte et favorisent la dispersion des sédiments remis en suspension par des courants longshores qui portent au Sud-Ouest. Ces résultats soulignent l'existence d'un découplage temporel des processus de dispersion du matériel particulaire. Il est donc possible d'envisager 2 scénarios bien distincts avec une exportation accrue du matériel particulaire :

- ✧ en surface vers le Sud-Ouest par période de Mistral et de Tramontane
- ✧ au fond en direction du Sud-Ouest lors des coups de vents de Sud-Est

7.6.3. Conclusions

Cette contribution à l'étude de la courantologie de l'embouchure du Rhône montre tout l'intérêt des mesures in situ pour une meilleure connaissance des contraintes de cisaillement de fond et des phénomènes de remise en suspension. Les résultats des mesures in situ ont dans un premier temps permis de valider le protocole expérimental des expériences de remise en suspension en canal à courant. De plus, les contraintes critiques d'érosion déterminées au laboratoire sont cohérentes avec les estimations des contraintes de cisaillement faites à partir des données in situ. De toute évidence, la remise en suspension des sédiments à l'embouchure du Rhône est un phénomène important. Les vents de Sud-Est et la houle qu'ils génèrent sont les principaux agents de la dynamique sédimentaire du prodelta du Rhône. L'effet de la houle sur le fond est prédominant pour la remise en suspension des sédiments. Les courants de fond interviennent essentiellement dans la redistribution des sédiments remis en suspension. En fonction des conditions de vent, il existe un découplage entre le dynamique de surface et la dynamique de fond. Mais en moyenne, tous les facteurs concordent pour une dispersion préférentielle des apports du Rhône et des sédiments remis en suspension en direction du Sud-Ouest.

CHAPITRE 8

8. Synthèse et bilan

L'approche pluridisciplinaire de ce travail a permis dans un premier temps d'étudier la distribution du plutonium dans les sédiments situés face à l'embouchure du Rhône. Dans un deuxième temps, des expériences de remise en suspension ont été réalisées afin d'étudier la remobilisation physique du plutonium. Enfin, la troisième partie avait pour objectif d'étudier in situ la dynamique sédimentaire du prodelta du Rhône en se focalisant sur les phénomènes de remise en suspension. La compilation de l'ensemble des résultats acquis au cours de ce travail devait nous permettre d'établir un bilan plus précis sur le devenir du plutonium à l'embouchure du Rhône.

8.1. Distribution des stocks de plutonium

Les stocks de plutonium contenus dans les sédiments de la zone étudiée (495 km²) ont été estimés à 92 ± 7 GBq en ²³⁸Pu et 522 ± 44 GBq en ^{239,240}Pu. Les distributions horizontale et verticale du plutonium sont très hétérogènes puisque 50 % de ces stocks sont actuellement compris sur une aire de 100 km² à proximité de l'embouchure du Rhône. A l'échelle de la zone étudiée, l'intensité des taux de sédimentation et la fréquence des phénomènes de remise en suspension sont fonction de la distance à l'embouchure. Par conséquent, les domaines prodeltaïque et distal présentent des dynamiques bien distinctes qui permettent d'expliquer, du moins en partie, la distribution du plutonium.

Sous l'effet de la floculation, les apports solides du Rhône sédimentent massivement au niveau de la zone prodeltaïque et entraînent une accumulation importante du plutonium. Sur le prodelta, les inventaires en plutonium s'étirent sur plus de 4,5 m de la colonne sédimentaire. A Roustan, 90 % de ces inventaires sont actuellement enfouis sous plus de 1,5 m de sédiments récents. En effet, depuis la diminution des rejets de Marcoule en 1991 et l'arrêt du retraitement en 1997, les concentrations en plutonium des sédiments récemment déposés ont très nettement diminué. Cette accumulation de sédiments récents forme une sorte de chape sédimentaire qui recouvre des strates anciennement déposées et entraîne un enfouissement des horizons les plus contaminés. A titre d'exemple, les activités les plus élevées atteignent 1,3 Bq.kg⁻¹ en ²³⁸Pu et 6 Bq.kg⁻¹ en ^{239,240}Pu et sont confinées entre 2 et 4 m de profondeur. En parallèle, l'évolution du rapport d'activité ²³⁸Pu/^{239,240}Pu indique clairement que le plutonium stocké à Roustan est en grande majorité originaire de l'usine de Marcoule. La zone

prodeltaïque joue donc un rôle fondamental dans l'enfouissement et la séquestration du plutonium rejeté par Marcoule.

En s'éloignant de l'embouchure, les taux de sédimentation diminuent très rapidement et entraînent une diminution des inventaires en plutonium, de 2 à 3 ordres de grandeurs. La distribution du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ permet de suivre la dispersion du matériel particulaire véhiculé par le Rhône. Elle met en évidence une exportation préférentielle des apports solides du Rhône en direction du Sud-Ouest. Cette dispersion s'explique par la dynamique du panache qui s'oriente principalement vers le Sud-Ouest et par la dynamique de fond qui favorise la remise en suspension et la translocation des sédiments du prodelta dans cette même direction. En conséquence et après l'aire prodeltaïque, les inventaires en plutonium les plus élevés sont localisés au Sud-Ouest de la zone prospectée qui représente une zone secondaire pour l'accumulation du plutonium.

8.2. Estimation des flux potentiels de remobilisation

Les flux de remobilisation déterminés en canal à courant présentent une grande variabilité spatiale et atteignent au maximum $0,08 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ en ^{238}Pu et $0,64 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ en $^{239,240}\text{Pu}$ (§ 6.2). En extrapolant les mesures de remise en suspension en canal à courant et les résultats des mesures in situ face à l'embouchure du Rhône (campagne *RHONAWAC*, § 7.3), nous avons essayé d'estimer un flux potentiel de remobilisation de plutonium pour l'ensemble de la zone étudiée.

Dans un premier temps, nous avons calculé les stocks de plutonium potentiellement remobilisables. En effet, une très grande partie des stocks de Pu est actuellement enfouie et donc seule une fraction, située à proximité de l'interface eau-sédiment, est susceptible d'être remobilisée. Pour quantifier la fraction remobilisable, nous avons recalculé les stocks de plutonium en fonction de la hauteur de la colonne sédimentaire (Tableau 8-1).

Tableau 8-1 : Distribution des stocks de plutonium en fonction de la hauteur de la colonne sédimentaire.

Hauteur de sédiment (cm)	Stock de ^{238}Pu (GBq)	% du stock total ^{238}Pu	Stock de $^{239,240}\text{Pu}$ (GBq)	% du stock total $^{239,240}\text{Pu}$
0-2	1	1	6	1
0-5	2	2	15	3
0-10	4	5	34	7
0-20	8	9	70	14
0-30	9	10	80	15
Stock total	92	100	522	100

La distribution verticale des stocks de plutonium révèle que 85 à 90 % des stocks sédimentaires sont actuellement enfouis au-delà de 30 cm de profondeur. Or, il est généralement admis que les sédiments situés en dessous de 10 cm de profondeur ne sont plus soumis à la remobilisation. Les stocks potentiellement remobilisables sont donc de 4 GBq en ^{238}Pu et de 34 GBq en $^{239,240}\text{Pu}$ soit respectivement 5 et 7 % de la totalité des stocks (Tableau 8-1).

En terme de bilan, l'extrapolation des flux potentiels mesurés en canal à courant dépend essentiellement de la fréquence et de l'intensité des phénomènes de remise en suspension sur l'ensemble de la zone prospectée. Les mesures in situ faites à la station Roustan Est montrent que sur un fond de 16 m et sous l'effet des vagues, les phénomènes de remise en suspension représentent environ 30 % du temps d'observation. Cependant, ces mesures ne permettent pas d'intégrer la variabilité spatiale de toute la zone étudiée. En effet, compte tenu des forts gradients bathymétriques et de l'atténuation des vitesses orbitales avec la profondeur, on peut s'attendre à une diminution très rapide de la fréquence des phénomènes de remise en suspension en s'éloignant de l'embouchure du Rhône.

En supposant que les caractéristiques des vagues mesurées à la station Roustan Est soient représentatives de celles rencontrées sur l'ensemble de la zone étudiée, nous avons recalculé les contraintes de cisaillement que ces vagues pourraient exercer sur des fonds compris entre 5 et 60 m de profondeur (Figure 8-1).

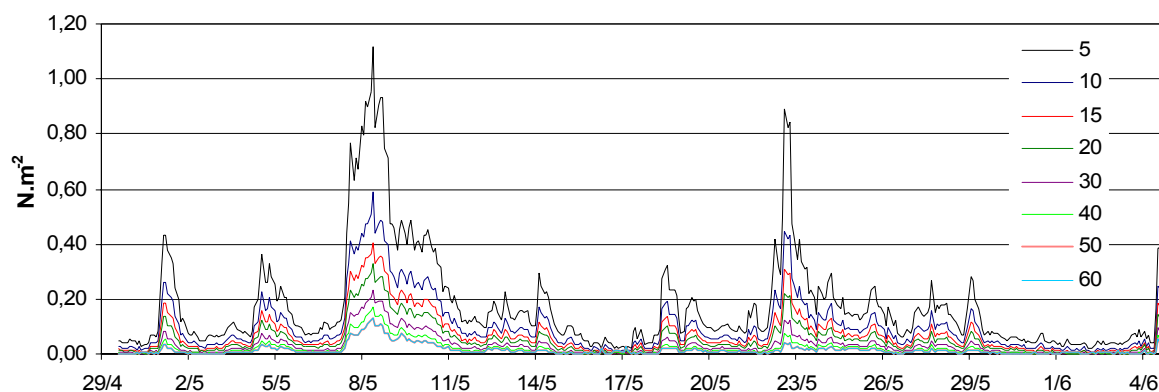


Figure 8-1 : Evolution, en fonction de la profondeur, de la contrainte de cisaillement sur le fond (τ_w) liée aux vagues mesurées pendant la campagne *RHONAWAC*.

Si l'effet des vagues est prépondérant dans la remise en suspension des sédiments par 16 m de fond, il s'atténue très rapidement avec la profondeur. En dessous de 40 m, l'effet des vagues sur le lit sédimentaire est très limité. En considérant une contrainte critique d'érosion de $0,1 \text{ N.m}^{-2}$ (valeur moyenne déterminée en canal à courant) pour l'ensemble des sédiments du prodelta du Rhône, il est alors possible d'estimer une fréquence de remise en suspension en fonction de la bathymétrie.

Tableau 8-2 : Occurrence des phénomènes de remise en suspension en fonction de la profondeur. Pourcentage d'observation où la contrainte de cisaillement sur le fond générée par les vagues (τ_w) est supérieure à 0,1 N.m⁻².

Profondeur (m)	5	10	15	20	25	30	35	40	45	50	55	60
$\tau_w > 0,1 \text{ N.m}^{-2}$ (%)	49,9	31,6	19,8	13,0	10,0	6,3	4,3	3,1	2,1	1,6	0,9	0,3

En dessous de 60 m de profondeur, la remise en suspension des sédiments sous l'effet de la houle devient exceptionnelle. Dès lors, la remise en suspension des sédiments contaminés se concentre sur les domaines proximal et prodeltaïque (§ 3.1.2), situés entre 0 et 40 m de profondeur. L'estimation d'un flux total de remobilisation doit donc prendre en considération les gradients bathymétriques de la zone prodeltaïque.

Pour la suite, nous avons considéré quatre horizons bathymétriques par incrément de 20 m de profondeur et nous avons calculé la surface que représente chaque horizon pour la zone prospectée. Enfin, nous avons appliqué le flux moyen de remobilisation déterminé en canal à courant (§ 6.2) pour chaque horizon bathymétrique.

En résumé, le calcul des flux potentiels de remobilisation annuels pour la zone étudiée tient compte :

- de quatre horizons bathymétriques de 20 m de profondeur
- de la surface de chacun de ces horizons
- d'un flux spécifique de remobilisation du plutonium
- de la fréquence moyenne des phénomènes de remise en suspension

Tableau 8-3 : Estimations des flux potentiels de remobilisation du plutonium en fonction de la profondeur et de la fréquence moyenne des phénomènes de remise en suspension. Ces estimations sont calculées d'après les flux de plutonium mesurés en canal à courant.

Profondeur (m)	Remise en suspension (%)	Surface (km ²)	Flux de ²³⁸ Pu (Bq.m ⁻² .h ⁻¹)	Flux de ²³⁸ Pu (GBq.an ⁻¹)	Flux de ^{239,240} Pu (Bq.m ⁻² .h ⁻¹)	Flux de ^{239,240} Pu (GBq.an ⁻¹)
< 20	30	15	0,08	3,10	0,45	17,44
20-40	6	68	0,02	0,82	0,11	3,96
40-60	1	61	0,01	0,04	0,04	0,24
> 60	0,1	351	0,05	0,19	0,64	2,25
Total		495		4,15		23,89

D'après le Tableau 8-3, les flux potentiels de remobilisation pourraient atteindre 4 GBq.a^{-1} en ^{238}Pu et 24 GBq.a^{-1} en $^{239,240}\text{Pu}$ pour l'ensemble de la zone prospectée. Les flux les plus importants sont attribués aux domaines proximal et prodeltaïque jusqu'à 40 m de profondeur, en raison de la fréquence élevée des phénomènes de remise en suspension. Ces horizons bathymétriques contribuent pour environ 90 % du flux total de remobilisation. Malgré une très faible fréquence de remise en suspension, le domaine distal participe respectivement pour 5 et 10 % des flux totaux de ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$. L'importance toute relative du domaine distal dans les flux de remobilisation s'explique par sa superficie qui représente plus de 70 % de la zone étudiée. En un an, les processus de remobilisation pourraient redistribuer l'équivalent des stocks sédimentaires potentiellement remobilisables. La remobilisation du plutonium des sédiments superficiels du prodelta du Rhône est donc potentiellement un phénomène important.

8.3. Bilan sur le devenir du plutonium à l'embouchure du Rhône

Les mesures de plutonium couplées aux mesures de ^{137}Cs , nous ont permis d'estimer les stocks sédimentaires de plutonium pour une zone de 495 km^2 située face à l'embouchure du Rhône. En 2001, ces stocks sont estimés à $92 \pm 7 \text{ GBq}$ de ^{238}Pu et $522 \pm 44 \text{ GBq}$ de $^{239,240}\text{Pu}$. En comparant ces stocks aux différents apports, il est alors possible de dresser un premier bilan sur le devenir du plutonium face à l'embouchure du Rhône (Figure 8-2).

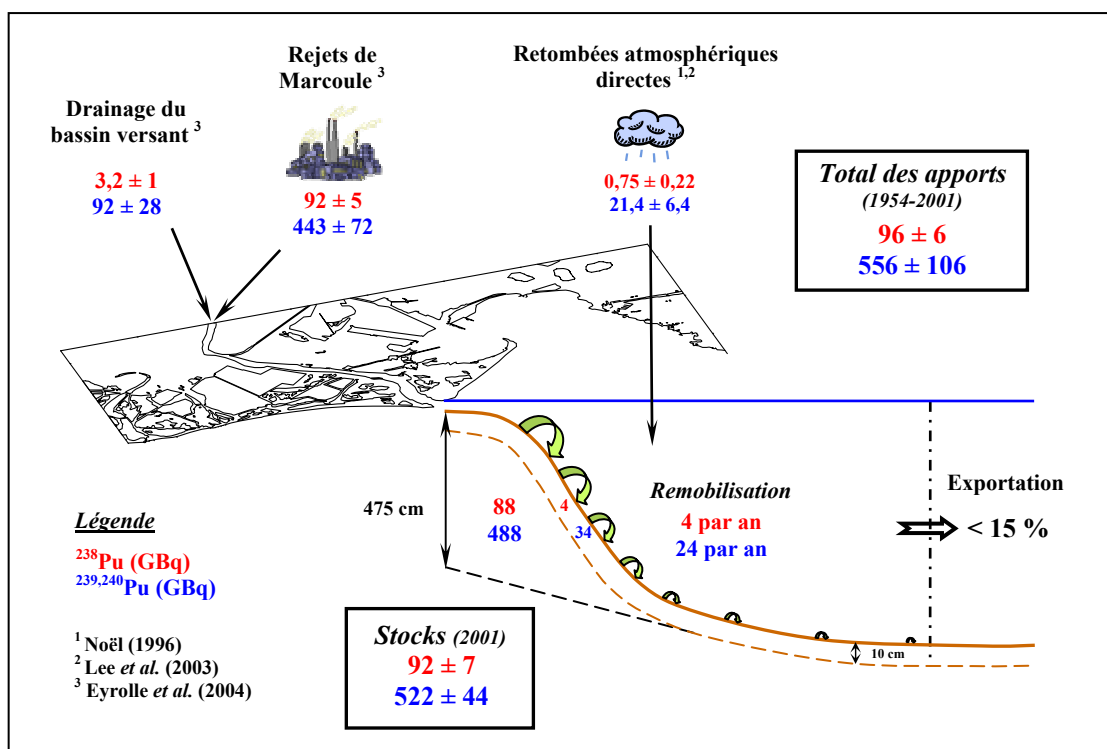


Figure 8-2 : Bilan des apports (cumulés de 1954 à 2001) et des stocks de plutonium (estimés en 2001) pour les sédiments face à l'embouchure du Rhône (495 km^2).

Pour établir ce bilan, les apports de plutonium sur la zone étudiée ont été calculés de la manière suivante :

✓ *Contribution des apports atmosphériques directs*

Noël (1996) a estimé l'apport direct de plutonium par les retombées atmosphériques sur le golfe du Lion. Pour la période 1954-1990, cet apport est de $1,5 \pm 0,45$ MBq.km⁻² en ²³⁸Pu et de 43 ± 13 MBq.km⁻² en ^{239,240}Pu. Par ailleurs, des flux de ²³⁸Pu et de ^{239,240}Pu atmosphériques ont été mesurés à Monaco entre 1999 et 2001 et sont respectivement de 0,9 et 22 kBq.km⁻².a⁻¹ (Lee *et al.*, 2003). En supposant que ces flux aient été homogènes et constants entre 1991 et 2001, il se serait déposé en moyenne 9 kBq.km⁻² de ²³⁸Pu et 220 kBq.km⁻² de ^{239,240}Pu sur cette période.

Pour la zone étudiée, les apports atmosphériques directs, cumulés sur la période 1954-2001, s'élèveraient au total à $0,75 \pm 0,22$ GBq en ²³⁸Pu et $21,4 \pm 6,4$ GBq en ^{239,240}Pu. Les retombées atmosphériques directes contribueraient donc au maximum pour moins de 1 et 5 % des stocks sédimentaires de ²³⁸Pu et ^{239,240}Pu.

✓ *Contribution des apports atmosphériques indirects*

• *Apports par le Rhône*

Les apports indirects de plutonium atmosphérique par le lessivage du bassin versant du Rhône ont été estimés à $3,2 \pm 1$ GBq de ²³⁸Pu et à 92 ± 28 GBq de ^{239,240}Pu pour la période 1954 à 2001 (Eyrolle *et al.*, 2004). En faisant l'hypothèse que ces apports aient été entièrement déposés sur notre zone d'étude, alors la contribution des apports indirects de Pu atmosphérique serait 4 fois plus élevée que celle attribuée aux dépôts directs.

• *Apports par la circulation générale*

L'apport de plutonium par la circulation générale aux sédiments du prodelta du Rhône est très difficile à quantifier. D'un côté, les flux d'eau entrant sur le plateau continental sont assez mal connus et de l'autre les mesures de concentrations en plutonium véhiculées par le courant Nord sont peu nombreuses. Compte tenu de son débit, le courant Nord est une source potentielle significative de plutonium dissous pour la marge continentale (Noël, 1996). Par contre, l'apport direct de plutonium particulaire semble négligeable, au regard de la charge particulaire des eaux méditerranéennes. Pour notre zone d'étude, nous ferons l'hypothèse que les apports de plutonium par la circulation générale sont négligeables par rapport aux apports du Rhône.

D'après le bilan de la Figure 8-2, il est possible d'estimer la contribution des rejets de l'usine de Marcoule dans les stocks de plutonium. En supposant que l'ensemble des apports de Pu atmosphérique décrits précédemment ait été incorporé dans les sédiments de la zone étudiée, ce qui constitue une hypothèse majorante, alors les stocks de plutonium d'origine atmosphérique (apports directs et indirects) seraient au maximum de 4 ± 1 GBq de ^{238}Pu et de 113 ± 34 GBq de $^{239,240}\text{Pu}$. Dans ces conditions, les rejets de Marcoule contribueraient au minimum pour 88 ± 6 GBq de ^{238}Pu et 409 ± 10 GBq de $^{239,240}\text{Pu}$, soit respectivement pour 96 et 78 % des stocks de Pu.

Les rejets cumulés de l'usine de Marcoule entre 1961 (date des premiers rejets) et 2001 sont estimés à 92 ± 5 GBq de ^{238}Pu et 443 ± 72 GBq de $^{239,240}\text{Pu}$ (Eyrolle *et al.*, 2004). Le ^{238}Pu étant dans cette zone essentiellement un marqueur spécifique des rejets de Marcoule, si on compare les rejets par rapport au stock, on constate qu'entre 85 et 100 % du ^{238}Pu rejeté par Marcoule seraient actuellement stocké dans les sédiments face à l'embouchure du Rhône, sur une zone d'environ 500 km^2 . Par conséquent, l'exportation vers le reste du plateau continental serait relativement faible et inférieure à 15 % des apports particuliers de Pu véhiculés par le Rhône.

Ces résultats sur la dispersion du ^{238}Pu sont à comparer aux études précédentes faites sur ce sujet. Le premier bilan réalisé par Noël (1996) sur le plutonium à l'échelle du golfe du Lion aboutissait aux conclusions suivantes (Figure 8-3) :

- Plus de 50 % des sédiments récents du Rhône sont stockés dans le domaine prodeltaïque, sur une aire de 30 km^2 .
- 30 % de ces apports sont piégés sur le plateau continental
- moins de 20 % sont exportés vers la pente continentale et la plaine abyssale

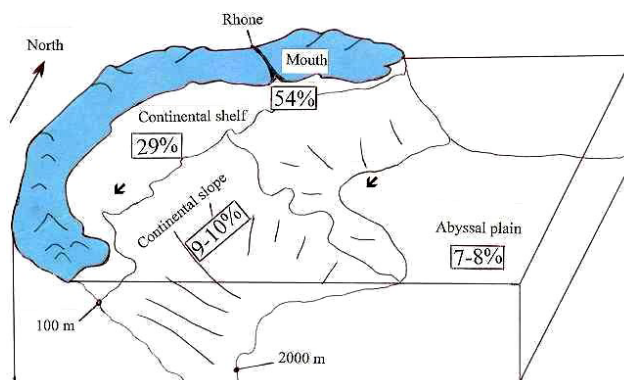


Figure 8-3 : Pourcentage d'accumulation des sédiments récents du Rhône sur la marge continentale du golfe du Lion (Noël, 1996).

Les deux bilans ne sont pas contradictoires puisque dans les deux cas plus de 80 % des apports solides du Rhône sont retenus sur le plateau continental. Le travail effectué par Noël (1996) sous estime sans doute le piégeage au niveau du prodelta du Rhône. Quoiqu'il en soit, les bilans de matières

établis d'après des mesures de ^{238}Pu arrivent aux mêmes conclusions et à une exportation du matériel particulaire rhodanien aux environs de 15 %.

D'autres travaux se sont également intéressés au devenir du matériel particulaire sur le golfe du Lion. En étudiant les dépôts holocènes, Got et Aloisi (1990) estiment que 70 % des apports particuliers sont piégés sur le plateau continental et que 30 % sont exportés vers le bassin Nord méditerranéen. A l'heure actuelle, l'intensité des échanges de matériel particulaire entre la côte et le large n'est toujours pas déterminée avec précision, mais les premiers bilans de matière réalisés par Durrieu de Madron *et al.* (2000) indiquent qu'une faible fraction (moins de 10 %) du matériel particulaire apporté au golfe du Lion est exporté vers le bassin Nord Méditerranéen.

Les différentes estimations vont donc dans le sens d'une faible exportation du matériel particulaire à l'échelle du golfe du Lion. Ces bilans viennent conforter nos résultats sur la faible dispersion des apports particuliers du Rhône puisque moins de 15 % de ces apports seraient susceptibles d'être exportés au delà d'une zone de 500 km² face à l'embouchure.

D'après la Figure 8-2, la remobilisation du plutonium est un phénomène important puisque les flux potentiels pourraient remobiliser en une année l'équivalent de 5 % du stock total. Pour donner un ordre de grandeur, les flux annuels et potentiels de remobilisation seraient comparables aux rejets annuels moyens de Marcoule. Cependant, les stocks sédimentaires de plutonium de la zone étudiée représenteraient de 85 à 100 % des rejets de Marcoule sur les quarante dernières années. La remobilisation du plutonium, même importante, ne participerait donc que faiblement à l'exportation du plutonium au-delà de la zone géographique étudiée. En effet, la remobilisation du plutonium se concentre essentiellement sur les horizons bathymétriques compris entre 0 et 40 m de profondeur, c'est-à-dire sur les domaines proximal et prodeltaïque qui représentent seulement 17 % de la zone prospectée. Une fois remobilisés, les sédiments contaminés seraient principalement redistribués en direction du Sud-Ouest vers les zones de décantations, comme l'attestent les mesures de courant à l'embouchure du Rhône.

La faible dispersion du plutonium originaire de Marcoule s'explique notamment par son mode d'introduction en Méditerranée. En effet, le plutonium véhiculé par le Rhône s'accumule en masse au niveau de la zone prodeltaïque. De plus, le faible niveau d'énergie du golfe du Lion et l'absence de courant de marée limitent grandement la redistribution et la dispersion des sédiments contaminés. Donc, même si les flux de remobilisation de Pu sont potentiellement importants ils resteraient limités dans l'espace à la zone étudiée.

Depuis l'arrêt de rejets de Marcoule et compte tenu de l'importance des taux de sédimentation, les sédiments récemment déposés sur la zone sont de moins en moins contaminés. Par conséquent, le flux de remobilisation réel du plutonium devrait diminuer avec le temps.

CONCLUSIONS ET PROSPECTIVES

9. Conclusions et perspectives

Ce travail posait la question de la remobilisation des isotopes du plutonium des sédiments du prodelta du Rhône. Derrière cette question, il y avait deux objectifs principaux :

- établir une “cartographie” détaillée des isotopes du plutonium sur une zone d’environ 500 km² face à l’embouchure du Rhône. Ce point devait entre autres répondre aux commentaires de Noël (1996) sur la difficulté d’estimer précisément les stocks de plutonium pour une zone aussi hétérogène que le prodelta du Rhône.
- étudier la dynamique des sédiments de la zone prodeltaïque dans le but d’estimer le potentiel de remobilisation du plutonium piégé dans ces sédiments.

Dans le cadre du programme européen *REMOTRANS*, trois campagnes océanographiques ont été effectuées pour échantillonner les sédiments du golfe du Lion et plus spécifiquement ceux du prodelta du Rhône. Les analyses faites sur ces échantillons nous ont permis d’étudier la distribution du plutonium et d’estimer pour la première fois les stocks de Pu contenus dans les sédiments face à l’embouchure du Rhône. Cette estimation s’appuie sur plus de 80 mesures de plutonium et plus de 300 mesures de ¹³⁷Cs, réparties sur 25 stations. Compte tenu de l’hétérogénéité de la zone étudiée, l’estimation directe des stocks de plutonium n’était pas envisageable. Le ¹³⁷Cs s’est révélé être un bon proxy des isotopes du Pu pour la zone prospectée. Les corrélations obtenues entre les concentrations en ¹³⁷Cs et celles des isotopes du plutonium ont été utilisées pour estimer d’une manière indirecte les stocks de Pu. En 2001, les stocks de plutonium accumulés dans les sédiments face à l’embouchure du Rhône sont estimés à 92 ± 7 GBq en ²³⁸Pu et 522 ± 44 GBq ^{239,240}Pu pour une aire de 500 km².

A proximité de l’embouchure du Rhône, la dynamique sédimentaire exerce un très fort contrôle sur la distribution des isotopes du plutonium. En raison des forts taux de sédimentation, les inventaires en plutonium les plus élevés sont observés sur la zone prodeltaïque où 90 % des inventaires sont actuellement enfouis sous plus de 1,5 m de sédiments, déposés depuis le début des années 90. A Roustan, les rejets de l’usine de retraitement du combustible nucléaire de Marcoule participent respectivement pour plus de 90 et 60 % des inventaires en ²³⁸Pu et ^{239,240}Pu. La zone prodeltaïque joue donc un rôle essentiel dans le piégeage du plutonium puisque 50 % des stocks de plutonium, estimés sur l’ensemble de la zone étudiée, sont contenus dans une aire de 100 km² au voisinage direct de l’embouchure du Rhône.

Plus au large, les taux de sédimentation diminuent très rapidement et sont accompagnés d'une très forte diminution des inventaires en plutonium. Après le domaine prodeltaïque, les zones de décantation, situées au Sud-Ouest de l'embouchure du Rhône, sont des zones secondaires d'accumulation du plutonium. Cette accumulation s'explique par :

- une dispersion privilégiée du panache et des apports particulaire du Rhône en direction du Sud-Ouest
- une redistribution des sédiments contaminés par des courants orientés principalement au Sud-Ouest

Sur l'ensemble de la zone prospectée, les distributions verticales du Pu et du ^{137}Cs mettent en évidence une nette diminution des niveaux d'activité dans les sédiments de surface. Cette diminution constitue un signal fort qui fait suite à la réduction des rejets de Marcoule en 1991 et à l'arrêt définitif du retraitement en 1997. Depuis cette date, les apports particuliers véhiculés par le Rhône sont de moins en moins marqués et ils recouvrent sur l'ensemble de la zone des horizons sédimentaires plus contaminés. Cette chape de sédiments récents est d'autant plus épaisse que les taux de sédimentation sont élevés. Par conséquent, l'enfouissement et le stockage du plutonium s'effectuent essentiellement sur le prodelta du Rhône.

Le second volet de cette thèse portait sur la dynamique des sédiments cohésifs du prodelta du Rhône et sur la remobilisation du plutonium. Dans ce but, des expériences de remise en suspension en canal à courant ont été effectuées pour des sédiments prélevés face à l'embouchure du Rhône. Cette approche expérimentale permet de caractériser les descripteurs de l'érodabilité des sédiments ainsi que d'évaluer pour la première fois les flux de Pu potentiellement remobilisables. Ces flux atteignent au maximum $0,08 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ en ^{238}Pu et $0,64 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ en $^{239,240}\text{Pu}$ pour la zone du prodelta du Rhône. L'intensité des flux de remobilisation est fonction des concentrations en Pu des sédiments de surface et de l'érodabilité des sédiments cohésifs. Dès lors, l'historique des dépôts prend tout son sens puisque depuis l'arrêt des rejets de Marcoule, le dépôt de sédiments récents moins marqués s'oppose à la remobilisation des sédiments contaminés. La remobilisation physique du plutonium devrait par conséquent diminuer avec le temps.

Une campagne de mesures in situ a permis d'étudier la dynamique sédimentaire face à l'embouchure du Rhône sur une période de 37 jours. Sur un fond de 16 m, des contraintes de cisaillement de $0,01 \text{ N.m}^{-2}$ suffisent pour déclencher la remise en suspension des sédiments du prodelta du Rhône. Sous l'effet prépondérant de la houle, l'occurrence des phénomènes de remise en suspension atteint environ 30 % du temps d'observation. Les vents de Sud-Est et les houles qu'ils génèrent ont un impact décisif sur la dynamique des sédiments prodeltaïques. En effet, les houles de Sud-Est participent pour plus de 80 % des processus d'érosion. Dans ces conditions, la translocation du matériel particulaire est assurée par un courant de dérive en direction du Sud-Ouest. A l'inverse, le Mistral et la Tramontane ont un impact beaucoup moins prononcé sur le fond en raison d'un fetch

limité à l'approche du prodelta du Rhône. L'analyse de cette série unique de données in situ face à l'embouchure du Rhône permet de mettre en évidence les deux points suivants :

- Les vents de secteur Nord-Ouest favorisent la dérive du panache du Rhône au Sud-Ouest et par là même participent à la dispersion du matériel particulaire en surface. Au niveau du fond, ces vents induisent de faibles phénomènes de remise en suspension et un contre courant qui porte au Nord-Est.
- Les vents de Sud-Est ont tendance à plaquer le panache du Rhône sur les côtes camarguaises et donc s'opposent à l'exportation du matériel particulaire vers le large. Ces vents génèrent des houles longues susceptibles d'entretenir une érosion importante des sédiments du prodelta. Les courants générés dans ce contexte redistribueraient les sédiments à plus de 80 % en direction du Sud-Ouest.

La translocation des sédiments contaminés du prodelta du Rhône s'effectue donc préférentiellement vers le Sud-Ouest, en direction des zones de décantation mises en évidence précédemment. Il y a donc un bon accord entre la cartographie des activités en Pu et les mesures de courants à l'embouchure du Rhône.

Un premier bilan sur le devenir du plutonium dans les sédiments situés face à l'embouchure du Rhône a pu être établi. Sur la base des stocks de Pu estimés et des données de la littérature sur les différents apports en Pu, ce bilan indique qu'au minimum 85 % du plutonium rejeté par l'usine de Marcoule seraient actuellement piégés dans les sédiments face à l'embouchure du Rhône sur une zone de 500 km². D'après ces résultats, moins de 15 % du plutonium originaire de Marcoule seraient donc exportés au-delà de cette zone.

Pour répondre à la question initiale : les sédiments du prodelta du Rhône peuvent-ils constituer une source de plutonium pour le golfe du Lion ? Les conclusions de ce travail pluridisciplinaire indiquent que :

- la remobilisation physique du plutonium est un phénomène important puisque les flux potentiels pourraient redistribuer en 1 an l'équivalent de 5 % du stock total, soit 4 GBq.a⁻¹ en ²³⁸Pu et 24 GBq.a⁻¹ en ^{239,240}Pu
- les phénomènes de remise en suspension touchent principalement les sédiments des domaines proximal et prodeltaïque situés entre 0 et 40 m de profondeur
- la translocation des sédiments s'effectuerait préférentiellement en direction du Sud-Ouest vers les zones de décantation
- compte tenu des stocks de plutonium estimés sur la zone étudiée, les flux remobilisés resteraient limités dans l'espace à une zone de 500 km² face à l'embouchure du Rhône

- seule une fraction inférieure à 15 % du plutonium particulaire véhiculé par le Rhône pourrait être exportée vers le reste du plateau continental et le bassin Nord méditerranéen

Pour l'ensemble des raisons évoquées ci-dessus et compte tenu de nos résultats, les sédiments du prodelta du Rhône ne constituent pas une source secondaire majeure de plutonium pour le golfe du Lion. Cependant, compte tenu de la période radioactive du Pu, cette question nécessite tout de même un suivi sur le long terme. En effet, l'augmentation de l'intensité et de la fréquence des événements extrêmes (crues exceptionnelles, tempêtes de Sud-Est, formation d'eaux denses) sous l'effet du changement climatique pourrait accroître l'exportation de matière particulaire et donc favoriser la remobilisation du plutonium.

Suite aux conclusions de ce travail, un certain nombre de points mériteraient de plus amples investigations.

- Les stocks de plutonium ont été quantifiés avec 2 fois plus de mesures qu'auparavant mais compte tenu de l'hétérogénéité spatiale, des incertitudes élevées demeurent pour la zone prodeltaïque. Pour affiner ces stocks, il faudrait multiplier les analyses dans le but de mieux cerner les forts gradients autour des bouées de Roustan et ainsi avoir une interpolation plus précise des stocks de plutonium. L'analyse des carottes Kullenberg prélevées lors de la campagne *REMORA 2* pourrait répondre à cette attente. Le nombre de mesures en plutonium étant limité, l'utilisation du ^{137}Cs pourrait servir d'estimateur des isotopes du plutonium mais les corrélations Cs-Pu devront être confirmées pour la zone prodeltaïque.
- Au-delà de la zone prodeltaïque, c'est la dynamique sédimentaire à l'échelle du plateau continental qui intéresse la communauté scientifique. La suite de ce travail consisterait donc à étudier la dispersion du plutonium sur l'ensemble de la marge continentale. L'analyse des concentrations en plutonium des sédiments du golfe du Lion prélevés lors de la campagne *REMORA 3* permettrait d'avoir une idée plus précise sur le devenir du plutonium et sur l'exportation du matériel particulaire du Rhône.
- Les résultats de ce travail concernent principalement la remobilisation physique du plutonium et d'autres investigations seront nécessaires pour appréhender la remobilisation chimique. Si la dynamique du Pu est intrinsèquement liée à la dynamique sédimentaire en zone côtière, il pourrait en être tout autrement au niveau du plateau continental et au delà. En effet, la redissolution du plutonium est un processus lent qui sur le long terme pourrait favoriser l'exportation de plutonium sous forme dissoute. Ce phénomène a été mis en évidence en mer d'Irlande où la dispersion du plutonium à grande échelle s'effectue en phase dissoute suite à la redissolution du Pu des sédiments. Même si la dynamique du golfe du Lion ne semble pas favorable à cette dispersion, la redissolution du Pu devra

faire l'objet d'une étude plus précise. En outre, la dynamique du plutonium est en grande partie gouvernée par les états d'oxydation du Pu. Les futurs travaux devront également s'intéresser à la spéciation et aux états d'oxydation du plutonium dans les sédiments mais également dans la colonne d'eau.

- Plusieurs processus tels que la bioturbation et le chalutage n'ont pas été considérés lors de ce travail. Certains de ces processus jouent probablement un rôle majeur dans la redistribution des particules après leur sédimentation. L'impact de ces processus sur le devenir du plutonium devra être pris en compte dans les études futures.

- Les expériences de remise en suspension effectuées dans ce travail constituent une première étape pour quantifier d'une manière réaliste les flux de remobilisation physique du plutonium. Les résultats en terme de remobilisation du Pu sont contraints par la stratégie expérimentée. Les flux déterminés en canal correspondent donc à une remobilisation potentielle. Les processus naturels tel que présents in situ, s'effectuent dans un environnement dynamique dans lequel les stress hydrodynamiques sont extrêmement variables. Une des perspectives de ce travail serait donc de renouveler l'expérience mais avec des conditions réelles d'accélération et de décélération telles que présentent dans le milieu naturel.

- Les mesures in situ réalisées face à l'embouchure du Rhône ont permis de décrire, pour une période printanière, les caractéristiques hydro-sédimentaires proche du fond. Néanmoins, concernant la dynamique des sédiments prodeltaïques de nombreuses questions restent en suspens :

- ⇒ Quel est l'impact des tempêtes de Sud-Est et des crues exceptionnelles du Rhône sur la dynamique sédimentaire du prodelta ?
- ⇒ Quelles hauteurs de sédiment peuvent être érodées lors des événements extrêmes ?
- ⇒ La translocation des sédiments remobilisés s'effectue-t-elle sur une échelle spatiale plus grande que celle échantillonnée dans ce travail ?

Le programme européen *EUROSTRATAFORM* devrait apporter des éléments de réponse à certaines de ces questions, en particulier sur le devenir du matériel particulaire véhiculé par le Rhône à l'échelle du plateau continental du golfe du Lion.

- A terme, tous ces résultats pourront être intégrés à un modèle de transport sédimentaire couplé à un modèle de circulation hydrodynamique, comme SYMPHONIE, dans le but d'étudier et d'améliorer la modélisation de la dispersion des radionucléides artificiels (Perianez, *In press*) et du matériel particulaire sur l'ensemble du golfe du Lion.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

10. Références Bibliographiques

Au total 241 références

Aarkrog A. 1988. Worldwide data on fluxes of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{238}Pu to the oceans. *In: Inventories of selected radionuclides in the oceans*, IAEA-TECDOC, **481**:103-138.

Aarkrog A. 2003. Input of anthropogenic radionuclides into the World Ocean. *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography*, **50** (17-21): 2597-2606.

Agarande M., Benzoubir S., Neiva-Marques A.M. and Bouisset P. 2004. Sector field inductively coupled plasma mass spectrometry, another tool for plutonium isotopes and plutonium isotope ratios determination in environmental matrices. *Journal of Environmental Radioactivity*, **72** (1-2): 169-176.

AIEA 1985. Sediment K_d s and concentration factors for radionuclides in marine environment. Technical reports series, International Atomic Energy Agency. N°247. 73p.

Alberola C., Rousseau S., Millot C., Astraldi M., Font J., Garcia-Lafuente J., Gasparini G.P., Send U. and Vangriesheim A. 1995. Tidal currents in the western Mediterranean Sea. *Oceanologica acta*, **18** (2): 273-284.

Alberts J.J. and Orlandini K.A. 1981. Laboratory and field studies of the relative mobility of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am from lake sediments under oxic and anoxic conditions. *Geochimica et Cosmochimica acta*, **45** (10): 1931-1939.

Aloisi J.C. 1986. Sur un modèle de sédimentation deltaïque. Contribution à la connaissance des marges passives. Thèse d'état, Université de Perpignan. 160p.

Aloisi J.C., Cambon J.P., Carbonne J., Cauwet G., Millot C., Monaco A. and Pauc H. 1982. Origin and role of the bottom nepheloid layer in the transfer of particles into the marine environment. Application to the Gulf of Lions. *Oceanologica acta*, **5** (4): 481-491.

Amos C.L., Daborn G.R., Christian H.A., Atkinson A. and Robertson A. 1992. In situ measurements on fine-grained sediments from the Bay of Fundy. *Marine geology*, **108**: 175-196.

Anderson R.F., Schiff S.L. and Hesslein R.H. 1987. Determining sediment accumulation and mixing rates using ^{210}Pb , ^{137}Cs , and other tracers: problems due to postdepositional mobility or coring artifacts. *Canadian Journal of Fisheries and Aquatic science*, **44**: 231-250.

Antonelli C. 2002. Flux sédimentaires et morphogénèse récente dans le chenal du Rhône aval. Thèse de doctorat, Université Aix-Marseille I. 279p.

Appleby P.G. and Oldfield F. 1978. The calculation of lead-210 dates assuming a constant rate of supply of unsupported Pb-210 to the sediment. *Catena*, **5**: 1-8.

- Arnaud M.** 1998. Synthèse bibliographique sur la distribution et le comportement des transuraniens en Méditerranée. Rapport IPSN. 45p.
- Arnoux-Chiavassa S., Rey V. and Fraunie P.** 1999. Modeling of suspended sediment fluxes off the Rhone river mouth. *Journal of Coastal Research*, **15** (1): 61-73.
- Arnoux-Chiavassa S., Rey V. and Fraunie P.** 2003. Modeling 3D Rhone river plume using a higher order advection scheme. *Oceanologica acta*, **26** (4): 299-309.
- Arokiasamy J.F.** 2001. Microbial transformations of plutonium and implications for its mobility. In: Radioactivity in the environment: Plutonium in the environment. Edited proceedings of the second invited international symposium, 9-12/11/1999, Osaka, Japan, Kudo A., Elsevier, 201-219p.
- Assinder D.J., Hamilton-Taylor J., Kelly M., Mudge S. and Bradshaw K.** 1990. Field and laboratory measurements of the rapid remobilization of plutonium from estuarine sediments. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **138** (2): 417-424.
- Aston S.R. and Stanners D.A.** 1979. The determination of estuarine sedimentation rates by $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ and other artificial radionuclide profiles. *Estuarine and Coastal Shelf Science*, **9**: 529-541.
- Ballestra S.** 1980. Radioactivité artificielle et environnement marin. Etude relative aux transuraniens ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Pu et ^{241}Am en Méditerranée. Thèse d'état, Université de Nice. 217p.
- Barnett P.R., Hutton E.W. and Connelly D.** 1984. A multiple corer for taking undisturbed samples from shelf, bathyal and abyssal sediments. *Oceanologica acta*, **7** (4): 399-408.
- Baxter M.S., Fowler S.W. and Povinec P.P.** 1995. Observations on plutonium in the oceans. *Applied Radiation and Isotopes*, **46** (11): 1213-1223.
- Beaudouin C.** 2003. Effets du dernier cycle climatique sur la végétation de la basse vallée du Rhône et sur la sédimentation de la plate-forme du golfe du Lion d'après la palynologie. Thèse de doctorat, Université Lyon 1. 417p.
- Berlamont J., Ockenden M., Toorman E. and Winterwerp J.C.** 1993. The characterisation of cohesive sediment properties. *Coastal Engineering*, **21**: 105-128.
- Berne S. and Loubrieu B.** 1999. Canyons and recent sedimentary processes on the western Gulf of Lions margin. First results of the Calmar cruise. *Comptes Rendus de l'Academie des Sciences - Series IIA - Earth and Planetary Science*, **328** (7): 471-477.
- Black K.S., Tolhurst T.J., Paterson D.M. and Hagerthey S.E.** 2002. Working with natural cohesive sediments. *Journal of hydraulic engineering*, **128** (1): 1-7.
- Blanc J.J.** 1985. Rupture d'équilibre au littoral de Provence occidentale: l'action des tempêtes, relation avec les aménagements. *Théthys*, **11** (3-4): 350-359.
- Blanc J.J.** 1996. Plages en recul et dynamique des profils littoraux a Faraman (Camargue, delta du Rhône) méthode d'étude; essai d'analyse prévisionnelle. *Quaternaire*, **7** (1): 53-62.
- Boust D.** 1999. Distribution and inventories of some artificial and naturally occurring radionuclides in medium to coarse-grained sediments of the channel. *Continental Shelf Research*, **19** (15-16): 1959-1975.
- Broche P., Devenon J.-L., Forget P., de Maistre J.-C., Naudin J.-J. and Cauwet G.** 1998. Experimental study of the Rhone plume. Part I: physics and dynamics. *Oceanologica acta*, **21** (6): 725-738.

- Buesseler K.O. and Benitez C.R.** 1994. Determination of mass accumulation rates and sediment radionuclide inventories in the deep Black Sea. *Deep Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers*, **41** (11-12): 1605-1615.
- Buesseler K.O., Benoit G. and Sholkovitz E.R.** 1985. A pore water study of plutonium in a seasonally anoxic lake. *Journal of Environmental Radioactivity*, **2** (4): 283-292.
- Buesseler K.O. and Sholkovitz E.R.** 1987. The geochemistry of fallout plutonium in the North Atlantic: I. A pore water study in shelf, slope and deep-sea sediments. *Geochimica et Cosmochimica acta*, **51** (10): 2605-2622.
- Burton P.J.** 1986. Laboratory studies on the remobilisation of actinides from Ravensglass estuary sediment. *The Science of the Total Environment*, **52**: 123-145.
- Buscail R., Pocklington R. and Germain C.** 1995. Seasonal variability of the organic matter in a sedimentary coastal environment: sources, degradation and accumulation (continental shelf of the Gulf of Lions-northwestern Mediterranean Sea). *Continental Shelf Research*, **15** (7): 843-869.
- Calmet D. and Fernandez J.M.** 1990. Caesium distribution in northwest Mediterranean seawater, suspended particles and sediments. *Continental Shelf Research*, **10**: 895-913.
- Calvo C., Donazzolo R., Guidi F. and Orio A.A.** 1991. Heavy metal pollution studies by resuspension experiments in Venice Lagoon. *Water Research*, **25** (10): 1295-1302.
- Capon J.** 1969. High-resolution frequency-wavenumber spectrum analysis. *Proc IEEE*, **57**: 1408-1418.
- Carpenter R. and Beasley T.M.** 1981. Plutonium and americium in anoxic marine sediments: Evidence against remobilization. *Geochimica et Cosmochimica acta*, **45** (10): 1917-1930.
- Casitas S.** 1999. Modélisation du transport de la matière particulaire sur le plateau du Golfe du Lion en hivers, Thèse de doctorat, Université Toulouse III. 106p.
- Chamley H.** 1987. Sédimentologie, Dunod, Paris. 175p.
- Charmasson S.** 1995. Concentrations en ^{99}Tc , ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ et ^{241}Am dans quelques échantillons de sédiment du prodelta du Rhône. Rapport IPSN/SERE 95/035. 15p.
- Charmasson S.** 1998. Cycle du combustible nucléaire et milieu marin. Devenir des effluents rhodaniens en Méditerranée et des déchets immergés en Atlantique Nord-Est. Thèse d'état, Université Aix-Marseille II. 365p.
- Charmasson S.** 2003. ^{137}Cs inventory in sediment near the Rhone mouth: role played by different sources. *Oceanologica acta*, **26** (4): 435-441.
- Charmasson S., Arnaud M., Bailly du Bois P., Bouisset P., Garcia K. and Masson M.** 1996. Concentrations en divers radionucléides dans les eaux du Rhône et en mer au voisinage de l'embouchure du Grand Rhône. Rapport IPSN/SERE 96/022. 24p.
- Charmasson S., Bouisset P., Radakovitch O., Pruchon A.-S. and Arnaud M.** 1998. Long-core profiles of ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{60}Co and ^{210}Pb in sediment near the Rhone River (northwestern Mediterranean Sea). *Estuaries*, **21** (3): 367-378.
- Chassefiere B.** 1990. Mass-physical properties of surficial sediments on the Rhône continental margin: implications for the nepheloid benthic layer. *Continental Shelf Research*, **10**: 857-867.

- Choppin G.R.** 1991. Redox speciation of plutonium in natural waters. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **147**: 109–116.
- Choppin G.R. and Wong P.J.** 1998. The chemistry of actinide behaviour in marine systems. *Aquatic Geochemistry*, **4** (1): 77-101.
- Choppin G.R. and Morgenstern A.** 2001. Distribution and movement of environmental plutonium. In: Radioactivity in the environment: Plutonium in the environment. Edited proceedings of the second invited international symposium, 9-12/11/1999, Osaka, Japan, Kudo A., Elsevier, 91-105p.
- Cochran J.K.** 1985. Particle mixing rates in sediments of the eastern equatorial Pacific: Evidence from ^{210}Pb , $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs distributions at MANOP sites. *Geochimica et Cosmochimica acta*, **49**: 1195-1210.
- Cole B.E., Thompson J.K. and Cloern J.E.** 1992. Measurement of filtration rates by infaunal bivalves in a recirculating flume. *Marine biology*, **113**: 219-225.
- Cook G.T., MacKenzie A.B., McDonald P. and Jones S.R.** 1997. Remobilization of Sellafield-derived radionuclides and transport from the North-East Irish Sea. *Journal of Environmental Radioactivity*, **35** (3): 227-241.
- Cooper L.W., Kelley J.M., Bond L.A., Orlandini K.A. and Grebmeier J.M.** 2000. Sources of the transuranic elements plutonium and neptunium in arctic marine sediments. *Marine Chemistry*, **69** (3-4): 253-276.
- Cruzado A. and Velasquez Z.R.** 1990. Nutrients and phytoplankton in the Gulf of Lions, northwestern Mediterranean. *Continental Shelf Research*, **9**: 931-942.
- Curtis D., Fabryka-Martin J., Dixon P. and Cramer J.** 1999. Nature's uncommon elements: plutonium and technetium. *Geochimica et Cosmochimica acta*, **63** (2): 275-285.
- Dagnelie P.** 1998. Statistique théorique et appliquée, Bibliothèque des universités, De Boeck Université. Paris. Tome 2. 659p.
- Dahlggaard H.** 1995. Transfer of European coastal pollution to the arctic: Radioactive tracers. *Marine Pollution Bulletin*, **31** (1-3): 3-7.
- Dai M.H., Buesseler K.O., Kelley J.M., Andrews J.E., Pike S. and Wacker J.F.** 2001. Size-fractionated plutonium isotopes in a coastal environment. *Journal of Environmental Radioactivity*, **53** (1): 9-25.
- Davies A.G., Soulsby R.L. and King H.L.** 1988. A numerical model of the combined wave and current bottom boundary layer. *Journal of Geophysical. Research*, **93**: 491-508.
- Davis W.R.** 1993. The role of bioturbation in sediment resuspension and its interaction with physical shearing. *Journal of Experimental Marine Biology and Ecology*, **171**: 187-200.
- de Deckere E.M., Tolhurst T.J. and de Brouwer J.F.** 2001. Destabilization of cohesive intertidal sediments by infauna. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **53** (5): 665-669.
- Demarcq H. and Wald L.** 1984. La dynamique superficielle du panache du Rhône d'après l'imagerie infrarouge satellitaire. *Oceanologica acta*, **7** (2): 159-162.
- Denis L.** 1999. Dynamique des flux d'oxygène et de sels nutritifs à l'interface eau-sédiment sur la marge continentale du Golfe du Lion (Méditerranée Nord-occidentale). Thèse de doctorat, Université de la Méditerranée. 129p.

- Denis L., Grenz C. and Plante-Cuny M.R.** 1996. Experimental study of microphytobenthos resuspension. *C. R. Académie des Sciences, Paris Life Science*, **319**: 529-535.
- Droppo I.G., Lau Y.L. and Mitchell C.** 2001. The effect of depositional history on contaminated bed sediment stability. *The Science of the Total Environment*, **266** (1-3): 7-13.
- Droz L., Kergoat R., Cochonat P. and Berne S.** 2001. Recent sedimentary events in the western Gulf of Lions (Western Mediterranean). *Marine geology*, **176** (1-4): 23-37.
- Duffa C.** 2001. Répartition du plutonium et de l'americium dans l'environnement terrestre de la basse vallée du Rhône. Thèse de doctorat, Université Aix-Marseille III. 179p.
- Durrieu de Madron X.** 1994. Hydrography and nepheloid structures in the Grand Rhône canyon. *Continental Shelf Research*, **14** (5): 457-477.
- Durrieu de Madron X., Abassi A., Heussner S., Monaco A., Aloisi J.C., Radakovitch O., Giresse P., Buscail R. and Kerherve P.** 2000. Particulate matter and organic carbon budgets for the Gulf of Lions (NW Mediterranean). *Oceanologica acta*, **23** (6): 717-730.
- Durrieu de Madron X., Nyffeler F. and Godet C.H.** 1990. Hydrographic structure and nepheloid spatial distribution in the Gulf of Lions continental margin. *Continental Shelf Research*, **10** (9-11): 915-929.
- Durrieu de Madron X., Radakovitch O., Heussner S., Loye-Pilot M.D. and Monaco A.** 1999. Role of the climatological and current variability on shelf-slope exchanges of particulate matter: Evidence from the Rhone continental margin (NW Mediterranean). *Deep Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers*, **46** (9): 1513-1538.
- Duursma E.K. and Gross M.G.** 1971. Marine sediments and radioactivity. *In: Radioactivity in marine environment*, U.S. National Academy of Sciences. Washington, D.C. 147-160.
- Dyer K.** 1976. The measurement of bed shear stresses and load transport rates. *In: Estuarine Processes II*, Academic press, 124-135p.
- Estournel C., Kondrachoff V., Marsaleix P. and Véhil R.** 1997. The plume of the Rhone: numerical simulation and remote sensing. *Continental Shelf Research*, **17** (8): 899-924.
- Estournel C., Broche P., Marsaleix P., Devenon J.-L., Auclair F. and Vehil R.** 2001. The Rhone river plume in unsteady conditions: Numerical and experimental results. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **53** (1): 25-38.
- Estournel C., Durrieu de Madron X., Marsaleix P., Auclair F., Julliand C. and Véhil C.** 2003. Observation and modeling of the winter coastal oceanic circulation in the Gulf of Lion under wind conditions influenced by the continental orography (FETCH experiment). *Journal of Coastal Research*, **108** (C3):
- Eyrolle F. and Charmasson S.** 2004. Importance of colloids in the transport within the dissolved phase (<450 nm) of artificial radionuclides from the Rhone river towards the Gulf of Lions (Mediterranean Sea). *Journal of Environmental Radioactivity*, **72** (3): 273-286.
- Eyrolle F., Charmasson S. and Louvat D.** 2004. Plutonium isotopes in the lower reaches of the River Rhone over the period 1945-2000: fluxes towards the Mediterranean Sea and sedimentary inventories. *Journal of Environmental Radioactivity*, **72** (3): 273-286.

Fernandez J.M. 1984. Utilisation de quelques éléments métalliques pour la reconstitution des mécanismes sédimentaires en Méditerranée occidentale: apport du traitement statistique. Thèse de doctorat, Université de Perpignan. 233p.

Fernandez J.M., Badie C., Zhen Z. and Arnal I. 1991. Le ^{137}Cs : traceur de la dynamique sédimentaire sur le prodelta du Rhône (Méditerranée nord-occidentale). *In: Radionuclides in the study of marine processes. Proceedings of an international symposium, Norwich, U.K., 10-13 september 1990*, Kershaw P.J. and Woodhead D.S., Elsevier. 197-208p.

Fernex F., Richou M., Benamou C. and Benaim J. 1992. Evaluation of the quality of bottom sediments from the north-western Mediterranean Sea by bio-geochemical criteria. *The Science of the Total Environment*, **111** (1): 25-46.

Fernex F.E., Migon C. and Chisholm J.R.M. 2001. Entrapment of pollutants in Mediterranean sediments and biogeochemical indicators of their impact. *Hydrobiologia*, **450**: 31-46.

Flexas M.M., Durrieu de Madron X., Garcia M.A., Canals M. and Arnaud P. 2002. Flow variability in the Gulf of Lions during the MATER HFF experiment (March-May 1997). *Journal of Marine Systems*, **33-34**: 197-214.

Fredsøe J. 1984. Turbulent boundary layer in wave-current motion. *Journal of hydraulic engineering*, **110**: 1103-1120.

Fukai R., Ballestra S., Thein M. and Guion J. 1981. Input of transuranic elements through rivers into the Mediterranean Sea. Impact of radionuclide releases into the marine environment, IAEA. Report SM-248/125: 3-14.

Garcia K., Boust D., Moulin V., Douville E., Fourest B. and Guillaumont R. 1996. Multiparametric investigation of the reactions of plutonium under estuarine conditions. *Radiochimica Acta*, **74**: 165-170.

Gartner J.W. 2002. Estimation of suspended solids concentrations based on acoustic backscatter intensity: theoretical background. Turbidity and other sediments surrogates workshop, USGS. Reno, Nevada.

Gordon L. and Lohrmann A. 2001. Near-shore Doppler current meter wave spectra. ASCE Waves 2001 <http://www.nortekusa.com/PDF/Waves2001.pdf>

Got H. and Aloisi J.C. 1990. The Holocene sedimentation on the gulf of lions margin: a quantitative approach. *Continental Shelf Research*, **10** (9-11): 841-855.

Graf G. and Rosenberg R. 1997. Bioresuspension and biodeposition: a review. *Journal of Marine Systems*, **11**: 269-278.

Grant W.D. and Madsen O.S. 1979. Combined wave and current interaction with a rough bottom. *Journal of Geophysical Research*, **84**: 1797-1808.

Grant W.D. and Madsen O.S. 1986. The continental-shelf bottom boundary layer. *Annual Review of Fluid Mechanics*, **18**: 265-305.

Grémare A., Amouroux J.-M., Cauwet G., Charles F., Courties C., De Bovée F., Dinet A., Devenon J.L., De Madron X.D. and Ferre B. 2003. The effects of a strong winter storm on physical and biological variables at a shelf site in the Mediterranean. *Oceanologica acta*, **26** (4): 407-419.

Guéguénat P., Hermann J., Kershaw P.J., Bailly du Bois P. and Baron Y. 1996. Artificial radioactivity in the English Channel and the North Sea. *In: Guéguénat P., P. Germain and H. Métivier (eds), Radionuclides in the oceans: inputs and inventories*, Les éditions de physiques, IPSN, France, 121-154.

Hamilton E.I. 1989. Radionuclides and large particles in estuarine sediments. *Marine Pollution Bulletin*, **20** (12): 603-607.

Hamilton T.F., Milliès-Lacroix J.C. and Hong G.H. 1996. ^{137}Cs , ^{90}Sr and Pu isotopes in the Pacific ocean: Sources and trends. *In: Guéguénat P., P. Germain and H. Métivier (eds), Radionuclides in the oceans: inputs and inventories*, Les éditions de physiques, IPSN, France, 29-58.

Hamilton-Taylor J., Kelly M., Mudge S. and Bradshaw K. 1987. Rapid remobilisation of plutonium from estuarine sediments. *Journal of Environmental Radioactivity*, **5** (409-423): 409-423.

Hamilton-Taylor J., Kelly M., Titley J.G. and Turner D.R. 1993. Particle-solution behaviour of plutonium in an estuarine environment, Esk Estuary, UK. *Geochimica et Cosmochimica acta*, **57** (14): 3367-3381.

Harvey B.R. and Lovett M.B. 1984. The use of yield tracers for the determination of alpha-emitting actinides in the marine environment. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, **223** (2-3): 224-234.

Hasselmann K., Barnett T.P., Bouws E., Carlson H., Cartwright D.E., Enke K., Ewing J.A., Gienapp H., Hasselmann D.E., Kruseman P., Meerburg A., Müller P., Olbers D.J., Richter K., Sell W. and Walden H. 1973. Measurements of wind-wave growth and swell decay during the Joint North Sea Wave Project (JONSWAP). *Deutschen Hydrographischen Zeitschrift*: 8-95.

Hay A.E. and Sheng J. 1992. Vertical profiles of suspended sand concentration and size from multifrequency acoustic backscatter. *Journal of Geophysical Research*, **97**: 661-677.

Hetherington J.A., Jefferies D.F. and Lovett M.B. 1975. Some investigations into the behaviour of plutonium in the marine environment. *In: Impacts of nuclear releases into the aquatic environment*, IAEA, 193-212p.

Hetherington J.A. 1978. The uptake of plutonium nuclides by marine sediments. *Marine Science Communication*, **4** (3): 239-274.

Holdaway G.P., Thorne P.D., Flatt D., Jones S.E. and Prandle D. 1999. Comparison between ADCP and transmissometer measurements of suspended sediment concentration. *Continental Shelf Research*, **19** (3): 421-441.

Holm E. 1995. Plutonium in the Baltic Sea. *Applied Radiation and Isotopes*, **46** (11): 1225-1229.

Horwitz E.P., Chiarizia R., Dietz M.L., Diamond H. and Nelson D.M. 1992. Separation and preconcentration of actinides from acidic media by extraction chromatography. *Analytica Chimica Acta*, **281**: 361-372.

Houwing E.-J. 1999. Determination of the critical erosion threshold of cohesive sediments on intertidal mudflats along the Dutch Wadden Sea coast. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **49** (4): 545-555.

Huettel M. and Webster I.A. 2001. Porewater flow in permeable sediments. *In: The Benthic Boundary layer : Transport Processes and Biogeochemistry*, eds Boudreau B.P., Jorgensen B.B., Oxford University Press, New-York. 144-179p.

Hunt G.J. 1985. Timescales for dilution and dispersion of transuranics in the Irish sea near Sellafield. *The Science of the Total Environment*, **46**: 261-278.

- Hunt G.J. and Kershaw P.J.** 1990. Remobilisation of artificial radionuclides from the sediment to the Irish Sea. *Journal of Radiological Protection*, **10** (2): 147-151.
- Hunt G.J., Smith B.D. and Camplin W.C.** 1998. Recent changes in liquid radioactive waste discharges from Sellafield to the Irish Sea: monitoring of the environmental consequences and radiological implications. *Radiation Protection Dosimetry*, **75** (1-4): 149-153.
- Huynh-Thanh S. and Temperville A.** 1991. A numerical model of the rough turbulent boundary layer in combined wave and current interaction. In: Sand Transport in Rivers, Estuaries and the Sea, eds R.L. Soulsby and R. Bettess, Rotterdam. 93-100p.
- IFREMER** 2002. Carte morpho-bathymétrique du Golfe du Lion, 48p.
- Ikäheimonen T.K., Mattila J., Klemola S. and Ilus E.** 1996. A study on the behaviour of cesium and plutonium in the sedimentation process under varying redox- conditions. 11th general conference of the Nordic Radiation Protection Society, Reykjavik.
- Jepsen R., Roberts J. and Lick W.** 1997. Effects of bulk density on sediment erosion rates. *Water Air Sol Pollution.*, **99**: 21-31.
- Jerome S.M., Smith D., Woods M.J. and Woods S.A.** 1995. Metrology of plutonium for environmental measurements. *Applied Radiation and Isotopes*, **46** (11): 1145-1150.
- Johns B., Marsaleix P., Estournel C. and Véhil C.** 1992. On the wind-driven coastal upwelling in the Gulf of Lions. *Journal of Marine Systems*, **3**: 309-320.
- Jones D.G., Roberts P.D., Strutt M.H., Higgs J.J. and Davis J.R.** 1999. Distribution of ¹³⁷Cs and inventories of ²³⁸Pu, ^{239/240}Pu, ²⁴¹Am and ¹³⁷Cs in Irish Sea intertidal sediments. *Journal of Environmental Radioactivity*, **44** (2-3): 159-189.
- Kennish M.J.** 1997. Practical handbook of estuarine and marine pollution, CRC press, Marine Science Series. 524p.
- Kershaw P.J., Swift D.J., Pentreath R.J. and Lovett M.B.** 1984a. The incorporation of plutonium, americium and curium into the Irish Sea sea bed by biological activity. *Science of the Total Environment*, **40**: 61-81.
- Kershaw P.J., Swift D.J., Pentreath R.J. and Lovett M.B.** 1984b. Plutonium redistribution by biological activity in Irish Sea sediments. *Nature*, **306** (5945): 774-775.
- Kershaw P.J., Woodhead D.S., Lovett M.B. and Leonard K.S.** 1995. Plutonium from european reprocessing operations: its behaviour in the marine environment. *Applied Radiation and Isotopes*, **46** (11): 1121-1134.
- Kershaw P. and Baxter A.** 1995. The transfer of reprocessing wastes from north-west Europe to the Arctic. *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography*, **42** (6): 1413-1448.
- Kershaw P.J., Denoon D.C. and Woodhead D.S.** 1999a. Observations on the redistribution of plutonium and americium in the Irish Sea sediments, 1978 to 1996: Concentrations and inventories. *Journal of Environmental Radioactivity*, **44** (2-3): 191-221.
- Kershaw P.J., McCubbin D. and Leonard K.S.** 1999b. Continuing contamination of north Atlantic and Arctic waters by Sellafield radionuclides. *The Science of the Total Environment*, **237-238**: 119-132.

- Kershaw P., Leonard K.S., McCubbin D. and Aldridge J.N.** 2001. Plutonium: the legacy of Sellafield. *In: Radioactivity in the environment: Plutonium in the environment*. Edited proceedings of the second invited international symposium, 9-12/11/1999, Osaka, Japan, Kudo A., Elsevier, 305-328p.
- King P., Kennedy H., Newton P.P., Jickells T.D., Brand T., Calvert S., Cauwet G., Etcheber H., Head B., Khrpounoff A., Manighetti B. and Miquel J.C.** 1998. Analysis of total and organic carbon and total nitrogen in settling oceanic particles and a marine sediment: an interlaboratory comparison. *Marine Chemistry*, **60** (3-4): 203-216.
- Kondrachoff V.** 1995. Circulation océanique de la zone de dilution rhodanienne: modélisation et télédétection satellitaire. Thèse de doctorat, Université Toulouse III. 105p.
- Krogstad H.E., Gordon R.L. and Miller M.C.** 1988. High resolution directional wave spectra from horizontally-mounted acoustic Doppler current metres. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technologies*, **5**: 340-352.
- Lamy A., Millot C. and Molines J.M.** 1981. Bottom pressure and sea level measurements in the Gulf of Lion. *Journal of Physical Oceanography*, **11**: 394-410.
- Lansard B., Rabouille C. and Massias D.** 2003. Variability in benthic oxygen fluxes during the winter-spring transition in coastal sediments: an estimation by in situ micro-electrodes and laboratory mini-electrodes. *Oceanologica acta*, **26**: 269-279.
- Lapouyade A. and Durrieu de Madron X.** 2001. Seasonal variability of the advective transport of particulate matter and organic carbon in the Gulf of Lion (NW Mediterranean). *Oceanologica acta*, **24** (3): 295-312.
- Lee S.H., Gastaud J., La Rosa J.J., Liong Wee Kwong L., Povinec P.P., Wyse E., Fifield L.K., Hausladen P.A., Di Tada L.M. and Santos G.M.** 2001. Analysis of plutonium isotopes in marine samples by radiometric, ICP-MS and AMS techniques. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **248** (3): 757-764.
- Lee S.-H., La Rosa J.J., Levy-Palomo I., Oregioni B., Pham M.K., Povinec P.P. and Wyse E.** 2003. Recent inputs and budgets of ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in the northwest Mediterranean Sea. *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography*, **50** (17-21): 2817-2834.
- León Vintrol L., Mitchell P.I., Condren O.M., Downes A.B., Papucci C. and Delfanti R.** 1999. Vertical and horizontal fluxes of plutonium and americium in the western Mediterranean and the Strait of Gibraltar. *The Science of the Total Environment*, **237/238**: 77-91.
- Leonard K.S., McCubbin D., Blowers P. and Taylor B.R.** 1999. Dissolved plutonium and americium in surface waters of the Irish Sea, 1973-1996. *Journal of Environmental Radioactivity*, **44** (2-3): 129-158.
- Lévy F., Clech A., Giordani J.M. and Mistal J.P.** 1993. Control and discharge of radioactive liquid effluents from the Marcoule complex. *Radioprotection*, special issue 02/93: 37-41.
- Lipiatou E. and Saliot A.** 1991. Hydrocarbon contamination of the Rhone delta and western Mediterranean. *Marine Pollution Bulletin*, **22** (6): 297-304.
- Lipiatou E., Tolosa I., Simo R., Bouloubassi I., Dachs J., Marti S., Sicre M.-A., Bayona J.M., Grimalt J.O., Saliot A. and Albaiges J.** 1997. Mass budget and dynamics of polycyclic aromatic hydrocarbons in the Mediterranean Sea. *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography*, **44** (3-4): 881-905.
- Livens F.R., Horrill A.D. and Singleton D.L.** 1994. Plutonium in estuarine sediments and the associated interstitial water. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **38**: 479-489.

- Livingston H.D. and Bowen V.T.** 1979. Pu and ^{137}Cs in coastal sediments. *Earth and Planetary Science Letters*, **43**: 29-45.
- Livingston H.D. and Povinec P.P.** 2000. Anthropogenic marine radioactivity. *Ocean and Coastal Management*, **43**: 689-712.
- Lohrmann A.** 2001. Monitoring sediment concentration with acoustic backscattering instruments. Nortek technical note, N°3: 1-5.
- Lucey J.A., Gouzy A., Boust D., León Vintrol L., Bowden L., Finegan P.P., Kershaw P.J. and Mitchell P.I.** 2004. Geochemical fractionation of plutonium in anoxic Irish Sea sediments using an optimised sequential extraction protocol. *Applied Radiation and Isotopes*, **60** (2-4): 379-385.
- MacKenzie A.B.** 2000. Environmental radioactivity: Experience from the 20th century - Trends and issues for the 21st century. *Science of the Total Environment*, **249** (1-3): 313-329.
- MacKenzie A.B., Cook G.T. and McDonald P.** 1999. Radionuclide distributions and particle size associations in Irish Sea surface sediments: implications for actinide dispersion. *Journal of Environmental Radioactivity*, **44** (2-3): 275-296.
- MacKenzie A.B., Scott R.D., Allan R.L., Ben Shaban Y.A., Cook G.T. and Pulford I.D.** 1994. Sediment radionuclides profiles: implications for mechanisms of Sellafield waste dispersal in the Irish Sea. *Journal of Environmental Radioactivity*, **23**: 39-69.
- Mackenzie A.B., Scott R.D. and Williams T.M.** 1987. Mechanisms for northwards dispersal of Sellafield waste. *Nature*, **329**: 42-45.
- Madsen O.S., Poon Y.K. and Graber H.C.** 1988. Spectral wave attenuation by bottom friction. Proc. 21st Int. Conf. Coastal Engineering, New-York: 492-504.
- Malcolm S.J., Kershaw P.J., Lovett M.B. and Harvey B.R.** 1990a. The interstitial water chemistry of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in the sediments of the North-east Sea. *Geochimica et Cosmochimica acta*, **54** (1): 29-35.
- Malcolm S.J., Kershaw P.J., Cromar N.J. and Botham L.** 1990b. Iron and manganese geochemistry and the distribution of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in the sediments of the north east Irish sea. *The Science of the Total Environment*, **95**: 69-87.
- Marsaleix P., Estournel C., Kondrachoff V. and Véhil R.** 1998. A numerical study of the formation of the Rhone River plume. *Journal of Marine Systems*, **14** (1-2): 99-115.
- Martin J.M. and Thomas A.J.** 1990. Origins, concentrations and distributions of artificial radionuclides discharged by the Rhône river to the Mediterranean sea. *Journal of Environmental Radioactivity*, **11**: 105-139.
- Martino M., Turner A., Nimmo M. and Millward G.E.** 2002. Resuspension, reactivity and recycling of trace metals in the Mersey Estuary, UK. *Marine Chemistry*, **77** (2-3): 171-186.
- McCave I.N.** 1984. Erosion, transport and deposition of fine-grained marine sediments. In: Fine-grained sediments: deep sea processes and facies, eds D.A. Stow and D.J. Piper, Geological Society of London, 35-69p.
- McCormick A.** 1992. Thermal-ionization mass spectrometry for small sample analysis of uranium and plutonium. *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part A. Applied Radiation and Isotopes*, **43** (1-2): 271-278.

- McCubbin D. and Leonard K.S.** 1996. Photochemical dissolution of radionuclides from marine sediment. *Marine Chemistry*, **55** (3-4): 399-408.
- McCubbin D., Leonard K.S. and Emerson H.S.** 1999. The role of thermal and photochemical reactions upon the remobilisation of Pu from an Irish Sea sediment. *Journal of Environmental Radioactivity*, **44** (2-3): 253-273.
- McCubbin D., Leonard K.S. and Emerson H.S.** 2002. Influence of thermal and photochemical reactions upon the redox cycling of Pu between solid and solution phases in seawater. *Marine Chemistry*, **80** (1): 61-77.
- McDonald P., Vives i Batlle J., Bousher A., Whittall A. and Chambers N.** 2001. The availability of plutonium and americium in Irish Sea sediments for re-dissolution. *The Science of the Total Environment*, **267** (1-3): 109-123.
- Meadows P.S., Tait J. and Hussein S.A.** 1990. Effects of estuarine infauna on sediment stability and particle sediment. *Hydrobiologia*, **190**: 263-266.
- Mehta A.J. and Lee S.C.** 1994. Problems in linking the threshold condition for the transport of cohesionless and cohesive sediment grain. *Journal of Coastal Research*, **10** (1): 170-177.
- Millot C. and Monaco A.** 1984. Deep strong currents and sediment transport in the Northwestern Mediterranean Sea. *Geo-Marine Letters*, **4**: 13-17.
- Millot C.** 1990. The Gulf of Lions' hydrodynamics. *Continental Shelf Research*, **10** (9-11): 885-894.
- Millward G.E., Morris A.W. and Tappin A.D.** 1998. Trace metals at two sites in the southern North Sea: Results from a sediment resuspension study. *Continental Shelf Research*, **18** (11): 1381-1400.
- Mitchell P.I., Vives i Batlle J., Downes A.B., Condren O.M., León Vintó L. and Sanchez-Cabeza J.A.** 1995. Recent observations on the physico-chemical speciation of plutonium in the Irish Sea and the Western Mediterranean. *Applied Radiation and Isotopes*, **46** (11): 1175-1190.
- Mitchell P.I., Condren O.M., León Vintó L. and McMahon C.A.** 1999. Trends in plutonium, americium and radiocaesium accumulation and long-term bioavailability in the western Irish Sea mud basin. *Journal of Environmental Radioactivity*, **44** (2-3): 223-251.
- Mitchell P.I., Downes A.B., León Vintó L. and McMahon C.A.** 2001. Studies of the speciation, colloidal association and remobilisation of plutonium in the marine environment. In: *Radioactivity in the environment: Plutonium in the environment*. Edited proceedings of the second invited international symposium, 9-12/11/1999, Osaka, Japan, Kudo A., Elsevier, 175-200p.
- Molero J., Sanchez-Cabeza J.A., Merino J., Vives i Batlle J., Mitchell P.I. and Vidal-Quadras A.** 1995. Particulate distribution of plutonium and americium in surface waters from the Spanish Mediterranean coast. *Journal of Environmental Radioactivity*, **28** (3): 271-283.
- Monaco A., Courp T., Heussner S., Carbonne J., Fowler S.W. and Deniaux B.** 1990. Seasonality and composition of particulate fluxes during ECOMARGE-I, western Gulf of Lions. *Continental Shelf Research*, **10** (9-11): 959-987.
- Monaco A., Durrieu de Madron X., Radakovitch O., Heussner S. and Carbonne J.** 1999. Origin and variability of downward biogeochemical fluxes on the Rhone continental margin (NW Mediterranean). *Deep Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers*, **46** (9): 1483-1511.

- Morris K., Butterworth J.C. and Livens F.R.** 2000. Evidence for the remobilization of Sellafield waste radionuclides in an intertidal salt marsh, West Cumbria, U.K. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **51** (5): 613-625.
- Morris K., Bryan N.D. and Livens F.R.** 2001. Plutonium solubility in sediment pore waters. *Journal of Environmental Radioactivity*, **56** (3): 259-267.
- Munschenheim D.K., Grant J. and Mills E.R.** 1986. Flumes for benthic ecologists: theory, construction and practice. *Marine Ecology Progress Series*, **28**: 185-196.
- Murray C.N. and Fukai R.** 1978. Measurement of $^{239,240}\text{Pu}$ in the northwestern Mediterranean. *Estuarine Coastal Marine Science*, **6** (2): 145-151.
- Naudin J.J., Cauwet G., Leveau M., Lochet F., Pauc H., Romano J.C. and Sempere R.** 1992. Le néphéloïde benthique au large du Rhône. Transferts particuliers à l'interface continent-océan. *Oceanologica acta*, **15** (6): 621-638.
- Naudin J.J. and Cauwet G.** 1997. Transfer mechanisms and biogeochemical implications in the bottom nepheloid layer. A case study of the coastal zone off the Rhone River (France). *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography*, **44** (3-4): 551-575.
- Naudin J.J., Cauwet G., Chretiennot-Dinet M.-J., Deniaux B., Devenon J.L. and Pauc H.** 1997. River discharge and wind influence upon particulate transfer at the land-ocean interaction: Case study of the Rhone River plume. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **45** (3): 303-316.
- Naudin J.J., Cauwet G., Fajon C., Oriol L., Terzic S., Devenon J.L. and Broche P.** 2001. Effect of mixing on microbial communities in the Rhone River plume. *Journal of Marine Systems*, **28** (3-4): 203-227.
- Nelson D.M. and Lovett M.B.** 1978. Oxidation state of plutonium in the Irish Sea. *Nature*, **276**: 599-601.
- Nelson D.M. and Lovett M.B.** 1981. Measurement of the oxidation state and concentration of plutonium in interstitial waters of the Irish Sea. *In: Impacts of Radionuclides into the Marine Environment*, IAEA, Vienne: 105-118.
- Noël M.H.** 1996. Le plutonium comme traceur du transfert et de l'accumulation des apports particuliers du Rhône en Méditerranée Nord Occidentale. Thèse de doctorat, Université Paris XII. 255p.
- Nowell A.R. and Jumars P.A.** 1987. Flumes : theoretical and experimental considerations for simulations of benthic environments. *Oceanography Marine Biology Annual Review*, **25**: 91-112.
- Ockenden M.C. and Soulsby R.L.** 1994. Sediment transport by currents plus irregular waves. Report SR 376: HR Wallingfordp.
- Oldfield F. and Appleby P.G.** 1984. Empirical testing of ^{210}Pb -dating models for lake sediment. *In: Lake sediments and environmental history*, eds. E.Y. Haworth and J.W. Lund, Leicester university press, 93-124p.
- Oughton D.H., Børretzen P., Salbu B. and Tronstad E.** 1997. Mobilisation of ^{137}Cs and ^{90}Sr from sediments: Potential sources to arctic waters. *Science of the Total Environment*, **202** (1-3): 155-165.
- Parchure T.M. and Mehta A.J.** 1985. Erosion of soft cohesive sediment deposits. *Journal of hydraulic engineering*, **111** (10): 1308-1326.

- Paterson D.M., Tolhurst T.J., Kelly J.A., Honeywill C., de Deckere E.M., Huet V., Shayler S.A., Black K.S., de Brouwer J. and Davidson I.** 2000. Variations in sediment properties, Skeffling mudflat, Humber Estuary, UK. *Continental Shelf Research*, **20**: 1373-1396.
- Pauc H.** 1970. Contribution à l'étude dynamique et sédimentologique des suspensions solides au large de l'embouchure du Grand Rhône (Grau de Roustan).Thèse d'état, Université de Perpignan. 126p.
- Pentreath R.J.** 1995. The analysis of Pu in environmental samples: A brief historical perspective. *Applied Radiation and Isotopes*, **46** (11): 1279-1285.
- Perianez R.** In press. The dispersion of ^{137}Cs and $^{239,240}\text{Pu}$ in the Rhone River plume: a numerical model. *Journal of Environmental Radioactivity*.
- Pont D.** 1997. Les débits solides du Rhône à proximité de son embouchure: données récentes (1994-1995). *Revue de Géographie de Lyon*, **72** (1): 23-33.
- Pont D., Simonnet J.-P. and Walter A.V.** 2002. Medium-term changes in suspended sediment delivery to the ocean: consequences of catchment heterogeneity and river management (Rhône River, France). *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **54** (1): 1-18.
- Povinec P.P., La Rosa J.J., Lee S.H., Mulsow S., Osvath I. and Wyse E.** 2001. Recent developments in radiometric and mass spectrometry methods for marine radioactivity measurements. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **248** (3): 713-718.
- Povinec P.P., Aarkrog A., Buesseler K.O., Delfanti R., Hirose K., Hong G.H., Ito T., Livingston H.D., Nies H., Noshkin V.E., Shima S. and Togawa O.** 2002. Worldwide Marine Radioactivity studies (WOMARS), In: Proc. Int. Conf. on Radioactivity in the Environment, 1-5 Sept 2002, Monaco (Eds P. Børretzen, T. Jolle, P. Strand). NRPA: 569-572
- Press W.H., Flannery B.P., Teukolsky S.A. and Vetterling W.T.** 1988. Numerical recipes in C⁺⁺: the art of scientific computing, Cambridge University Press. 994p.
- Radakovitch O., Charmasson S., Arnaud M. and Bouisset P.** 1999. ^{210}Pb and caesium accumulation in the Rhône delta sediment. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **48**: 77-99.
- Raimbault P. and Durrieu de Madron X.** 2003. Research activities in the Gulf of Lion (NW Mediterranean) within the 1997-2001 PNEC project. *Oceanologica acta*, **26** (4): 291-298.
- Reimers C.E., Stecher I., Hilmar A., Taghon G.L., Fuller C.M., Huettel M., Rusch A., Ryckelynck N. and Wild C.** 2004. In situ measurements of advective solute transport in permeable shelf sands. *Continental Shelf Research*, **24** (2): 183-201.
- Ridgway J. and Shimmield G.** 2002. Estuaries as repositories of historical contamination and their impact on shelf seas. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **55** (6): 903-928.
- Roditis J.C. and Pont D.** 1993. River dynamics and the sedimentary environment of the Rhone immediately upstream of its delta. *Méditerranée*, **78**: 5-18.
- Rørbaek K. and Anderson H.** 2000. Evaluation of wave measurements with an Acoustic Doppler Current Profiler. *RDI technical report*.
- Sabatier F.** 2001. Fonctionnement et dynamiques morpho-sédimentaires du littoral du delta du Rhône. Thèse de doctorat, Université Aix-Marseille III. 274p.

- Saulnier I. and Mucci A.** 2000. Trace metal remobilization following the resuspension of estuarine sediments: Saguenay Fjord, Canada. *Applied Geochemistry*, **15** (2): 203-222.
- Schaaff E., Grenz C. and Pinazo C.** 2002. Erosion of particulate inorganic and organic matter in the Gulf of Lion. *Comptes Rendus Geosciences*, **334** (15): 1071-1077.
- Schaaff E.** 2003. Dynamique de la matière particulaire à l'interface eau-sédiment en zone côtière: approches expérimentales et modélisation. Thèse de doctorat, Université Aix-Marseille II. 262p.
- Sholkovitz E.R., Cochran J.K. and Carey A.E.** 1983. Laboratory studies of the diagenesis and mobility of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in nearshore sediments. *Geochimica et Cosmochimica acta*, **47**: 1369-1379.
- Sholkovitz E.R. and Mann D.R.** 1984. The pore water chemistry of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in sediments of Buzzards Bay, Massachusetts. *Geochimica et Cosmochimica acta*, **48**: 1107-1114.
- Silver G.L.** 2001. Plutonium oxidation states in seawater. *Applied Radiation and Isotopes*, **55** (4): 589-594.
- Simpson S.L., Apte S.C. and Batley G.E.** 1998. Effect of short-term resuspension events on trace metal speciation in polluted anoxic sediments. *Environmental Science and Technology*, **32** (5): 620-625.
- Smith J.D.** 1977. Modeling of sediment transport on continental shelves. In: The Sea, eds E.D. Goldberg, I.N. McCave, J.J. O'Brien and J.H. Steele. New York. 539-577.
- Soulsby R.L.** 1983. The bottom boundary layer of shelf seas. In: Physical Oceanography of Coastal and Shelf Seas, eds B. John, Elsevier, Amsterdam. 189-266p.
- Soulsby R.L.** 1987. Calculating bottom orbital velocity beneath waves. *Coastal Engineering*, **11** (4): 371-380.
- Soulsby R.L., Hamm L., Klopman G., Myrhaug D., Simons R.R. and Thomas G.P.** 1994. Wave-current interaction within and outside the bottom boundary layer. *Coastal Engineering*, **21**: 41-69.
- Soulsby R.L.** 1997. Dynamics of marine sands: a manual for practical applications, Thomas Telford Publication. 249p.
- Span D.** 1984. Etude par fractionnement chimique de la distribution des métaux traces dans les sédiments marins récents: le delta du Rhône, les golfes de St Raphaël et de Cannes-La Napoule. Thèse de doctorat de 3^{ème} cycle, Université Paris VI. 252p.
- Stanners D.A. and Aston S.R.** 1981. An improved method of determining sedimentation rates by the use of artificial radionuclides. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **13**: 101-106.
- Stanners D.A. and Aston S.R.** 1984. The use of reprocessing effluent radionuclides in the geochronology of recent sediments. *Chemical Geology*, **44** (1-3): 19-32.
- Strong B., Brumley B., Terray E.A. and Stone G.W.** 2000. The performance of ADCP-derived directional wave spectra and comparison with other independent measurements. <http://www.rdinstruments.com/pdfs/WavesBRO2000.pdf>
- Sutherland T.F., Amos C.L. and Grant J.** 1998. The effect of buoyant biofilms on the erodibility of sublittoral sediments of a temperate microtidal estuary. *Limnology and Oceanography*, **43** (2): 225-235.
- Taylor D.M.** 1995. Environmental plutonium in humans. *Applied Radiation and Isotopes*, **46** (11): 1245-1252.
- Teisson C.** 1991. Cohesive suspended sediment transport : feasibility and limitations of numerical modeling. *Journal of Hydrological Research*, **29**: 755-769.

- Teisson C., Ockenden M., Le Hir P., Kranenburg C. and Hamm L.** 1993. Cohesive sediment transport processes. *Coastal Engineering*, **21** (1-3): 129-162.
- Terray E.A., Brumley B.H. and Strong B.** 1999. Measuring waves and current with an upward-looking ADCP. 6th Working Conference on Current Measurement: 66-71.
- Tessier A., Campbell P.G. and Bisson M.** 1979. Sequential extraction procedure for the speciation of particulate metals. *Analytical chemistry*, **51** (7): 844-851.
- Thill A., Moustier S., Garnier J.-M., Estournel C., Naudin J.-J. and Bottero J.-Y.** 2001. Evolution of particle size and concentration in the Rhone river mixing zone: influence of salt flocculation. *Continental Shelf Research*, **21** (18-19): 2127-2140.
- Thomas A.J.** 1997. Input of artificial radionuclides to the Gulf of Lions and tracing the Rhone influence in marine surface sediments. *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography*, **44** (3-4): 577-595.
- Thorne P.D., Hardcastle P.J. and Soulsby R.L.** 1993. Analysis of acoustic measurements of suspended sediments. *Journal of geophysical research*, **98** (C1): 899-910.
- Thorne P.D. and Hanes D.M.** 2002. A review of acoustic measurement of small-scale sediment processes. *Continental Shelf Research*, **22** (4): 603-632.
- Tolhurst T.J., Black K.S., Paterson D.M., Mitchener H.J., Termaat G.R. and Shayler S.A.** 2000. A comparison and measurement standardisation of four in situ devices for determining the erosion shear stress of intertidal sediments. *Continental Shelf Research*, **20** (10-11): 1397-1418.
- Tolosa I., Readman J.W., Fowler S.W., Villeneuve J.P., Dachs J., Bayona J.M. and Albaiges J.** 1997. PCBs in the western Mediterranean. Temporal trends and mass balance assessment. *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography*, **44** (3-4): 907-928.
- UNSCEAR** 1982. Ionizing radiation: sources and biological effects. United Nation, Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Vienne. 773p.
- UNSCEAR** 1988. Sources, effects and risks of ionizing radiation. United Nation, Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Vienne. 647p.
- Vella C.** 1999. Perception et évaluation de la mobilité du littoral holocène sur la marge orientale du delta du Rhône. Thèse de doctorat, Université de Provence. 225p.
- Vernier E.** 1972. Recherches sur la dynamique sédimentaire du Golfe de Fos. Thèse de doctorat de 3^{ème} cycle, Université Aix-Marseille. 68p.
- Vives i Batlle J.** 1993. Speciation and bioavailability of plutonium and americium in the Irish Sea and other marine ecosystems. *PhD thesis*, University College Dublin: 347p.
- Wang X., Wang Z.Y., Yu M. and Li D.** 2001. Velocity profile of sediment suspensions and comparison of log-law and wake-law. *Journal of Hydraulic Research*, **39** (2): 211-217.
- Yamana H., Yamamoto T., Kobayashi K., Mitsugashira T. and Moriyama H.** 2001. Production of pure ²³⁶Pu tracer for the assessment of plutonium in the environment. *Journal of Nuclear Science and Technology*, **38** (10): 859-865.
- Zoumis T., Schmidt A., Grigorova L. and Calmano W.** 2001. Contaminants in sediments: remobilisation and demobilisation. *The Science of the Total Environment*, **266** (1-3): 195-202.

Zuo Z., Eisma D. and Berger W. 1991. Determination of sediment accumulation and mixing rates in the Gulf of Lions, Mediterranean Sea. *Oceanologica acta*, **14** (3): 253-262.

Zuo Z., Eisma D., Gieles R. and Beks J. 1997. Accumulation rates and sediment deposition in the northwestern Mediterranean. *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography*, **44** (3-4): 597-609.

LISTE DES FIGURES ET TABLEAUX

Liste des Figures

Au total 93 figures

Chapitre 2

Figure 2-1 : Formation du ^{239}Pu par la capture neutronique de l' ^{238}U	7
Figure 2-2 : Réactions d'oxydoréduction entre les différents états d'oxydation du plutonium.....	10
Figure 2-3 : Représentation schématique des processus physico-chimiques impliqués dans la remobilisation du plutonium à l'interface eau-sédiment, d'après McCubbin et al. (1999). (1) Remobilisation physique du Pu lié à la dynamique sédimentaire et à la bioturbation ; (2) Inter conversion entre les formes labiles et non labiles du Pu (IV), d'après Hamilton-Taylor et al. (1993); (3) Réactions rapides et réversibles de compléxation du Pu à la surface des particules; (4) Réactions d'oxydoréduction du premier ordre à la surface des particules.	12
Figure 2-4 : Diagramme potentiel-pH pour la spéciation du plutonium (Choppin et Morgenstern, 2001).	15

Chapitre 3

Figure 3-1 : Bassin hydrographique du Rhône.....	19
Figure 3-2 : Evolution temporelle des débits moyens journaliers du Rhône mesurés à Beaucaire entre 1974 et 2002 par la Compagnie Nationale du Rhône.	20
Figure 3-3 : Schéma du système turbide multicouche au large du prodelta du Rhône (Aloisi et al., 1982).....	21
Figure 3-4 : Géométrie du prisme sédimentaire épicontinental, FL : faciès littoral ; FP : faciès prodeltaïque ; FC : faciès circalittoral, d'après Aloisi (1986).....	22
Figure 3-5 : Carte morpho-bathymétrique du golfe du Lion (IFREMER, 2002). La zone face à l'embouchure du Rhône étudiée lors de ce travail y est indiquée en tirets.	23
Figure 3-6 : Représentation schématique des principaux phénomènes hydrologiques qui agissent sur le golfe du Lion, tels que : la circulation générale (NC : Courant Nord) ; Tc : les courants de turbidité ; Tw : les ondes topographiques ; et la formation d'eau profonde par l'intermédiaire de cheminées situées au large (Co) et par "cascading" sur le plateau continental (Cs). Avec également, les massifs montagneux (Py : les Pyrénées ; MC : le Massif Central ; Al : les Alpes), les vents (Mi : le Mistral ; Tr : la Tramontane), les régions (Ro : le Roussillon ; La : le Languedoc ; Ca : la Camargue ; Pr : la Provence), le Rhône (Rh), les canyons (LD : Lacaze-Duthiers) et les caps (Cc : Cap Creus) (Millot, 1990).	24
Figure 3-7 : Carte de la basse vallée du Rhône localisant l'usine de Marcoule.	27
Figure 3-8 : Composition isotopique moyenne des rejets du complexe de Marcoule. (A) Emetteurs beta et gamma excepté le tritium, sur la période 1964-1998, d'après Charmasson (1998). (B) Emetteurs alpha sur la période 1980-1995, d'après Arnaud (1998).	28
Figure 3-9 : Historique des activités en ^{137}Cs , ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ rejetées annuellement par l'usine de Marcoule, d'après Eyrolle et al. (2004).	29
Figure 3-10 : Concentrations moyennes de divers radionucléides artificiels mesurées dans le Rhône à la station d'Arles sur la période 1982-1985 (Martin et Thomas, 1990). Les lignes obliques indiquent les valeurs des coefficients de distribution (Kd).	30
Figure 3-11 : Modes d'exportation des radionucléides introduits dans un système fluviale, d'après Oughton et al. (1997).	31

Figure 3-12 : Evolution temporelle du débit moyen annuel du Rhône en Arles et suivi du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ moyen des matières en suspension du Rhône, d'après Duffa (2001).....	32
Figure 3-13 : Distribution des activités en ^{238}Pu (Bq.kg ⁻¹ , en haut), $^{239,240}\text{Pu}$ (Bq.kg ⁻¹ , au milieu) et du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ (en bas) dans les sédiments de surface (0-2 cm) du prodelta du Rhône en 1984, d'après Martin et Thomas (1990).	32
Figure 3-14 : Flux de plutonium pour le golfe du Lion intégrés entre 1954 et 1990 (Noël, 1996)	34

Chapitre 4

Figure 4-1 : Carottier multitubes après échantillonnage.	36
Figure 4-2 : Carte des stations échantillonnées lors de la campagne REMORA 1.	37
Figure 4-3 : Carte des stations échantillonnées lors de la campagne REMORA 2.	38
Figure 4-4 : Schéma du fonctionnement d'un carottier de type kullenberg (www.shom.fr).....	39
Figure 4-5 : Carte des stations échantillonnées lors de la campagne REMORA 3.	39
Figure 4-6 : Carottier boîte de type USNEL.	40
Figure 4-7 : Synoptique et illustrations des principales étapes du protocole de radiochimie du plutonium.	45
Figure 4-8 : Exemple de spectre obtenu par spectrométrie alpha pour les isotopes du plutonium.....	48
Figure 4-9 : Résultats de l'intercomparaison entre les mesures de $^{239,240}\text{Pu}$ (A) et ^{238}Pu (B) réalisées par le CIEMAT (en abscisse) et nos mesures (en ordonnée).....	49
Figure 4-10 : Evolution des pourcentages de ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ issus des rejets de Marcoule en fonction du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$	52
Figure 4-11 : Schéma du canal à courant utilisé pour les expériences de remise en suspension.....	53
Figure 4-12 : Section test du canal à courant avant une expérience de remise en suspension.	54
Figure 4-13 : Exemple type d'une expérience de remise en suspension en canal à courant.	55
Figure 4-14 : Représentation schématique des différentes zones formant la couche limite de fond.....	56

Chapitre 5

Figure 5-1 : Bathymétrie (A) et distribution granulométrique des sédiments de surface : pourcentage de sables (>63µm) (B), de silts (entre 63 et 4µm) (C) et d'argiles (<4µm) (D).	61
Figure 5-2 : Profils de porosité pour 19 stations situées face à l'embouchure du Rhône (A) et profil type de porosité calculé sans tenir compte des stations MT15, 16 et 17 (B).....	62
Figure 5-3 : Distribution de la matière organique (A), du carbone organique total (B), de l'azote total (C) et du rapport C/N (D) dans les sédiments de surface (% du poids sec de sédiment).	63
Figure 5-4 : Profils d'oxygène à l'interface eau-sédiment mesurés à la station Rhône (43°18'4 N, 4°53'1 E, 63 m) les 18 (A) et 19 (B) juin 2002, lors de la campagne MINERCOT (données C. Rabouille).....	65
Figure 5-5 : Concentrations en $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ (Bq.kg ⁻¹) dans les sédiments face à l'embouchure du Rhône.	67
Figure 5-6 : Evolution temporelle des activités en $^{239,240}\text{Pu}$ (A), ^{238}Pu (B) (Bq.kg ⁻¹) et du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ (C) dans les sédiments de surface à proximité de l'embouchure du Rhône entre 1982 et 2001.	70
Figure 5-7 : Profils des activités en ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{137}Cs et du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ dans les carottes kullenberg prélevées à Roustan en 1991 et 2001.....	71
Figure 5-8 : Pourcentages de ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ originaire de Marcoule au sein de la carotte KBRous 2001 calculé d'après l'évolution du rapport $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$	73
Figure 5-9 : Distribution granulométrique des sédiments de la carotte KBRous 2001.	74
Figure 5-10 : Comparaison entre le profil des activités en $^{239,240}\text{Pu}$ de la carotte KBRous 2001 et l'historique des rejets annuels de $^{239,240}\text{Pu}$ par l'usine de Marcoule. Cette comparaison est effectuée en supposant un	

taux de sédimentation moyen de 17 cm.a^{-1} (A). Régression linéaire entre les activités en $^{239,240}\text{Pu}$ de la carotte KBRous 2001 et les rejets de $^{239,240}\text{Pu}$ de Marcoule (n=26), (B).	75
Figure 5-11 : Comparaison entre l'évolution du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ dans la carotte KBRous 2001 et celle du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ moyen des matières en suspension du bas Rhône, d'après Duffa (2001), en supposant un taux de sédimentation moyen de 17 cm.a^{-1} .	76
Figure 5-12 : Evolution des activités en $^{239,240}\text{Pu}$ (A), ^{238}Pu (B) en (Bq.kg^{-1}) et du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ (C) dans les sédiments de surface en fonction de la distance à l'embouchure.	78
Figure 5-13 : Distribution spatiale des activités en $^{239,240}\text{Pu}$ (A), ^{238}Pu (B) et du rapport d'activité $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ (C) dans les sédiments face à l'embouchure du Rhône en 2001.	79
Figure 5-14 : Pourcentages de ^{238}Pu (A) et $^{239,240}\text{Pu}$ (B) originaires de Marcoule dans les sédiments superficiels face à l'embouchure du Rhône.	80
Figure 5-15 : Distribution du ^{137}Cs (Bq.kg^{-1}) dans les sédiments situés face à l'embouchure du Rhône.	83
Figure 5-16 : Régressions linéaires entre les activités en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ et les activités en ^{137}Cs mesurées pour les sédiments de REMORA 1 (n=52).	84
Figure 5-17 : Comparaison entre les profils de ^{238}Pu calculés, d'après les mesures en ^{137}Cs et la relation ^{137}Cs - ^{238}Pu (en orange), nos mesures de ^{238}Pu (en bleu) et celles du CIEMAT (en vert).	85
Figure 5-18 : Comparaison entre les profils de $^{239,240}\text{Pu}$ calculés, d'après les mesures en ^{137}Cs et la relation ^{137}Cs - $^{239,240}\text{Pu}$ (en orange), nos mesures de $^{239,240}\text{Pu}$ (en bleu) et celles du CIEMAT (en vert).	86
Figure 5-19 : Représentation tridimensionnelle des inventaires en ^{238}Pu (A) et $^{239,240}\text{Pu}$ (B) en kBq.m^{-2} dans les sédiments situés face à l'embouchure du Rhône en 2001 (Bq.m^{-2}). La projection des croix indique la localisation des stations prises en compte pour l'interpolation.	89
Figure 5-20 : Représentation tridimensionnelle des inventaires en ^{238}Pu (A) et $^{239,240}\text{Pu}$ (B) en Bq.m^{-2} dans les sédiments situés face à l'embouchure du Rhône en 2001. Cette représentation ne tient pas compte des inventaires de la carotte KBRous 2001.	90

Chapitre 6

Figure 6-1 : Carte morpho-bathymétrique de la zone située face à l'embouchure du Rhône présentant les stations échantillonnées pour les expériences de remise en suspension.	95
Figure 6-2 : Distribution granulométrique des sédiments de surface des stations échantillonnées pour les expériences de remise en suspension.	96
Figure 6-3 : Résultats des 3 expériences de remise en suspension réalisées successivement sur des sédiments de la station Fos.	97
Figure 6-4 : Résultats des différentes expériences de remise en suspension (vitesse de l'écoulement en bleue et concentrations des matières en suspension en orange).	98
Figure 6-5 : Evolution temporelle des concentrations de $^{239,240}\text{Pu}$ dissous dans les eaux de surface de la Méditerranée occidentale entre 1970 et 2002, modifié d'après León Vintró et al. (1999).	101
Figure 6-6 : Activités en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ remobilisées en fonction de la masse de sédiment remis en suspension (à l'exception des station Roustan Est et Sète).	104

Chapitre 7

Figure 7-1 : Carte du delta du Rhône présentant les stations de mouillage de l'AWAC et de la Datawell.	113
Figure 7-2 : Représentation schématique des mesures ADCP.	114
Figure 7-3 : Exemple d'analyse spectrale réalisée pour le 08/05/02 à 7h30 : spectre d'énergie (A) et spectre directionnel d'énergie (B).	115
Figure 7-4 : Processus de transport sédimentaire en zone côtière.	117
Figure 7-5 : Comparaison des spectres Pierson-Moskowitz et JONSWAP (1) et résultats du spectre JONSWAP pour différents fetchs (2), d'après Hasselmann et al., (1973).	120

Figure 7-6 : Vitesse orbitale sur le fond pour des vagues monochromatiques et des vagues aléatoires (JONSWAP), d'après Soulsby (1987).	121
Figure 7-7 : Représentation schématique des interactions non linéaires entre les contraintes de cisaillement du courant (τ_c) et de la houle (τ_w), d'après Soulsby et al. (1994).	124
Figure 7-8 : Intercomparaison de différents modèles d'interaction houle-courant (Soulsby et al., 1994).	125
Figure 7-9 : Evolution temporelle des vents maximum et moyen (vitesse et direction) et des précipitations.	128
Figure 7-10 : Roses des vents enregistrés à Port de Bouc durant la campagne RHONAWAC (A) et à Marignane de 1984 à 1994 (B).	129
Figure 7-11 : Débits du grand Rhône enregistrés en Arles par la Compagnie Nationale du Rhône du 15/04 au 15/06/02. Les dates de la campagne RHONAWAC sont rappelées en rouge.	129
Figure 7-12 : Evolution temporelle de la hauteur d'eau mesurée par le capteur de pression de l'AWAC.	130
Figure 7-13 : Evolution temporelle de la vitesse du courant (A), de la direction du courant (B) et du backscatter (C) enregistrées à la station Roustan Est pendant la campagne RHONAWAC.	131
Figure 7-14 : Evolution temporelle de la vitesse et de la direction du courant de fond et du backscatter à 1,5 m du fond (moyennés sur 30 mn).	133
Figure 7-15 : Histogrammes des vitesses (A) et directions (B) du courant de fond (1,5m) à l'embouchure du Rhône sur la période du 29 avril au 5 juin 2002.	133
Figure 7-16 : Evolution temporelle des mesures de turbidité à 0,6 m du fond.	134
Figure 7-17 : Evolution temporelle de la hauteur significative des vagues (H_s), de la période du pic (T_p) et de la direction de provenance de la houle (θ), obtenues d'après les données de l'ADCP, de Matlab et de la Datawell.	135
Figure 7-18 : Vitesses (A) et accélérations (B) du courant de fond pour la période du 21 au 24/05/02.	137
Figure 7-19 : Diagramme de Tuckey représentant les accélérations du courant mesurées par l'AWAC (moyenne $0,004 \text{ cm.s}^{-2}$).	137
Figure 7-20 : Evolution temporelle de la contrainte de cisaillement de fond liée au courant seul.	138
Figure 7-21 : Estimations des contraintes de cisaillement sur le fond liées aux vagues (τ_w) pour les différentes mesures (ADCP, capteur de pression Matlab et Datawell).	139
Figure 7-22 : Variations temporelles du déphasage entre la direction de propagation de la houle et la direction du courant moyen.	140
Figure 7-23 : Estimations des contraintes de cisaillement sur le fond liées aux interactions houle-courant.	140
Figure 7-24 : Comparaison du backscatter et de $\tau_{cw \text{ max}}$ vis-à-vis des contraintes critiques d'érosion déterminées en canal à courant pour la station Roustan Est.	141
Figure 7-25 : Evolution de la direction du vent (violet), de la direction du courant de fond (vert), de la vitesse du courant de fond (bleu), du backscatter (orange) et de la contrainte de cisaillement de fond due à l'interaction houle-courant (rouge).	144
Figure 7-26 : Synthèse des principaux paramètres mesurés et calculés lors de la mission RHONAWAC.	145
Figure 7-27 : Représentation vectorielle du vent moyen horaire (A) et du courant de fond moyen horaire (B) sur l'ensemble de la période de mesure.	146
Figure 7-28 : Dynamique du panache du Rhône pour un régime de vent de Nord Nord-Ouest (A), d'après Demarcq et Wald (1984). Image du Satellite SPOT (B) prise le 11/11/94 pour un Mistral de 10 m.s^{-1} et un débit du Rhône de $5500 \text{ m}^3.\text{s}^{-1}$, d'après Estournel et al. (2001).	147
Figure 7-29 : Dynamique des courants de surface (I) et des courants de fond (II) à l'embouchure du Rhône pour un vent de Nord-Ouest (Pauc, 1970).	147
Figure 7-30 : Dynamique du panache du Rhône pour un régime de vent d'Est à Sud-Est, d'après Demarcq et Wald (1984).	148
Figure 7-31 : Distribution des contraintes de cisaillement de fond liée à l'interaction houle courant ($\tau_{cw \text{ max}}$) en fonction de la direction de la houle (A) et du courant de fond (B).	149

Figure 7-32 : Illustration de la dynamique de fond à l’embouchure du Rhône en fonction de la direction du vent.	149
--	-----

Chapitre 8

Figure 8-1 : Evolution, en fonction de la profondeur, de la contrainte de cisaillement sur le fond (τ_w) liée aux vagues mesurées pendant la campagne RHONAWAC.	153
Figure 8-2 : Bilan des apports (cumulés de 1954 à 2001) et des stocks de plutonium (estimé en 2001) pour les sédiments face à l’embouchure du Rhône (495km ²).	155
Figure 8-3 : Pourcentage d’accumulation des sédiments récents du Rhône sur la marge continentale du golfe du Lion (Noël, 1996).	157

Liste des Tableaux

Au total 22 tableaux

Chapitre 2

Tableau 2-1 : Caractéristiques des principaux isotopes du plutonium.	7
Tableau 2-2 : Activités des différents isotopes du plutonium introduits dans l'atmosphère par les essais d'armes nucléaires (UNSCEAR, 1982).	8

Chapitre 3

Tableau 3-1 : Distribution des directions de provenance de la houle mesurées au Cap Couronne, (Vernier, 1972).	25
---	----

Chapitre 4

Tableau 4-1 : Récapitulatif des campagnes océanographiques et des principales opérations réalisées en mer lors de ce travail.	35
Tableau 4-2 : Distribution granulométrique des sédiments.	42

Chapitre 5

Tableau 5-1 : Estimations des taux de sédimentation apparents maximums (S) et des taux de mélange maximums (D) pour certaines stations face à l'embouchure du Rhône en 2001. Comparaison avec les résultats obtenus en 1991 par Radakovitch et al. (1999).	68
Tableau 5-2 : Inventaire des mesures de plutonium réalisées à proximité de l'embouchure du Rhône sur la période 1982-2001.	69
Tableau 5-3 : Caractéristiques des carottes kullenberg prélevées à la station Roustan en 1991 et 2001.	71
Tableau 5-4 : Estimation des inventaires en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ (Bq.m^{-2}) calculés d'après les profils de ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ obtenus par les relations Cs-Pu. L'incertitude associée aux calculs des inventaires est estimée à $\pm 20\%$	88
Tableau 5-5 : Estimations des stocks de ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ dans les sédiments face à l'embouchure du Rhône pour une aire de 495 km^2	91

Chapitre 6

Tableau 6-1 : Caractéristiques des stations échantillonnées pour les expériences de remise en suspension.	95
Tableau 6-2 : Activités en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ ($\text{mBq.kg}^{-1} \pm 1\sigma$) dans les sédiments de surface (0-2 cm) des stations échantillonnées pour les expériences de remise en suspension.	96
Tableau 6-3 : Résultats des vitesses critiques d'érosion, des contraintes critiques d'érosion et des flux d'érosion déterminés lors des expériences de remise en suspension.	99
Tableau 6-4 : Activités moyennes en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ dans l'eau de mer (phases dissoute et particulaire). Activités moyennes déterminées sur 3 échantillons de 600 litres d'eau de mer prélevés à la station marine d'Endoume.	100

Tableau 6-5 : Activités en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ remobilisées dans la phase dissoute du canal à courant (300 l) à la fin de chaque expérience de remise en suspension (mBq).....	102
Tableau 6-6 : Activités en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ remobilisées dans la phase particulaire du canal à courant à la fin des expériences de remise en suspension (mBq) et estimations des masses de matières remises en suspension M_{RES} d'après les filtres GFF et Millipore.....	103
Tableau 6-7 : Comparaison des concentrations en ^{238}Pu et en $^{239,240}\text{Pu}$ (mBq.kg^{-1}) entre les matières remises en suspension (MRS) et les sédiments (SED).....	105
Tableau 6-8 : Flux de ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ remobilisés avec la phase particulaire lors des expériences de remise en suspension ($\text{mBq.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$).....	106

Chapitre 7

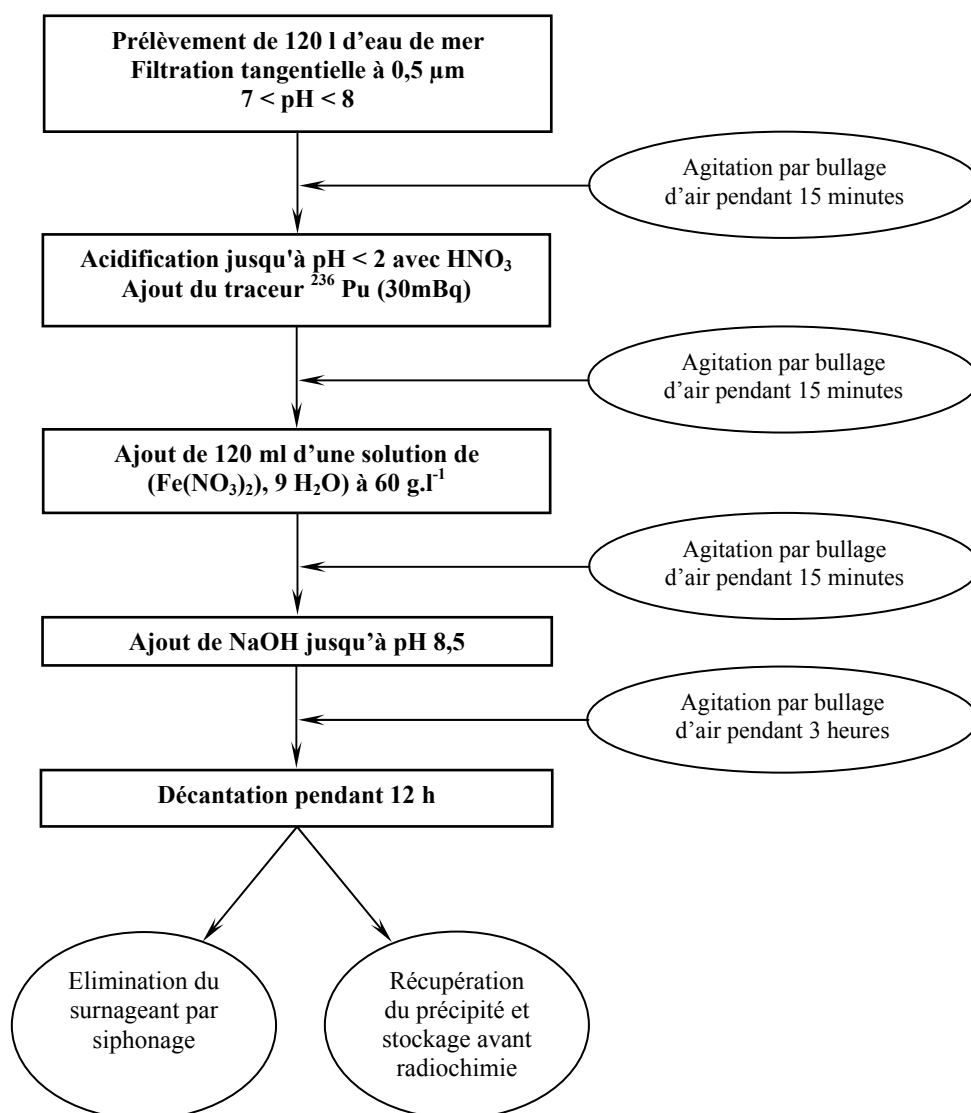
Tableau 7-1 : Coefficients donnés par Soulsby et al., (1994) pour paramétrer différents modèles de couche limite dans le cas des interactions houle-courant.....	126
--	-----

Chapitre 8

Tableau 8-1 : Distribution des stocks de plutonium en fonction de la hauteur de la colonne sédimentaire.	152
Tableau 8-2 : Occurrence des phénomènes de remise en suspension en fonction de la profondeur. Pourcentage d'observation où la contrainte de cisaillement sur le fond générée par les vagues (τ_w) est supérieure à $0,1 \text{ N.m}^{-2}$	154
Tableau 8-3 : Estimations des flux potentiels de remobilisation du plutonium en fonction de la profondeur et de la fréquence moyenne des phénomènes de remise en suspension. Ces estimations sont calculées d'après les flux de plutonium mesurés en canal à courant.	154

ANNEXES

Annexe 1 : Protocole de préconcentration des isotopes du plutonium dissous en milieu marin.



Annexe 2 : Concentrations en ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ et ^{137}Cs (Bq.kg^{-1} sec $\pm 1\sigma$) pour la carotte KBRoustan prélevée à l'embouchure du grand Rhône (bouées de Roustan : 43°18'48 N, 4°50'96 E) le 12 novembre 2001 par 43 m de profondeur.

Niveau (cm)	^{238}Pu		$^{239,240}\text{Pu}$		$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$		^{137}Cs	
	Bq.kg^{-1}	+/-	Bq.kg^{-1}	+/-		+/-	Bq.kg^{-1}	+/-
0-10	0,035	0,002	0,256	0,006	0,138	0,016	10,7	0,8
10-20							9,9	0,8
20-30	0,051	0,002	0,356	0,008	0,143	0,007	10,9	0,9
30-40							16,6	1,2
40-50	0,050	0,002	0,357	0,007	0,141	0,006	15,9	1,1
50-60							14,5	1,1
60-70	0,055	0,002	0,308	0,007	0,177	0,009	16,6	1,2
70-80	0,071	0,002	0,393	0,007	0,180	0,006	16,5	1,4
80-90	0,178	0,004	0,770	0,013	0,231	0,007	40,8	2,7
90-100							39,1	2,6
100-110	0,216	0,004	0,841	0,012	0,256	0,006	22,2	1,5
110-120							26,9	1,8
120-130	0,317	0,006	1,247	0,017	0,254	0,006	42,3	2,8
130-140							30,3	2,1
140-150	0,129	0,003	0,616	0,009	0,210	0,006	27,8	2,0
150-160	0,057	0,002	0,340	0,006	0,168	0,006	19,7	1,4
160-170	0,431	0,008	1,665	0,024	0,259	0,006	54,0	4,0
170-180	0,330	0,006	1,225	0,016	0,269	0,006	42,6	2,9
180-190	0,737	0,011	2,768	0,035	0,266	0,005	81,0	6,0
190-200	0,466	0,007	2,142	0,026	0,218	0,004	81,0	6,0
200-210	0,939	0,013	3,895	0,048	0,241	0,005	139,0	10,0
210-220							131,0	9,0
220-230	0,961	0,015	3,983	0,058	0,241	0,005	149,0	10,0
230-240							175,0	13,0
240-250	1,071	0,016	4,770	0,064	0,225	0,004	157,0	10,0
250-260							98,0	7,0
260-270	1,262	0,031	5,631	0,124	0,224	0,007	101,0	7,0
270-280							130,0	10,0
280-290	1,254	0,030	5,974	0,129	0,210	0,007	108,0	8,0
290-300	0,667	0,010	3,394	0,044	0,197	0,004	65,0	5,0
300-310	0,171	0,007	1,090	0,028	0,156	0,007	32,2	2,3
310-320	0,622	0,009	2,896	0,036	0,215	0,004	98,0	7,0
320-330	0,604	0,016	3,071	0,070	0,197	0,007	109,0	8,0
330-340							74,0	5,0
340-350	0,532	0,015	2,838	0,068	0,187	0,007	71,0	5,0
350-360							72,0	6,0
360-370	0,614	0,018	3,696	0,089	0,166	0,006	69,0	5,0
370-380							52,0	4,0
380-390	0,476	0,014	2,499	0,061	0,191	0,007	65,0	5,0
390-400							85,0	6,0
400-410	0,252	0,009	1,504	0,041	0,167	0,008	62,0	5,0
410-420							65,0	5,0
420-430	0,108	0,004	1,057	0,024	0,102	0,005	74,0	5,0
430-440							23,7	1,6
440-450	0,076	0,003	1,067	0,025	0,071	0,004	27,7	2,0
450-460							25,1	1,7
460-470	0,058	0,003	0,630	0,015	0,091	0,005	21,1	1,4
470-473	0,050	0,002	0,550	0,013	0,091	0,005	20,8	1,5

Annexe 3 : Concentrations en ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ et ^{137}Cs (Bq.kg⁻¹ sec +/- 1σ) pour la carotte KLRous 1991 prélevée à l'embouchure du grand Rhône (bouées de Roustan : 43°18'51 N, 4°51'02 E) le 16 mars 1991 par 30 m de profondeur.

	^{238}Pu		$^{239,240}\text{Pu}$		$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$		^{137}Cs	
Niveau (cm)	Bq.kg ⁻¹	+/-	Bq.kg ⁻¹	+/-		+/-	Bq.kg ⁻¹	+/-
0-10	0,316	0,021	1,171	0,070	0,270	0,024	74,0	1,0
10-20	0,633	0,058	2,127	0,195	0,298	0,039	160,0	1,0
20-30	0,612	0,042	2,231	0,145	0,274	0,026	154,0	1,0
30-40	0,424	0,030	1,677	0,114	0,253	0,025	134,0	2,0
40-50	0,681	0,077	2,892	0,306	0,235	0,036	165,0	1,0
50-60	0,838	0,077	3,201	0,284	0,262	0,033	207,0	2,0
60-70	0,999	0,103	3,762	0,372	0,266	0,038	293,0	2,0
70-80	2,129	0,126	4,782	0,275	0,445	0,037	275,0	3,0
80-90	2,239	0,103	5,376	0,237	0,416	0,027	286,0	2,0
90-100	0,728	0,050	3,085	0,201	0,236	0,022	149,0	1,0
100-110	1,874	0,077	4,839	0,188	0,387	0,022	207,0	2,0
110-120	0,528	0,039	1,439	0,093	0,367	0,036	174,0	2,0
120-130	1,641	0,091	4,609	0,236	0,356	0,027	173,0	3,0
130-140	1,164	0,055	3,118	0,139	0,373	0,024	610,0	3,0
140-150	0,788	0,032	3,541	0,098	0,223	0,011	137,0	2,0
150-160	0,153	0,089	0,878	0,242	0,174	0,112	43,0	1,0
160-170	0,455	0,039	1,943	0,146	0,234	0,027	64,0	1,0
170-180	0,316	0,027	0,860	0,068	0,367	0,043	199,0	2,0
180-190	1,899	0,060	7,696	0,228	0,247	0,011	299,0	2,0
190-200	1,307	0,046	6,255	0,170	0,209	0,009	183,0	2,0
200-210	2,286	0,151	6,137	0,292	0,372	0,030	242,0	2,0
210-220	1,604	0,100	5,051	0,215	0,318	0,024	153,0	1,0
220-230	0,852	0,035	3,993	0,111	0,213	0,011	114,0	1,0
230-240	0,294	0,017	1,700	0,055	0,173	0,011	74,0	1,0
240-250	0,121	0,014	0,793	0,074	0,153	0,023	51,0	1,0
250-260	0,457	0,073	2,357	0,052	0,194	0,031	119,0	1,0
260-270	0,821	0,035	3,330	0,102	0,247	0,013	163,0	2,0
270-280	0,449	0,022	2,198	0,073	0,204	0,012	154,0	2,0
280-290	0,187	0,022	0,978	0,103	0,191	0,030	122,0	1,0
290-300	0,461	0,020	2,040	0,057	0,226	0,012	142,0	2,0
300-310	0,690	0,032	3,273	0,097	0,211	0,012	232,0	2,0
310-320	0,421	0,010	2,079	0,048	0,203	0,007	108,0	2,0
320-330	0,102	0,014	0,568	0,065	0,180	0,032	46,0	1,0
330-340	0,299	0,010	1,798	0,026	0,166	0,006	81,0	1,0
340-350	0,423	0,026	2,667	0,156	0,159	0,013	83,0	1,0
350-360	0,697	0,024	3,563	0,115	0,196	0,009	180,0	2,0
360-370	0,925	0,069	3,596	0,257	0,257	0,027	210,0	2,0
370-380	0,411	0,025	1,777	0,100	0,231	0,019	92,0	1,0
380-390	0,234	0,017	1,523	0,097	0,154	0,015	103,0	1,0
390-400	0,151	0,012	1,488	0,094	0,101	0,010	113,0	2,0
400-410	0,128	0,010	0,765	0,047	0,167	0,017	115,0	2,0
410-420	0,133	0,015	1,215	0,098	0,109	0,015	190,0	2,0
420-430	0,038	0,009	0,576	0,021	0,066	0,016	45,0	1,0

Annexe 4 : Coordonnées et profondeur des stations échantillonnées lors de la campagne *REMORA 1* en mars 2001.

Station	Latitude (°N)	Longitude (°E)	Profondeur (m)
MTRous	43°18'6	4°50'5	38
MT01	43°20'2	4°55'2	22
MT02	43°18'3	4°54'9	66
MT03	43°17'0	4°55'0	80
MT04	43°16'1	4°58'1	38
MT05	43°14'6	4°54'8	97
MT06	43°11'9	4°54'0	106
MT07	43°10'0	4°56'0	111
MT08	43°10'1	4°49'9	102
MT09	43°14'0	4°50'0	95
MT10	43°13'0	4°46'0	90
MT11	43°10'2	4°43'9	90
MT12	43°10'0	4°39'0	76
MT13	43°13'2	4°41'8	74
MT14	43°16'0	4°40'7	57
MT15	43°17'9	4°38'7	33
MT16	43°17'7	4°42'8	40
MT17	43°19'1	4°46'1	26
MT18	43°17'6	4°46'1	60
MT19	43°16'3	4°46'6	75
MT20	43°15'9	4°49'3	85
MT21	43°16'3	4°52'5	89
MT22	43°14'9	4°43'9	73
MT23	43°14'3	4°46'5	87

Annexe 5 : Concentrations en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ et ^{137}Cs (Bq.kg^{-1} sec $\pm 1\sigma$) pour certains horizons sédimentaires prélevés en mars 2001 pendant la campagne *REMORA 1* en mars 2001.

Station	Niveau (cm)	^{238}Pu		$^{239,240}\text{Pu}$		$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$	
		Bq.kg^{-1}	$\pm$	Bq.kg^{-1}	$\pm$		$\pm$
MTRous	0-1	0,050	0,002	0,302	0,007	0,165	0,008
MTRous	12-13	0,046	0,002	0,303	0,008	0,153	0,009
MT01	0-1	0,025	0,003	0,329	0,017	0,075	0,011
MT04	0-1	0,116	0,003	1,211	0,018	0,096	0,003
MT04	6-7	0,092	0,003	1,020	0,015	0,090	0,003
MT05	0-1	0,077	0,004	0,851	0,023	0,090	0,005
MT06	0-1	0,078	0,004	1,087	0,029	0,072	0,004
MT06	12-13	0,095	0,005	1,316	0,033	0,072	0,004
MT07	0-1	0,063	0,002	0,885	0,013	0,071	0,002
MT07	7-8	0,062	0,002	0,892	0,013	0,069	0,002
MT08	0-1	0,089	0,004	1,598	0,033	0,056	0,003
MT08	20-21	0,008	0,001	0,238	0,008	0,034	0,005
MT09	0-1	0,119	0,004	1,719	0,029	0,069	0,002
MT09	15-16	0,181	0,006	2,115	0,046	0,086	0,003
MT10	0-1	0,124	0,004	1,330	0,025	0,093	0,003
MT10	15-16	0,234	0,006	2,490	0,047	0,094	0,003
MT11	0-1	0,137	0,003	1,485	0,022	0,093	0,003
MT11	6-7	0,148	0,003	1,655	0,021	0,089	0,002
MT12	0-1	0,115	0,003	1,143	0,020	0,100	0,004
MT12	8-9	0,129	0,003	1,548	0,024	0,083	0,003
MT13	0-1	0,142	0,010	1,549	0,030	0,092	0,007
MT13	10-11	0,173	0,006	1,884	0,040	0,092	0,004
MT14	0-1	0,126	0,003	1,227	0,017	0,103	0,003
MT14	9-10	0,218	0,004	1,987	0,027	0,110	0,003
MT15	0-1	0,059	0,002	0,670	0,013	0,087	0,004
MT15	21-22	0,009	0,001	0,077	0,003	0,121	0,015
MT16	0-1	0,088	0,004	0,755	0,020	0,117	0,006
MT17	0-1	0,061	0,002	0,462	0,010	0,131	0,006
MT17	10-11	0,215	0,004	1,387	0,018	0,155	0,004
MT19	0-1	0,121	0,005	0,960	0,024	0,126	0,006
MT20	0-1	0,088	0,004	0,704	0,018	0,125	0,006

Annexe 6 : Concentrations en ^{137}Cs et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ (Bq.kg^{-1} sec $\pm 1\sigma$) pour les carottes prélevées lors de la mission *REMORA1* en Mars 2001.

[illegible]

Annexe 6 : Concentrations en ^{137}Cs et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ (Bq.kg^{-1} sec $\pm 1\sigma$) pour les carottes prélevées lors de la mission *REMORA1* en Mars 2001 (suite).

[illegible]

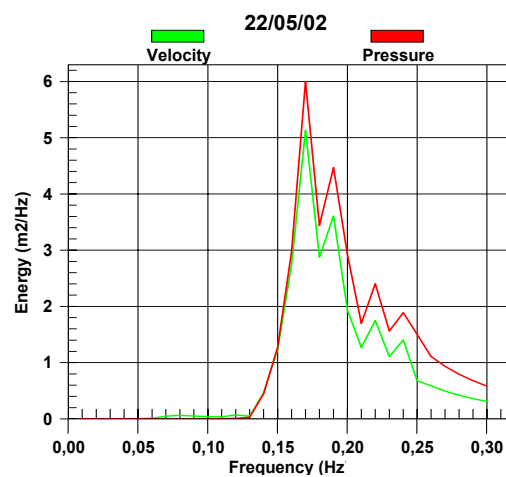
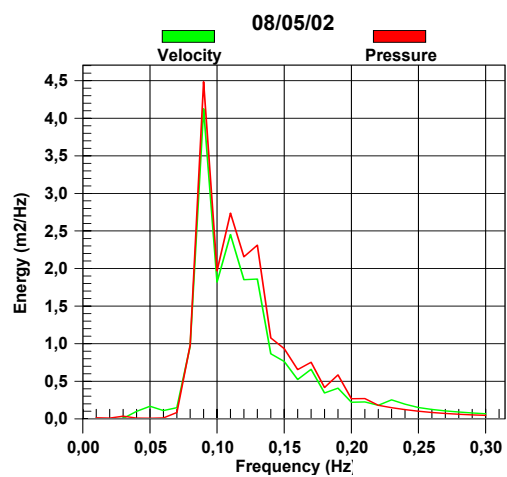
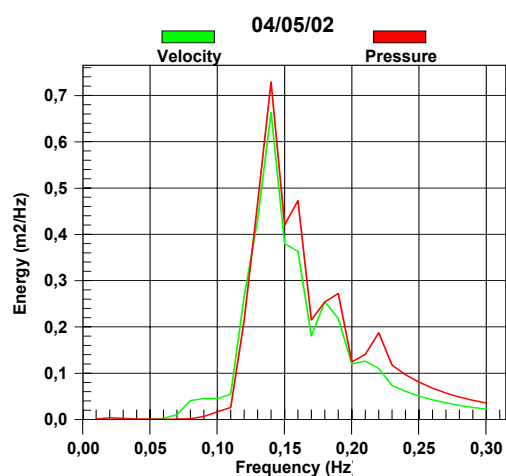
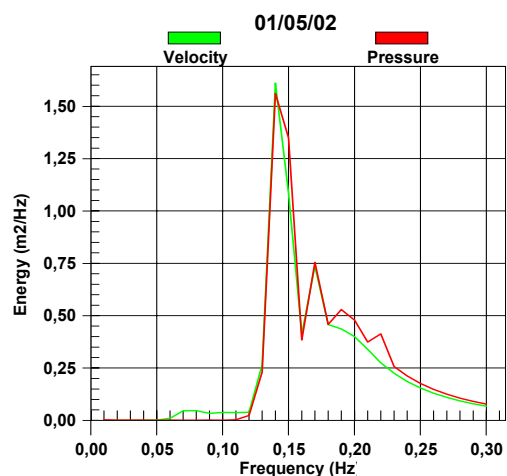
Annexe 6 : Concentrations en ^{137}Cs et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ (Bq.kg^{-1} sec $\pm 1\sigma$) pour les carottes prélevées lors de la mission *REMORA1* en Mars 2001 (suite).

Niveau (cm)	MT11				MT12				MT13				MT14			
	^{137}Cs		$^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$		^{137}Cs		$^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$		^{137}Cs		$^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$		^{137}Cs		$^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$	
	Bq.kg^{-1}	$\pm$	Bq.kg^{-1}	$\pm$	Bq.kg^{-1}	$\pm$	Bq.kg^{-1}	$\pm$	Bq.kg^{-1}	$\pm$	Bq.kg^{-1}	$\pm$	Bq.kg^{-1}	$\pm$	Bq.kg^{-1}	$\pm$
0-1	19,5	1,4	147,1	14,0	16,8	1,2	114,5	11,1	21,6	1,5	121,7	10,9	20,1	1,4	112,3	8,1
1-2	20,8	1,5	132,8	11,9	17,8	1,3	114,3	11,1	21,6	1,5	125,5	13,0	22,4	1,6	106,5	10,9
2-3	21,1	1,5	138,8	13,9	19,4	1,3	120,6	8,2	21,5	1,5	119,8	11,0	22,3	1,6	107,3	11,0
3-4	21,2	1,5	130,2	12,0	20,3	1,4	116,8	12,0	22,9	1,6	121,8	11,9	23,8	1,7	101,2	9,8
4-5	22,1	1,5	124,0	11,9	20,1	1,4	113,4	11,0	22,8	1,5	120,5	7,9	26,1	1,8	100,6	9,9
5-6	22,3	1,5	119,3	8,1	20,0	1,6	112,9	12,0	24,5	1,7	117,8	11,9	26,9	1,8	92,1	8,0
6-7	23,8	1,7	116,5	11,8	20,4	1,4	103,2	9,1	23,7	1,6	115,8	12,0	29,1	2,0	98,7	9,8
7-8	22,8	1,6	111,1	11,0	20,1	1,6	97,8	10,0	24,9	2,0	111,6	11,9	29,0	1,8	91,7	7,0
8-9	23,5	1,9	104,6	11,0	20,6	1,4	90,6	9,1	25,3	1,7	109,2	10,8	31,0	2,1	89,1	8,8
9-10	23,5	1,6	99,4	9,8	20,2	1,4	83,7	7,9	26,3	1,9	99,1	9,8	31,2	2,1	83,9	8,9
10-11	22,7	1,6	89,4	8,9	19,6	1,3	82,2	9,0	26,3	1,8	98,1	9,9	30,5	2,1	74,3	7,8
11-12	20,4	1,4	85,1	9,0	17,9	1,3	74,1	8,0	26,1	1,8	94,3	9,0	29,5	2,0	66,6	7,9
12-13	18,0	1,3	74,1	8,0	13,3	1,0	56,4	6,0	26,0	1,8	87,5	8,9	26,8	1,8	67,3	6,9
13-14	15,6	1,1	70,7	8,9	11,4	0,9	49,5	6,1	24,3	1,6	72,4	6,1	23,6	1,6	55,5	6,9
14-15	14,1	1,0	61,8	5,2	7,8	0,6	37,9	4,2	21,9	1,5	70,0	7,8	17,3	1,2	44,9	4,0
15-16	12,0	0,9	55,0	5,9	5,1	0,5	25,5	4,1	18,4	1,3	59,7	6,8	12,7	0,9	38,0	5,0
16-17	9,5	0,7	49,1	6,0	3,8	0,4	20,2	3,0	13,3	1,1	46,6	5,9	9,9	0,8	36,3	4,9
17-18	7,8	0,7	41,9	5,0	3,2	0,3	16,9	3,0	9,0	0,7	37,4	4,9				
18-19	5,1	0,5	32,7	4,0	2,2	0,2	9,4	2,1	6,8	0,6	31,5	4,1				
19-20	4,3	0,4	28,2	4,1	1,7	0,2	10,5	3,1	4,9	0,5	26,3	4,0				
20-21	3,9	0,4	26,8	3,9					3,5	0,3	27,7	4,1				
21-22	4,0	0,4	23,9	4,1					3,2	0,3	22,0	4,1				
22-23									3,2	0,3	24,8	3,2				
23-24									3,7	0,4	25,7	3,9				
24-25									4,0	0,4	24,1	4,1				
25-26									3,6	0,3	20,6	3,1				

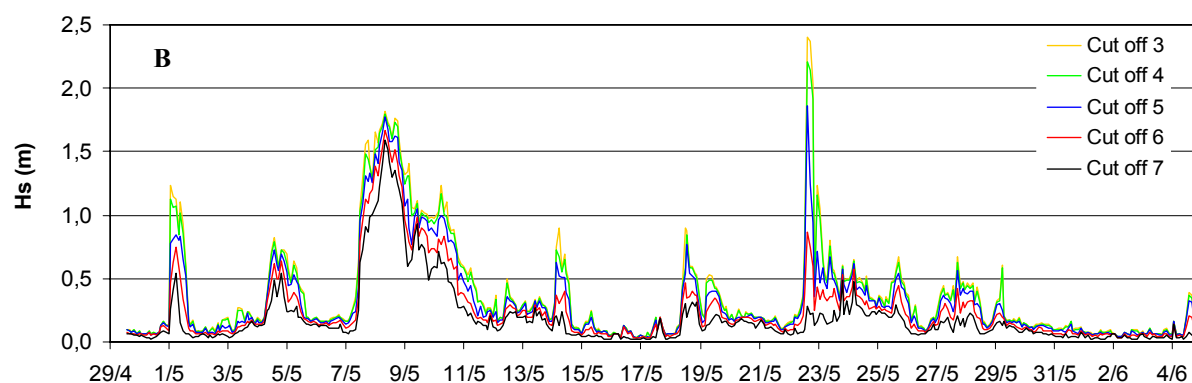
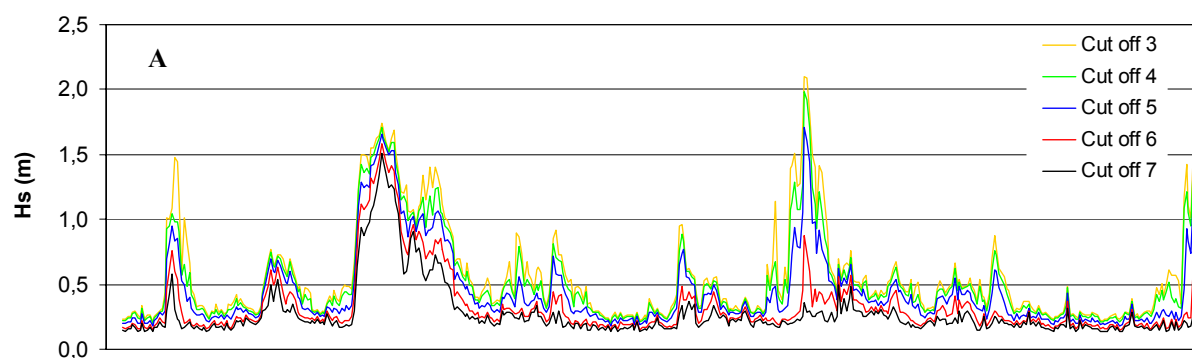
Annexe 6 : Concentrations en ^{137}Cs et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ (Bq.kg^{-1} sec $\pm 1\sigma$) pour les carottes prélevées lors de la mission *REMORA1* en Mars 2001 (suite).

Niveau (cm)	MT15				MT17			
	^{137}Cs		$^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$		^{137}Cs		$^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$	
	Bq.kg^{-1}	$\pm$	Bq.kg^{-1}	$\pm$	Bq.kg^{-1}	$\pm$	Bq.kg^{-1}	$\pm$
0-1	5,5	0,4	49,5	5,8	6,9	0,6	57,6	6,5
1-2	6,0	0,5	54,7	5,9	6,7	0,5	49,8	4,5
2-3	6,5	0,5	53,1	5,9	7,1	0,6	45,5	5,5
3-4	7,0	0,5	53,6	5,9	7,4	0,6	44,6	5,6
4-5	7,7	0,6	45,6	5,9	8,1	0,6	42,8	3,7
5-6	7,6	0,6	42,6	4,8	10,2	0,8	39,9	5,6
6-7	7,1	0,6	32,1	4,9	13,3	1,0	37,5	4,6
7-8	6,0	0,5	22,5	4,0	15,8	1,2	41,8	5,3
8-9	4,8	0,4	23,1	4,0	21,0	1,5	35,4	4,5
9-10	4,4	0,4	15,8	3,9	26,5	1,8	39,0	4,6
10-11	3,5	0,3	10,8	2,9	25,0	1,7	36,5	4,4
11-12	2,5	0,2	10,1	2,0	21,1	1,5	33,4	4,6
12-13	1,5	0,2	7,5	1,9	17,2	1,2	26,9	3,3
13-14	0,9	0,1	3,2	1,9	16,1	1,2	26,9	3,4
14-15	0,7	0,1	2,1	1,6	15,1	1,1	26,2	3,6
15-16	0,9	0,1	3,2	1,6	15,6	1,1	18,2	2,7
16-17	0,6	0,2	3,2	1,6	15,0	1,1	23,1	4,6
17-18	0,8	0,2	0,0	1,9	11,5	0,9	17,2	3,7
18-19	0,8	0,2	12,4	2,8	8,7	0,7	19,7	3,5
19-20	1,3	0,2	0,0	1,7	6,7	0,6	13,6	2,7
20-21	0,9	0,2	0,1	1,6				
21-22	0,8	0,2	0,0	1,7				

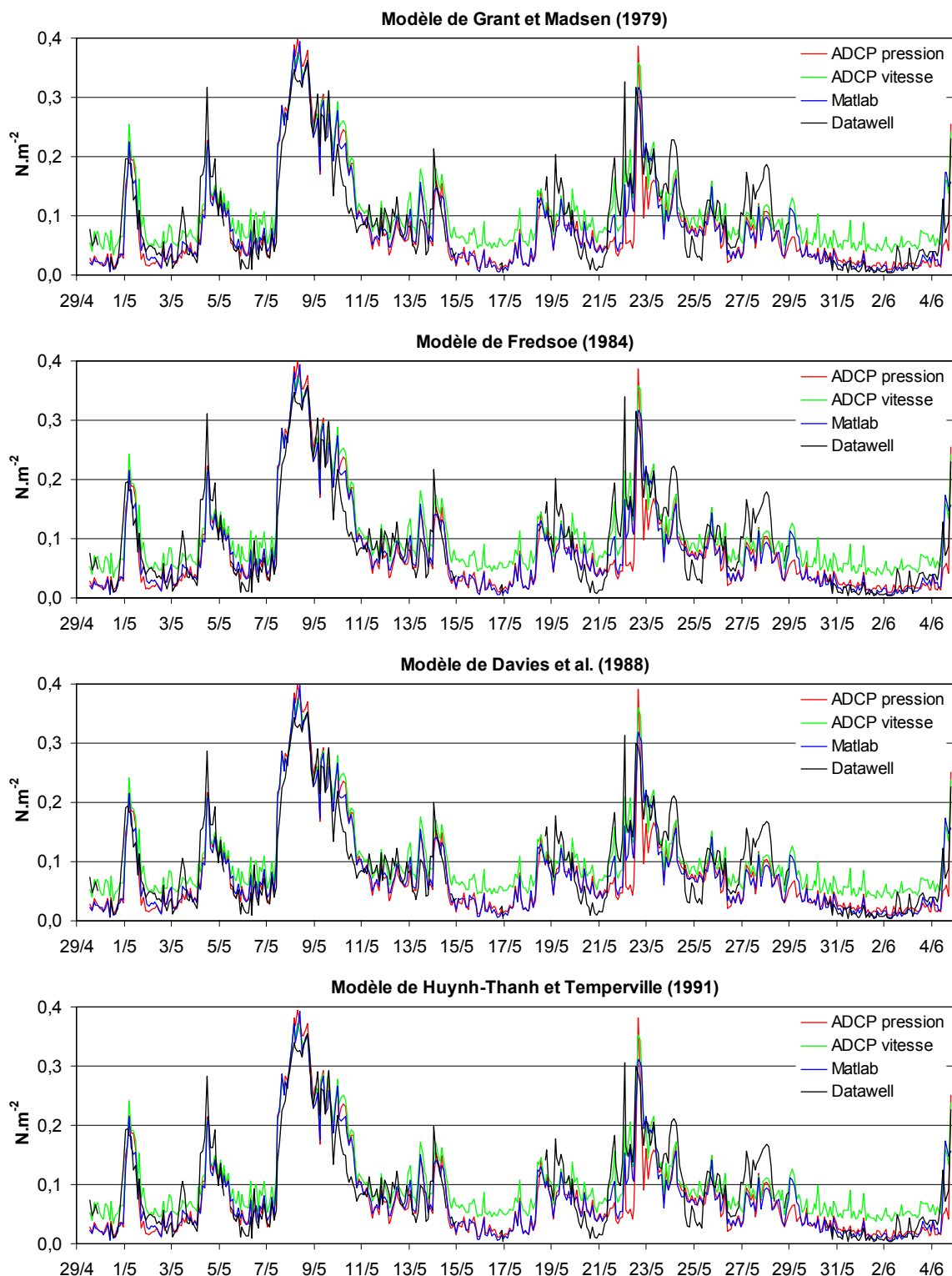
Annexe 7 : Exemples d'analyses spectrales réalisées par le logiciel Wavepro (Nortek®) à partir des mesures de l'AWAC. Les analyses spectrales ont été réalisées en se basant soit sur les mesures de vitesse orbitales (velocity) soit sur les mesures du capteur de pression (pressure).



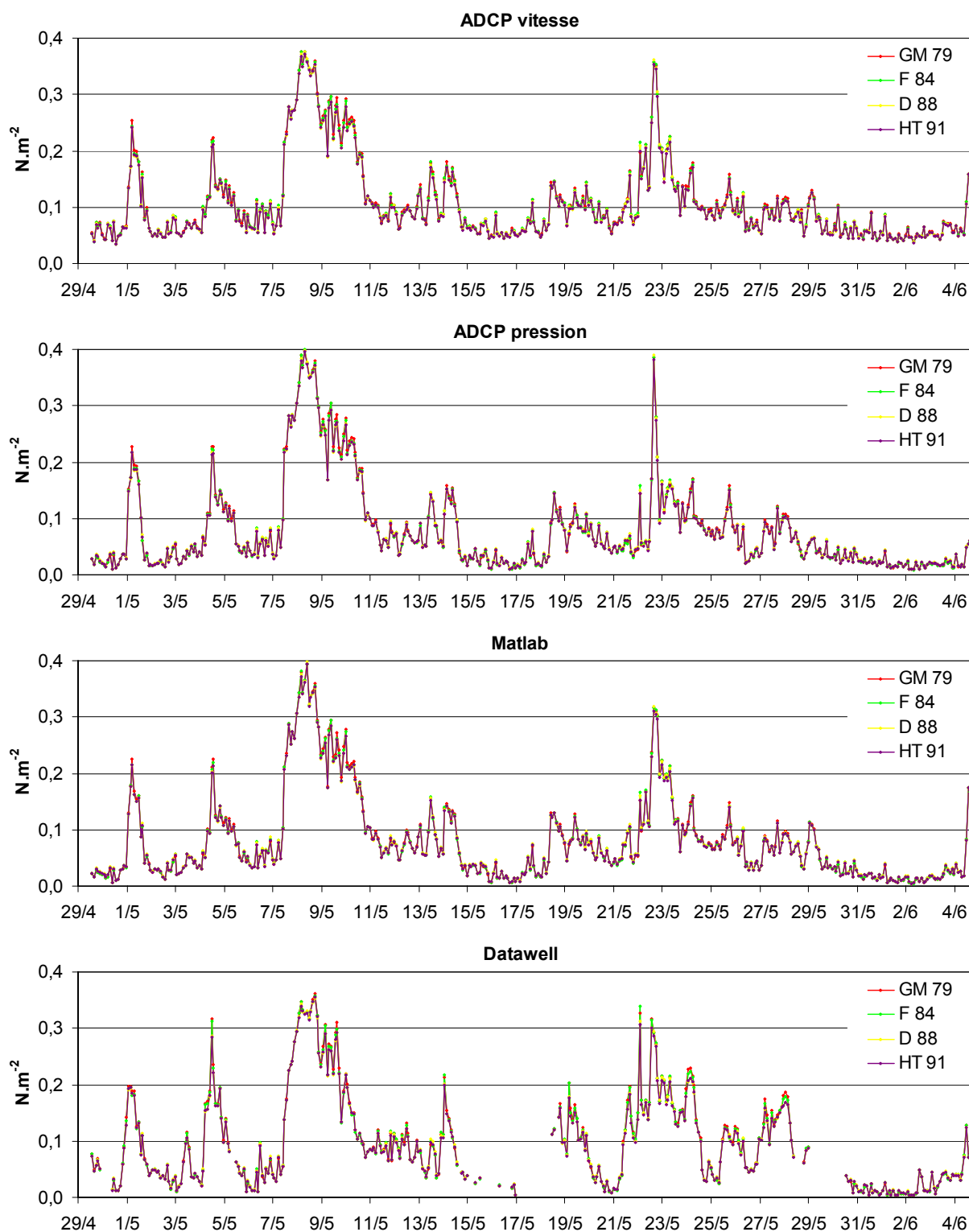
Annexe 8 : Estimations de la hauteur significative (Hs) réalisées par le logiciel Wavepro (Nortek®) à partir des mesures de l'AWAC à la station Roustan Est (43°19'50 N, 4°52'01 E ; 16m) entre le 29 Avril et le 4 juin 2002. Les analyses spectrales ont été réalisées en se basant soit sur les mesures de vitesse orbitales (A) soit sur les mesures du capteur de pression (B) et en appliquant différents filtres passe bas sur les périodes des vagues (Cut off de 3 à 7 secondes).



Annexe 9 : Evolution de la contrainte de cisaillement de fond liée à l'interaction houle-courant pour la station Roustan Est (43°19'50 N, 4°52'01 E ; 16m) entre le 29 Avril et le 4 juin 2002. Les calculs ont été réalisés sur les mesures de l'AWAC (vitesse et pression), également traitées sous Matlab et les mesures d'une Datawell, en utilisant les paramétrisations données par Soulsby *et al.* (1994) pour 4 modèles d'interactions houle-courant : GM 79 : Grant et Madsen (1979) ; F 84 : Fredsøe (1984) ; D 88 : Davies *et al.* (1988) ; HT 91 : Huynh-Thanh et Temperville (1991).



Annexe 10: Evolution de la contrainte de cisaillement de fond liée à l'interaction houle-courant pour la station Roustan Est (43°19'50 N, 4°52'01 E ; 16m) entre le 29 Avril et le 4 juin 2002. Les calculs ont été réalisés sur les mesures de l'AWAC (vitesse et pression), également traitées sous Matlab et les mesures de la Datawell, en utilisant les paramétrisations données par Soulsby *et al.*, (1994) pour 4 modèles d'interactions houle-courant : GM 79 : Grant et Madsen (1979) ; F 84 : Fredsøe (1984) ; D 88 : Davies *et al.* (1988) ; HT 91 : Huynh-Thanh et Temperville (1991).



LISTE DES PUBLICATIONS

Publication soumise 1

Lansard B., Grenz C., Charmasson S., Schaaff E. and C. Pinazo. Potential plutonium remobilisation linked to marine sediment resuspension: An estimate based on flume experiments. Soumis à *Journal of Sea Research*

Publication soumise 2

Schaaff E., Grenz C., Pinazo C. and B. Lansard. Field and laboratory measurements of sediment erodability: a comparison. Soumis à *Journal of Sea Research*

Publication 1

Lansard B., Rabouille C. and D. Massias. 2003. Variability in benthic oxygen fluxes during the winter-spring transition in coastal sediments: an estimation by in situ micro-electrodes and laboratory mini-electrodes. *Oceanologica Acta*, 26 (3): 269-279.

Publication 2

Rabouille C., Denis L., Dedieu K., Stora G., Lansard B. and C. Grenz. 2003. Oxygen demand in coastal marine sediments: comparing in situ microelectrodes and laboratory core incubations. *Journal of Experimental Marine Biology and Ecology*, 285-286: 49-69.

Publication soumise 1

Lansard B., Grenz C., Charmasson S., Schaaff E. and C. Pinazo. Potential plutonium remobilisation linked to marine sediment resuspension: An estimate based on flume experiments. Soumis à *Journal of Sea Research*

Potential plutonium remobilisation linked to marine sediment resuspension: An estimate based on flume experiments

Bruno Lansard^{a,*}, Christian Grenz^a, Sabine Charmasson^b, Estelle Schaaff^a, Christel Pinazo^a

^a Centre d'Océanologie de Marseille, Laboratoire d'Océanographie et de Biogéochimie, UMR 6535, rue de la batterie des lions, F-13007 Marseille, France

^b Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, Laboratoire d'Etudes Radioécologiques en milieux Continental et Marin, centre IFREMER, BP 330, F-83507 La Seyne-sur-Mer Cedex, France

*Corresponding author:

E-mail address: lansard@com.univ-mrs.fr

Submitted to "Journal of Sea Research"

Abstract

In coastal environments, resuspension is a key issue regarding contaminant remobilisation from the sediments. A first attempt to quantify both sedimentary bed erosion and related plutonium isotope remobilisation from eroded particles was carried out through flume experiments. Erosion fluxes under controlled hydrodynamic stresses and their resulting plutonium remobilisation were measured for cohesive sediments sampled at several locations (8 to 97 m depth) near the Rhône river mouth (North-western Mediterranean Sea). Top sediments were characterised in terms of plutonium content ($^{239,240}\text{Pu}$ and ^{238}Pu) and particle size distribution. Laboratory resuspension experiments were performed with realistic hydrodynamic conditions close to those prevailing in coastal zones. Critical shear stress of erosion ranged between 0.068 and 0.087 N m⁻² whereas erosion rate range within a factor of 3 (57-176 g m⁻² h⁻¹). After 1 hour of resuspension, the plutonium activity increased in the seawater particulate phase between factors of 2 to 14, depending on the sampling site. Pu fluxes ranged between 37 and 614 mBq $^{239-240}\text{Pu}$ m⁻² h⁻¹ and between 2 and 56 mBq ^{238}Pu m⁻² h⁻¹ depending on location. Highest fluxes were measured at the deepest station related to highest Pu activities and mud content at these sediments.

During the same experiments, dissolved samples did not show a significant increase in Pu activities. Plutonium re-dissolution is a slow process (from hours to months) so that the duration of the experiment was too short to reach the steady state distribution between the dissolved and the particulate phases. These laboratory experiments have provided a unique opportunity to investigate the behaviour of plutonium at the sediment-water interface in a coastal environment. They emphasised the importance of sediment resuspension in plutonium remobilisation and possible dispersion on continental shelves.

Keywords

Plutonium; remobilisation; coastal sediments; resuspension; flume; Mediterranean Sea

1. Introduction

The Rhône river mouth is characterised by large mud depocenters with very high accumulation rates ranging from 20 to 50 cm a⁻¹ (Calmet and Fernandez, 1990; Zuo et al., 1997; Charmasson et al., 1998), which act as traps for various particle bound contaminants (Lipiatou and Saliot, 1991; Fernex et al., 2001). In addition, several nuclear plants and especially the Marcoule reprocessing plant are located on the Rhône banks leading to regular discharges of low level radioactive wastes. Among the radionuclides released, plutonium isotopes demonstrate particularly high affinity for particles with sediment-water distribution coefficients (K_d) in the range of 10⁵-10⁷ kg l⁻¹ (IAEA, 1985). Because of the long half-life of plutonium, it is of first interest to follow the long term impact of plutonium in the Mediterranean Sea.

From 1961 to 2000, Eyrolle et al. (2004) estimated that 443 ± 72 GBq of ^{239,240}Pu and 92 ± 5 GBq of ²³⁸Pu were discharged by the Marcoule reprocessing plant into the Rhône river. Over these years, a repository of artificial radionuclides was built up both in sediments of the river and near Rhône mouth shore (Martin and Thomas, 1990; Thomas, 1997; Charmasson, 1998). In 1997, the Marcoule plant ceased its reprocessing activities, leading to a significant decrease in the discharge flux. Consequently, coastal sediments could now be considered as a major potential source of actinides to the Gulf of Lions. This area is highly productive due to the Rhône inputs and is therefore one of the most important fishing areas in the North-western Mediterranean Sea (Dremière, 1982; Aldebert and Carriès, 1989). It is thus important to identify processes which could lead to the dispersal of these contaminants temporarily trapped off the Rhône mouth. Re-dissolution and sediment resuspension are the most likely mechanisms controlling Pu concentrations in sediment and seawater. Studies dealing with plutonium mobility in sediment focused on the chemistry of ^{239,240}Pu in pore water (Nelson and Lovett, 1981; Sholkovitz and Mann, 1984; Buesseler and Sholkovitz, 1987; Livens et al., 1994; Morris et al., 2001) and demonstrated that plutonium migration from and within sediment is a very slow process. Therefore, direct remobilisation of plutonium from sediment through the overlying water, involving desorption and diffusion, appears not to be a significant process.

A number of experimental investigations on plutonium re-dissolution from coastal sediments have been carried out (Sholkovitz et al., 1983; Hamilton-Taylor et al., 1987; Mudge et al., 1988; Assinder et al., 1990). These studies emphasised the role of salinity, suspended particulate matter concentration, dissolved organic carbon concentration and

possibly pH in plutonium re-dissolution. In estuarine conditions, large variations in geochemical parameters produced rapid desorption of plutonium but in strictly marine environment very few studies were carried out. However, McDonald et al. (2001) suggested a small re-dissolution of actinides (<1 %) from bulk sediment in marine conditions. As underlined by MacKenzie et al. (1999), the diffusion flux of actinides from sediment to seawater is negligible and most concerns must be focused on physical dispersal processes affecting contaminated sediments. Indeed, several authors have highlighted the importance of physical sediment processes in the dispersion of particle-reactive radionuclides (Hunt and Kershaw, 1990; MacKenzie et al., 1994; 1998; Cook et al., 1997; Kershaw et al., 1999a; 1999b; Mitchell et al., 1999; Morris et al., 2000).

The resuspension process is one of the major mechanisms that provides coupling between the benthic and the pelagic ecosystems. Resuspension events enhance dispersion of Pu bearing particles, possible biological uptake and the transfer along the trophic network. For instance, Merino et al. (2000) and Sanchez-Cabeza et al. (2003) demonstrated the contamination of plankton with plutonium originating from coastal sediments in the Irish and the Mediterranean Seas. In both cases, most of the particulate Pu in the seawater column has probably its origins in the local resuspension of contaminated sediments. It thus appears that study on contaminated sediment resuspension is of utmost interest.

Experimental study on physical remobilisation of plutonium from sediment resuspension at the sediment-water interface is an innovative approach. Knowledge on erosion, transport, deposition and consolidation of cohesive material is essential as pollutant dynamics is closely linked to the distribution of particulate matter. To assess physical remobilisation of plutonium linked to sediment resuspension, we describe a new laboratory experiment coupling radio-ecological and sediment dynamic approaches. A first attempt to quantify both sedimentary bed erosion and plutonium isotope remobilisation from eroded particles was carried out through flume experiments. For different sediments from several locations, we determined the erosion fluxes under controlled hydrodynamic forcing and the resulting plutonium remobilisation. The feasibility, advantage and potential improvement of the method to study physical remobilisation of particle bound contaminants such as plutonium, are discussed.

2. Material and methods

Sediment samples were collected with a Bowers and Connely multicorer (15 cm i.d.) at four sites near the Rhône river mouth (Fig. 1) between November 2001 and November 2002. Only cores with 30 cm length and undisturbed sediment-water interface were retained. More than six cores per site were necessary to perform sediment resuspension experiment. After sampling, cores were carefully transported to the laboratory in a dark box at in situ temperature and then stored (from 12 h to 48 h max.) in a black room at 12°C to preserve sediment structure and minimise changes in plutonium oxidation state distribution. Plutonium content and particle size were measured in the top 2 cm of sediment. The samples were freeze-dried, sieved to 2 mm and finally well homogenised. The distribution of sediment particle sizes was done on 1 g of wet sediment using a laser granulometer (Malvern mastersizer S long bed).

2.1. Flume experiment

Resuspension experiments were performed in a recirculating flume (Fig. 2) previously described in Denis et al. (1996) and Redondo et al. (2001). Briefly, the flume is a 3 m long channel filled with 300 l of seawater, corresponding to 10 cm of water body above the bottom. Seawater was directly pumped in from the Mediterranean Sea at 5 m depth near Marseilles. The top 10 cm of 4 cores were carefully transferred to the test section following the technique described by Schaaff et al. (2002). For a given site, the sediment introduced in the flume represented a surface of 707 cm². Moreover, McCubbin et al. (1999) demonstrated that natural and artificial light could increase plutonium remobilisation as a result of photo-oxidation reactions. To avoid light reactions, experiments were carried out in an unlit but not completely dark room.

Flow velocities were measured with an Acoustic Doppler Velocimeter (ADV) operating at a sampling rate of 10 Hz and placed in the middle of the test section, 4 cm above the sediment. In the same time, evolution of suspended particulate matter (SPM) concentration was recorded with an Aanderaa turbidity sensor. During the erosion experiments, water samples were collected every 5 min by the means of a peristaltic pump. SPM concentrations were determined by filtration through Whatman GF/F filters (0.7 µm). These data were used to calibrate the turbidity sensor. Erosion experiments consisted of a continuous increase for 45 min in flow velocity up to 35 cm s⁻¹. This maximum velocity was maintained for 30 min.

These experiments were used to determine the critical shear stress for incipient erosion. Critical velocity of erosion ($\bar{u}_c$) was estimated as the mean velocity calculated over 30 s when SPM concentration reaches the initial value + 5 %. Erosion rates were evaluated as the total mass increase with time in the flume. The flow was found to be hydraulically smooth and velocity distribution followed the logarithmic law over the test section (Schaaff, 2003). Thus, the critical shear velocity at which particles begin to move can be calculated according to the von Karman-Prandtl equation (Dyer, 1976):

$$\bar{u}_{c(z)} = (u_{*c} / k) \times \ln(z / z_0) \quad (1)$$

where $u_{c(z)}$ is the critical velocity at a distance z above the bed; u_{*c} the critical shear velocity; k , the von Karman's constant (0.40) and z_0 the bottom roughness length (10^{-5} m).

Then the derived critical bottom shear stress was estimated by:

$$\tau_c = \rho \times u_{*c}^2 \quad (2)$$

in which τ_c is the bottom critical shear stress of erosion (N m^{-2}) and ρ the seawater density (1038 kg m^{-3}).

After 75 min of experiment, sediments were isolated from the water body by recovering them with a Plexiglas plate to stop resuspension. Finally, the seawater in the flume was entirely filtered by tangential filtration through $0.5 \text{ }\mu\text{m}$ Millipore membrane in order to analyse the Pu content in the particulate and the dissolved phases.

2.2. Plutonium measurements

As plutonium concentrations in the Mediterranean Sea are generally low, large samples of seawater were needed for analysis (Vives i Batlle, 1993; Mitchell et al., 1995; Molero et al., 1995; León Vitró et al., 1999). Before each set of resuspension experiment, 600 l of seawater was filtered ($0.5 \text{ }\mu\text{m}$) in order to determine the plutonium background level for both particulate and dissolved phases. After each remobilisation experiment, the total water body in the flume (300 l) was also analysed for Pu activity in the two phases.

2.2.1. Filtrate fraction

The dissolved fractions were immediately mixed and acidified to pH 1 with concentrated HNO_3 . Then, ^{236}Pu tracers were added to determine chemical yields. Plutonium in seawater was pre-concentrated using the standard technique of co-precipitation with ferric hydroxide (Vives i Batlle, 1993). The pH was adjusted to 8.5 by adding NaOH in order to co-precipitate plutonium and iron hydroxides. Then, precipitates were treated by radiochemistry like sediment and SPM samples, as described below.

2.2.2. Sediment and suspended particulate matter

For plutonium analysis, 100 g aliquot of dry sediment (0-2 cm) and total SPM were heated at 480°C for 48 h. Samples were leached in hot concentrated HNO_3 and HCl with added yield ^{242}Pu tracer (Harvey and Lovett, 1984). Then, selective co-precipitations with CaCO_3 and $\text{Fe}(\text{OH})_3$ were achieved to eliminate iron and calcium from the samples. Plutonium extraction and purification were realised through an anion exchange column (Bio-rad, AG1-X8, 100-200 mesh). Finally, plutonium isotopes were electroplated onto stainless steel discs for 2 hours at a constant current of 1 A from Na_2SO_4 solution at pH 2 and counted by high-resolution alpha spectrometry. Counting times ranged from 1 to 2 weeks depending on the activity concentrations and the extraction efficiency of the chemical separation. During measurements, an IAEA reference material (IAEA-soil 6) was successfully analysed.

3. Results

The four selected stations are submitted to direct or indirect supplies from the Rhône river and follow a bathymetric gradient ranging from 8 to 97 m depth (Table 1). Particle size distributions within the top 2 cm layer are summarised in Fig. 3. The deepest sediments (Roustan and Rhône) are muddy sediments resulting from the selective deposition of fine particles and characterised by more than 80 % of silt and clay. The Rhône mouth receives also coarse material directly by bedload supply. Shallower sites (Fos and Chenal) present the maximum sand content (26 % and 34 % respectively) and belong to sandy mud sediments.

3.1. Plutonium concentrations in surficial sediments

Plutonium levels in surface sediment are reported in Table 2. The uncertainties on the Pu data are given as one sigma values from the counting statistics. $^{239,240}\text{Pu}$ activities range between 349 and 940 mBq kg⁻¹ and from 59 to 166 mBq kg⁻¹ for ^{238}Pu . With high clay and silt content, the deeper station (Rhône) presents highest $^{239,240}\text{Pu}$ level. But, there is no significant influence of particle grain size on Pu distribution due to adverse influence of field factors (Stanners and Aston, 1984; Charmasson et al., 1998). $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratios are close to 0.10 for Roustan and Rhône sites suggesting a mixing of sediment labelled with Pu from atmospheric global fallout (isotopic activity ratio: 0.04) and from the Marcoule reprocessing plant (isotopic activity ratio: 0.32) (Thomas, 1997). Surface sediments of the Rhône mouth (Chenal and Roustan) are characterised by a higher $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratio (0.24 and 0.17 respectively) demonstrating the main influence of the Marcoule component at these locations.

3.2. Resuspension experiments

Flume experiments were used to study the erosion fluxes of cohesive sediments under controlled hydrodynamic stresses and the resulting plutonium remobilisation. The flow velocity appeared to be quite reproducible with little erratic variations; results are given in Fig. 4. Calibrations of the turbidity sensor against SPM concentrations gave linear and consistent results ($r^2 > 0.94$, $p < 0.01$). During the Rhône experiment, an electrical break caused the loss of turbidity recording so direct SPM values were plotted. Initial SPM concentrations in the flume were always around 2.5 mg l⁻¹. These SPM concentrations reached 12 to 46 mg l⁻¹ at the end of the experiments. Using Eq. (1) and Eq. (2), critical shear stresses of erosion and erosion rates were determined from these plots as shown in Table 3. The critical shear stress of erosion ranged between 0.068 and 0.087 N m⁻² whereas erosion rate varied within a factor of 3 (57-176 g m⁻² h⁻¹). Fos sediment demonstrated the highest resistance to erosion with a maximum value of critical shear stress and minimum erosion rate. Due to high silt and clay content, Rhône sediments presented the minimum critical shear stress of erosion associated with the maximum erosion rate. Chenal and Roustan sites had similar characteristics against erosion. There was some evidence for correlation between critical shear stress and erosion rate probably due to the particle size distribution, i.e. the lower critical shear stress, the higher erosion rate.

3.3. Plutonium remobilisation

Previously to the resuspension experiment, plutonium content in 600 l seawater samples (n=3) were analysed both in particulate and dissolved fractions, in order to determine the mean background Pu activities to allow quantification of remobilised Pu (Table 4). In seawater, the mean SPM concentration (n=20) was estimated to $1.2 \pm 0.5 \text{ mg l}^{-1}$ by filtration. In the particulate fraction, mean $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{238}Pu activities reached 10.9 and 0.9 mBq m^{-3} respectively. Mean plutonium levels in the dissolved fraction were 13.0 mBq m^{-3} for $^{239,240}\text{Pu}$ and 1.0 mBq m^{-3} for ^{238}Pu . These values were very low and the analytical error based on counting statistics was sometimes high, especially for ^{238}Pu activities (about 20 to 40 %). The mean $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratio was 0.08 ± 0.03 for both phases. Moreover, the distribution coefficient (K_d) for plutonium in seawater was $5.9 \pm 0.9 \cdot 10^5$ for $^{239,240}\text{Pu}$ and $6.0 \pm 2.7 \cdot 10^5$ for ^{238}Pu , in accordance with the IAEA recommended values for coastal areas (IAEA, 1985).

Regarding the particulate and dissolved phases, the background plutonium activities (Pu_{BG}) were quantified as:

$$\text{Pu}_{BG} = \text{Pu}_S / V_R \quad (3)$$

where Pu_S is the plutonium level in particulate or dissolved phases of seawater (mBq m^{-3}) and V_R is the volume of seawater used for resuspension experiment.

Then, plutonium remobilisation was calculated from:

$$\text{Pu}_{REM} = \text{Pu}_R - \text{Pu}_{BG} \quad (4)$$

The remobilised plutonium (Pu_{REM}) was determined for the particulate and the dissolved phases with the corresponding Pu_R , the total plutonium activity measured in each of the phases. Plutonium fluxes were estimated from Pu_{REM} , given in $\text{mBqPu m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ considering the sediment surface in the flume and the duration of the resuspension phase (around 1 h).

One of our objectives was to quantify plutonium desorption by analysing the plutonium content in the dissolved phase of the flume. In all experiments, due to the large counting error associated with Pu measurements, activities in the dissolved phases were not significantly different from the background levels, precluding any quantification of Pu re-dissolution in the dissolved fraction.

Resuspension of contaminated sediments increased Pu activity in the particulate phase of the overlying seawater. According to Eq. (3) and Eq. (4), the activities of Pu_{REM} ranged from 8.8 to 144.7 $mBq\ m^{-3}$ for $^{239,240}Pu$ and from 0.4 to 12.1 $mBq\ m^{-3}$ for ^{238}Pu in the course of the four experiments (Table 5). The weight of SPM varied by a factor of 4, from 12.5 $mg\ l^{-1}$ for Fos to 46 $mg\ l^{-1}$ for Rhône station (Table 5). As expected, the rate and extent of Pu remobilisation were proportional to the weight of resuspended particulate matter. Isotopic activity ratios determined in the SPM were in accordance with those measured in the sediments.

As estimated from Purem Plutonium fluxes ranged from 37 to 614 $mBq\ m^{-2}\ h^{-1}$ for $^{239,240}Pu$ and from 2 to 56 $mBq\ m^{-2}\ h^{-1}$ for ^{238}Pu . Compared to sediment activities, which varied spatially by a factor of 3, Pu resuspension fluxes varied by a factor of 17 and 26 for $^{239,240}Pu$ and ^{238}Pu respectively.

4. Discussion and conclusions

4.1. Plutonium remobilisation during laboratory experiment

Experimental conditions applied to the recirculating flume were as close as possible to those prevailing in near shore coastal environments. Sediment-water interface structures of mud and sandy mud sediments were carefully preserved until the experiment. The physico-chemical conditions within the cores were assumed undisturbed. During the experiments, we tried to reproduce a realistic hydrodynamic forcing in accordance with currents occurring in the environment and with a maximum speed of 35 $cm\ s^{-1}$. Such flow accelerations and velocities were recently measured in situ with an ADCP (Acoustic Doppler Current Profiler) 1.5 m above the bed sediment close to the Rhône mouth (data not shown). This stress was assumed to be representative of a small storm event. As the Mediterranean Sea is a microtidal system with very weak tidal currents (Alberola et al., 1995), major movements of contaminated sediments from estuaries and prodeltas onto the continental shelf principally occur during flood and storm events.

Our estimations of critical shear stress of erosion (0.068 to 0.087 $N\ m^{-2}$) were slightly higher compared to common in situ based estimates of fluff critical shear stresses, which range between 0.02 to 0.05 $N\ m^{-2}$ (Maa et al., 1998; Ravens and Gschwend, 1999). This is probably due to the absence of a visible fluff layer. Erosion rate is generally a more sensitive indicator of trends in sediment erodibility than is critical shear stress (Houwing, 1999).

Regarding erosion rates, comparison with other studies is only possible if the applied shear stresses were of similar magnitude and duration. As we applied the same protocol for all experiments, the response of different sediments for a given hydrodynamic forcing allows us to establish relative site differences. Our results showed that finest sediments with maximum Pu concentration (Rhône site) presented the highest Pu erosion rates. For this location, the resuspension of contaminated sediments can increase by a factor of 14 the initial plutonium activity in the particulate phase of seawater.

The results suggested large spatial variations in Pu fluxes probably linked to particle size distributions but not exclusively. Indeed, other mechanisms control the erodibility of cohesive sediment and interactions between cohesive particles must also be taken into account. Due to their high uptake rates of radionuclides, knowledge on cohesive sediment dynamic is a major key to understand the dispersion and fate of such contaminants. Cohesion and erosion resistance in mud sediments are complex functions of a number of interrelated physical, physicochemical and biological properties such as water content, bulk density, grain size (Jepsen et al., 1997), depositional history (Droppo et al., 2001), temperature and salinity (McCave, 1984) and benthic infauna (Meadows et al., 1990; Paterson et al., 2000).

Physical resuspension of contaminated sediments may control the rate of Pu re-dissolution. As underlined by McCubbin et al. (1999), sediment resuspension is the first step to Pu desorption since it increases contact time between particles and seawater. The extent of plutonium desorption is a key issue to predict the dispersion of Pu in seawater. Our results do not show significant Pu re-dissolution. This could be due to the relative low Pu content in the sediment ($<1 \text{ Bq kg}^{-1}$) and probably an important dilution factor of the signal, as well. Laboratory investigations have shown that the equilibrium in Pu distribution between dissolved and particulate phases is attained relatively rapidly for Pu IV (about 1 hour) whereas the rate of release and uptake of Pu V species is considerably slower (Hamilton-Taylor et al., 1987; Mudge et al., 1988; McCubbin et al., 2002). These authors suggested that the re-dissolution of Pu IV species appeared to be dominated by a rapid reversible surface complexation reaction but only a small fraction ($<5 \%$) of the particle bound Pu was able to participate to this reaction. For these reasons, our experiment duration was clearly not long enough for assessing Pu re-dissolution from SPM and for reaching steady state conditions. McDonald et al. (2001) have examined the sediment-water Pu re-dissolution in sandy mud sediments of several hundred Bq.kg^{-1} from the Irish Sea. After 5 weeks in a stirred system, the maximum Pu activity release from the sediment into the water was 0.1 %. According to previous studies (McCubbin et al., 1999), these authors estimated that a mean range of 0.02-

0.4 % of Pu was available for re-dissolution from seabed and SPM. According to this range, the maximum Pu re-dissolution in our experiment should not exceed 0.5 mBq for $^{239,240}\text{Pu}$ which is close to the detection limit.

This study was a first attempt to quantify both erosion of cohesive sediment and plutonium remobilisation under controlled flow velocity. However, future experiments will be performed with sediment of higher Pu contents (like sediment of the Irish Sea) and a longer time of experiment to reach the steady state for Pu re-dissolution. Determination of plutonium oxidation state distribution will also be another way of investigation for upcoming resuspension experiments. Such results could be integrated (calibration and validation) in sediment and radionuclide dispersion models (Aldridge et al., 2003; Perianez, 2003; Smith et al., 2003) for a better understanding of marine environmental radioactivity.

4.2. Potential plutonium remobilisation in the marine environment

In marine conditions, the fate of plutonium is mainly linked to the sediment dynamics with two antagonistic mechanisms, i.e. accumulation and erosion, which correspond to plutonium burial or remobilisation. In terms of Pu budget, extrapolation of our results depends on the occurrence of resuspension events in the Gulf of Lions. At the present time, there is a lack of study dealing with sediment resuspension events and this point will be treated in a future publication.

In shallow systems influenced by weak tides, resuspension of cohesive sediments is mainly controlled by waves and current interactions. Our flume experiments did not integrate the impact of waves on the seabed which in terms of sediment transport cannot be neglected. Besides, physical reworking of sediment by bioturbation is another important factor controlling the fate of radionuclides and other contaminants (Kershaw et al., 1984; 1988). For example, bioturbation could be responsible for a rapid downward transport of particle bound plutonium. Biological activity is also involved indirectly in the resuspension process. On one hand, bioturbation may enhance the potential for resuspension by reducing the strength of the cohesive forces in the sediment (Davis, 1993). On the other hand, the eventual presence of biofilm or alga mat covering the bottom may strongly increase the threshold velocity needed for resuspension (Graf and Rosenberg, 1997). The impact of trawling on sediment resuspension is also a potential source of contaminant remobilisation but it is still poorly understood.

Due to the low density of flocs, the fluff layer is easily resuspended and could have a significant role in the fate of plutonium at the sediment-water interface. This unconsolidated layer is composed of aggregated biogenic and abiogenic particles. This material is rich in organic matter, trace elements, organic contaminants and possibly anthropogenic radionuclides. A nepheloid layer at the sediment-water interface caused by sediment resuspension and direct input from the Rhône river discharge was frequently reported for the Gulf of Lions (Chassefière, 1990; Naudin and Cauwet, 1997, Monaco et al., 1999; Durrieu de Madron et al., 2000). This turbid layer is known to be responsible for sediment dispersion and therefore particle bound contaminant on the whole continental shelf of the Gulf of Lions.

Before dismantlement in 1997, the discharges from Marcoule reprocessing plant represented the dominant sources of ^{238}Pu for the Gulf of Lions. Given the high sedimentation rates at the vicinity of the river mouth, it could be stated that the highest Pu resuspension fluxes occur at these sites. Our results showed clearly that the highest fluxes occurred not at the closest stations visited but far away from the river mouth. This is due to the sediment distribution of plutonium activity in the top sediments but also to the sediment characteristics of the sites (grain size distribution). For instance plutonium activities varied by a ratio of around 3 between Roustan and Rhône sediments whereas this same ratio was much higher when considering Pu resuspension fluxes (between 9 and 17). So potential remobilisation of particle bound Pu can not be related to depth and distance from the outfall, as it is linked to resuspension processes. This is probably also true for other contaminants with high particle affinities. On the other hand, hydrodynamic stressors that drive resuspension processes are more active in shallow areas so that the resulting fluxes should decrease with depth. Moreover this could explain the spatial discrepancies in sediment activities as measured in this prodelta. Nevertheless, even if physical Pu remobilisation is a complex process it is a major mechanism affecting the contaminated sediment. Other processes may drive plutonium dynamics like biological mixing, pore water diffusion and re-dissolution. A better understanding on sedimentation-resuspension processes and sediment transport is a key point to accurately predict the long term impact of plutonium isotopes in the Mediterranean Sea.

Acknowledgements

The authors wish to thank the captains and crew members of the R.V. “L’Europe” (IFREMER) and “Tethys II” (CNRS-INSU). Sediment cores were collected during REMORA and MINERCOT cruises, we are very grateful to M. Arnaud and C. Rabouille. We are also

indebted to M. Morello for his helpful assistance during plutonium measurements. We thank D. Boust for his useful comments on an earlier draft of the article. This work has been funded by the European Union projects REMOTRANS (FIGE-CT-2000-00085), OAERRE (EVK3-CT-1999-00002) and BIOFLOW (EVRI-2001-00021) and by the French PNEC (Programme National d'Environnement Côtier).

References

- Alberola, C., Rousseau, S., Millot, C., Astraldi, M., Font, J., Garcia-Lafuente, J., Gasparini, G.P., Send, U., Vangriesheim, A., 1995. Tidal currents in the western Mediterranean Sea. *Oceanol. acta* 18, 273-284.
- Aldebert, Y., Carries, C., 1989. L'exploitation du merlu dans le golfe du Lion; données complémentaires. *Bull. Soc. Zoo. France* 114, 15-20.
- Aldridge, J.N., Kershaw, P., Brown, J., McCubbin, D., Leonard, K.S., Young, E.F., 2003. Transport of plutonium ($^{239,240}\text{Pu}$) and caesium (^{137}Cs) in the Irish Sea: comparison between observations and results from sediment and contaminant transport modelling. *Cont. Shelf Res.* 23, 869-899.
- Assinder, D.J., Hamilton-Taylor, J., Kelly, M., Mudge, S., Bradshaw, K., 1990. Field and laboratory measurements of the rapid remobilization of plutonium from estuarine sediments. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 138, 417-424.
- Buesseler, K.O., Sholkovitz, E.R., 1987. The geochemistry of fallout plutonium in the North Atlantic: I. A pore water study in shelf, slope and deep-sea sediments. *Geochim. Cosmochim. Acta* 51, 2605-2622.
- Calmet, D., Fernandez, J.M., 1990. Caesium distribution in northwest Mediterranean seawater, suspended particles and sediments. *Cont. Shelf Res.* 10, 895-913.
- Charmasson, S. 1998a. Cycle du combustible nucléaire et milieu marin. Devenir des effluents rhodaniens en Méditerranée et des déchets immergés en Atlantique Nord-Est. Thèse d'état, Université Aix-Marseille II, pp. 365.
- Charmasson, S., Bouisset, P., Radakovitch, O., Pruchon, A.-S., Arnaud, M., 1998b. Long-core profiles of ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{60}Co and ^{210}Pb in sediment near the Rhone River (northwestern Mediterranean Sea). *Estuaries* 21, 367-378.
- Chassefiere, B., 1990. Mass-physical properties of surficial sediments on the Rhône continental margin: implications for the nepheloid benthic layer. *Cont. Shelf Res.* 10, 857-867.
- Cook, G.T., MacKenzie, A.B., McDonald, P., Jones, S.R., 1997. Remobilization of Sellafield-derived radionuclides and transport from the North-East Irish Sea. *J. Environ. Radioact.* 35, 227-241.
- Davis, W.R., 1993. The role of bioturbation in sediment resuspension and its interaction with physical shearing. *J. Exp. Mar. Biol. Ecol.* 171, 187-200.
- Denis, L., Grenz, C., Plante-Cuny, M.R., 1996. Experimental study of microphytobenthos resuspension. *C. R. Acad. Sci. Paris Life Science.* 319, 529-535.
- Dremière, P.Y. 1980. Note sur l'état des stocks exploités au chalut dans le golfe du Lion. *In: Conseil général des pêches pour la Méditerranée. Rapport de la deuxième consultation technique sur l'évaluation des stocks dans les divisions statistiques Baléares et golfe du Lion, FAO*, pp. 151-165.
- Droppo, I.G., Lau, Y.L., Mitchell, C., 2001. The effect of depositional history on contaminated bed sediment stability. *Sci. Total Environ.* 266, 7-13.
- Durrieu de Madron, X., Abassi, A., Heussner, S., Monaco, A., Aloisi, J.C., Radakovitch, O., Giresse, P., Buscail, R., Kerherve, P., 2000. Particulate matter and organic carbon budgets for the Gulf of Lions (NW Mediterranean). *Oceanol. Acta* 23, 717-730.
- Dyer, K. 1976. The measurement of bed shear stresses and load transport rates. *In: Estuarine Processes II, Academic press*, pp. 124-135.
- Eyrolle, F., Charmasson, S., Louvat, D., 2004. Plutonium isotopes in the lower reaches of the River Rhone over the period 1945-2000: fluxes towards the Mediterranean Sea and sedimentary inventories. *J. Environ. Radioact.* 72, 273-286.

- Fernex, F.E., Migon, C., Chisholm, J.R.M., 2001. Entrapment of pollutants in Mediterranean sediments and biogeochemical indicators of their impact. *Hydrobiol.* 450, 31-46.
- Graf, G., Rosenberg, R., 1997. Bioresuspension and biodeposition: a review. *J. Mar. Syst.* 11, 269-278.
- Hamilton-Taylor, J., Kelly, M., Mudge, S., Bradshaw, K., 1987. Rapid remobilisation of plutonium from estuarine sediments. *J. Environ. Radioact.* 5, 409-423.
- Harvey, B.R., Lovett, M.B., 1984. The use of yield tracers for the determination of alpha-emitting actinides in the marine environment. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.* 223, 224-234.
- Houwing, E.-J., 1999. Determination of the critical erosion threshold of cohesive sediments on intertidal mudflats along the Dutch Wadden Sea coast. *Est. Coast. Shelf Sci.* 49, 545-555.
- Hunt, G.J., Kershaw, P.J., 1990. Remobilisation of artificial radionuclides from the sediment to the Irish Sea. *J. Radiol. Prot.* 10, 147-151.
- Jepsen, R., Roberts, J., Lick, W., 1997. Effects of bulk density on sediment erosion rates. *Water Air Sol Poll.* 99, 21-31.
- Kershaw, P.J., Swift, D.J., Pentreath, R.J., Lovett, M.B., 1984. The incorporation of plutonium, americium and curium into the Irish Sea sea bed by biological activity. *Sci. Total Environ.* 40, 61-81.
- Kershaw, P.J., Swift, D.J., Denoon, D.C., 1988. Evidence of recent sedimentation in the eastern Irish Sea. *Mar. Geol.* 85, 1-14.
- Kershaw, P.J., Denoon, D.C., Woodhead, D.S., 1999a. Observations on the redistribution of plutonium and americium in the Irish Sea sediments, 1978 to 1996: Concentrations and inventories. *J. Environ. Radioact.* 44, 191-221.
- Kershaw, P.J., McCubbin, D., Leonard, K.S., 1999b. Continuing contamination of north Atlantic and Arctic waters by Sellafield radionuclides. *Sci. Total Environ.* 237-238, 119-132.
- Leon Vintro, L., Mitchell, P.I., Condren, O.M., Downes, A.B., Papucci, C., Delfanti, R., 1999. Vertical and horizontal fluxes of plutonium and americium in the western Mediterranean and the Strait of Gibraltar. *Sci. Total Environ.* 237/238, 77-91.
- Lipiatou, E., Salot, A., 1991. Hydrocarbon contamination of the Rhone delta and western Mediterranean. *Mar. Poll. Bul.* 22, 297-304.
- Livens, F.R., Horrill, A.D., Singleton, D.L., 1994. Plutonium in estuarine sediments and the associated interstitial water. *Est. Coast. Shelf Sci.* 38, 479-489.
- Maa, J.P.-Y., Sanford, L., Halka, J.P., 1998. Sediment resuspension characteristics in Baltimore Harbor, Maryland. *Mar. Geol.* 146, 137-145.
- MacKenzie, A.B., Scott, R.D., Allan, R.L., Ben Shaban, Y.A., Cook, G.T., Pulford, I.D., 1994. Sediment radionuclides profiles: implications for mechanisms of Sellafield waste dispersal in the Irish Sea. *J. Environ. Radioact.* 23, 39-69.
- MacKenzie, A.B., Cook, G.T., McDonald, P., Jones, S.R., 1998. The influence of mixing timescales and re-dissolution processes on the distribution of radionuclides in Northeast Irish Sea sediments. *J. Environ. Radioact.* 39, 35-53.
- MacKenzie, A.B., Cook, G.T., McDonald, P., 1999. Radionuclide distributions and particle size associations in Irish Sea surface sediments: implications for actinide dispersion. *J. Environ. Radioact.* 44, 275-296.
- Martin, J.M., Thomas, A.J., 1990. Origins, concentrations and distributions of artificial radionuclides discharged by the Rhône river to the Mediterranean sea. *J. Environ. Radioact.* 11, 105-139.
- McCave, I.N. 1984. Erosion, transport and deposition of fine-grained marine sediments. In: Stow, D. A. V. a. P., D.J.W. (Eds.), *Fine-grained sediments: deep sea processes and facies*. Geolog. Soc. London, pp. 35-69.
- McCubbin, D., Leonard, K.S., Emerson, H.S., 1999. The role of thermal and photochemical reactions upon the remobilisation of Pu from an Irish Sea sediment. *J. Environ. Radioact.* 44, 253-273.
- McCubbin, D., Leonard, K.S., Emerson, H.S., 2002. Influence of thermal and photochemical reactions upon the redox cycling of Pu between solid and solution phases in seawater. *Mar. Chem.* 80, 61-77.
- McDonald, P., Vives i Batlle, J., Bousher, A., Whittall, A., Chambers, N., 2001. The availability of plutonium and americium in Irish Sea sediments for re-dissolution. *Sci. Total Environ.* 267, 109-123.

- Merino, J., Sanchez-Cabeza, J.A., Pujol, L., Leonard, K., McCubbin, D., 2000. Plutonium activity ratios in plankton: New evidence of hold-up time in Irish Sea sediments. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 243, 517-524.
- Mitchell, P.I., Vives i Batlle, J., Downes, A.B., Condren, O.M., Vintro, L.L., Sanchez-Cabeza, J.A., 1995. Recent observations on the physico-chemical speciation of plutonium in the Irish Sea and the Western Mediterranean. *Appl. Radiat. Isotopes* 46, 1175-1190.
- Mitchell, P.I., Condren, O.M., Vintro, L.L., McMahon, C.A., 1999. Trends in plutonium, americium and radiocaesium accumulation and long-term bioavailability in the western Irish Sea mud basin. *J. Environ. Radioact.* 44, 223-251.
- Molero, J., Sanchez-Cabeza, J.A., Merino, J., Pujol, L., Mitchell, P.I., Vidal-Quadras, A., 1995. Vertical distribution of radiocaesium, plutonium and americium in the Catalan Sea (Northwestern Mediterranean). *J. Environ. Radioact.* 26, 205-216.
- Monaco, A., Durrieu de Madron, X., Radakovitch, O., Heussner, S., Carbonne, J., 1999. Origin and variability of downward biogeochemical fluxes on the Rhone continental margin (NW mediterranean). *Deep Sea Res. Part I: Oceanographic Research Papers* 46, 1483-1511.
- Morris, K., Butterworth, J.C., Livens, F.R., 2000. Evidence for the remobilization of Sellafield waste radionuclides in an intertidal salt marsh, West Cumbria, U.K. *Est. Coast. Shelf Sci.* 51, 613-625.
- Morris, K., Bryan, N.D., Livens, F.R., 2001. Plutonium solubility in sediment pore waters. *J. Environ. Radioact.* 56, 259-267.
- Mudge, S., Hamilton-Taylor, J., Kelly, M., Bradshaw, K., 1988. Laboratory studies of the chemical behaviour of plutonium associated with contaminated estuarine sediments. *J. Environ. Radioact.* 8, 217-237.
- Naudin, J.J., Cauwet, G., 1997. Transfert mechanisms and biogeochemical implications in the bottom nepheloid layer. A case study of the coastal zone off the Rhone River (France). *Deep Sea Res. Part II: Topical Studies in Oceanography* 44, 551-575.
- Nelson, D.M., Lovett, M.B., 1981. Measurement of the oxidation state and concentration of plutonium in interstitial waters of the Irish Sea. In: *Impacts of Radionuclides into the Marine Environment*, IAEA, Vienna pp. 105-118.
- Perianez, R., 2003. Kinetic modelling of the dispersion of plutonium in the eastern Irish Sea: two approaches. *J. Mar. Syst.* 38, 259-275.
- Ravens, M.T., Gschwend, P.M., 1999. Flume measurements of sediment erodibility in Boston Harbor. *J. Hydraul. Eng.* 125, 998-1005.
- Redondo, J.M., Durrieu de Madron, X., Medina, P., Sanchez, M.A., Schaaff, E., 2001. Comparison of sediment resuspension measurements in sheared and zero-mean turbulent flows. *Cont. Shelf Res.* 21, 2095-2103.
- Sanchez-Cabeza, J.-A., Merino, J., Masque, P., Mitchell, P.I., Vintro, L.L., Schell, W.R., Cross, L., Calbet, A., 2003. Concentrations of plutonium and americium in plankton from the western Mediterranean Sea. *Sci. Total Environ.* 311, 233-245.
- Schaaff, E., Grenz, C., Pinazo, C., 2002. Erosion of particulate inorganic and organic matter in the Gulf of Lion. *Comptes Rendus Geosciences.* 334, 1071-1077.
- Schaaff, E. 2003. Dynamique de la matière particulaire à l'interface eau-sédiment en zone côtière: approches expérimentales et modélisation. Thèse de doctorat, Université Aix-Marseille II, pp. 262.
- Sholkovitz, E.R., Cochran, J.K., Carey, A.E., 1983. Laboratory studies of the diagenesis and mobility of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in nearshore sediments. *Geochim. Cosmochim. acta* 47, 1369-1379.
- Smith, C.N., Goshawk, J.A., Charles, K., McDonald, P., Leonard, K.S., McCubbin, D., 2003. MEAD (part II)--Predictions of radioactivity concentrations in the Irish Sea. *J. Environ. Radioact.* 68, 193-214.
- Stanners, D.A., Aston, S.R., 1984. The use of reprocessing effluent radionuclides in the geochronology of recent sediments. *Chemic. Geol.* 44, 19-32.
- Thomas, A.J., 1997. Input of artificial radionuclides to the Gulf of Lions and tracing the Rhone influence in marine surface sediments. *Deep Sea Res. Part II: Topical Studies in Oceanography.* 44, 577-595.
- Vives i Batlle, J., 1993. Speciation and bioavailability of plutonium and americium in the Irish Sea and other marine ecosystems. PhD thesis. University College Dublin, 347pp.
- Zuo, Z., Eisma, D., Gieles, R., Beks, J., 1997. Accumulation rates and sediment deposition in the northwestern Mediterranean. *Deep Sea Res. Part II: Topical Studies in Oceanography* 44, 597-609.

Table 1

Characteristics of the different sampling sites

Site	Date	Latitude (°N)	Longitude (°E)	Depth (m)
Fos	17/11/01	43°23'41	4°52'83	8
Chenal	04/11/02	43°18'85	4°51'22	20
Roustan	18/06/02	43°18'26	4°50'14	53
Rhône	18/06/02	43°14'53	4°53'10	97

Table 2

Plutonium activities in top sediments (0-2 cm) of the Rhône mouth

Site	Activity $\pm 1\sigma$ (mBq kg ⁻¹ d.w.)		Activity ratio $\pm 1\sigma$
	^{239,240} Pu	²³⁸ Pu	²³⁸ Pu/ ^{239,240} Pu
Fos	618 $\pm$ 52	60 $\pm$ 8	0.10 $\pm$ 0.02
Chenal	706 $\pm$ 26	166 $\pm$ 8	0.24 $\pm$ 0.03
Roustan	349 $\pm$ 10	59 $\pm$ 2	0.10 $\pm$ 0.02
Rhône	940 $\pm$ 32	83 $\pm$ 5	0.09 $\pm$ 0.01

Table 3

Critical velocity, critical shear stress and erosion rate for the four resuspension experiments

Site	Critical velocity of erosion $\pm 1\sigma$ (cm s ⁻¹)	Critical shear stress of erosion $\pm 1\sigma$ (N m ⁻²)	Erosion rate $\pm 1\sigma$ (g m ⁻² h ⁻¹)
Fos	17.1 $\pm$ 0.3	0.087 $\pm$ 0.003	57 $\pm$ 6
Chenal	16.0 $\pm$ 0,3	0.077 $\pm$ 0.003	96 $\pm$ 10
Roustan	15.5 $\pm$ 0.4	0.072 $\pm$ 0.004	84 $\pm$ 9
Rhône	15.1 $\pm$ 0.5	0.068 $\pm$ 0.004	176 $\pm$ 18

Table 4

Mean plutonium activities in seawater (particulate and dissolved fractions) before resuspension experiment

Seawater (n=3)	Activity $\pm 1\sigma$ (mBq m ⁻³)		Activity ratio $\pm 1\sigma$
	^{239,240} Pu	²³⁸ Pu	²³⁸ Pu/ ^{239,240} Pu
Particulate fraction [SPM]=1.2 $\pm$ 0.5 mg l ⁻¹	10.9 $\pm$ 0.9	0.9 $\pm$ 0.2	0.08 $\pm$ 0.02
Dissolved fraction Volume=603 $\pm$ 10 l	13.0 $\pm$ 1.7	1.0 $\pm$ 0.4	0.08 $\pm$ 0.03
Total	23.9 $\pm$ 2.6	1.9 $\pm$ 0.6	0.08 $\pm$ 0.03

Table 5

Weight of resuspended particulate matter and plutonium activities remobilised in the seawater particulate fraction of the flume after resuspension experiments

Site	SPM (mg l ⁻¹)	Activity $\pm 1\sigma$ (mBq m ⁻³)		Activity ratio $\pm 1\sigma$	Erosion flux (mBq m ⁻² h ⁻¹)	
		²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²³⁸ Pu	²³⁸ Pu/ ²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	²³⁸ Pu
Fos	12.5	8.8 $\pm$ 2.2	0.4 $\pm$ 0.2	0.05 $\pm$ 0.06	37	2
Chenal	22.5	25.5 $\pm$ 2.9	5.5 $\pm$ 0.9	0.21 $\pm$ 0.04	108	23
Roustan	17.5	8.8 $\pm$ 2.5	1.5 $\pm$ 0.7	0.17 $\pm$ 0.09	37	6
Rhône	46.0	144.7 $\pm$ 6.5	12.1 $\pm$ 1.3	0.08 $\pm$ 0.02	614	51

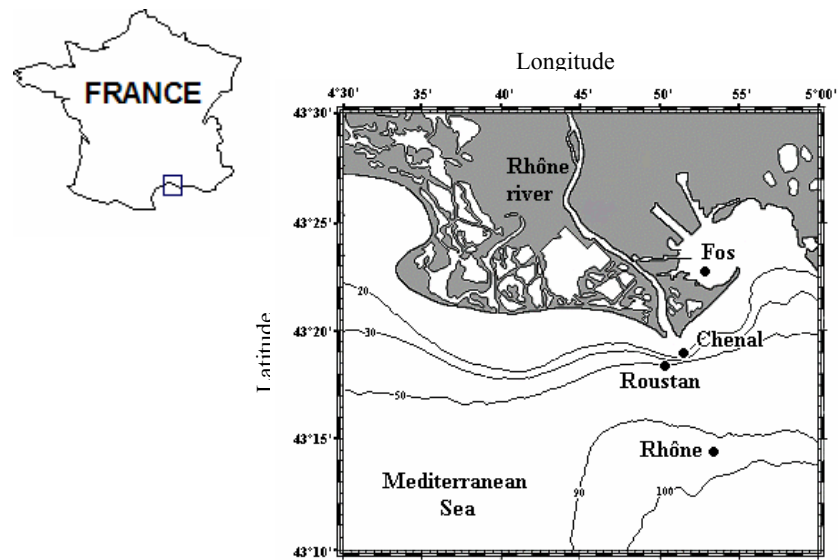


Fig. 1. Location of the four sampling sites in the vicinity of the Rhône river mouth.

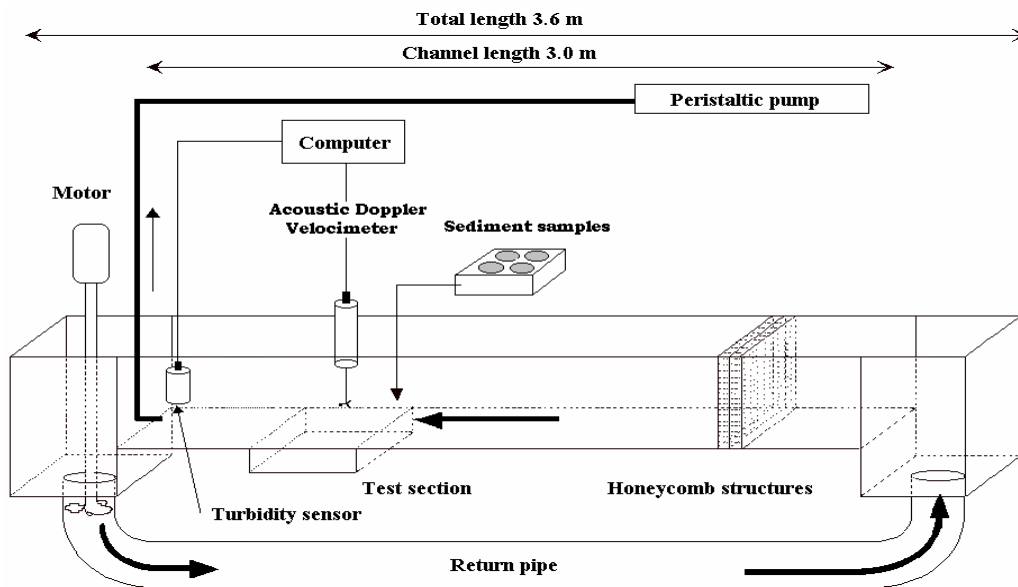


Fig. 2. The recirculating flume used to perform erosion experiments.

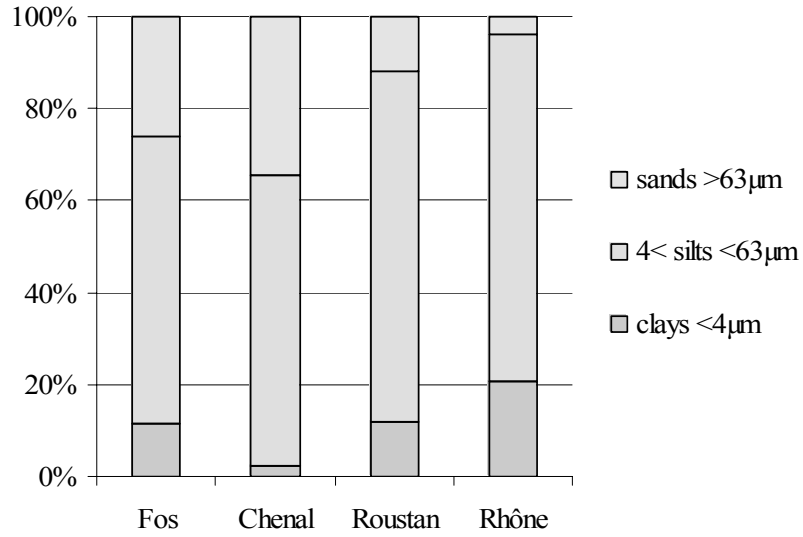


Fig. 3. Particle size distributions in the top 2 cm of sediment for the different sampling sites.

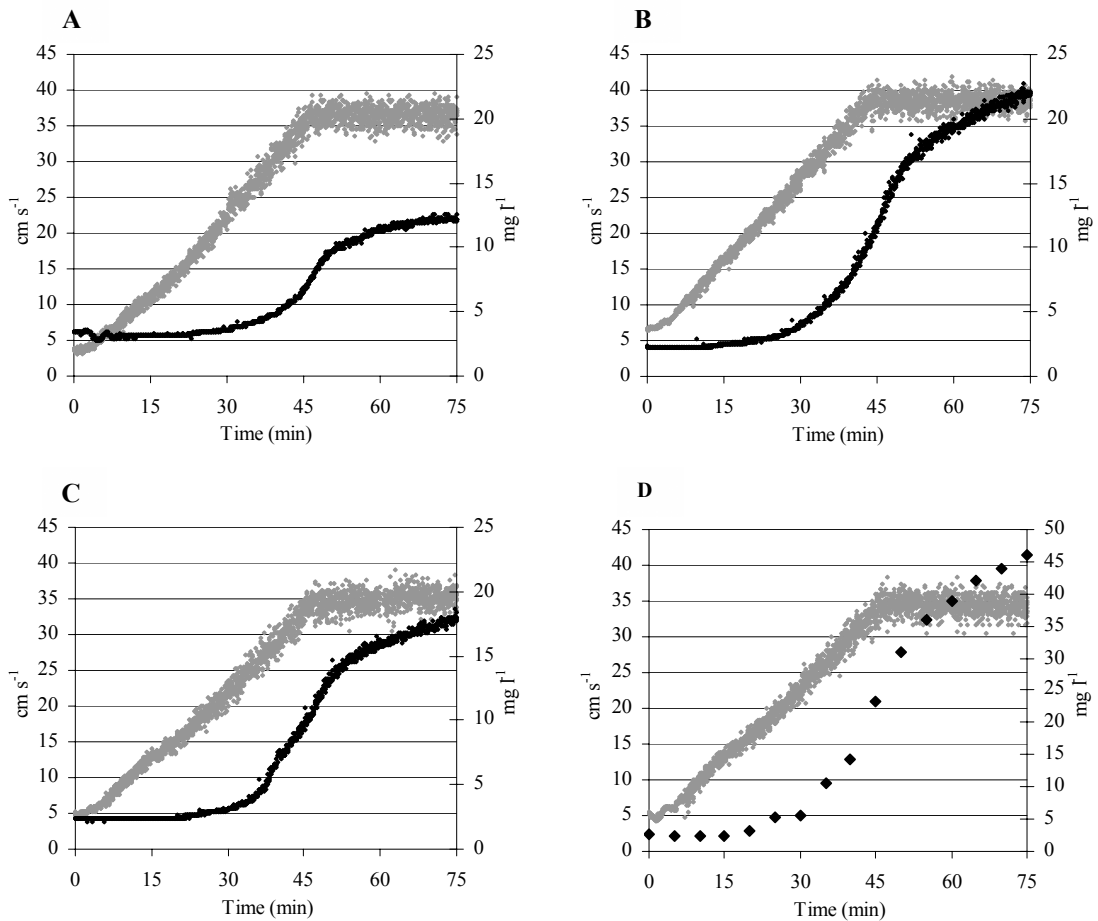


Fig. 4. Evolution of flow velocity (•) and SPM concentrations (•) during resuspension experiment for Fos (A), Chenal (B), Roustan (C) and Rhône (D) stations.

Publication soumise 2

Schaaff E., Grenz C., Pinazo C. and B. Lansard. Field and laboratory measurements of sediment erodability: a comparison. Soumis à *Journal of Sea Research*

Field and laboratory measurements of sediment erodability: a comparison.

Estelle Schaaff*, Christian Grenz, Christel Pinazo, Bruno Lansard

Laboratoire d'Océanologie et de Biogéochimie, UMR 6535, Centre d'Océanologie de Marseille, Station Marine d'Endoume, Chemin de la batterie des Lions, 13007 Marseille, France. Tel: 33 4 91 04 16 41; Fax: 33 4 91 04 16 35

*Corresponding author:

Email address: estelle_schaaff@yahoo.fr

Submitted to "Journal of Sea Research"

Abstract

The erosion of fine-grained cohesive sediment is an ubiquitous phenomenon in marine and estuarine environments. Critical shear stress and erosion rates are predominant variables regarding transport mechanics. This study presents a comparison between in situ and laboratory measurements of sediment erodability. The main goal was to assess the reliability of critical shear stress of erosion determined in our laboratory flume. The laboratory experiment led us to define the erodability of the sediment of station R in the Gulf of Fos. The lowest critical shear stress ($\tau_{c1}=0.02 \pm 0.002 \text{ N.m}^{-2}$) could be related to the erosion of the fluff layer and the highest ($\tau_{c2}=0.05 \pm 0.005 \text{ N.m}^{-2}$) to a more consolidated layer. These values of critical shear stress were very close to common in-situ based estimates of fluff critical shear stresses, which ranged between $0.02\text{-}0.05 \text{ N.m}^{-2}$. The comparison with the acoustic backscatter measurements attested in a qualitative way the reliability of the critical shear stress of erosion determined in our laboratory flume.

The erosion coefficients determined during this study, varying between 3.4 and $7.5 \cdot 10^{-6} \text{ kg m}^{-2} \text{ s}^{-1}$, were used to calculate in-situ erosion rates. Between the 6th and 9th October, the mean erosion rate at station R was of $20 \text{ g m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ and maximum values reached $65 \text{ g m}^{-2} \text{ h}^{-1}$. The calculated erosion rates were used to predict variations in suspended sediment concentration (SPM). The predicted increase of SPM was equal to 14 mg l^{-1} , and was very close to the measured increase of SPM which was of 10 mg l^{-1} . This highlights that erosion rate measured in our laboratory conditions are comparable to those measured in-situ at station R. Thus, the laboratory flume allows us the prediction of erosion parameters (critical shear stress and erosion rate) reliable to in-situ conditions.

The Redfield ratio was used to estimate the erosion rate of particulate organic carbon (POC) which was equal to $12 \text{ mmol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ and to $144 \text{ mgC m}^{-2} \text{ h}^{-1}$. The material introduced in the water column represents between 8 and 197% of the daily primary production. The amount of POC potentially introduced in the water column due to sediment erosion is considerable and is a crucial process to consider in the biogeochemical functioning of the Gulf of Fos.

Keywords : erosion, critical shear stress, erosion rate, laboratory flume, in situ measurements, Gulf of Fos

1. Introduction

The erosion of fine-grained cohesive sediment is an ubiquitous phenomenon in marine and estuarine environments (Naudin and Cauwet, 1997). Critical shear stress, which is the shear stress that is actually able to bring sediment particles of a certain size into transport, is a predominant variable regarding transport mechanics. It is also an important free variable in numerical models of cohesive sediments transport, as it parameterizes the bottom boundary condition (Dyke, 1996 in Tolhurst et al., 1999). In contrast to non-cohesive sediments, it is presently not possible to generally predict the critical erosion stress of cohesive sediments from one or more easily measurable parameters, such as grain size, bulk density, or water or organic content (Dade et al., 1992 in Tolhurst et al., 1999). In addition, the sediment erodability is dependent on the interactions between physical, sediment properties and biological processes: bio-stabilizers can enhance cohesiveness and alter the erosion critical shear stress and in contrast, bio-destabilizers can reduce the critical shear stress and enhance the erosion rate (Widdows and Brinsley, 2002). The current lack of a detailed understanding of the variability of both erosion critical shear stress and erosion rate is at the center of our inability to model correctly the dynamics of muddy sediments (Teisson, 1992 ; Paterson and Black, 1999).

Thus for many fine-grained sediment bodies of interest, the critical shear stress cannot be specified a priori. For the present, two alternative methods of investigating the problem of obtaining erosion characteristics of sediments are available: (1) laboratory testing of recovered sediment samples, and (2) *in-situ* observations of bottom currents during active sediment entrainment.

One of the earliest works was performed by Shields (1936) in a laboratory flume. Since this initial work, a lot of researchers had conducted studies in laboratory flumes (Kamphuis and Hall, 1983; Parchure and Mehta, 1985; Thomsen and Flach, 1997; Sutherland et al., 1998; Lau and Droppo, 2000; Tolhurst et al., 2000). More recently, Young and Southard (1978) carried out the first in situ experiment and showed the necessity to work on natural sediments. Many in situ devices were developed since (Gust and Morris, 1989; Amos et al., 1996; Houwing and Van Rijn, 1998; Cheng et al., 1999; Jie et al., 2001). Maa et al. (1998) highlighted the difficulty to obtain reliable measurements from laboratory tests for erosion of natural fine-grained sediments because of the complex interactions among the factors influencing this process. The authors argued that carrying out in situ erosion tests was the

most logical approach. Nevertheless, laboratory experiments allow a better control of hydrological and hydrodynamic parameters, explaining why these were extensively used to study sediment transport for approximately a century. As highlighted by Nowell and Jumars (1987), the purpose of a flume is not only to simulate field conditions near the bottom, but also to simplify them. So a major concern is the reliability of laboratory experiment results versus natural processes occurring in nature.

To our knowledge there have been very few attempts to compare sediment erodability determined under laboratory controlled conditions with field observations. In this context, our study presents a comparison between in situ and laboratory measurements of sediment erodability. The main goal was to assess the reliability of critical shear stress of erosion determined in our laboratory flume.

2. Study site

This study was part of the European program Oceanographic Applications to Eutrophication in Regions of Restricted Exchange (OAERRE). OAERRE (Tett et al., 2003) aimed at understanding the physical, biogeochemical and biological processes, and their interactions, involved in eutrophication for coastal marine Regions of Restricted Exchange (RREs). The scientific issues addressed included the controls on horizontal and vertical exchange in RREs and the responses of coastal ecosystems to nutrient enrichment. OAERRE related to key action 3 (Sustainable Marine Ecosystems) of Framework V, especially to the themes concerned with: a better assessment of naturally occurring mechanisms of ecosystem functioning; transport pathways and impacts of pollutants and key elements in the marine environment; reducing the effects of anthropogenic activities on the marine environment and recovering degraded marine systems; and integrated studies of land-ocean interaction. The project contributed to the aims of ELOISE, including the objective-foci concerned with interactions between pollution, eutrophication, and physical disturbance and development of mathematical models to be used for prediction and upscaling.

In October 2000, field measurements were performed during 8 days in Gulf of Fos (NW Mediterranean Sea, France), which is a microtidal, semi-enclosed area with a mean depth of 8 m (Fig. 1). In its Southern part, the Gulf is opened to the Mediterranean Sea, nearby the Rhône river mouth. In the Northern and Eastern parts, a highly industrialized zone

concentrates chemical, fuel and steel-working plants. In the Western part, a shellfish farming area is exploited. The meteorological conditions were dominated by N to NW winds and SE winds. These two winds are permanently blowing without any periodicity. This area is submitted to strong continental supplies. Freshwater inputs originate in the Northern part through a channel connecting Gulf of Fos to the Rhône river. In the Southern part of the Gulf, Rhône river freshwaters can penetrate the Gulf while flushing along the « They de la Gracieuse » under SE wind (Estournel et al., 1997). In the eastern part, brackish waters originating from Berre Lagoon penetrate into Gulf of Fos through the Caronte channel. Bathymetry is characterized by a navigation channel in the central part of the Gulf, in which the water depth is 24 m. Besides this channel the water depth decreases slowly from 12 m to shore line.

For safety reasons, the sampling station (station R) was situated in a sheltered muddy area near “They de la Gracieuse” at 10 m depth (Fig. 1).

3. Field and laboratory experiments

3.1 Laboratory experiments

At station R, sediment was sampled with multicorer (Minicorer MarkVI) specifically designed to obtain 15 cm internal diameter sediment cores with an undisturbed sediment-water interface (Barnett and Connelly, 1984).

Sediment stability was determined in a 3.6 m long PVC recirculating flume (Fig. 2) filled with 300 l of sea water (Denis et al., 1996; Redondo et al., 2001; Schaaff et al., 2002). The main channel had a width and height of 0.4 m each. The test section (0.4×0.4 m), in which four PVC rings of 10 cm high containing sediment can be inserted, was located 2.1 m downstream of the main channel entry. Flow ranging from 0 to 32 cm s⁻¹ was induced by rotation of a propeller located in the return pipe and connected to an adjustable electric motor. Two honeycombs placed at the entrance of the main channel were used to break up large-scale structures in the flow, particularly over the test section. The water depth was fixed to 10 cm in order to neglect the sidewall effects (Nowell and Jumars, 1987).

Flow measurements were conducted with an Acoustic Doppler Velocimeter (ADV) operating at a sampling frequency of 25 Hz and placed in the middle of the test section at 4 cm above the bottom.

The erosion experiments consisted in a continuous increase in the flow velocity up to 32 cm s^{-1} . After 20 minutes the current was stopped. A turbidity sensor (AANDERAA 3712) located at 4 cm over the bottom measured the evolution of ambient and resuspended particulate matter. Two water samples were collected every 3 min at approximately mid-depth by mean of a peristaltic pump placed downstream the test section. These were filtered through Whatman GF/F filters. The first one was used to measure suspended particulate matter (SPM) and to calibrate the turbidity sensor. The particulate organic matter (POM) was determined by loss of ignition after drying the filter in an oven at 500°C during 6 h. The second filter was used to measure particulate organic nitrogen (PON) and phosphorus (POP) using a semi-automatic wet-oxidation (Raimbault et al., 1999).

These experiments allowed the determination of the critical shear stress for erosion (τ_c) and erosion rates for both organic and inorganic particulate matter. The critical shear stress of erosion was estimated graphically when the suspended particulate matter started to increase. Erosion rates were evaluated as the increase with time in the corresponding suspended mass in the flume. Due to our experimental set-up, erosion rates were measured for an acceleration of $10^{-2} \text{ cm s}^{-2}$.

Hydraulic characteristics over the test section were first determined using a Laser Doppler Velocimeter (LDV). The flow was found to be hydraulically smooth and measurements showed that velocity distribution followed the logarithmic law over the test section.

Thus, the critical shear velocity at which particles begin to move was determined using:

$$u_c(z) = \frac{u_c^*}{\kappa} \ln \left(\frac{z}{z_0} \right) \quad (1)$$

with $u(z)$: the velocity at a distance z above the bed; u^* : the shear velocity; κ : the universal Von Karman constant (0.41); z_0 : the bottom roughness; and c subscript: the critical condition for onset erosion.

The critical shear velocity needed to be related to the critical velocity measured with ADV ($u_{adv\ c}(z=4\text{cm})$), in order to determine with some accuracy the critical shear stress for erosion tests, in which velocity profiles had not been measured by means of VLD. A consistent relationship was found ($u_c^* = 0.044 u_{adv\ c}(z=4\text{cm})$, $r^2=0.89$).

Then, the derived critical bottom shear stress was:

$$\tau_c = \rho u_c^{*2} \quad (2)$$

in which τ_c = the bottom critical shear stress (N m^{-2}) and ρ = the density of water (kg m^{-3}).

As the concentrations in the flume never exceeded 20 mg.l^{-1} , drag reduction was neglected. In addition, several sub-samples of sediments were taken using smaller cores (internal diameter 2.6 cm). These cores were sectioned in 5-mm slices to a depth of 50 mm, which were used to measure sediment grain size and porosity profiles. Grain size was measured using a Malvern particle sizer. Water content profiles (WC, the percentage ratio of the weights of water and dry sediment) were determined as the sample weight loss after freeze drying. The porosity was calculated from water content assuming particle density equal to 2650 kg.m^{-3} (Kranck and Milligan, 1980).

3.2 Field experiments

An Acoustic Doppler Current Profiler (ADCP, Sontek) and a meteorological buoy (Fjord monitoring buoy 3227, AANDERAA) were deployed at station R between 4th and 11th October 2000. The ADCP operating at 3000 kHz was mounted on a bottom platform with the acoustic beams pointing vertically up. Measured time series consisted of velocity profiles determined at 20-cm intervals in the vertical and recorded every 5 min with a 5 min averaging interval. Current velocity and direction were measured between 0.6 and 6.4 m above the bottom. The meteorological buoy (Figure 3) was moored near the ADCP and monitored wind speed, wind direction and air temperature. The substructure of the buoy was equipped with a sensor string equipped with 4 water temperature/salinity sensors and 2 turbidity sensors. The water temperature/salinity sensors were placed respectively 1 m, 2.7 m, 3.5 m and 4.5 m under the surface. The turbidity was measured at 9 m and 10 m depth. Unfortunately after a few hours an electronic malfunction caused the loss of turbidity data.

In addition, sea water was daily sampled by means of a Niskin bottle at 1 m and 9 m depth. Samples were used to measure suspended particulate matter by filtration through Whatman GF/C filters. Relative variations in suspended sediment concentration were also estimated from the backscatter signal of the ADCP corrected from water attenuation which is a function of depth and temperature (Thosteson and Hanes, 1998).

Finally, temperature and salinity profiles were recorded daily (between the 5th and 11th October) by means of a CTD (SeaBird 911).

4. Results

Surface sediment (0-5 mm) could be considered as sandy mud containing 13% of clay, 64% of silts and 23% of sand. This distribution was constant down to 1 cm depth. In deeper sediment layers, sand size fraction increased slightly. In the surface layer, porosity was 0.78 and decreased down to 0.55 at 8.5 cm depth layer. This decrease, which could be fitted to an exponential law ($r^2=0.94$, $n=14$, $p<0.001$), showed the sediment consolidation with depth.

4.1 Flume erosion experiment

Visual observations of the cores placed in the flume revealed a thin non-consolidated layer which can be assimilated to a fluff layer (Beaulieu, 2002). This fluff was principally composed of very small inorganic particles and of larger aggregates.

Fig. 4 presents time evolution of suspended particulate matter (SPM) and of bottom shear velocity in the flume. Two erosion periods were observed. The first one began for a critical shear stress τ_{c1} of $0.02 \pm 0.002 \text{ N.m}^{-2}$ and the second one for a critical shear stress τ_{c2} of $0.05 \pm 0.005 \text{ N.m}^{-2}$. Resuspension of the observed fluff layer explained the low critical shear stress of 0.02 N.m^{-2} . Such processes have been already largely observed in others studies (Young and Southard, 1978; Sanford et al., 1991; Amos et al., 1992; Maa et al., 1998; Ravens and Gschwend, 1999; Jago et al., 2002; Schaaff et al., 2002). Then, the second critical shear stress of erosion ($0.05 \pm 0.005 \text{ N.m}^{-2}$) certainly characterized the erosion of the underlaying bed which was more consolidated.

Measurements of velocity profiles above sediment cores in the flume allowed the estimation of the bottom roughness (Eq. 1), which was equal to 10^{-4} m .

The erosion rate of total particulate matter, calculated for the total experiment, was equal to $26 \text{ g m}^{-2} \text{ h}^{-1}$.

In addition, erosion rates (E) of total particulate matter were calculated every 2 minutes. The time evolution of the erosion rate showed that at station R erosion corresponded to type I as defined by Amos et al. (1992). In the literature, many equations expressing the erosion rate (E) as a function of the bottom shear stress were found. Amos et al. (1996) tested several of them for type I erosion. They found that the best results were obtained using the formula

proposed by Krone (1962). This formula linked the erosion rate (E) to the bottom shear stress (τ) as follows:

$$E = E_0 \left(\frac{\tau}{\tau_c} - 1 \right) \quad (3)$$

with τ_c : critical shear stress of erosion (N.m^{-2}) and E_0 : empirical erosion coefficient.

Thus, it is possible to have a second estimation of τ_c by using a linear regression between E and τ .

In our case, two linear equations can be fitted to the data using the Equation 3. The first one led to an erosion coefficient of $27 \text{ g m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ and to a critical shear stress of erosion of 0.013 N.m^{-2} . The second one allowed the calculation of an erosion coefficient of $12 \text{ g m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ and a critical shear stress of erosion of 0.040 N.m^{-2} . Results are summarized in Table 1.

Simultaneously to the suspended particulate matter increase, an increase of NOP and POP concentrations was observed. The corresponding erosion rates for the total experiment were respectively equal to $1.7 \text{ mmol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ and to $115 \text{ } \mu\text{mol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$.

In this case the use of Equation 3 to estimate the erosion coefficient and the critical shear stress of erosion was unreliable. This can be explained because of the important variability of POP and NOP erosion rates due to sporadic concentration measurements.

During the sediment erosion the mean N/P ratio was 14 ± 2 . The fact that this N/P ratio was very close to the Redfield's one ($\text{N/P}=16$) suggested that fresh organic matter was resuspended.

4.2 In situ measurements

Hydrodynamic and hydrological conditions during the cruise

The cruise was divided into five main periods (Figure 5a). During the whole cruise (from 00/10/04 to 00/10/11), the wind was characterized by an average direction of 300° (Figure 5a). The NW-wind, called Mistral, was established until the 9th October in middle of day (period I, II and III). Then it dropped. The Mistral was restored during the 10th October (period IV) before turning to the E-SE the last day of the cruise (period V).

During the period I, the mean velocity was equal to 5.6 m s^{-1} . The first day of period II (6th October), the wind velocity reached 16 m.s^{-1} (Figure 5a). The wind velocity remained

important, with a mean value of 13 m s^{-1} , over the whole period II. During period III, the mean velocity decreased to 6 m s^{-1} . During period IV, the wind velocity reached 10 m.s^{-1} and the mean value was equal to 5.5 m.s^{-1} . The last day (00/10/11), the velocity over-passed 10 m s^{-1} .

At the beginning of the sampling period (period I), the current velocity was very weak ($< 5 \text{ cm.s}^{-1}$) and the direction very variable at all the profiled depths (Figure 5b and 5c). The 6th October (period II), the current accelerated and was orientated to NE over the whole profiled area. This situation remained as long as the Mistral blew strongly. The mean current velocity was around 11 cm s^{-1} . Maximum velocities, which were observed near the bottom, reached 19 cm s^{-1} . The 9th October (period III), the current velocity decreased again ($< 5 \text{ cm.s}^{-1}$). The wind (Mistral) intensification in the afternoon of the 10th October (period IV) resulted in a short acceleration of the current which was again directed towards NE. The next day (11/10/00), the gale of sector E-SE caused also an acceleration of the current which reached speeds higher than 20 cm s^{-1} . Then the system became double-layered: the surface layer remained directed towards the NW while the layer located 3 m above the bottom took a S-SW orientation.

These results underlined the link between the current fluctuations and those of the wind. Indeed, there was a positive linear correlation between wind speeds and the depth-averaged velocities of current ($r^2=0.56$, $n=2150$, $p<0.001$). In the presence of weak Mistral the current was homogeneous on the profiled zone with mean velocities lower than 5 cm s^{-1} . The directions were very variable. The response of the current to an increase of the Mistral was very fast. As soon as the wind intensity exceeded approximately 10 m s^{-1} , the current increased and took a NE orientation. In this case, the NE orientation of the current is in good agreement with the installation of a cyclonic circulation in the Carteau bay observed under Mistral conditions (Grenz, 1989; Grenz et al., 1995).

During period I, a layer of water characterized by relatively high temperature ($17\text{-}18^\circ\text{C}$) and low salinity ($36.6\text{-}37.4$) was observed between 1 and 7 m depth. This layer of water originated certainly from the wet dock n°1 (Fig. 1) which linked the Rhone river to the northern part of the Gulf of Fos. During period II, temperature and salinity became homogeneous over the whole water column. Temperature decreased of more than 2°C after three days of wind. Such decreases had already been observed in presence of Mistral by Grenz (1989). In the same time, the salinity increased up to $37.8\text{-}38$. These values were typical of Mediterranean marine waters. The following days (period III, IV V), temperature

still lower than 16°C and did not show any vertical stratification. In the same time the salinity decreased slightly to reach value of 37.7-37.8. During period IV and V, the rise of the isohaline 37.6 at 8 m depth could suggest the beginning of a vertical stratification.

The bottom shear stress during the cruise

It is well known that the turbulence associated with the interaction of oscillatory and steady currents at the sea floor leads to higher shear stresses than those produced by pure currents or pure waves (Soulsby et al., 1994).

That is why time series of wind velocities and directions were used to estimate the bottom shear stress due to waves. Formulae suggested by Blondeaux (1987) for turbulent flow were used. The results were always lower than 10^{-4} N m^{-2} . It showed that the bottom shear stress due to waves could be neglected at station R. Thus, we assumed that only the current generated significant shear stress at the bottom of our sampling station. This result is easily explainable because of the site lay out (Fig. 1).

Two different approaches were employed to estimate the bottom shear stress using the ADCP data.

The first one consisted in fitting directly the log law for steady, neutrally stratified, turbulent flow (Eq. 1) to the velocity profiles. This is a commonly used technique in boundary layer/sediment transport (Grant et al., 1986; Wright, 1989 in Sanford et al., 1991). To obtain the most reliable estimation of the bottom shear stress a minimum of eight points of measurement were used to define the current-speed profiles (Twaites and Williams, 2001). Profiles were considered log-linear if regression coefficient (r^2) were >0.8 . After processing, only four profiles were usable. They showed that the bottom shear stress varied between 0.06 and 0.098 N m^{-2} during period II (Fig. 6). In view of the large error bars on the corresponding roughness length value (z_0), no clear temporal variations appeared. That is why the average roughness length was considered. It was around 10^{-4} m .

These results gave a first estimation of the bottom shear stress for a period of relatively strong current. But no information could be obtained concerning the beginning and the end of the cruise.

Strictly speaking, in shallow water the log layer only occupies the lower 10-20% of the total water column (Sanford et al., 1991; Maa et al., 1998). In our case this assumption was hard to confirm directly with the whole data set because of the lack of measurements very

close to the bottom. So as to test the vertical extension of the log layer we used a second approach.

The bottom shear stress was calculated with the log law (Equation 1) for each depth of measurement located 2 m above the bottom (mab). The previously determined average roughness length of 10^{-4} m was used. The results corresponding to measurement heights higher than 1 mab differed significantly (error >500%) from those corresponding to heights closer to the bottom. This suggested that the log layer occupied less than 1 mab. The comparison between the bottom shear stresses associated to the three measurement cells close to the bottom ($z=0.6, 0.8$ and 1 mab) showed also large errors ($\approx 100\%$) before and after the wind intensification. During these periods, the current speed was weak ($< 5 \text{ cm.s}^{-1}$) and did not allow the growth of the log layer over an important height. In this case we assumed that only the measurements made at 0.6 m was located in the log layer. Nevertheless, when the current speed over passed 10 cm.s^{-1} the estimations based on the three lower height ($z=0.6, 0.8$ and 1 mab) were very close. The error on the bottom shear stress estimation was around 15%.

The bottom shear stresses estimated with the two methods described above were in good agreement (Fig. 6).

The two first days (period I) the bottom shear stress ($\approx 0.006 \text{ N m}^{-2}$ on average) was largely below the two critical shear stresses determined in the laboratory flume (Figure 6). With the wind and current intensification (between 6th and 9th October) the bottom shear stress increased quickly. Actually, the mean shear stress was equal to $0.032 \pm 0.02 \text{ N m}^{-2}$ with maximum values reaching 0.12 N m^{-2} . During this period, the critical shear stress τ_{c1} was exceeded 75% of the time and the second one (τ_{c2}) 20% of the time. The 11th October (period IV) an other increase was noted. The mean value was equal to $0.025 \pm 0.02 \text{ N m}^{-2}$ and the maximum reached 0.082 N m^{-2} . Save that two occurrences the lower critical shear stress τ_{c1} was only exceeded occasionally during short events.

Time evolution of suspended particulate matter

The backscattered signal of the ADCP was used to monitor the relative variations of suspended particulate matter (SPM) between 0.6 and 6.4 mab. The signal amplitude was not calibrated against SPM concentration because of the too low number of SPM samplings and the lack of information about the SPM granulometry. The figure 7a shows the time evolution of the backscattered signal. The cruise was marked by a large increase of the backscattered

signal during period II (6th –9th October). These three days values greater than 100 dB were measured up to 4.5 mab and occasionally up to 6 mab. The 6th October in the first 4-5 mab the increase was around 30 dB. This increase showed the enhancement of SPM. During periods III and IV (9th –10th October), the backscattered signal decreased and reached similar values than those measured at the beginning of the cruise. An other slight increase up to 3 mab was observed the 11th October (period V) just before measurements were stopped (Figure 7a).

Suspended particulate matter measured by filtration followed the same trend as the backscattered signal (Figure 7b). During period I, SPM concentrations near the surface and near the bottom were respectively equal to 5 and 6 mg l⁻¹. The 6th October, after the bottom shear stress intensification the SPM increased of 8 mg l⁻¹ near the surface and 12 mg.l⁻¹ near the bottom. The 8th October, as the bottom shear stress was weaker the SPM decreased. Concentrations were only around 6 mg l⁻¹. The 9th and 10th concentrations went on decreasing and seemed to stabilize around 3 mg l⁻¹. The measured SPM variations were in the same range as those reported by Grenz (1989) in the same site.

5. Discussion

Choosing the threshold of sediment motion is a subjective matter even in controlled laboratory situations. Sporadic movement of a few grains commonly occurs on carefully leveled beds of well-sorted materials at average stresses that are below the usual threshold values (Nowell et al., 1981). Since the initial work of Shields (1936), it has been customary to define the threshold condition as one of “weak” but reasonably continuous, sediment movement (Nowell et al., 1981). This problem is magnified in the field, where the choice of threshold is certain to be even more subjective and inaccurate.

Our laboratory experiment led us to define two critical shear stresses of erosion. As explained before, the lowest critical shear stress ($\tau_{c1}=0.02 \pm 0.002 \text{ N m}^{-2}$) could be related to the erosion of the fluff layer and the highest ($\tau_{c2}=0.05 \pm 0.005 \text{ N m}^{-2}$) to a more consolidated layer. The fact that cohesive sediments tend to erode by different modes (type Ia, Ib and II) and may have a number of thresholds have already been observed by Amos et al. (1992). The two methods (visual observation and Equation 3) used to estimate the critical shear stress of erosion led each to determine two erosion thresholds. The results obtained with these two methods were in good agreement.

Moreover, our results are close to common in-situ based estimates of fluff critical shear stresses, which ranged between 0.02-0.05 N m⁻² (Young and Southard, 1978; Sanford et al., 1991; Maa et al., 1998; Ravens and Gschwend, 1999; Jago et al., 2002). The consistency of our results and these in situ experiments displays the reliability of our experimental method.

Unfortunately, the set of in-situ data did not allow the estimation of the critical shear stress of erosion because of the lack of turbidity measurements. Nevertheless, it is interesting to note that the increase of suspended particulate matter between the 6th and the 9th October (figure 7) was observed when the two critical shear stresses of erosion (τ_{c1} and τ_{c2}) were exceeded respectively 75% and 20% of the time. Time evolution of the acoustic backscatter near the bottom ($z=0.6$ m) was in good agreement with increases of bottom shear stress, especially between the 6th and the 9th October (Fig. 8). However, some increases of acoustic backscatter were unexplained by bottom shear stress intensification. Such situations were observed for example the 4th and the 9th October (Fig. 8). Actually, it was impossible to separate local resuspension from simple advection of turbid water past the sampling site. However, the major increase of SPM can be partly related to a local erosion event because it was more important near the bottom. Thus these results attested in a qualitative way the reliability of the critical shear stress of erosion determined in our laboratory flume.

According to Dyer (1986), the erosion coefficient (Equation 3) varied between $5 \cdot 10^{-4}$ and $1.5 \cdot 10^{-3}$ kg m⁻² s⁻¹. Amos et al. (1996) found that $E_0 = 4 \cdot 10^{-3}$ kg m⁻² s⁻¹ yielded the best results, although Le Hir et al. (1993) used a value of $7 \cdot 10^{-5}$ kg m⁻² s⁻¹. In this study erosion coefficients varying between 3.4 and $7.5 \cdot 10^{-6}$ kg m⁻² s⁻¹ were found.

The erosion coefficients (Table 1) were used to calculate in-situ erosion rates, with equation 3, every 5 min. We have considered the erosion coefficient associated to the first phase of erosion for bottom shear stresses (τ) comprised between τ_{c1} and τ_{c2} . The second one was used when τ exceed τ_{c2} . Between the 6th and 9th October the mean erosion rate was of 20 g m⁻² h⁻¹ and maximum values reached 65 g m⁻² h⁻¹. These results were comparable to those obtained in the laboratory flume. Regarding erosion rates comparison with others studies is difficult. Actually, erosion rates vary by order of magnitude between different devices because of the effects of device size and spatial heterogeneity (Tolhurst et al., 2000). Nevertheless our results are similar to those obtained in the field (Long Island Sound) by Wang (2003) where erosion rates of loosely consolidated material were around 18 g m⁻² h⁻¹ (i.e $0.5 \cdot 10^{-6}$ kg m⁻² s⁻¹).

At station R, the calculated erosion rates were used to predict variations in suspended sediment concentration. The 6th October between the beginning of sediment erosion and the sampling of SPM the mean erosion rate was equal to $21 \text{ g m}^{-2} \text{ h}^{-1}$. In order to estimate the corresponding increase of SPM we assumed that this erosion rate was applicable to the entire water column at station R. This hypothesis is tangible because of the low water depth (10 m) and because of the homogeneity of hydrological parameters suggesting that water column was well-mixed during erosion events. Thus the predicted increase of SPM was equal to 14 mg l^{-1} . This result was very close to the measured increase of SPM which was of 10 mg l^{-1} . This highlights that erosion rate measured in our laboratory conditions are comparable to those measured in-situ at station R.

Laboratory experiments have shown that relatively fresh organic particulate matter was eroded. Thus, the Redfield's ratio was used to estimate the erosion rate of particulate organic carbon (POC) which was equal to $12 \text{ mmol m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ and to $144 \text{ mgC m}^{-2} \text{ h}^{-1}$. Annual values of the daily primary production integrated over the water column varied between 73 and $1091 \text{ mgC.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ (Folack, 1986). During the three days of current intensification, sediment was eroded during more than 14 h. Then the amount of POC potentially introduced in the water column is considerable. Of course, the lengthier the erosion is, the higher is the probability to erode degraded organic matter. However, after one hour of erosion in the flume the resuspended material still had a N/P ratio close to the Redfield's one. Thus, considering the erosion rate of fresh POC of $144 \text{ mgC m}^{-2} \text{ d}^{-1}$, the material introduced in the water column represents between 8 and 197% of the daily primary production.

Introduction in the water column of organic particulate matter due to sediment erosion is an important process in the Gulf of Fos.

6. Conclusions

Several conclusions may be drawn from this study. The laboratory experiment led us to define the erodability of the sediment of station R in the Gulf of Fos. The critical shear stresses were very close to common in-situ based estimates of fluff critical shear stresses, which ranged between $0.02\text{-}0.05 \text{ N m}^{-2}$. The comparison with the acoustic backscatter measurements attested in a qualitative way the reliability of the critical shear stress of erosion determined in our laboratory flume.

The erosion coefficients and in-situ erosion rates determining during this study, were used to predict variations in suspended sediment concentration, which was in good agreement with the SPM increase measured at station R. This highlights that erosion rate measured in our laboratory conditions are comparable to those measured in-situ. Thus, the laboratory flume approach allows us the prediction of erosion parameters (critical shear stress and erosion rate) reliable to in-situ conditions.

The Redfield's ratio was used to estimate the erosion rate of particulate organic carbon (POC) equal to $144 \text{ mgC m}^{-2} \text{ h}^{-1}$, which represents between 8 and 197 % of the daily primary production. The amount of POC potentially introduced in the water column due to sediment erosion is considerable and this is a crucial process to consider in the biogeochemical functioning of the Gulf of Fos.

Acknowledgements

This research was partly funded by the European BIOFLOW (contract EVR1-2001-00021) and OAERRE (contract EVK3-CT1999-00002) projects.

References

- Amos, C. L., Daborn, G. R., Christian, H. A., Atkinson, A. and Robertson, A., 1992. In situ measurements on fine-grained sediments from the Bay of Fundy. *Marine Geology* 108, 175-196.
- Amos, C. L., Sutherland, T. F. and Zevenhuizen, J., 1996. The stability of sublittoral, fine-grained sediments in a subarctic estuary. *Sedimentology* 43, 1-19.
- Barnett, P. R. O., Watson, J. and Connelly, D., 1984. A multiple corer for taking undisturbed samples from shelf, bathyal and abyssal sediments. *Oceanologica Acta* 7, 399-408.
- Beaulieu, S., 2002. Accumulation and fate of phytodetritus on the sea floor. *Oceanography and Marine Biology Annual Review* 40, 171-232.
- Blondeaux, P., 1987. Turbulent boundary layer at the bottom of gravity waves. *Journal of Hydraulic Research* 25, 447-464.
- Cheng, R. T., Ling, C.-H., Gartner, J. W. and Wang, P. F., 1999. Estimates of bottom roughness length and bottom shear stress in South San Francisco Bay, California. *Journal of Geophysical Research* 104, 7715-7728.
- Denis, L., Grenz, C. and Plante-Cuny, M.-R., 1996. Etude expérimentale de la remise en suspension du microphytobenthos. *Comptes rendus de l'Académie des sciences de Paris* 319, 529-535.
- Dyer, K., 1986. *Coastal and Estuarine Sediment Dynamics*. John Wiley & Sons, Chichester, Sussex (UK) 358 pp.
- Estournel, C., Kondrachoff, V., Marsaleix, P. and Véhil, R., 1997. The plume of the Rhône: numerical simulation and remote sensing. *Continental Shelf Research* 17, 899-924.
- Folack, J., 1986. Variations mensuelles de la biomasse et de la production du phytoplancton d'une zone côtière d'intérêt aquicole: "Anse de Carteau-Golfe de Fos". PhD thesis, Aix-Marseille II, France, unpublished, (in French).

- Grant, J., Bathman, U. V. and Mills, E. L., 1986. The interaction between benthic diatom films and sediment transport. *Estuarine, Coastal and Shelf Sciences* 23, 225-238.
- Grenz, C., 1989. Quantification et destinée de la biodéposition en zones de production conchylicole intensive en Méditerranée. PhD thesis, Université d'Aix-Marseille II, France, unpublished, (in French).
- Grenz, C., Millet, B. and Durbec, J. P., 1995. Modélisation de la production phytoplanctonique dans le golfe de Fos. In: Programme Environnement du CNRS/MODEMM, Technical Report, 3-25, unpublished, (in French).
- Gust, G. and Moris, M. J., 1989. Erosion thresholds and entrainment rates of undisturbed in situ sediments. *Journal of Coastal Research* SI, 87-99.
- Houwing, E.-J., van Rijn L.C., 1998. In Situ Erosion Flume (ISEF): determination of bed-shear stress and erosion of a kaolinite bed. *Journal of Sea Research* 39, 243-253.
- Jago, C.F., Jones S.E., Latter R.J., McCandliss R.R., Hearn M.R., Howarth M.J., 2002. Resuspension of benthic fluff by tidal currents in deep stratified waters, northern North Sea. *Journal of Sea Research* 48, 259-269.
- Jie, H., Zhinan, Z., Zishan, Y. and Widdows, J., 2001. Differences in the benthic-pelagic particle flux (biodeposition and sediment erosion) at intertidal sites with and without clam (*Ruditapes philippinarum*) cultivation in eastern China. *Journal of Experimental Marine Biology and Ecology* 261, 245-261.
- Kamphuis, J. W. and Hall, K. R., 1983. Cohesive material erosion by unidirectional current. *Journal of Hydraulic Engineering* 109, 49-61.
- Kranck, K. and Milligan, T., 1980. Macroflocs : Production of marine snow in the laboratory. *Marine Ecology Progress Series* 3, 19-24.
- Krone, R. B., 1962. Flume studies of the transport of sediment in estuarial shoaling processes. H.E.a.S.E.R. Laboratory Report, University of California, Berkeley, (US) 110pp.
- Lau, Y. L. and Droppo, I. G., 2000. Influence of antecedent conditions on critical shear stress of bed sediments. *Water Research* 34, 663-667.
- Le Hir, P., Bassoullet, P. and L'Yavanc, J., 1993. Application of a multivariate transport model understanding cohesive sediment dynamics. In: Mehta, A. J. (Eds), *Nearshore and Estuarine Cohesive Sediment Transport*. American Geophysical Union, pp.467-485.
- Maa, J. P.-Y., Sanford, L. and Halka, J. P., 1998. Sediment resuspension characteristics in Baltimore Harbor, Maryland. *Marine Geology* 146, 137-145.
- Naudin, J. J. and Cauwet, G., 1997. Transfer mechanisms and biogeochemical implications in the bottom nepheloid layer. A case study of the coastal zone off the Rhône River (France). *Deep Sea Research II* 44, 551-575.
- Nowell, A. R. and Jumars, P. A., 1987. Flumes : theoretical and experimental considerations for simulations of benthic environments. *Oceanography and Marine Biology: an Annual Review* 25, 91-112.
- Nowell, A. R., Jumars, P. A. and Eckman, J. E., 1981. Effects of biological activity on the entrainment of marine sediments. *Marine Geology* 42, 133-153.
- Parchure, T. M. and Mehta, A. J., 1985. Erosion of soft cohesive sediment deposits. *Journal of Hydraulic Engineering* 111, 1308-1326.
- Paterson, D. M. and Black, K. S., 1999. Water flow, sediment dynamics and benthic biology. *Advances in Ecological Research* 29, 155-193.
- Raimbault, P., Diaz, F., Pouvesle, W. and Boudjellal, B., 1999. Simultaneous determination of particulate organic carbon, nitrogen and phosphorus collected on filters, using a semi-automatic wet-oxydation method. *Marine Ecology Progress Series* 180, 289-295.
- Ravens, M. T. and Gschwend, P. M., 1999. Flume measurements of sediment erodibility in Boston Harbor. *Journal of Hydraulic Engineering* 125, 998-1005.
- Redondo, J. M., de Madron, X. D., Medina, P., Sanchez, M. A. and Schaaff, E., 2001. Comparison of sediment resuspension measurements in sheared and zero-mean turbulent flows. *Continental Shelf Research* 21, 2095-2103.
- Sanford, L., Panageotou, W. and Halka, J. P., 1991. Tidal resuspension of sediments in northern Chesapeake Bay. *Marine Geology* 97, 87-103.
- Schaaff, E., Grenz, C. and Pinazo, C., 2002. Erosion of particulate inorganic and organic matter in the Gulf of Lion. *Comptes Rendus Geosciences* 334, 1071-1077.

- Shields, A., 1936. Application of similarity principles and turbulence research to bedload movement. *Mitteilungen der Preussischen Versuchsanstalt für Wasserbau und Schiffbau* 26, 5-24.
- Soulsby, R.L., Hamm L., Klopman G., Myrhaug D., Simons R.R., Thomas G.P., 1994. Wave-current interaction within and outside the bottom boundary layer. *Coastal Engineering* 21, 41-69.
- Sutherland, T. F., Amos, C. L. and Grant, J., 1998. The effect of buoyant biofilms on the erodibility of sublittoral sediments of a temperate microtidal estuary. *Limnology and Oceanography* 43, 225-235.
- Teisson, C., 1992. Cohesive suspended transport feasibility and limitations of numerical modeling. *Journal of Hydraulic Research* 29, 755-769.
- Tett, P., Gilpin, L., Svendsen, H., Erlandsson C.P., Larsson U., Kratzer, S. Fouilland, E., Janzen, C., Lee, JY., Grenz, C., Newton, A., Ferreira, J.G., Fernandes, T. and Scory S., 2003. Eutrophication and some European waters of restricted exchange. *Continental Shelf Research* 23, 1635-1671.
- Thomsen, L., Flach E., 1997. Mesocosm observations of fluxes of particulate matter within the benthic boundary layer. *Journal of Sea Research* 37, 67-79.
- Thosteson, E. D. and Hanes, D. M., 1998. A simplified method for determining sediment size and concentration from multiple frequency acoustic backscatter measurements. *Journal of Acoustical Society of America* 104, 820-830.
- Thwaites, F. and Williams, A., 2001. BASS Measurements of current, waves, stress, and turbulence in the North Sea bottom-boundary layer. *Journal of Oceanic Engineering* 26, 161-170.
- Tolhurst, T. J., Black, K. S., Paterson, D. M., Mitchener, H., Termaat, G. R. and Shayler, S. A., 2000. A comparison and measurement standardisation of four in-situ devices for determining the erosion shear stress of intertidal sediments.. *Continental Shelf Research* 20, 1397-1418.
- Tolhurst, T. J., Black, K. S., Shayler, S. A., Mather, S., Black, I., Baker, K. and Paterson, D. M., 1999. Measuring the in situ erosion shear stress of intertidal sediments with the cohesive strength meter (CSM). *Estuarine, Coastal and Shelf Science* 49, 281-294.
- Wang, Y. H., 2003. The intertidal erosion rate of cohesive sediment: a case study from Long Island Sound. *Estuarine, Coastal and Shelf Sciences* 56, 891-896.
- Widdows, J., Brinsley M., 2002. Impact of biotic and abiotic processes on sediment dynamics and the consequences to the structure and functioning of the intertidal zone. *Journal of Sea Research* 48, 143-156.
- Young, R. N. and Southard, J. B., 1978. Erosion of fine-grained marine sediments: Sea-floor and laboratory experiments. *Geological Society of American Bulletin* 89, 663-672.

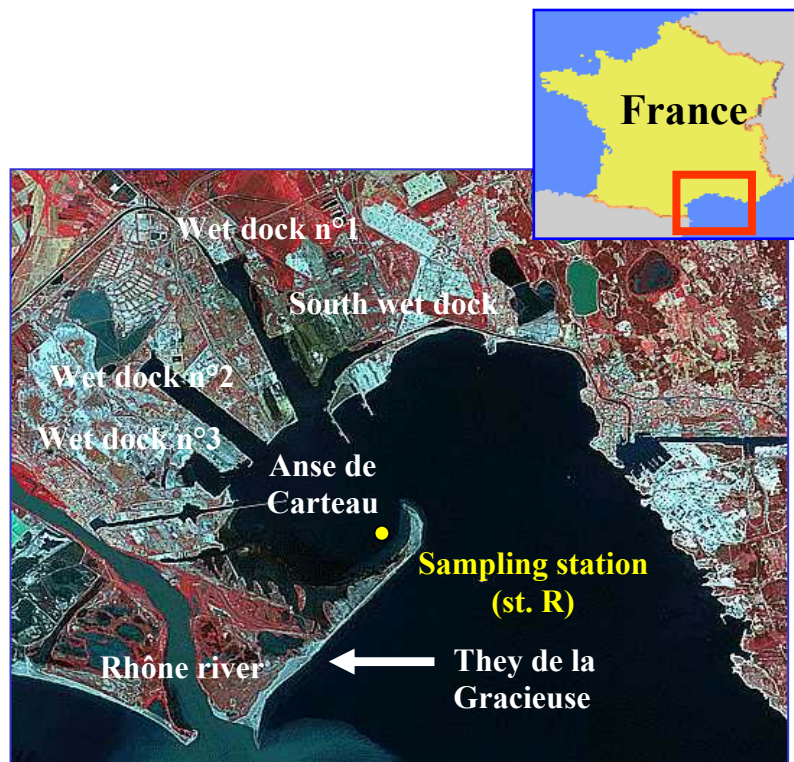


Figure 1. Localisation of the sampling station (station R) in the Gulf of Fos.

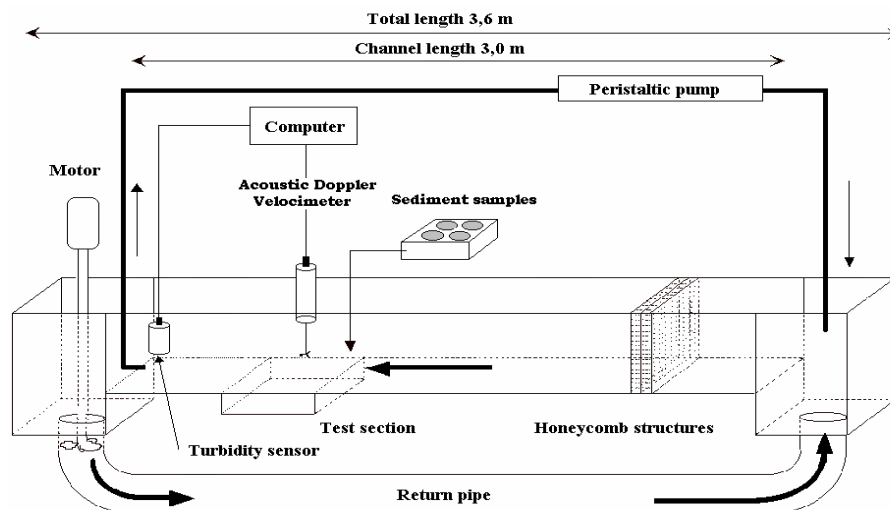


Figure 2. The recirculating flume used to perform erosion experiments.

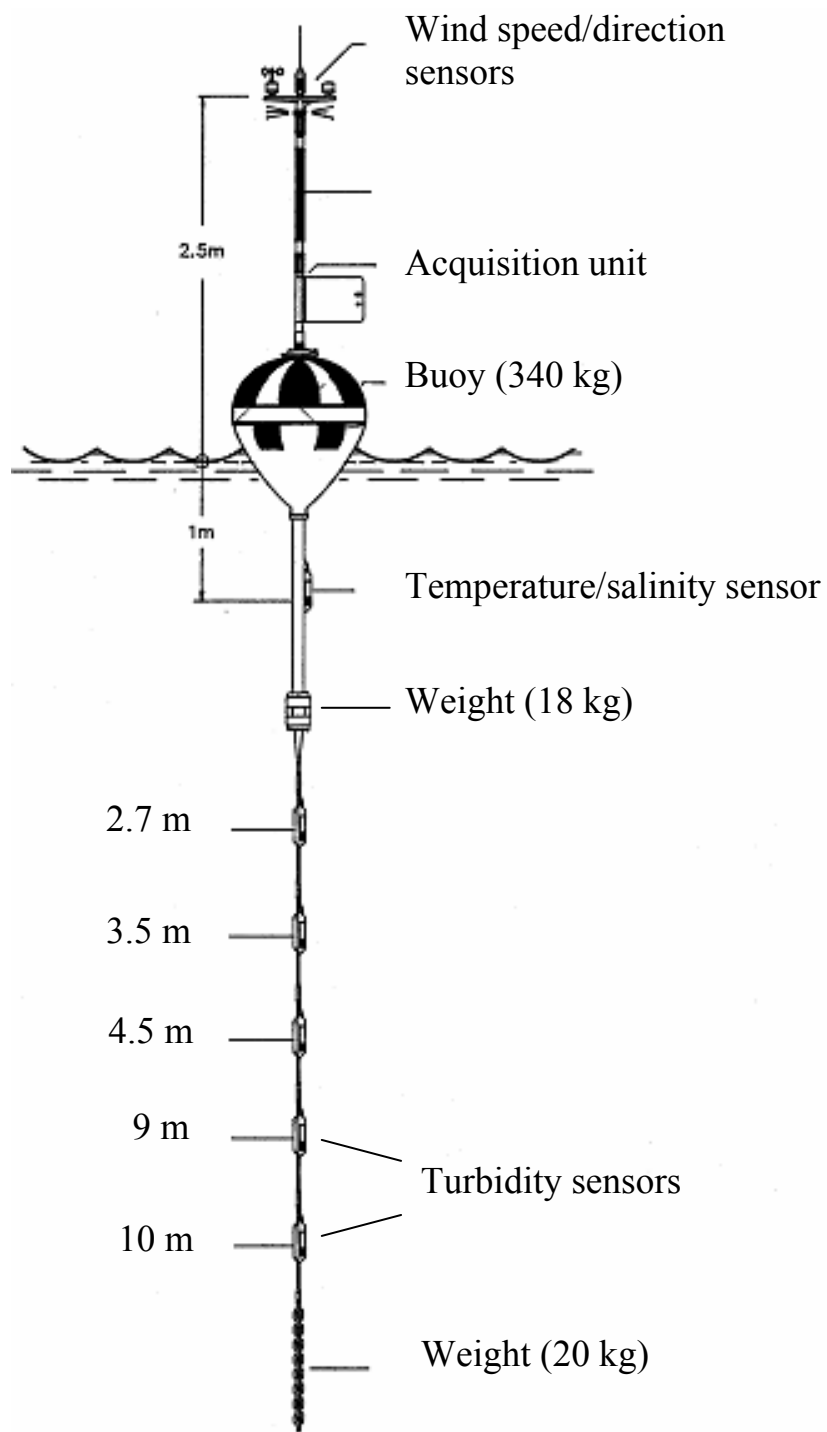


Figure 3. Meteorological buoy moored at station R in October 2000.

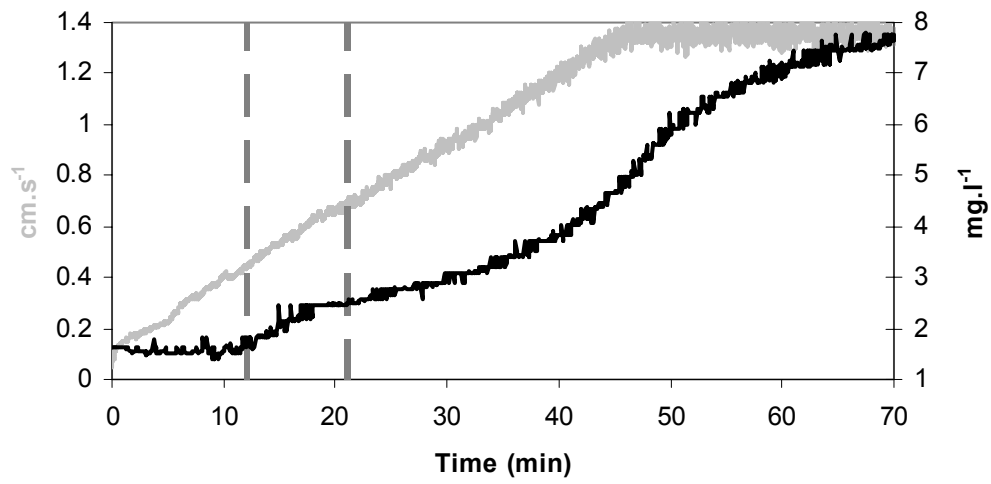


Figure 4. Time evolution of bottom shear velocity (u^* , cm.s^{-1}) and of suspended particulate matter (mg.l^{-1}) in the flume. The dot grey lines indicate the beginning of two erosion periods.

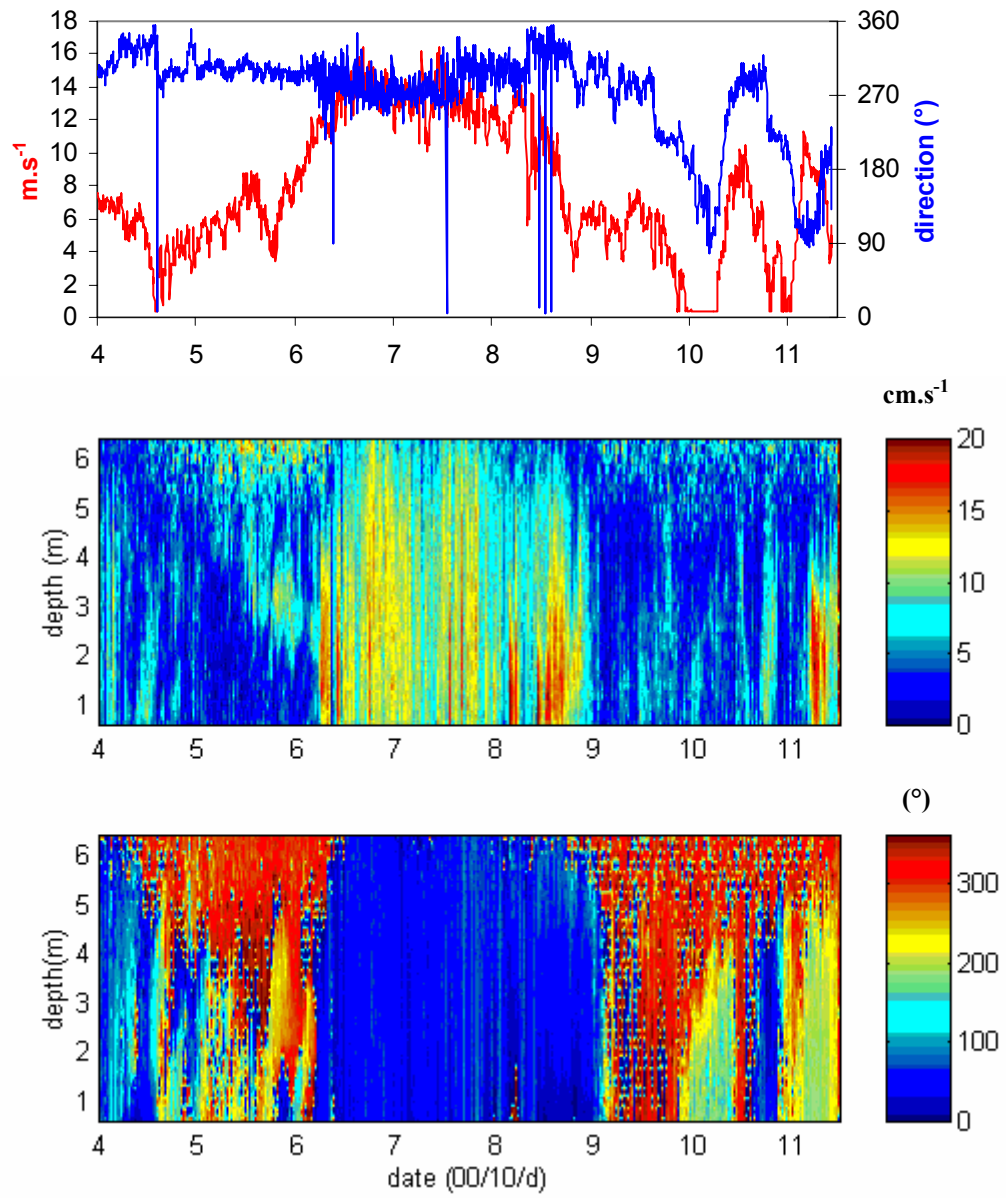


Figure 5. Time series of wind speed and direction at station R (top). Time evolution of current velocity (middle) and direction (bottom) measured between 0.6 and 6.4 mab with the ADCP.

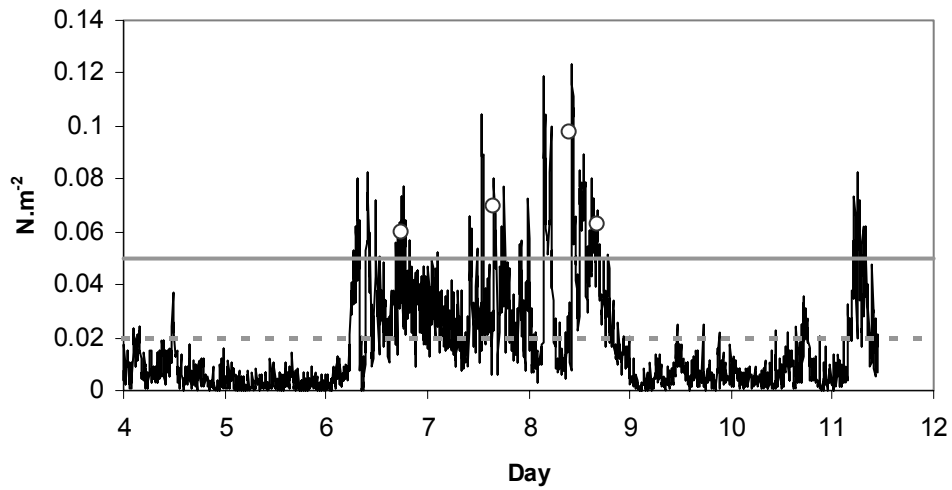


Figure 6. Time evolution of the bottom shear stress estimated with the log law using velocity measurements made 0.6 mab (black line) in October 2000. The white points indicate the bottom shear stresses estimated directly with the velocity profiles. The dot and straight grey lines show the critical shear stresses determined in the laboratory flume.

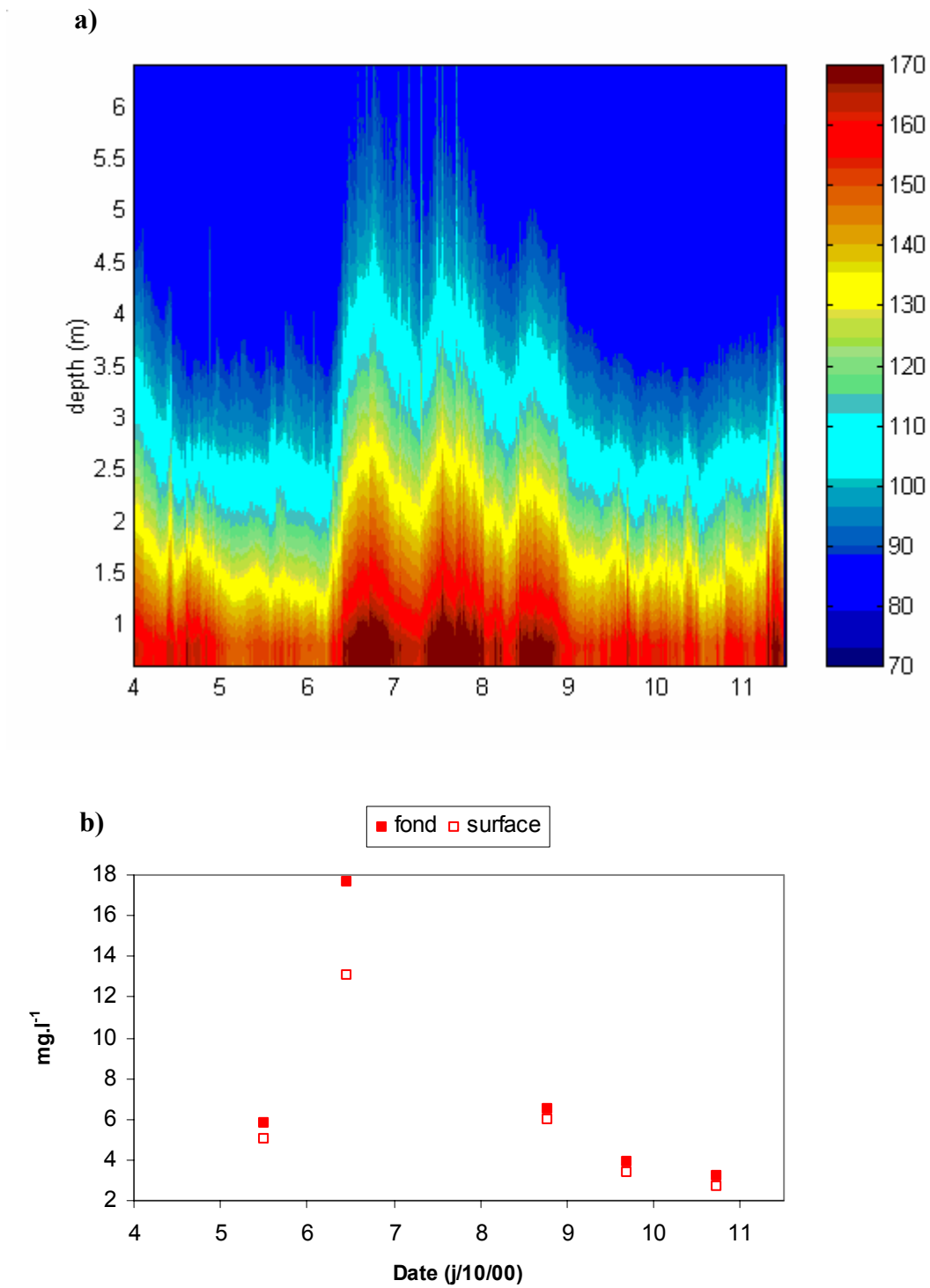


Figure 7. a) Time series of the backscatter of the ADCP at station R during the cruise. b) Time evolution of suspended particulate matter measured by filtration near the bottom (red square) and near the surface (white square).

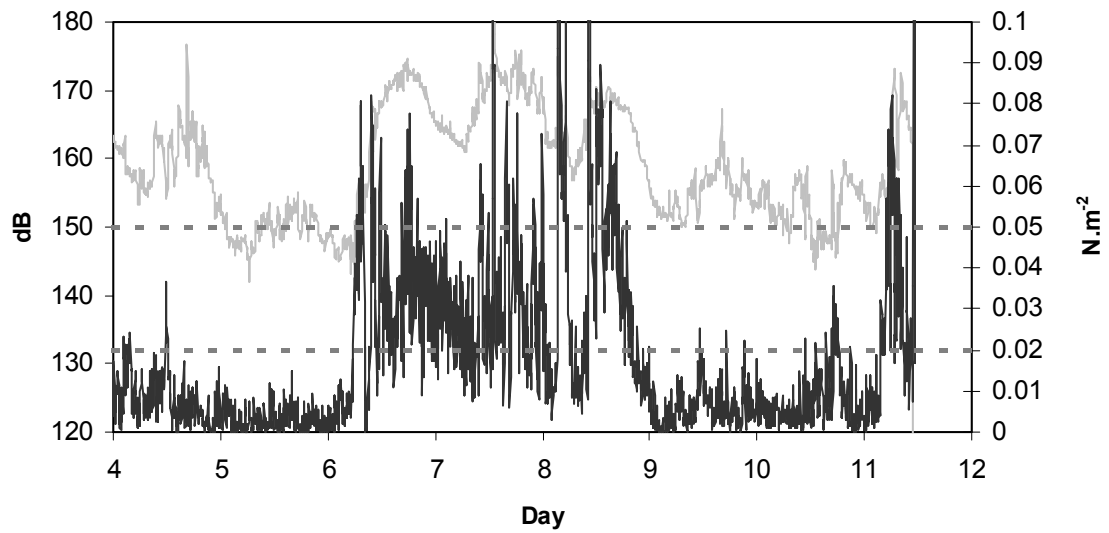


Figure 8. Time series of bottom shear stress (black) and acoustic backscatter (grey) near the bottom ($z=0.6$ m) at station R. The dotted lines show the two critical shear stresses of erosion measured in the laboratory flume.

Publication 1

Lansard B., Rabouille C. and D. Massias. 2003. Variability in benthic oxygen fluxes during the winter-spring transition in coastal sediments: an estimation by in situ micro-electrodes and laboratory mini-electrodes. *Oceanologica Acta*, 26 (3): 269-279.

Original article

Variability in benthic oxygen fluxes during the winter-spring transition in coastal sediments: an estimation by in situ micro-electrodes and laboratory mini-electrodes

Variabilité des flux benthique d'oxygène pendant la transition hiver-printemps dans les sédiments côtiers : estimation par micro-électrodes in situ et par mini-électrodes au laboratoire

Bruno Lansard ^{a,b}, Christophe Rabouille ^{a,*}, Delphine Massias ^b

^a Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, Avenue de la terrasse, 91198 Gif sur Yvette, France

^b Centre d'Océanologie de Marseille, rue de la batterie des Lions, Université de la Méditerranée, Marseille 13007, France

Received 12 July 2002; received in revised form 17 December 2002; accepted 10 January 2003

Abstract

Two expeditions were achieved at the winter-spring transition in the Golfe de Fos (Mediterranean Sea) at a site situated at 21 m depth. An in situ autonomous oxygen profiler and laboratory oxygen mini-electrodes were used to measure the oxygen distribution in the sediments and calculate the diffusive oxygen fluxes. Clearer waters during the second expedition promoted a rapid shift from a net heterotrophic environment to a photosynthesis-dominated sediment. The diffusive exchange fluxes of oxygen through the sediment-water interface varied from an average consumption of $5.3 \text{ mmol m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ (February) to a net production of $12 \text{ mmol m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ (March). At both periods, a large spatial heterogeneity was recorded by the different electrodes, with a larger difference between oxygen profiles when photosynthesis was active. This is probably indicative of a coupling between photosynthesis and respiration in hot spots located close to the photosynthetic organisms. The comparison between in situ micro-electrode profiles and laboratory mini-electrode measurements revealed a good agreement when respiration was dominant, but photosynthetic activity was not detected by the laboratory mini-electrode profiles.

© 2003 Éditions scientifiques et médicales Elsevier SAS and Ifremer/CNRS/IRD. All rights reserved.

Résumé

Deux campagnes ont été effectuées lors de la transition entre l'hiver et le printemps dans le golfe de Fos (mer Méditerranée) à un site situé à 21 mètres de profondeur. Un profileur benthique autonome et des mini-électrodes de laboratoire ont été utilisés pour mesurer la distribution d'oxygène dans les sédiments et calculer les flux diffusifs d'oxygène. Lors de la seconde campagne, la présence d'eau moins turbide a entraîné un changement rapide passant d'un environnement dominé par l'hétérotrophie à un environnement où la photosynthèse est le processus le plus actif. Les flux d'échanges d'oxygène à l'interface eau-sédiment varient d'une consommation nette de $5.3 \text{ mmol m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ (février) à une production nette de $12 \text{ mmol m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ (mars). A chaque période, une grande hétérogénéité spatiale est enregistrée par les différentes électrodes; des différences plus importantes sont notées quand la photosynthèse est active. Ceci indique probablement un couplage entre photosynthèse et respiration dans des « points chauds » situés à proximité des organismes photosynthétiques. La comparaison entre les mesures effectuées par micro-électrodes in situ et par mini-électrodes de laboratoire montrent un bon accord dans des conditions où la respiration est dominante, mais la photosynthèse n'est pas détectée sur les profils des mini-électrodes de laboratoire.

© 2003 Éditions scientifiques et médicales Elsevier SAS and Ifremer/CNRS/IRD. All rights reserved.

Keywords: Oxygen; In situ micro-electrodes; Biogeochemistry; Carbon cycle; Coastal sediment

Mots clés : Oxygène ; Micro-électrodes in situ ; Biogéochimie ; Cycle du carbone ; Sédiment côtier

* Corresponding author.

E-mail address: rabouill@lsce.cnrs-gif.fr (C. Rabouille).

1. Introduction

Oxygen consumption by marine sediments has been largely studied in order to determine benthic metabolism and organic carbon mineralization (Mackin and Swider, 1989; Rabouille and Gaillard, 1991; Glud et al., 1994; Sayles et al., 1994; Cai et al., 1995; Sauter et al., 2001). In fact, the organic matter reaching the sea floor is degraded and recycled by a range of benthic microbial metabolisms (Froelich et al., 1979; Canfield et al., 1993a) including oxic mineralization, which takes place in the early stages of sedimentary organic matter degradation. The consumption of oxygen by coastal sediments is responsible for extensive hypoxia in several estuaries and eutrophicated coastal zones (Justic, 1991; Justic et al., 1994; Nixon, 1995; Zimmerman and Canuel, 2000). In these sediments, oxygen is also an important control on the mobility of elements like phosphate, manganese, sulfide, etc. (Emerson et al., 1984; Sundby et al., 1986; Canfield et al., 1993b; Thamdrup et al., 1994). Dissolved O_2 has a major influence on fluxes of redox-sensitive metals and associated species like Fe, Cu, Ni, Cd, Zn, Pb (Klinkhammer et al., 1982; Westerlund et al., 1986; Gerringa, 1990; Van Ryssen et al., 1998; Zoumis et al., 2001; Ngiam and Lim, 2001) which cause environmental and health-related problems. A better understanding of oxygen biogeochemical cycle in coastal sediments and its variations with time during the seasons is needed to assess the impact of natural or anthropogenic perturbations (Rabouille et al., 2001).

Oxygen distribution results from the complex interplay between physical processes (diffusion, sedimentation), chemical reactions (oxidation of reduced species) and biogeochemical processes such as photosynthesis or respiration. To estimate the net rates of production or consumption,

oxygen distribution in sediments achieved with polarographic mini- or micro-electrodes can be used (Helder and Bakker, 1985; Revsbech and Jørgensen, 1986).

This paper presents oxygen profiles obtained by in situ micro-electrodes and laboratory mini-electrodes in marine sediments of a Mediterranean coastal environment heavily impacted by industrial activity (Golfe de Fos, France). O_2 fluxes at the sediment-water interface, reaction rates recalculated following Berg et al. (1998) and penetration depths of oxygen are evaluated for two cruises at a 1 month interval. They provide two contrasted situations due to the presence or absence of benthic primary production which influences largely the net flux of oxygen between the water column and the sediment. The in situ profiles are compared to laboratory measurements as a cross check of the two techniques.

2. Materials and methods

2.1. Study site and sampling methods

In situ measurements were carried out at site Hycarfos (43°22.364'N, 4°59.674'E), in the Golfe de Fos near Marseille (France) during February and March 2000 (Fig. 1). Mean water depth was 21 m at the station. The sea floor was composed of muddy-sand sediments characterized by intense bioturbation. Burrows were visible at the sediment surface and care was taken to make measurements out of these burrows. Sediment cores with undisturbed surface structures were also sampled by divers using 25 cm PVC core liners (i.d. 11 cm). They were capped in the water with no air bubble inside and transported to the laboratory in a cool box. In the lab, cores were stored at in situ temperature until clear

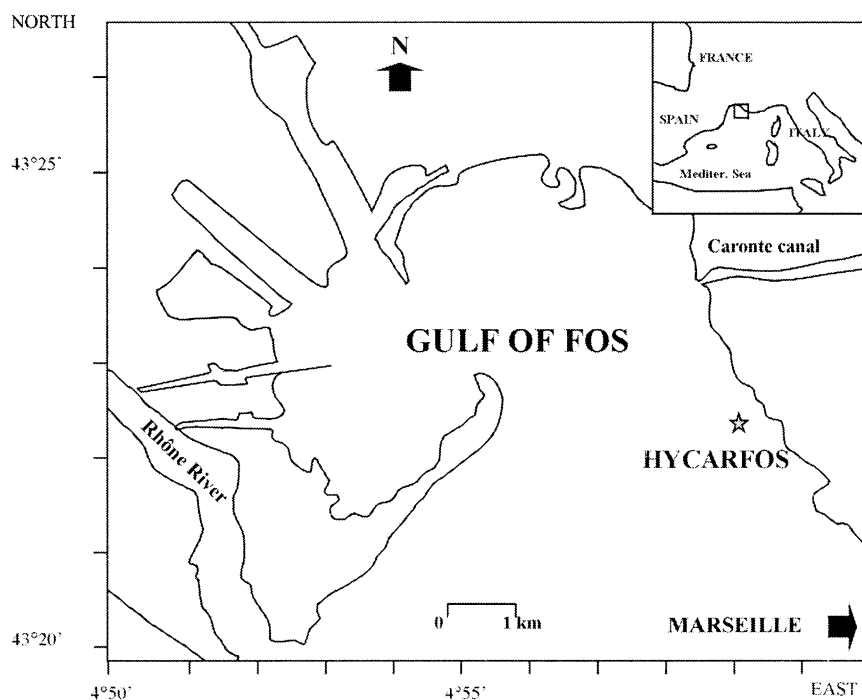


Fig. 1. Map of the Golfe de Fos with the location of the study site Hycarfos.

overlying water (about 1 h). During the expedition, bottom-water was sampled by diving with Niskin bottle for determination of salinity, temperature and dissolved oxygen. In February and March, water temperature and salinity at Hycarfos were 12.3 and 35.5 °C, and 13.8 and 35.9 °C, respectively.

2.2. *In situ micro-electrodes measurements*

Profiles of dissolved O₂ and formation factor were measured in situ across the sediment-water interface at site Hycarfos. We used an in situ benthic microp profiling instrument, Unisense deep-sea profiler (Black et al., 2001), based on the design of Reimers (1987). The profiler, mounted on a tripod frame, was settled on the sea floor by divers with minimum disturbance of sediment.

Dissolved O₂ concentrations were measured by polarographic oxygen micro-electrodes provided with a built-in reference and an internal guard cathode (Revsbech, 1989). The O₂ microsensors had tip outer diameters of 100 µm, a stirring sensitivity of <1% (i.e. signal increase in flowing vs. stagnant water), a 90% response time <10 s, and the current drift was less than 2% per hour. The zero oxygen currents were typically on the order of 0–12 pA, in accordance with values measured in the laboratory with an ascorbate salt solution, and the bottom-water signals ranged from 270 to 480 pA, depending on the exact geometry of the electrode tip (Gundersen et al., 1998). The electrode signals were recorded in the overlying water both before and after the profile, to access the stability of the measurements. Linear calibration of micro-electrodes was achieved between bottom water value estimated by Winkler titration (Grasshoff et al., 1983) and the anoxic zone of the sediment. The vertical resolution of the measurements was 500 µm in February and 100 µm in March.

The position of the sediment-water interface relative to the in situ oxygen profiles was determined from O₂ micro-profiles. The classical technique (Sweerts and Cappenberg, 1988; Revsbech, 1989) consists in assigning the interface position to a break in the oxygen concentration gradient due to the increased diffusion coefficient in the sediment compared to the diffusive boundary layer. Since the resolution of the profiles in February was 0.5 mm at best, a distance similar to the thickness of the diffusive boundary layer (Gundersen and Jørgensen, 1990), we could not use this classical technique to determine the position of the sediment-water interface. As a consequence, with our low resolution of February, we imposed the interface position to the second point where the concentration variation was larger than the noise of the constant reading of the water column. The uncertainty is thus ±500 µm on the interface position for this period. In March, where the resolution was 100 µm and a peak of O₂ was detected, we assigned the interface position to the start of the oxygen increase with a thin DBL of 100–200 µm. Oxygen penetration depth was determined from O₂ profiles as the depth where the signal of the O₂ micro-electrode reached the zero current.

Resistivity measurements were made with an electrode similar to that described by Andrews and Bennett (1981). Four thin parallel wires were buried in a matrix of epoxy, with only their tips in electrical contact with seawater. Resistivity recordings were converted to formation factor values by the formulation of Berner (1980):

$$F = R_z / R_{bw} \quad (1)$$

where F is the formation factor, R_z is the mean of the resistivity at a given depth z and R_{bw} is the average resistivity in bottom-water. Formation factor profiles were determined with the micro-profiler both in situ and in the laboratory. The results were presented using the factor F^{-1} that is proportional to porosity (Ullman and Aller, 1982). Concurrently, the sediment porosity, ϕ (pore water volume/total volume), was determined at 2 cm depth intervals from the weight loss upon drying at 60 °C during 2 weeks of sediment core segments of known weight and volume. Sediment density, which was measured with a helium pycnometer amounted to 2.56 g cm⁻³.

2.3. *Laboratory mini-electrodes measurements*

Sediment cores at in situ temperature were used for laboratory profiles using mini-electrodes, which were achieved according to the procedure of Thomas (1978) and Revsbech and Jørgensen (1986). Mini-electrodes consist of gold-covered platinum wire insulated in glass and glued into 1 mm outer diameter hypodermic needles of up to 15 cm length. The gold-plated tip (10 µm i.d.) surrounded by epoxy resin is covered with a semi-permeable membrane of cellulose nitrate (De Wit et al., 1997). The sensing tip is around 10–50 µm and the needle outer diameter is 1 mm. The electrode had a linear response within 10–100% air saturation. The 90% response time was about 45 s. Electrode currents for 10% (bubbling with N₂) and 100% air saturation of O₂ at 20 °C were, respectively, 0.09–0.2 and 1.2–2 nA. Values in the anoxic zone of the sediment were around 0.05–0.08 nA. Like in situ profiles, a two point linear calibration of the mini-electrodes was performed using the constant reading recorded in the anoxic part of the sediment and the dissolved oxygen concentration in the bottom-water. Mini-electrodes were attached to a micromanipulator, and vertical profiles were recorded at 500 µm in February and 200 µm in March.

We note a potential problem of resolution with mini-electrodes due to their diameter (around 1 mm), which might introduce a physical disturbance of the sediment and alteration of the profile. However, for soft and muddy sediments, this perturbation is certainly minimal because gentle penetration of the needle does not cause strong sediment compaction (De Wit, 1995).

2.4. *Calculation of reaction rates*

We used a software called Profile developed by Berg et al. (1998) to calculate net reaction rates for oxygen in sediments with variable porosity. Briefly, the programme consists in a

model describing oxygen transport and reaction in several zones where the reaction rate is constant. The model minimizes the difference between the output profile and the observation by modifying the number of zones and the reaction rates in each zone. The output of the programme consists in net reaction rates (production-respiration) integrated over a given sediment layer. We used a unique porosity profile derived from the resistivity measurements to calculate the consumption rates from different electrode profiles. We performed sensitivity tests with Profile and calculated the reaction rates for mini- and micro-electrode profiles.

3. Results

3.1. Oxygen profiles

3.1.1. February

Fig. 2 shows laboratory and in situ oxygen profiles measured in February. The profiler was deployed two times. First with one O₂ micro-electrode (in situ 1; spatial resolution: 1 mm) and then with two micro-electrodes 10 cm apart (in situ 2 and 3; spatial resolution: 500 μ m). Ten readings were taken by each sensor at each position over 10 s. They displayed little and erratic variations (about 1%) and were later averaged to yield individual data points for oxygen and formation factor profiles. The fourth profile (Lab 1) was made in laboratory with steps of 500 μ m.

During this deployment, the bottom-water was saturated with oxygen at 262 μ mol l⁻¹. Oxygen distribution in pore

water decreased from bottom-water concentration in first linear and then concave downward profiles. General shape and oxygen gradients at the interface are similar for in situ and lab measurements. Oxygen penetration varies from 4.5 to 6 mm depth into the sediment between the three in situ profiles. At low O₂ concentration, the signal of the mini-electrodes drops rapidly, finally resulting in a larger O₂ penetration, about 7 mm. These depths of O₂ penetration are typical in coastal sediment (Mackin and Swider, 1989; Rasmussen and Jørgensen, 1992). Below these depths, dissolved oxygen became undetectable.

3.1.2. March

In situ and laboratory oxygen profiles measured in March are presented in Fig. 3. The in situ deployment was achieved with two oxygen micro-electrodes (in situ 4 and 5) and a spatial resolution of 100 μ m. In the laboratory, two profiles were done in the same core with steps of 200 μ m (Lab 2 and Lab 3).

In March, oxygen concentration in the bottom-water was 268 μ mol l⁻¹. In situ measurements with high spatial resolution showed a peak in oxygen concentration at or slightly below the sediment-water interface. These peaks are, respectively, 290 and 325 μ mol l⁻¹ for in situ 4 and 5, respectively. The layer where the oxygen concentration is elevated is only 800 μ m thick. For these profiles, oxygen penetration depths are 6.5 mm for in situ 4 and 4.9 mm for in situ 5. The minimum depth penetration is associated with the larger oxygen peak. None of the two laboratory oxygen profiles show a peak at the interface. The general shape is similar for

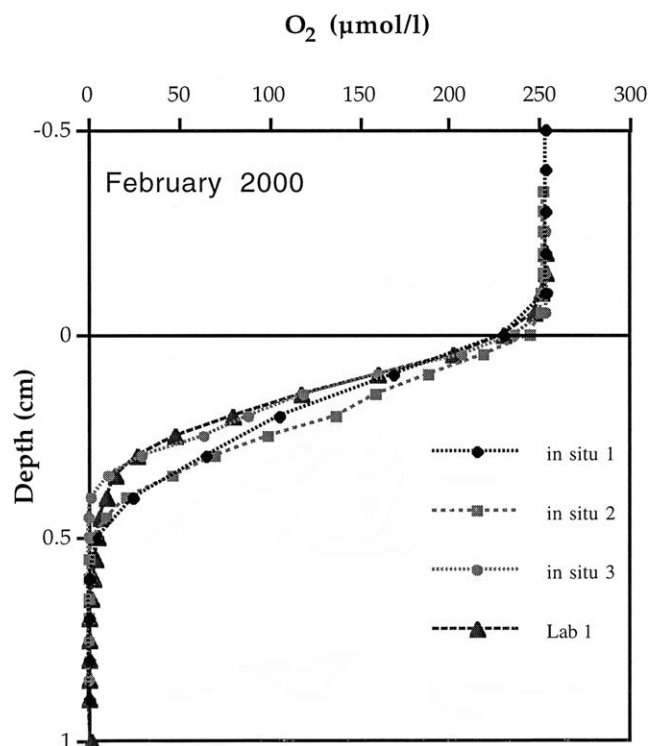


Fig. 2. In situ and laboratory oxygen profiles at site Hycarfos, February 2000 (12.3 °C).

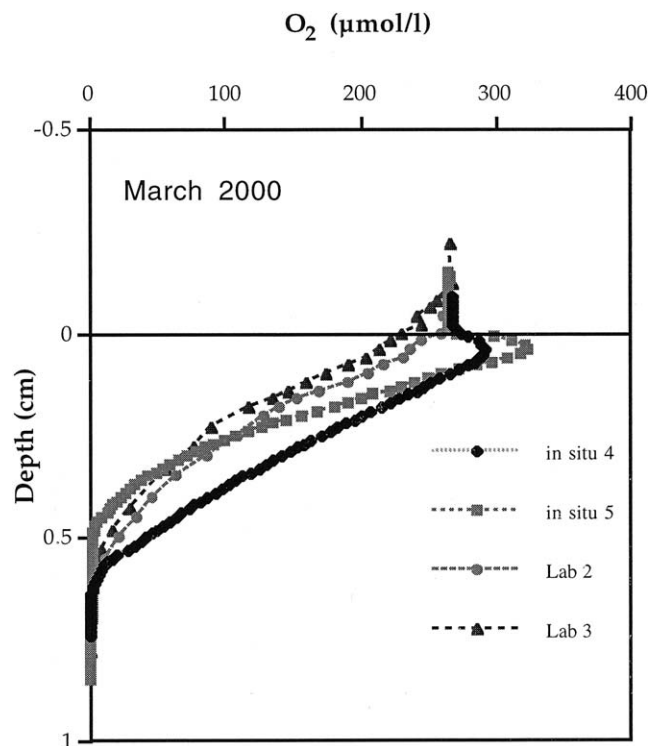


Fig. 3. In situ and laboratory oxygen profiles at site Hycarfos, March 2000 (13.8 °C).

both profiles except at the sediment-water interface. One of them (Lab 3) suggests a decrease of oxygen concentration in the bottom-water above the sediment (1 mm), whereas Lab 2 does not. However, for both profiles, the gradients are similar in the sediment and the oxygen penetration is about 6 mm.

A comparison between laboratory and in situ 4 profiles reveals similar negative slopes at high oxygen concentration. At low concentration, a change in slope is observed on mini-electrode profiles as already observed on February profiles.

3.2. Resistivity and porosity results

The porosity measured with a 2 cm step decreases gradually with depth from 0.50 for the top 2 cm to an average value of 0.43 at 20 cm depth (Fig. 4a). These profiles show relatively low values of porosity for coastal sediment but they are consistent with data reported by Jørgensen and Sørensen (1985).

Profiles of F^{-1} measured in situ and in sediment cores have similar shapes (Fig. 4b). The F^{-1} factor decreases from 1 in the bottom water to a mean value of 0.39 at 22 mm depth. F^{-1} values decrease 3 or 4 mm above the sediment-water interface due to the interactions between the electrical field generated by the resistivity probe and the sediment (Andrews and Bennett, 1981; Archer et al., 1989). The uncertainty in locating the interface for our resistivity profiles is about ± 1 mm. The location of the sediment-water interface for the in situ data set is estimated by assuming a similar behavior of the probe both in laboratory and in situ conditions. The F^{-1} average value at the sediment-water interface would thus be 0.76 ± 0.1 for in situ measurements. The inverse of the formation factor (F^{-1}) was calibrated against porosity using a simplified procedure from Andrews and Bennett (1981). We used the average F^{-1} value between 2 and 3 cm (0.35) and the porosity measured by the water loss

Table 1

Oxygen flux, net oxygen consumption and production rates (for different sediment layers when cited) estimated using the programme Profile from in situ and lab data of February and March. Between brackets are the zones over which this net rates are calculated

	Oxygen flux in $\text{mmol m}^{-2} \text{d}^{-1}$	Oxygen consumption in $\text{mmol m}^{-2} \text{d}^{-1}$ (sediment layer)	Oxygen production in $\text{mmol m}^{-2} \text{d}^{-1}$
February			
Lab 1	6.3	6.3	–
In situ 2	3.9	3.9	–
In situ 3	6.8	6.8	–
March			
Lab 2	4.4	4.4	–
In situ 4	–4.6	5.8 (1–4 mm)	10.4 (0–1 mm)
In situ 5	–19.3	10.9 (0.6–5 mm)	30.2 (0–0.6 mm)

technique (0.44). We assumed that F^{-1} was related through a power law to porosity ($F^{-1} = \phi^x$ Andrews and Bennett, 1981; Ullman and Aller, 1982). The relationship that we found was used to calibrate F^{-1} against porosities:

$$F^{-1} = \phi^{1.28} \quad (2)$$

The exponent of 1.28 falls in the lower range proposed by Ullman and Aller (1982) for low porosity sediment ($\phi < 0.7$).

3.3. Oxygen flux calculation and integrated reaction rates

The diffusive O_2 fluxes at the sediment-water interface were estimated using both, the in situ and laboratory oxygen profiles with the Profile software. In March, where a peak of oxygen is present at or slightly below the sediment surface, the sediment is a net source of O_2 to the water column. The diffusive flux of oxygen at the sediment-water interface is reported in Table 1.

A positive flux in this table indicates that the sedimentary column is a net heterotrophic environment (oxygen enters the sediment). The O_2 fluxes calculated for mini- and micro-

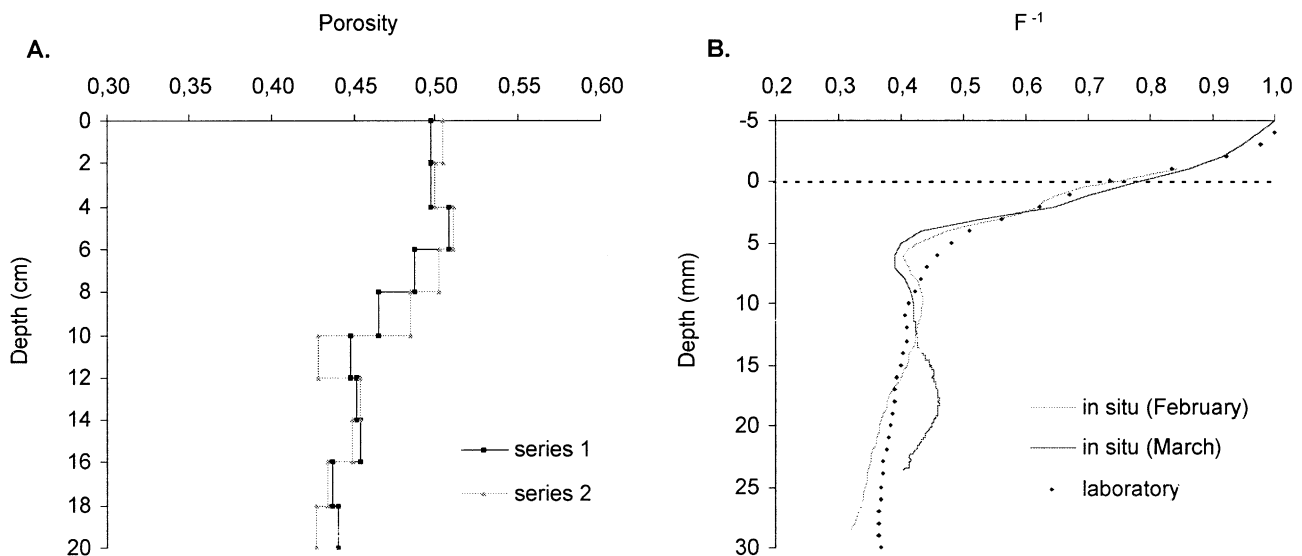


Fig. 4. Porosity profiles (A) measured in the lab and F^{-1} profiles (B) realized from resistivity measurements made in situ and in the laboratory.

electrodes in February are within a factor of 2. But the oxygen fluxes for in situ 3 and Lab 1 are quite similar, 6.8 and 6.3 mmol m⁻² d⁻¹, respectively. The two in situ micro-profiles performed at the same time indicate a variation by a factor of 2, which underline a large lateral heterogeneity in this environment. For March, the net flux shows a large variability between the two in situ sensors (a factor of 4). The laboratory measurement shows a positive flux (towards the sediment) contrarily to the in situ profiles, which indicates that photosynthesis had not restarted at the time of laboratory measurement. The integrated oxygen consumption rates for in situ profiles range from 5.8 to 10.9 mmol m⁻² d⁻¹, whereas Lab 2 shows a slightly lower oxygen consumption rate (4.4 mmol m⁻² d⁻¹).

3.4. Sensitivity tests for porosity profiles using Berg's Model

Sensitivity analysis was carried out concerning the role of the porosity profile in determining the rate distribution with depth. Indeed, most measured O₂ profiles showed flat distributions below the sediment-water interface over 2–3 mm. If porosity was constant, this flat part would signify that oxygen consumption is negligible and diffusion dominates. Since porosity variations are large in this portion of the sediment, the flat oxygen curve does indicate consumption but the rate is largely determined by the shape of the porosity profile. To illustrate this point, we have performed a calculation of reaction rates with Profile using constant porosity profiles and compared them to the calculation using a variable porosity profile. The constant porosity was set to 0.64, the average of the variable porosity profile over the oxygen penetration depth (about 5 mm). This value is different from the mean value measured on the first 2 cm but reflects the average of the resistivity calibrated values. Averaging the imposed porosity profile over 2 cm with an asymptote at 0.45 as proposed on Fig. 5 would yield a porosity of 0.5, compatible with the macroscopic observations. Fig. 5 clearly shows the role of the porosity in determining the distribution of the consumption rate. When constant porosity is introduced, the rate distribution shifts towards depth. The integrated consumption rate is also different in both cases: it is 2.5 mmol m⁻² d⁻¹ for in situ 2 and 3.5 mmol m⁻² d⁻¹ for in situ 3 with constant porosity, between 35% and 45% lower than with variable porosity (3.9 and 6.8, respectively). Therefore, we used a variable porosity profile for our rate calculations.

3.5. Distribution with depth of oxygen consumption/production rates

We calculated the distribution with depth of net rates of oxygen consumption and production using the software published by Berg et al. (1998). It is important to point out that the rates calculated by the Profile software correspond to net rates calculated on separate sediment layers rather than gross rates. For example, the calculation of oxygen production in the top layer of the sediment in March corresponds to the sum

of production-respiration in this layer, which certainly largely underestimates the gross primary production.

The distribution of oxygen consumption rate in the sediment were calculated for all profiles (Figs. 6 and 7 and integrated rates in Table 1). During February, the integrated rates varied between both in situ oxygen profiles by a factor of 2. The distribution with depth of the reaction rates is also very different between the two profiles: in situ 2 shows three reaction zones whereas in situ 3 shows only one, and in situ 2 exhibits a low consumption rate in the first millimeter and larger consumption deeper compared to in situ 3 consumption which spreads over most of the oxygen profile. The distribution with depth of the consumption rate calculated from laboratory mini-electrode data is consistent with in situ 2 showing lower consumption in the first millimeter and larger consumption at mid-depth, but the integrated reaction rates of the laboratory profile is two times larger than in situ 2. One important difference between the laboratory mini-electrode and the in situ profiles is the consumption rate at the oxic-suboxic boundary. The laboratory profile indicates a very low consumption rate (7.5 μmol l⁻¹ h⁻¹) at its lower boundary, whereas both in situ profiles show consumptions larger than 40 μmol l⁻¹ h⁻¹.

In March, the large peak of oxygen at the sediment-water interface is the result of an intense photosynthesis with net O₂ production rates ranging from 400 to 2000 μmol l⁻¹ h⁻¹. These net rates result from the competition between photosynthesis and respiration in each layer and do not correspond to gross primary production rates.

There is a large difference between the two profiles, which will be discussed in the next section. Deeper in the sediment where light is absent, respiration ranges between 100 and 300 μmol l⁻¹ h⁻¹ in contrast to oxygen consumption estimated in February at similar depths (60–80 μmol l⁻¹ h⁻¹). This indicates that mineralization is more active with photosynthesis than without it. Laboratory profile does not catch photosynthesis (the light conditions were not reproduced), and therefore, shows no oxygen peak and indicates lower oxygen consumption rates (around 80 μmol l⁻¹ h⁻¹ in subsurface sediment).

4. Discussion

4.1. Temporal variability

The measurements achieved in February and March showed two different environmental situations: In February, we encountered “classical” conditions with oxygen decreasing in pore waters from the overlying water concentration indicating net consumption of oxygen throughout the oxic sediment layer. The situation of March showed different characteristics with a peak of oxygen close to the sediment-water interface showing benthic primary production at the sediment surface. Favorable light conditions were recorded at this period with exceptionally clear waters and sunny weather on the day where these oxygen profiles were mea-

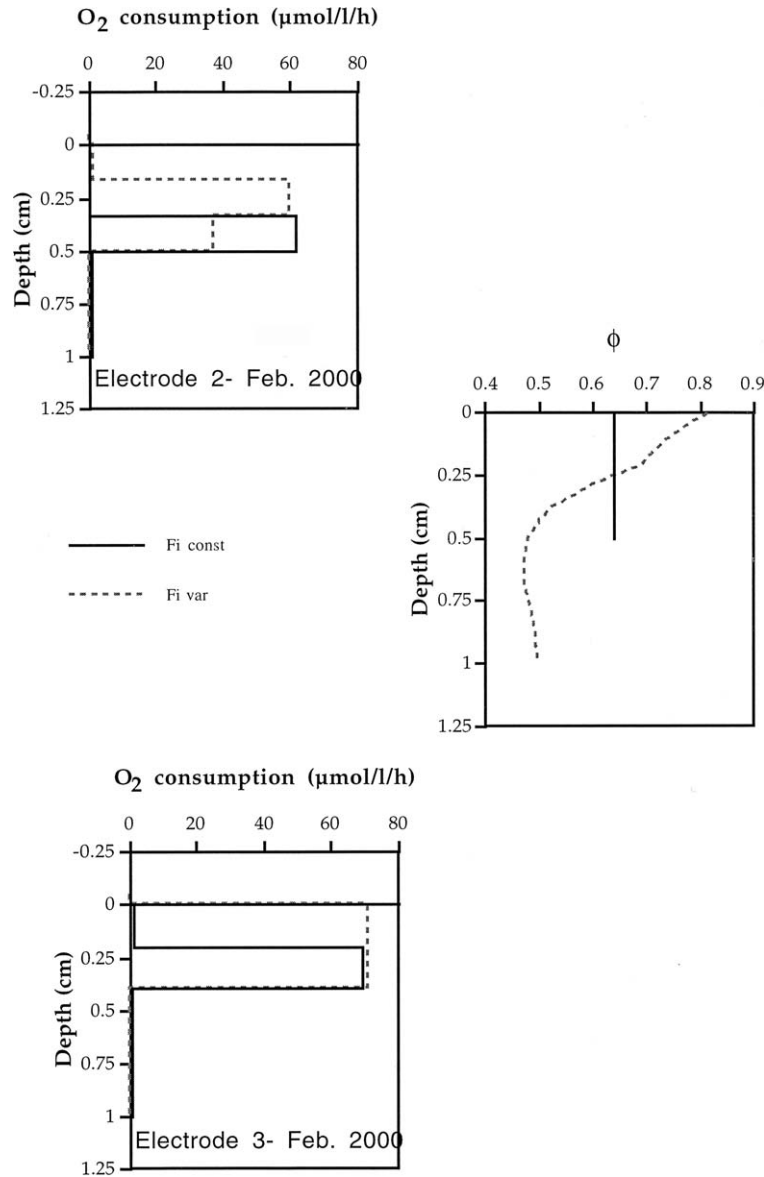
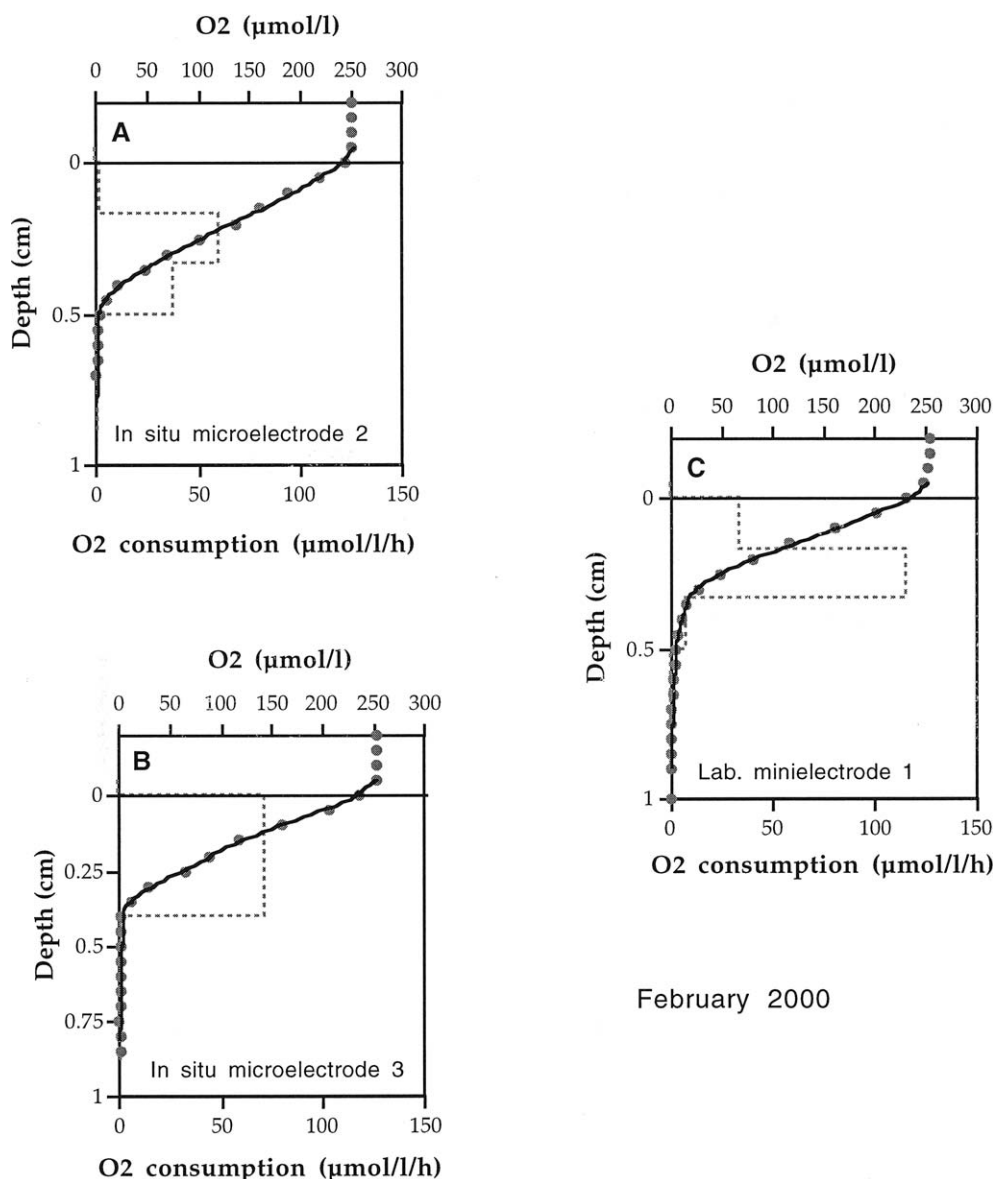


Fig. 5. Oxygen consumption rates for electrode in situ 2 and 3 (February 2000) calculated for different porosity profiles also shown. This serves as sensitivity test of the Profile software with respect to porosity profile.

sured (visual inspection by divers). Investigation of the sediment indicated the presence of sparse benthic pennate diatoms, which are known to achieve photosynthesis when significant light intensity penetrates to the sediment (Lindeboom, 1985). This resulted in oxygen peaks of 325 and 290 $\mu\text{mol l}^{-1}$. Compared to previous studies of benthic primary production using O_2 electrodes, these peaks are in the lower range since Revsbech et al. (1981) found oxygen peaks of five times saturation with day light conditions in the laboratory and Lindeboom et al. (1985) reported peaks of 650 $\mu\text{mol l}^{-1}$ at 1.8 m depth with a dense diatom mat.

The net diffusive flux of oxygen at the sediment-water interface showed a large temporal variability between the two periods: a flux entering the sediment in February (3–6 $\text{mmol m}^{-2}\text{d}^{-1}$) and a sediment as a net source of O_2 to the

water column in March (–5 to –19 $\text{mmol m}^{-2}\text{d}^{-1}$). It is noteworthy that the onset of primary production is related to the occurrence of clear waters, which is linked to several factors (water turbidity, wind direction, resuspension intensity on the seashore, concentration of suspended matter, etc.) affected by daily variations in this region rather than by seasonal trends. The rapid change in oxygen profiles and calculated flux at this period indicates that the role of the benthic system in the oxygen mass balance for the Golfe de Fos can be largely variable on a daily basis. It ranges from a large sink to a large source even for sediments situated at 20 m depth. The sediment as a source is certainly restricted to special light penetration conditions (low turbidity, sunny conditions) but the source term can be very strong and could be significant in oxygen budgets.



February 2000

Fig. 6. Oxygen distribution for February 2000 (dots), best fit using Profile (plain curve) and oxygen consumption rates calculated by profiles (dashed lines).

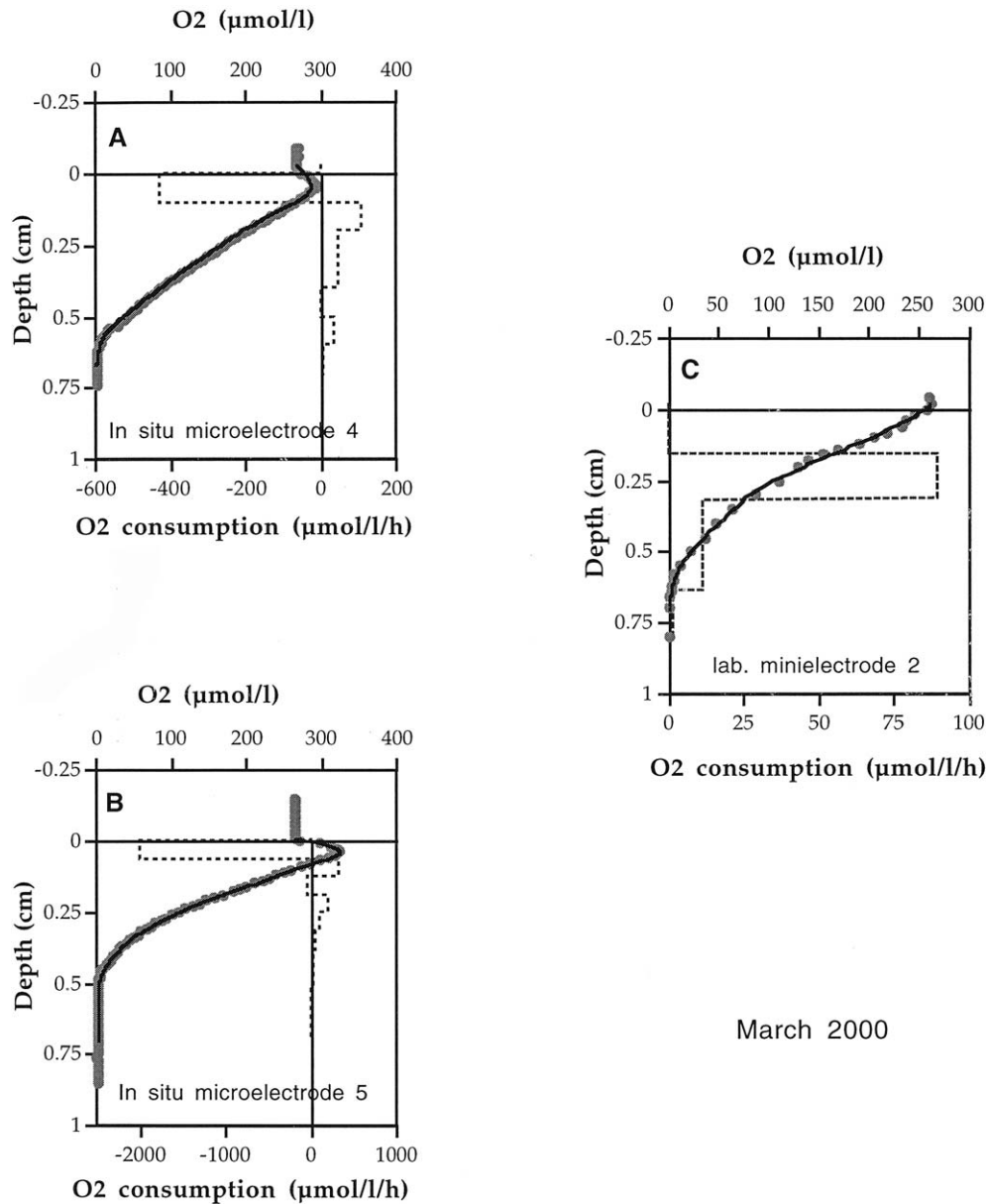
4.2. Spatial heterogeneity

As pointed out, mineralization rate and oxygen flux calculations show a large heterogeneity between the different in situ micro-electrodes. This is visible on the graphs and on the rate calculations performed by Profile. For in situ 2 and 3, the oxygen penetration varies by 1 mm over 4–5 mm, and the gradients at the sediment-water interface are much steeper for in situ 3 resulting in an exchange flux two times larger. The contrast is even more striking for in situ 4 and 5 with a difference of 2 mm in the oxygen penetration. For these two profiles, the net fluxes are within a factor of 4, which represents a very large range.

It is obvious that micro-electrodes sample only a very small portion of the sea floor, which might introduce differences between the profiles because of the natural heterogeneity of surficial sediments. Several processes could lead to spatial variability among which differences in quality/

quantity of organic matter, thickness of the diffusive boundary layer linked to micro topography, presence and density of animal burrows and availability of reduced chemical species (Rabouille et al., 2002). These factors would contribute to the variability at the microprofile scale by modifying the local oxygen consumption or supply parameters.

Another aspect that should be taken into account for March situation is the fact that benthic primary production occurred through sparse benthic diatoms or small colonies of these microalgae. We think that in situ 5 profile is measured closer to a diatom aggregate than in situ 4. As already underline by Fenchel and Glud (2000), in a photosynthetic sediment, horizontal distribution of O_2 concentration revealed spatial heterogeneity at a millimeter scale with “hotspots” of intense photosynthesis and respiration. The proximity of the aggregate would thus be another factor of variability for both production and consumption of oxygen with the coupling of



March 2000

Fig. 7. Oxygen distribution for March 2000 (dots), best fit using Profile (plain curve) and oxygen consumption rates calculated by profiles (dashed lines).

these two processes in the sediment. According to Fenchel and Glud (2000), sediment-water O_2 exchange may vary by a factor of 3 and 10 for O_2 -uptake and O_2 -release, respectively, over distances of 2 mm. The variability of our results are in the same range.

4.3. Coupling between benthic production and respiration

In March, where primary production was active in upper sediments, oxygen gradients in the sediment were different between the profiles, showing larger gradients at depth for the profile with the largest oxygen peak. In previous observations (Revsbech et al., 1981; Lindeboom et al., 1985), larger penetrations of oxygen were associated with larger oxygen peaks. Since these peaks are the consequence of benthic production, diffusion and consumption, larger pro-

duction should create larger gradients and promote deeper penetration of oxygen in sediments. These previous studies showed that a large increase in penetration depth of oxygen (from 4 to 9 mm) is associated to very large supersaturation (up to five times saturation, around $1300 \mu\text{mol l}^{-1}$ at 14°C , Revsbech and Jørgensen, 1983), whereas smaller oxygen supersaturations (below $650 \mu\text{mol l}^{-1}$) do not increase penetration by more than 1 mm. Our observation of lower oxygen penetration occurring on the profile with the largest oxygen peak ($325 \mu\text{mol l}^{-1}$) indicates that oxygen consumption linked to mineralization below the photosynthetic centers is more intense. Enhanced mineralization could be linked to diffusion of cell exudates of labile organic compounds during primary production or mineralization of exo-products of cells during the photosynthetic process. This could be related to the conclusions of Lindeboom et al.

(1985) who found that oxygen demand of sediment was larger in bell jars showing primary production (when placed in the dark) than bell jars kept continuously dark.

Since we calculated only net production/consumption rates, we cannot fully quantify the coupling between photosynthesis and respiration, which would require gross rates to be estimated. Nevertheless, we have a clear indication of larger net oxygen consumption in dark sediment layers (below 1 mm) when net oxygen production in the top sediment layer are increased.

4.4. Comparison of measurement techniques

The two different conditions encountered in February and March allow the comparison of the performance of oxygen measurement systems in a wide range of conditions. In February, O_2 profiles recorded using both laboratory and in situ techniques showed similar features: gradients at the sediment-water interface were equivalent for the two methods and oxygen penetration were slightly larger (by 1 mm) for laboratory mini-electrodes compared to in situ micro-electrodes. This might be the result of a lower sensitivity of the mini-electrodes at low oxygen concentration. In fact these electrodes show a linear calibration from 10% to 100% saturation, but calibration below 10% (ca. $25 \mu\text{mol l}^{-1}$) was not achieved. The slope of the mini-electrode at low O_2 concentration could be different from the slope at higher concentration, resulting in this apparent slope break on the oxygen profile and deeper O_2 penetration measured in the laboratory. This hypothesis remains to be tested. Nevertheless, a fair agreement between in situ and laboratory gradients is found below the sediment-water interface and flux calculations show similar values for the two techniques. In these conditions, sampling, transportation and laboratory measurement do not seem to modify the observed oxygen gradients. Great care was taken during sampling (by divers) and core transportation (cold conditions) to ensure preservation of the sediment interface. Furthermore, the temperature of the core was carefully re-adjusted to the in situ conditions in a dark cold room and oxygen bubbled in the overlying water before oxygen profiling, which is certainly a key to the measurement of reliable profiles. On the contrary, the different shapes of the profiles close to the oxic-anoxic boundary obtained by the two techniques point towards different biogeochemical processes: in situ profiles show large oxidation processes at the redox boundary and laboratory mini-electrodes indicates preferential mineralization of organic matter closer to the sediment-water interface.

For the situation in March with oxygen supersaturation, the comparison of electrode signals recorded by in situ and laboratory techniques shows a clear difference. Laboratory profiles do not exhibit oxygen peaks. This is certainly the consequence of keeping cores in the dark from sampling to measurements and not reproducing in situ light conditions in the laboratory. Indeed, cores were capped and kept in a dark cold room until analysis causing a disruption of photosynthesis. Revsbech et al. (1981) showed that the time necessary to

erase the oxygen peak was less than 6 h for an oxygen concentration of approximately $1300 \mu\text{mol l}^{-1}$. Around 3–4 h in the dark for our cores were certainly enough for the oxygen peak to be consumed.

5. Conclusion

Sediments studied with in situ micro-electrodes at the winter-spring transition in the Golfe de Fos at 21 m depth showed a dramatic shift from a situation where mineralization dominates to a situation where benthic primary production controls the exchange flux at the sediment-water interface. Between these two sampling periods, the magnitude and direction of the oxygen flux varied from an average consumption of $5 \text{ mmol m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ to a mean production of $12 \text{ mmol m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ when the overlying water was clear enough to allow light penetration and photosynthetic activity. This indicates that opportunistic species can use light down to these depths and modify the exchange rate of oxygen between the sediment and the water column.

Our study also indicates that spatial heterogeneity exists down to a depth of a few millimeters in coastal sediments. We also provide additional information that primary production is very tightly coupled to respiration.

The comparison between in situ micro-electrodes and laboratory mini-electrodes showed a surprisingly good agreement for the situation dominated by respiration (February) for both profile shape and oxygen fluxes, but the situation with primary production was poorly captured by the laboratory mini-electrode setting.

Acknowledgements

We thank Pascal L'Henoret for his technical assistance, the captain and crew of the R.V. Antedon and R. Graille and C. Marschal for their diving work. This study was supported by the Laboratoire des sciences du climat et de l'environnement (CNRS/CEA). This is LSCE contribution XXXX.

References

- Andrews, D., Bennett, A., 1981. Measurements of diffusivity near the sediment-water interface with a fine scale resistivity probe. *Geochim. Cosmochim. Acta* 45, 2169–2175.
- Archer, D., Emerson, S., Reimers, C.E., 1989. Dissolution of calcite in deep-sea sediments: pH and O_2 microelectrode results. *Geochim. Cosmochim. Acta* 53, 2831–2845.
- Berner, R.A., 1980. *Early Diagenesis: A Theoretical Approach*. Princeton University Press.
- Berg, P., Risgaard-Petersen, N., Rysgaard, S., 1998. Interpretation of measured concentration profiles in sediment pore water. *Limnol. Oceanogr.* 43, 1500–1510.
- Black, K.S., Fones, G.R., Peppe, O.C., Kennedy, H.A., Bentaleb, I., 2001. An autonomous benthic lander: preliminary observations from the UK BENBO thematic programme. *Contin. Shelf Res.* 21, 859–877.

- Cai, W.J., Reimers, C.E., Shaw, T., 1995. Microelectrode studies of organic carbon degradation and calcite dissolution at a California Continental rise site. *Geochim. Cosmochim. Acta* 59, 497–511.
- Canfield, D.E., Jørgensen, B.B., Fossing, H., Glud, R., Gundersen, J., Ramsing, N.B., Thamdrup, B., Hansen, J.W., Nielsen, L.P., Hall, P.O.J., 1993. Pathways of organic carbon oxidation in three continental margin sediments. *Mar. Geol.* 113, 27–40.
- Canfield, D.E., Thamdrup, B., Hansen, J.W., 1993. The anaerobic degradation of organic matter in Danish coastal sediments: iron reduction, manganese reduction, and sulphate reduction. *Geochim. Cosmochim. Acta* 57, 3867–3883.
- De Wit, R., Relexans, J.C., Bouvier, T., Moriarty, D.J.W., 1997. Microbial respiration and diffusive oxygen uptake of deep-sea sediments in the Southern Ocean (Antares-I cruise). *Deep Sea Res. II* 44 (5), 1053–1068.
- De Wit, R., 1995. Measurements of sedimentary gradients of pore water species by use of microelectrodes. Calculations of microbial metabolic processes in the sediments. *Oceanis* 21, 287–297.
- Emerson, S., Jahnke, R., Heggie, D., 1984. Sediment-water exchange in shallow water estuarine sediments. *J. Mar. Res.* 42, 709–730.
- Fenchel, T., Glud, R.N., 2000. Benthic primary production and O_2 – CO_2 dynamics in a shallow-water sediments: spatial and temporal heterogeneity. *Ophelia* 53, 159–171.
- Froelich, P.N., Klinkhammer, G.P., Bender, M.L., Luedtke, N.A., Heath, G.R., Cullen, D., Dauphin, P., Hammond, D., Hartman, B., Maynard, V., 1979. Early oxidation of organic matter in pelagic sediments of the eastern equatorial Atlantic: suboxic diagenesis. *Geochim. Cosmochim. Acta* 43, 1075–1090.
- Gerringa, L.J.A., 1990. Aerobic degradation of organic matter and the mobility of Cu, Cd, Ni, Pb, Zn, Fe and Mn in marine sediment slurries. *Mar. Chem.* 29, 355–374.
- Glud, R.N., Gundersen, J.K., Revsbech, N.P., Jørgensen, B.B., Schulz, H.D., 1994. Diffusive and total oxygen uptake of deep-sea sediments in the Eastern South Atlantic Ocean: in situ and laboratory measurements. *Deep-Sea Res.* 41, 1767–1788.
- Grasshoff, K., Erhardt, M., Kremling, K., 1983. *Methods of Seawater Analysis*, second, revised and extended. Verlag Chemie.
- Gundersen, J.K., Ramsing, N.B., Glud, R.N., 1998. Predicting the signal of O_2 microsenors from physical dimensions, temperature, salinity, and O_2 concentration. *Limnol. Oceanogr.* 43, 1932–1937.
- Gundersen, J.K., Jørgensen, B.B., 1990. Microstructure of diffusive boundary layers and the oxygen uptake of the sea floor. *Nature* 345, 604–607.
- Helder, W., Bakker, J.F., 1985. Shipboard comparison of micro- and mini-electrodes for measuring oxygen distribution in marine sediments. *Limnol. Oceanogr.* 30, 1106–1109.
- Jørgensen, B.B., Sørensen, J., 1985. Seasonal cycles of O_2 , NO_3^- and SO_4^{2-} reduction in estuarine sediments: the significance of an NO_3^- reduction maximum in spring. *Mar. Ecol. Prog. Ser.* 24, 65–74.
- Justic, D., Rabalais, N.N., Turner, R.E., 1994. Riverborne nutrients, hypoxia and coastal ecosystem evolution: biological responses to long-term changes in nutrient loads carried by the Pô and the Mississippi Rivers. In: Dyer, K.R., Orth, R.J. (Eds.), *Changes in fluxes in estuaries: implications from science to management*. Olsen and Olsen, Fredensborg, Denmark, pp. 161–167.
- Justic, D., 1991. A simple oxygen index for trophic state description. *Mar. Pollut. Bull.* 22, 201–204.
- Klinkhammer, G.P., Heggie, D.T., Graham, D.W., 1982. Metal diagenesis in oxic marine sediments. *Earth Planet. Sci. Lett.* 61, 211–219.
- Lindeboom, H.J., Sandre, A.J.J., Driessche, H.A.J., 1985. A new bell jar/microelectrode method to measure changing oxygen fluxes in illuminated sediments with a microbial cover. *Limnol. Oceanogr.* 30, 693–698.
- Mackin, J.E., Swider, K.T., 1989. Organic matter decomposition pathways and oxygen consumption in coastal marine sediment. *J. Mar. Res.* 47, 681–716.
- Ngiam, L.S., Lim, P.E., 2001. Speciation patterns of heavy metals in tropical estuarine anoxic and oxidised sediments by different sequential extraction schemes. *Sci. Total Environ.* 275, 53–61.
- Nixon, S.W., 1995. Coastal marine eutrophication: a definition, social cause, and future concerns. *Ophelia* 41, 199–219.
- Rabouille, C., Denis, L., Dedieu, K., Stora, G., Lansard, B., Grenz, C., 2003. Oxygen demand in coastal marine sediments: comparing in situ micro-electrodes and laboratory core incubations. *J. Exp. Mar. Biol. Ecol.* 285/286, 46–69.
- Rabouille, C., Mackenzie, F.T., Ver, L.M., 2001. Influence of the human perturbation on carbon, nitrogen, and oxygen biogeochemical cycles in the global coastal ocean. *Geochim. Cosmochim. Acta* 65, 3615–3641.
- Rabouille, C., Gaillard, J.F., 1991. A coupled model representing the deep-sea organic carbon mineralization and oxygen consumption in surficial sediments. *J. Geophys. Res.* 96, 2762–2776.
- Rasmussen, H., Jørgensen, B.B., 1992. Microelectrode studies of seasonal oxygen uptake in a coastal sediment: role of molecular diffusion. *Mar. Ecol. Prog. Ser.* 81, 289–303.
- Reimers, C.E., 1987. An in situ microprofiling instrument for measuring interfacial pore water gradients: methods and oxygen profiles from the North Pacific Ocean. *Deep-Sea Res.* 34, 2019–2035.
- Revsbech, N.P., 1989. An oxygen microsensor with a guard cathode. *Limnol. Oceanogr.* 34, 474–478.
- Revsbech, N.P., Jørgensen, B.B., 1986. Microelectrodes: their use in microbial ecology. In: Marshall, K.C. (Ed.), *Advances in Microbial Ecology*, 9, pp. 293–352.
- Revsbech, N.P., Jørgensen, B.B., 1983. Photosynthesis of benthic microflora measured with high spatial resolution by the oxygen microprofile method: capabilities and limitations of the method. *Limnol. Oceanogr.* 28, 749–756.
- Revsbech, N.P., Jørgensen, B.B., Brix, O., 1981. Primary production of microalgae in sediments measured by oxygen profile, $H^{14}CO_3^-$ fixation, and oxygen exchange methods. *Limnol. Oceanogr.* 26, 474–478.
- Sauter, E.J., Schlüter, M., Suess, E., 2001. Organic carbon flux and remineralization in surface sediments from the northern North Atlantic derived from pore-water oxygen microprofiles. *Deep-Sea Res. I* 48, 529–553.
- Sayles, F.L., Martin, W.R., Deuser, D., 1994. Response of benthic oxygen demand to particulate organic carbon supply in the deep-sea near Bermuda. *Nature* 371, 686–689.
- Sundby, B., Anderson, L.G., Hall, P.O.J., Iverfeldt, Å., Rutgers Van Der Loeff, M.M., Westerlund, S.F.G., 1986. The effect of oxygen on release uptake of cobalt, manganese, iron and phosphate at the sediment-water interface. *Geochim. Cosmochim. Acta* 50, 1281–1288.
- Sweerts, J.P.R.A., Cappenberg, T.E., 1988. Use of microelectrodes for measuring oxygen profiles in lake sediments. *Arch. Hydrobiol. Beih. Ergben. Limnol.* 31, 365–371.
- Thamdrup, B., Fossing, H., Jørgensen, B.B., 1994. Manganese, iron, and sulphur cycling in a coastal marine sediment, Aarhus Bay, Denmark. *Geochim. Cosmochim. Acta* 58, 5115–5129.
- Thomas, R.C., 1978. Construction and testing of recessed-tip pH-sensitive micro-electrode, proceedings. *J. Physiol.* 277, 14–15.
- Ullman, W.J., Aller, R.C., 1982. Diffusion coefficients in near shore marine sediments. *Limnol. Oceanogr.* 27, 552–556.
- Van Ryssen, R., Alam, M., Goeyens, L., Baeyens, W., 1998. The use of flux-corer experiments in the determination of heavy metal re-distribution in and of potential leaching from the sediments. *Water Sci. Technol.* 37, 283–290.
- Westerlund, S.F.G., Anderson, L.G., Hall, P.O.J., Iverfeldt, Å., Rutgers Van Der Loeff, M.M., Sundby, B., 1986. Benthic fluxes of cadmium, copper, nickel, zinc, and lead in the coastal environment. *Geochim. Cosmochim. Acta* 50, 1289–1296.
- Zimmerman, A.R., Canuel, E.A., 2000. A geochemical record of eutrophication and anoxia in Chesapeake Bay sediments: anthropogenic influence on organic matter composition. *Mar. Chem.* 69, 117–137.
- Zoumis, T., Schmidt, A., Grigorova, L., Calmano, W., 2001. Contaminants in sediments: remobilisation and demobilisation. *Sci. Total Environ.* 266, 195–202.

Publication 2

Rabouille C., Denis L., Dedieu K., Stora G., Lansard B. and C. Grenz. 2003. Oxygen demand in coastal marine sediments: comparing in situ microelectrodes and laboratory core incubations. *Journal of Experimental Marine Biology and Ecology*, 285-286: 49-69.

Oxygen demand in coastal marine sediments: comparing in situ microelectrodes and laboratory core incubations

C. Rabouille^{a,*}, L. Denis^b, K. Dedieu^a, G. Stora^c,
B. Lansard^c, C. Grenz^c

^a*Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, CEA-CNRS UNMR 1572, Av. de la Terrasse,
91198 Gif sur Yvette, France*

^b*Université des Sciences et Technologies de Lille 1, Station Marine de Wimereux, UMR 8013 ELICO-28,
Avenue Foch, 62930 Wimereux, France*

^c*Laboratoire d'Océanographie et de Biogéochimie, Centre Océanologique de Marseille,
Station Marine d'Endoume, Rue de la Batterie des Lions, 13007 Marseilles, France*

Received 2 May 2002; received in revised form 22 August 2002; accepted 13 September 2002

Abstract

A study coupling core incubation and a large number of in situ microelectrode measurements ($n = 18$) was performed at a single station in the Golfe de Fos, a semi-enclosed estuarine system in the South of France on the Mediterranean Sea. Total and diffusive oxygen fluxes were determined for two different seasons (October 2000 and May 2001). The average total and diffusive oxygen fluxes were 21.5 and $12.7 \text{ mmol m}^{-2} \text{ day}^{-1}$, respectively, in October and 18.5 and $16.5 \text{ mmol m}^{-2} \text{ day}^{-1}$, respectively, in May. The average total oxygen demand does not vary significantly between the two periods (21.5 ± 5 to $18.5 \pm 4 \text{ mmol m}^{-2} \text{ day}^{-1}$). The spread of the values obtained by microelectrode measurements reveals the variability at the decimeter scale indicating a control by small-scale processes. Little difference was found in May between the total and diffusive oxygen fluxes when the number of microelectrode profiles ($n = 18$) and core incubation ($n = 9$) was sufficient to catch larger fluxes linked to “organic hot spots”. Although present at a population density of 5700 individuals for 0.1 m^2 , macrofauna is mostly composed of surface deposit feeders. The little difference found between total and diffusive oxygen demand points towards not only the population density but also the faunal assemblage as a determining factor for sediment irrigation.

© 2002 Elsevier Science B.V. All rights reserved.

Keywords: Biogeochemistry; Coastal ocean; Irrigation; Microelectrodes; Oxygen; Sediment

* Corresponding author. Tel.: +33-1-69-82-3530; fax: +33-1-69-82-3568.

E-mail address: rabouill@lsce.cnrs-gif.fr (C. Rabouille).

1. Introduction

Oxygen demand in coastal sediments is a key issue in determining water quality. Indeed, hypoxic events which occur in stratified waters are known to severely impact the composition of coastal waters and affect the living infauna (Smetacek et al., 1991; Justic et al., 1994). In this regard, benthic oxygen dynamics play a determining role in controlling the amount and timing of peaks of sediment oxygen demand (SOD) with regards to pelagic production or water stratification. It is thus of importance to quantify precisely and identify the processes responsible for sediment oxygen demand in shallow coastal environments.

Oxygen distribution in coastal sediments is also crucial to the importance of processes such as organic matter preservation (Hartnett et al., 1998), denitrification (Seitzinger, 1988; Seitzinger and Giblin, 1996; Devol, 1991) or trace metal speciation and mobility linked to the iron cycle (Lovley, 1987; Shaw et al., 1990; Shimmield and Pedersen, 1990).

Different techniques for estimating the oxygen demand of sediments have been reported. Core or benthic chambers incubations provide the total oxygen demand and oxygen microprofiles coupled to estimation of the formation factor yield diffusive oxygen demand. Yet, the estimates of the two techniques show contrasted results. Archer and Devol (1992) found an excess of the total oxygen demand compared to the diffusive flux by a factor of 2–3 on the continental shelf whereas Reimers et al. (1992) found a fair agreement between the two values on the Pacific slope and rise below 1000 m. In the shallow coastal regions, similar contrasted results were found: Lindeboom et al. (1985) found a factor of 2 between the total and diffusive fluxes but Rasmussen and Jorgensen (1992) calculated a difference of only 30% between the annual averages of these two fluxes with larger discrepancies in summer. It is thought that the agreement between the two techniques depends on the macrofaunal activity promoting bioirrigation with a ratio of 1 in the deep-sea to 3–4 in the slope and shelf (Wenzhoefer and Glud, 2002).

In this paper, we propose an estimation of the oxygen mass balance in coastal sediment from a semi-enclosed estuarine system in the Mediterranean Sea obtained by two techniques: (i) laboratory core incubations and (ii) in situ microelectrodes profiles. We explore the similarities and differences between the two techniques, approach the spatial scale of lateral heterogeneity of the oxygen demand and discuss the processes related to this variability.

2. Material and methods

2.1. Sampling site

The Golfe de Fos is a Mediterranean semi-enclosed estuarine system located in the south of France close to Marseille (France), near the mouth of the Rhône river (Fig. 1). It covers a surface area of 42 km² and has an average depth of 8 m. Golfe de Fos is surrounded by an industrial area with a large harbour (petroleum, gas and ore tankers) and associated industries. We studied a station located in the closed part of the Golfe (station no. 24, 43°22'893N 4°54'225E, depth 9 m), where sediments are mostly muddy sands. We

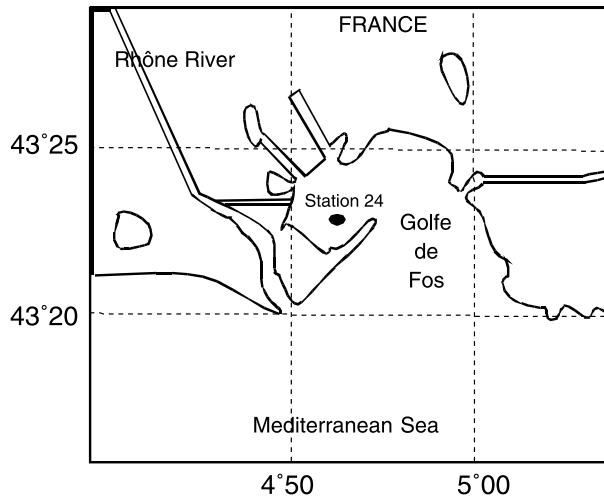


Fig. 1. Map of the Golfe de Fos situated in the South of France near Marseille.

performed two series of measurements using the R.V. George Petit in October 2000 and R.V. Tethys II in May 2001. All microelectrode measurements were performed in a circle of 75-m radius and all coring in a circle of 100 m of diameter at the same station.

2.2. Methods

2.2.1. Microelectrode measurements

During these experiments, in situ microsensor measurements of four vertical O_2 distributions were acquired using a microprofiler (Unisense®) together with one resistivity depth distribution on a single deployment. The profiler, mounted on a tripodal frame, was settled on the sea floor by divers with minimum disturbance of the sediment. A minimum time of 30 min was allowed before the measurement programme started.

Dissolved O_2 concentrations were measured by polarographic oxygen microelectrodes provided with a built-in reference and an internal guard cathode (Revsbech, 1989). The O_2 microsensors had tip outer diameters of 100 μm , a stirring sensitivity of <1% (i.e. signal increase in flowing vs. stagnant water), a 90% response time of 10 s, and the current drift was less than 1%/h. The zero oxygen currents were typically on the order of 0–12 pA, in accordance with values measured in the laboratory with an ascorbic acid solution, and the bottom-water signals ranged from 150 to 270 pA, depending on the exact geometry of the electrode tip (Gundersen et al., 1998). The electrode signals were recorded in the overlying water both before and after the profile, to assess the stability of the measurements. Linear calibration of microelectrodes was achieved between bottom-water oxygen value estimated by Winkler titration (Grasshoff et al., 1983) and the anoxic zone of the sediment. The vertical resolution of the measurements was generally 200 μm (with two profiles performed at 100- μm resolution—1505-pA2 and 1505-pA3).

The position of the sediment–water interface (SWI) relative to the in situ oxygen profiles was determined from O_2 microprofiles using a modified version of the technique of Sweerts et al., (1989) which consists in assigning the interface position to a break in the oxygen concentration gradient. The observed slope increase in the sediment is due to the decreased diffusion coefficient compared to the diffusive boundary layer. For most profiles in our case, the slope break was not clearly visible; rather we observed a steady increase of the slope towards a maximum within the first millimeter below the initial concentration decrease. We adopted the position of this maximum gradient as the sediment–water interface. Oxygen penetration depth was determined by using the depth where O_2 microelectrode signal reached the zero current.

Resistivity measurements were made with an electrode similar to that described by Andrews and Bennet (1981). Four thin parallel wires were buried in a matrix of epoxy, with only their tips in electrical contact with seawater. The resistivity sensor has a rectangular section of 10×3 mm and is edged at the lower end. Recordings were made at 200 μm as for the oxygen but the pertinent resolution is certainly around 1 mm due to the shape of the sensor. Since the sensors interact with the sediment before penetration (Andrews and Bennet, 1981), the interface position was estimated using test in the laboratory where interface was estimated visually. The uncertainty on the interface position is ± 2 mm. Resistivity recordings were converted to formation factor values by the formulation of Berner (1980).

$$F = R_z/R_{\text{bw}} \quad (1)$$

where F is the formation factor, R_z is the mean of the resistivity at a given depth z and R_{bw} is the average resistivity in bottom-water. We calculated an average profile of formation factor from the four profiles displayed in Fig. 2, and translated it to porosity using a two-points calibration acquired for the Golfe de Fos (Lansard et al., submitted for publication) following the relationship:

$$\phi = \frac{F^{-1} + 0.1582}{1.1582} \quad (2)$$

The flux estimates from the oxygen microprofiles were achieved with two different methods.

(1) We calculated the oxygen flux at the sediment–water interface by the following formula:

$$F_{O_2} = F^{-1} D_{O_2}^0 [dO_2/dx]_{x=0} \quad (3)$$

where F^{-1} is the inverse of the formation factor at the sediment–water interface (SWI), assumed constant for all profiles (0.88), $D_{O_2}^0$ is the diffusion coefficient at in situ temperature and $[dO_2/dx]_{x=0}$ is the oxygen gradient at the SWI (estimated from the profiles).

(2) We used the PROFILE software (Berg et al., 1998) which calculates the consumption rates with depth by adjusting the calculated oxygen profile to the observed one. For these calculations, we used an average porosity profile (Fig. 2)

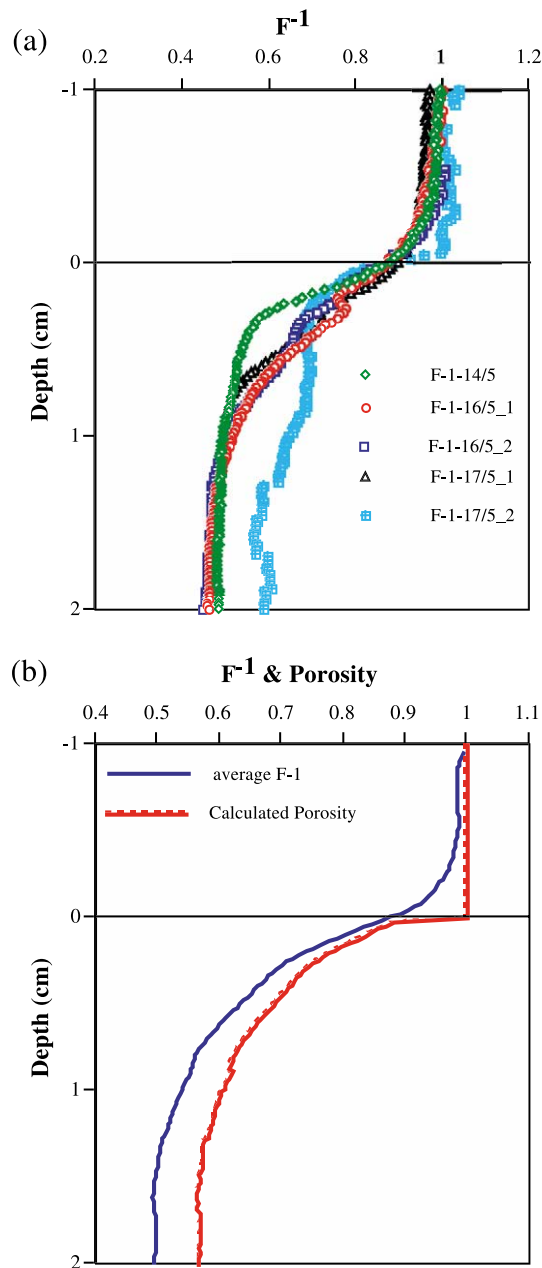


Fig. 2. (a) Inverse of the formation factor (F^{-1}) plotted versus depth for the period of May 2001. (b) Average F^{-1} and calculated porosity profile.

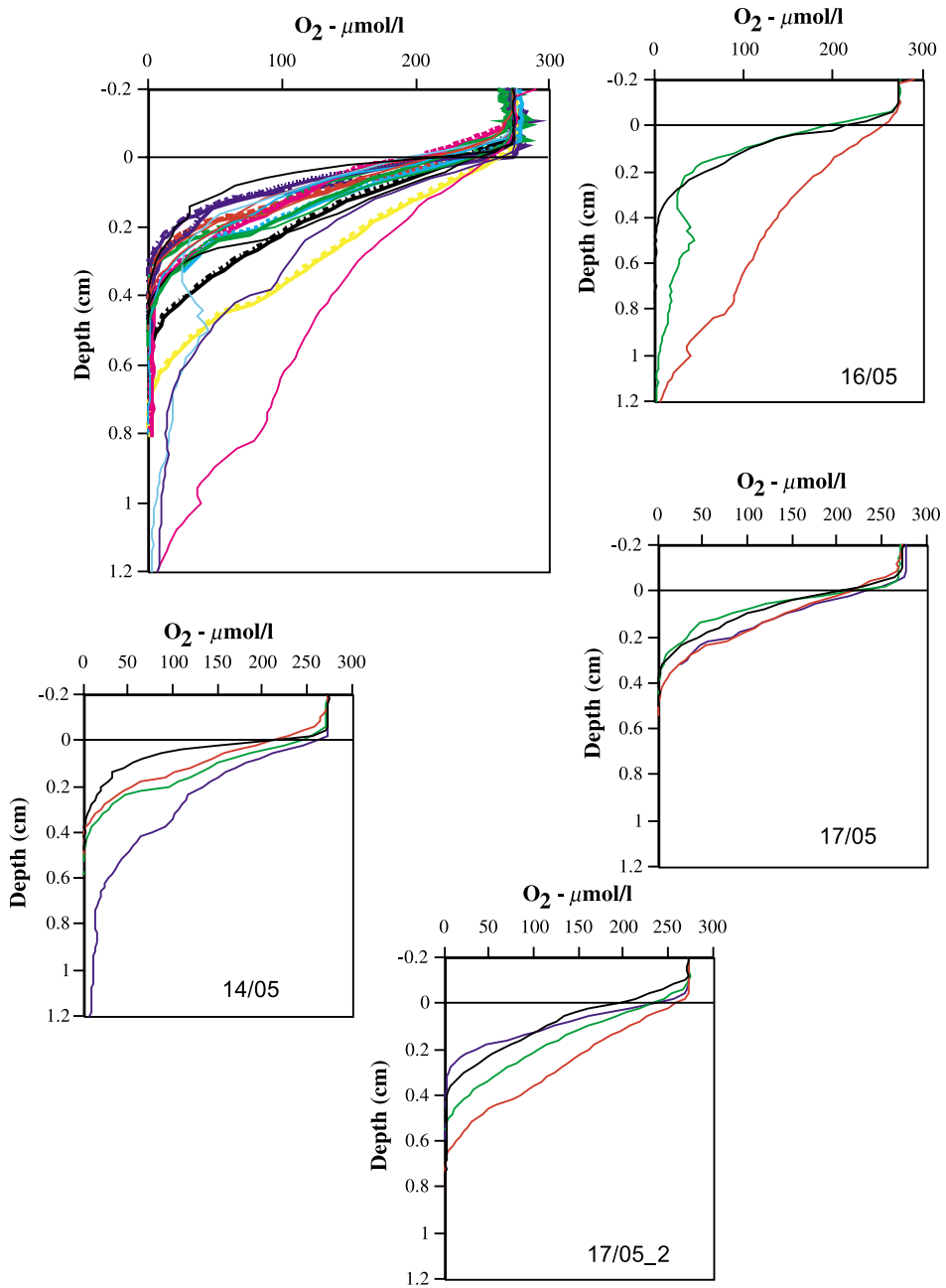


Fig. 3. All oxygen profiles measured during Modelfos 2 (May 2001). Groups of profiles are also shown for four different deployments during Modelfos 2 (each curve represents a single electrode profile) showing the large heterogeneity at small space scale.

for the station from the different resistivity measurements performed during the cruise.

2.2.2. Sediment oxygen demand (SOD) determined by whole core incubation

Cores were sampled with a sediment multicorer (Mark VI, Bowers and Connelly) especially designed to obtain simultaneously four large diameter (15 cm) perspex cores (50 cm height with around 20 cm of overlying water and 30 cm of sediment). Cores were

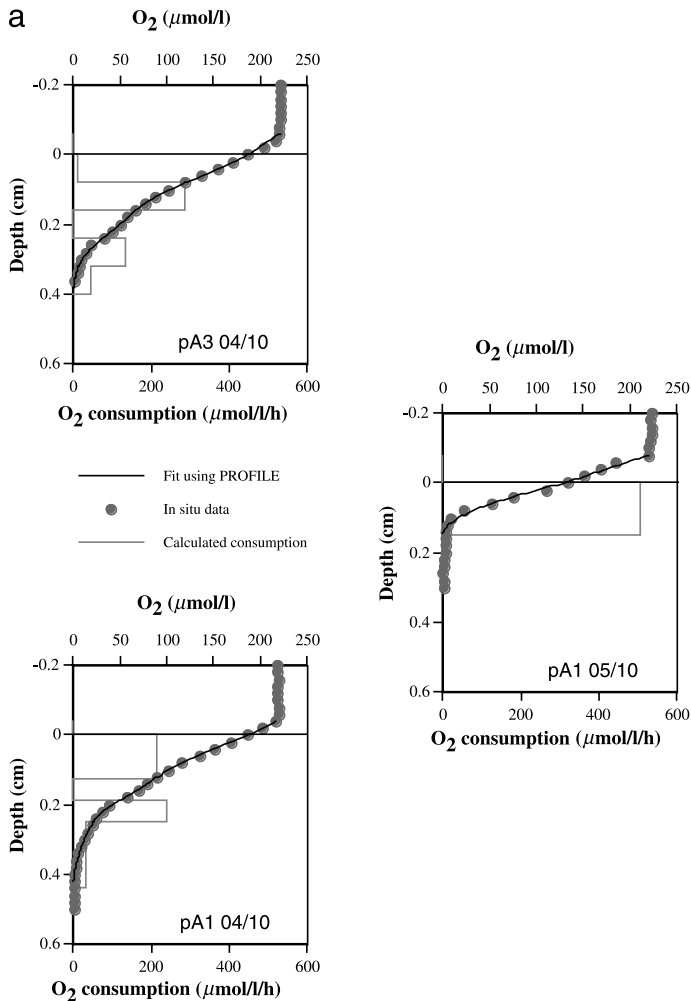


Fig. 4. Individual oxygen profiles showing the measured values (filled dots), the PROFILE fit (plain curve) and the consumption rate calculated by PROFILE (dashed line). (a) For Modelfos 1 (October 2000) and (b, c, d, e) for Modelfos 2 (May 2001).

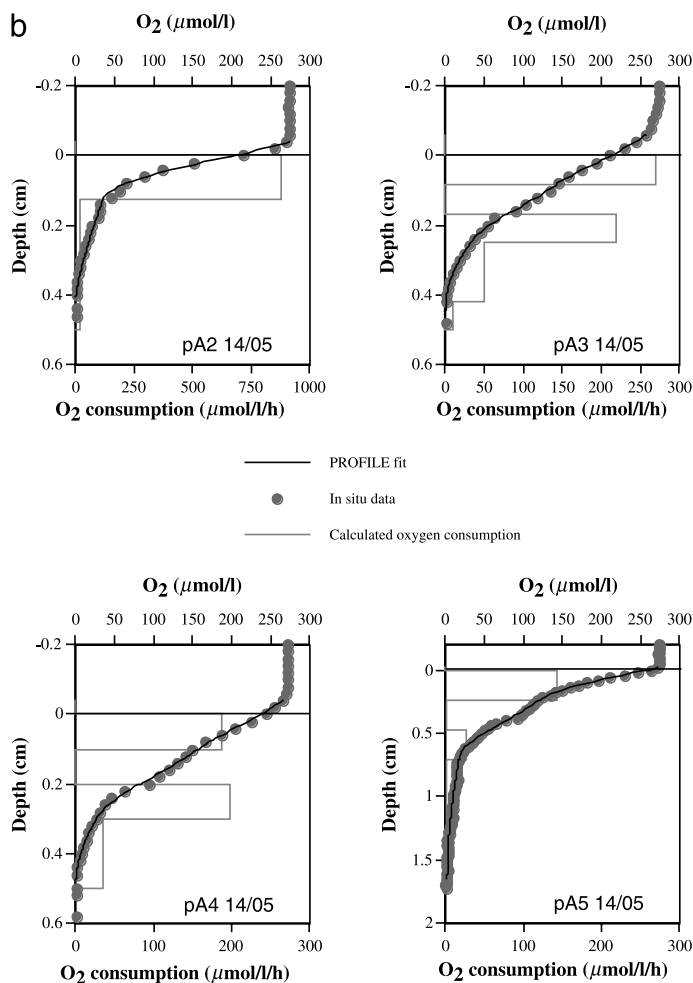


Fig. 4 (continued).

brought to the laboratory immediately after retrieval and incubations generally started within 4 h after sampling. We followed the incubation procedure and experimental settings previously detailed (Denis, 1999; Denis et al., 2001). Briefly, cores were incubated in dark thermoregulated cabinets at in situ temperature, after a careful sealing excluding air bubbles. Overlying water was continuously homogenised with a rotating floating magnet fixed to the upper cap (Cowan and Boynton, 1996). Each core was linked by tubing to an inflatable reserve tank filled with bottom-water. Plastic syringes were used to sample reserve tank and overlying water, and the volume removed in each core tube was replaced with bottom-water from the reserve tank. Generally six to eight samplings (120 ml) were performed during incubations lasting 15–20 h. We determined oxygen concentration in

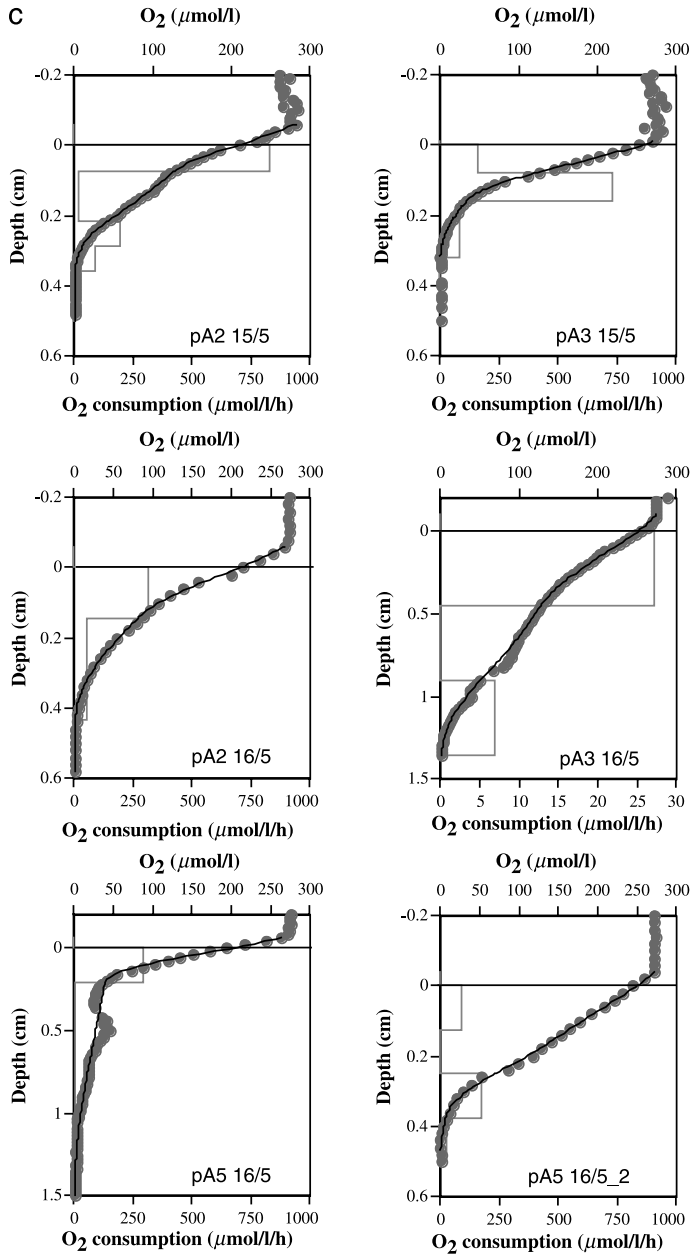


Fig. 4 (continued).

the overlying water of each core and the reserve tank by mean of micro Winkler titration (Grasshoff et al., 1983). Fluxes were then calculated by regressing the change of oxygen concentrations in the overlying water against time. A correction for overlying water

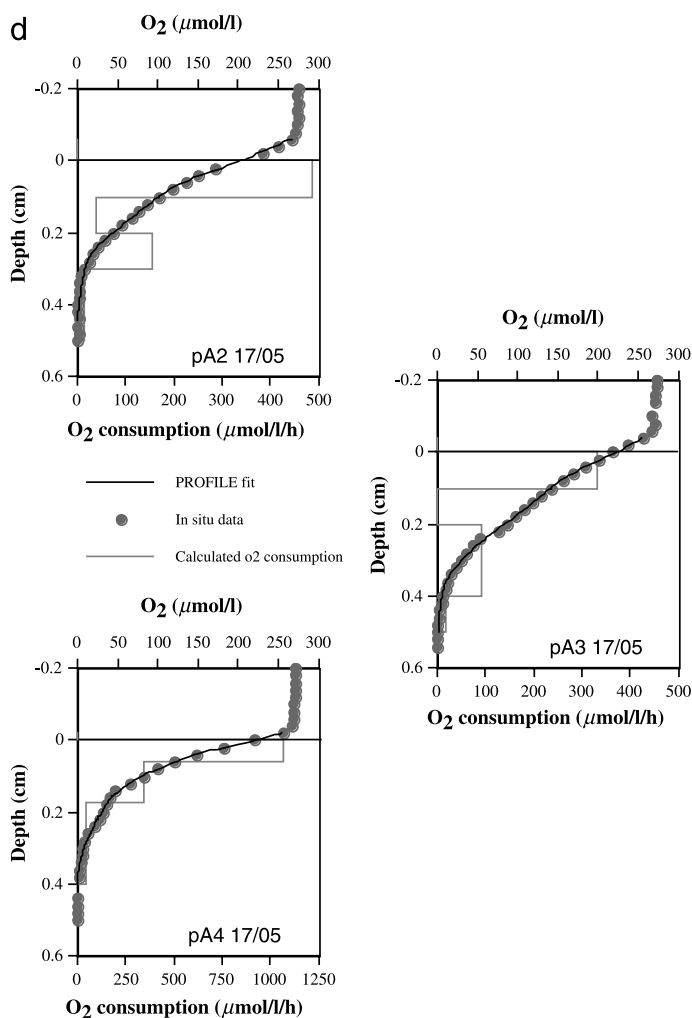


Fig. 4 (continued).

dilution with bottom-water at each sampling point was applied. The change of concentration with time was statistically tested (*t*-test, $p < 0.05$). When significant changes were recorded in the reserve tank, the rate of change was subtracted to the one calculated in each core tube.

3. Results

Oxygen profiles acquired during Modelfos 1 and Modelfos 2 cruises all showed a decrease with depth indicating oxygen consumption in the sediments (Fig. 3).

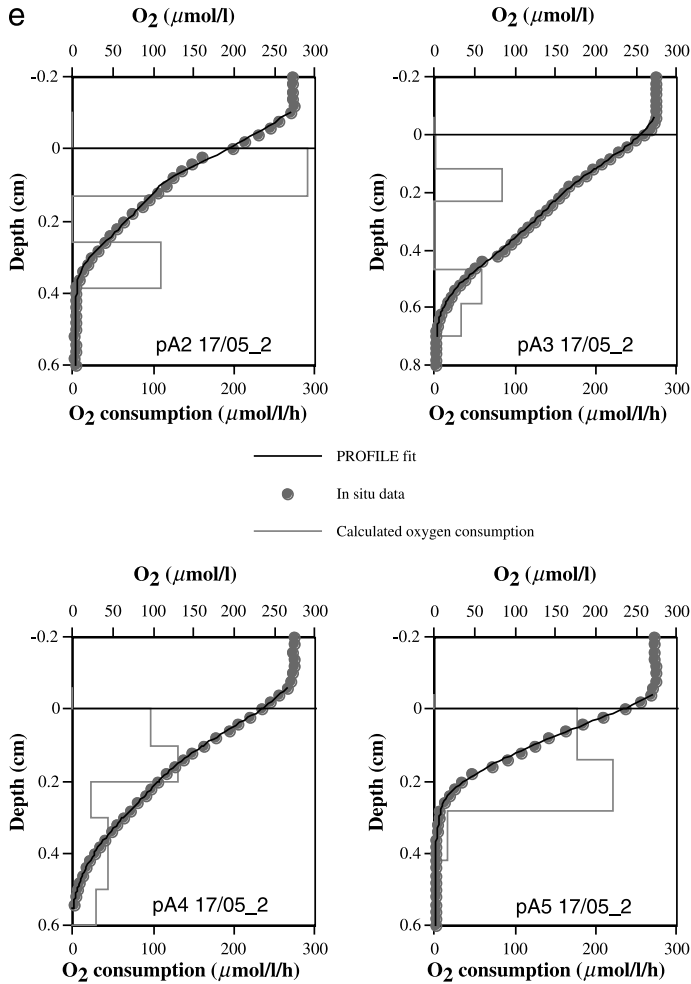


Fig. 4 (continued).

Penetration depths of oxygen ranged from 0.3 to 1.5 cm with an average of 0.4 cm. A slight but not statistically valid differences were found between October (0.3 ± 0.1 cm; $n=3$) and May (0.5 ± 0.3 cm; $n=18$) for this parameter. Consumption patterns calculated from PROFILE (Berg et al., 1998) typically showed a large consumption close to the sediment–water interface (first millimeter) and a lower consumption at the oxic–anoxic boundary indicating that reduced chemical species diffusing from deeper layer contribute to the oxygen consumption in these sediments (Fig. 4). The number of equally spaced zones was not always similar during the fitting procedure by the software, which explains the changing resolution from one individual profile to the other. Some profiles show a small gap around 3–4 mm which creates a deficit in

oxygen consumption rate. This could be due to a thin layer of less permeable sediment, which would disrupt the oxygen concentration profile.

3.1. Oxygen fluxes during *Modelfos 1*—October 2000

Four oxygen profiles were performed during this cruise. The oxygen consumption was calculated by the two methods indicated above (Table 1). The interface gradient method provided an average diffusive flux of $12.3 \text{ mmol m}^{-2} \text{ day}^{-1}$ whereas fluxes

Table 1
Sediment oxygen demand (SOD) estimation with the different techniques

Sediment oxygen demand (mmol m ⁻² day ⁻¹)				
		Diffusive flux		Total flux
	Interface gradient method	PROFILE method		Core incubations
<i>Modelfos 1—October 2000</i>				
pA1 4/10	13.7	11.6	4/10-St 24-1 #1	21.2
pA3 4/10	11.7	9.1	#2	23.8
pA1 5/10	16.6	18.3	#3	18.8
pA4 5/10	7.3		#4	31.4
			5/10-St 24-2 #1	25.0
			#2	20.0
			#3	20.9
			#4	27.7
			8/10-St 24-3 #1	13.6
			#2	15.1
			#3	18.9
Average flux	12.3	13.0		21.5
<i>Modelfos 2—May 2001</i>				
1405-pA2	47.2	27.6	10/5-St 24-1 #1	24.0
1405-pA3	13.6	12.0	#2	17.2
1405-pA4	14.0	10.9	12/5-St 24-2 #1	20.0
1405-pA5	12.9	9.8	#2	16.1
1505-pA2	38.0	19.6	#3	12.8
1505-pA3	25.1	19.3	#4	13.4
1605-pA2	11.5	14.9	13/5-St 24-3 #1	21.2
1605-pA3	5.1		#2	16.8
1605-pA5	15.9	15.4	#3	25.4
1605_2-pA5	9.7	8.6		
1705-pA2	28.3	17.0		
1705-pA3	12.7	12.9		
1705-pA4	27.0	26.5		
1705-pA5	14.1			
1705_2-pA2	26.9	12.4		
1705_2-pA3	6.6	4.8		
1705_2-pA4	10.1	8.8		
1705_2-pA5	20.6	13.9		
Average flux	18.8	14.7		18.5

Interface gradient and PROFILE methods refer to the calculation of diffusive SOD from oxygen micro-profiles. Core incubations provide a measurement of total SOD (see text for details).

calculated using the PROFILE software provided an average of $13 \text{ mmol m}^{-2} \text{ day}^{-1}$ excluding one profile which typically showed a burrow structure. The total flux estimated by core incubations ($n=11$) amounted to $21.5 \text{ mmol m}^{-2} \text{ day}^{-1}$ and is a factor of 1.8 larger than the diffusive flux (Fig. 5).

3.2. Oxygen fluxes during Modelfos 2—May 2001

During this second cruise, 18 oxygen profiles were acquired at the same station together with nine core incubations. The diffusive oxygen fluxes estimated by the two calculation methods showed very similar patterns with PROFILE fluxes being most often lower especially for extreme values (Fig. 5d). The average flux estimated by the interface gradient method ($n=18$) was $18.3 \text{ mmol m}^{-2} \text{ day}^{-1}$ whereas the average for the PROFILE method was $14.7 \text{ mmol m}^{-2} \text{ day}^{-1}$ ($n=16$). The spread of the flux distribution is very high with a factor of 6–9 between the lowest and highest fluxes for the two methods.

The incubation fluxes ($n=9$) showed an average of $18.8 \text{ mmol m}^{-2} \text{ day}^{-1}$ with a limited deviation around the average since a factor of 2 only was found between the extremes (Fig. 5c).

The statistical distribution was performed by separating the diffusive fluxes in classes of $10 \text{ mmol m}^{-2} \text{ day}^{-1}$ and core incubation fluxes in classes of 5 mmol m^{-2}

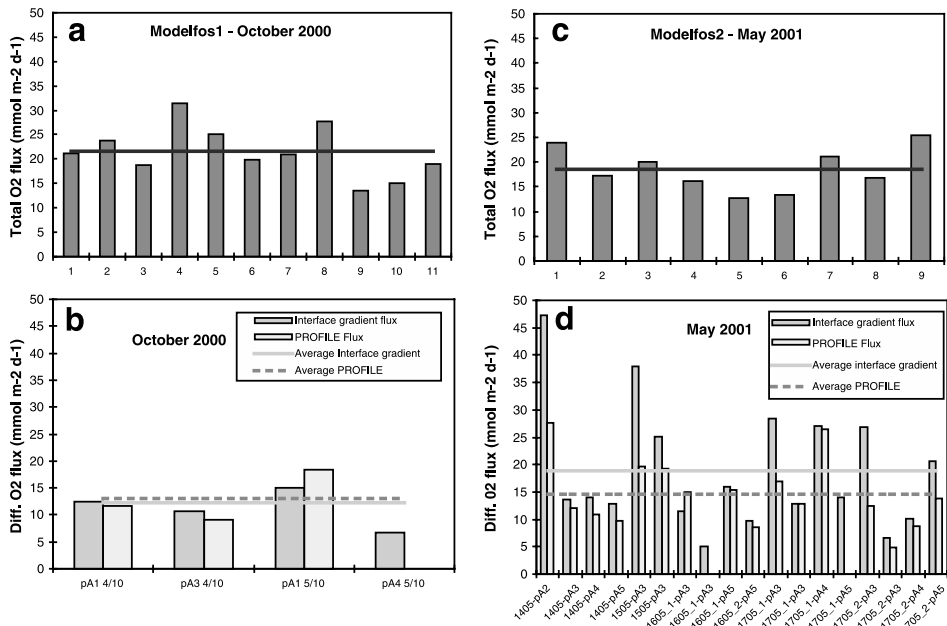


Fig. 5. Sediment oxygen demand measured during the Modelfos 1 (October 2000) and Modelfos 2 cruise (May 2001). (a and c) Total flux refers to core incubations and (b and d) diffusive flux refers to microelectrode estimation through the different methods (see text for details).

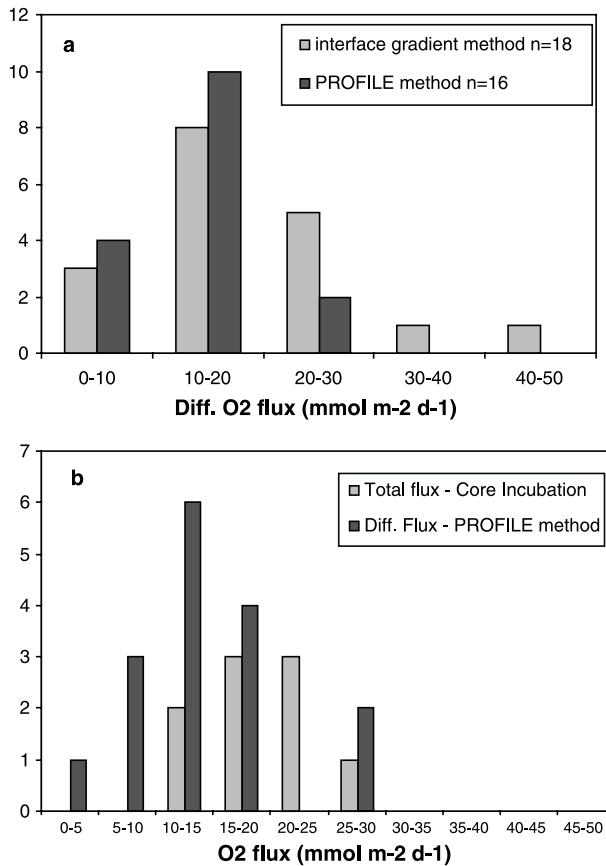


Fig. 6. Statistics on the estimated oxygen fluxes. (a) For diffusive fluxes with the two methods used for calculation (b) comparing the distribution of core incubation and diffusive flux estimated by PROFILE.

day^{-1} (Fig. 6). Diffusive fluxes show a non-Gaussian distribution extending largely towards large flux values whereas incubation fluxes showed a regular Gaussian distribution.

4. Discussion

We investigate the reasons of the observed differences between the diffusive and total flux estimates with respect to seasonal variations of oxygen demand and spatial heterogeneity at all space scales. Three main features emerge from this study: (i) the relative constancy of the total oxygen demand between October 2000 and May 2001, (ii) the large spatial heterogeneity captured by the microelectrodes and (iii) the little difference observed between total and diffusive fluxes in May 2001.

4.1. Potential biases on the determination of microelectrode or incubation fluxes

Before going into the discussion, some methodological issues which could have biased the results need to be addressed. The observed spread of the diffusive fluxes is partly attributable to the method of selection of the sediment–water interface. Since the diffusive boundary layer and the associated constant gradient were not obvious in our study (due to a resolution of 200 μm in general), we assigned the sediment–water interface to the position of the maximum gradient when this maximum was within the first millimeter below the start of the oxygen variation. The diffusive flux for the interface gradient method was then estimated using this maximum gradient using two successive oxygen concentrations at the SWI. This can lead to over- or underestimation of the flux due to the noise on the oxygen record and could have caused some of the observed variability. Nevertheless, this variability was also observed on the oxygen profile shapes with oxygen penetration depths ranging from 3 to 15 mm clearly reflecting the heterogeneity of the sediment (Fig. 3), thus suggesting that the bias introduced by the calculation method is limited. Furthermore, flux values obtained by the PROFILE software which takes into account the overall oxygen profile also show a spread (Fig. 5d) excluding a major artefact of the interface gradient method. This spread is very likely linked to the natural variability of the sedimentary environment.

The choice of the interface location as the maximum oxygen gradient could also explain the larger SOD values generally found for the interface gradient method compared to the PROFILE method, which takes into account the complete oxygen profile. If the “true” interface was situated slightly above or below this maximum, then the flux calculation would decrease by 10–20% because of the rapid change of the gradient in the interface zone. For the PROFILE method, one clear potential bias is the choice of the adequate profile for porosity (Epping and Helder, 1997; Elberling and Damgaard, 2001). We chose to average F^{-1} profiles for the station rather than to use individual formation factor profiles in order to have a robust estimate of this parameter at the station space scale. The few formation factor profiles gathered from the station show some degree of heterogeneity in the first centimeter (Fig. 2), but except for one profile, the scatter is not very large. The calculation of the oxygen consumption rate by the PROFILE method is sensitive to the shape of porosity profile, which therefore limits the accuracy of oxygen flux estimation. The interface method is less sensitive to the porosity variation since most F^{-1} profile show a value close to 0.88 in the first sediment layer.

Core incubation in the laboratory is also a source of potential bias. Previous comparison with in situ incubation showed contrasted results. Based on results from the Washington continental shelf, Devol and Christensen (1993) proposed a general underestimation of fluxes from shipboard incubation due to poor representation of macrofauna irrigation in small cores compared to larger in situ benthic chambers. We used large diameter cores (15 cm I.D.), which minimises this artefact. It has been shown for the deep-sea (Glud et al., 1994a) that core incubated on deck displayed oxygen demands which were 1.5–2 times larger than in situ incubations. It was believed that pressure release was the main factor influencing this variation. In the coastal ocean at 9-m depth, decompression is not important and most of the fauna remained alive after the core transfer to the laboratory. Another issue is the core compression during core liner penetration in the sediment. With

the large diameter corers (I.D. 15 cm), compression of the core during sampling was minimised. Incubation conditions were strictly controlled (temperature, darkness, limited oxygen deficit) which insure that the total flux reflects the *in situ* value.

4.2. Temporal and spatial variations of the sediment oxygen demand

The SOD found in this study are in the same order of magnitude as previously reported oxygen fluxes for shallow regions of the coastal ocean, e.g. the Northern Adriatic (Epping and Helder, 1997), the North Sea (Lohse et al., 1996), the Washington shelf (Archer and Devol, 1992), Swedish fjords (Hall et al., 1989) or Danish coastal waters (Rasmussen and Jorgensen, 1992; Glud et al., 1994b).

Core incubations reveals that oxygen flux has not varied significantly between October 2000 and May 2001. Indeed, the total oxygen demand varies from 21.5 ± 5 to 18.5 ± 4 $\text{mmol m}^{-2} \text{day}^{-1}$. The October cruise was performed at the end of the summer period and we might expect that most of the spring and summer production was deposited at the sediment surface, which would create a large SOD. The second cruise took place during the spring bloom period when we expect fresh organic material to be deposited at the sediment interface. This could explain the similarities of SOD between these two periods. Other studies performed in different context showed some variation of the SOD with time. Lohse et al. (1996) found a large variation of the diffusive flux between August and February in the North Sea (average of $6 \text{ mmol m}^{-2} \text{day}^{-1}$ with values as high as $25 \text{ mmol m}^{-2} \text{day}^{-1}$ in August), which was linked to turbulent diffusion, Epping and Helder (1997) also found a large variation in the Adriatic Sea between March ($6.4\text{--}17.1 \text{ mmol m}^{-2} \text{day}^{-1}$) and August ($16.3\text{--}30 \text{ mmol m}^{-2} \text{day}^{-1}$), which was due to benthic photosynthesis during the summer months and Rasmussen and Jorgensen (1992) found little variation of the diffusive oxygen demand over a year in Aarhus Bay ($9.6 \pm 2.4 \text{ mmol m}^{-2} \text{day}^{-1}$) while the total oxygen demand varied from $20 \text{ mmol m}^{-2} \text{day}^{-1}$ in summer to $7.2 \text{ mmol m}^{-2} \text{day}^{-1}$ in winter. This was due to a countereffect of oxygen decrease in the overlying water and larger deposition of organic matter during summer. In the Golfe de Fos, oxygen decrease in the bottom-water during summer is limited, the turbulence in the water column does not affect diffusion coefficients in the sediment and benthic photosynthesis is weak due to constant turbidity of the water in this part of the Golfe. Consequently, large variations of the SOD are not expected.

The picture that dominates our data set for Modelfos 2 (May 2001) is the large heterogeneity at small spatial scale. The spatial scales investigated cover the decimeter to the decameter. Each individual set of profile is concentrated on less than 10 cm (the distance between the different electrodes on our measuring cylinder), and each launch of the profiler was achieved on the same station in a circle of 75 m of diameter. The scatter observed at the station level (tenth of meters) is also observed at the decimeter scale, which indicates that the spatial heterogeneity can be assigned to this space scale and therefore linked to small scale processes (e.g. faunal burrows, local deposition of organic matter) rather than larger scale change (bathymetric heights, macrofauna patchiness). Processes causing lateral variations of oxygen profiles are microscale changes of the quantity/quality of deposited organic matter (Archer and Devol, 1992), thickness of Diffusive Boundary Layer (DBL) linked to microtopography (Rasmussen and Jorgensen, 1992), horizontal

diffusion of oxygen from biological structure (occupied or empty burrows; Jorgensen and Revsbech, 1985), or enhanced availability of reduced chemical species (Canfield et al., 1993) generated by the anoxic oxidation of organic matter in deeper sediments (Fig. 7). Two of these processes cause an increase of the oxygen demand of the sediment (increase in quality or quantity of organic matter deposited, or increased generation of reduced chemical species) whereas the presence of lateral diffusion of oxygen will create deeper penetration of oxygen by resupply at depth and simulate a lower oxygen demand of the sediment. This is certainly the case for profiles pA5-1405, pA3-1605, or pA5-1605 (Fig. 4) which all show lower than average values of oxygen consumption and larger oxygen penetration. An increase of the DBL thickness would not modify the oxygen demand of the sediment, but would create a shallower penetration depth of oxygen by increasing the concentration change in the DBL rather than in the sediment (Jorgensen and Revsbech, 1985).

The statistical plot of the oxygen diffusive fluxes calculated from the microprofiles (Fig. 6) shows a near Gaussian distribution around the average with a long tail extending towards larger values. These rare and larger values contribute to the average diffusive SOD significantly. They constitute around 10% of the measured values but the average diffusive oxygen demand increases by 15–20% when they are included in the data set. These larger values could represent hot spots of bacterial organic matter degradation which could contribute significantly to the overall diffusive oxygen flux for a station and are taken into account if a sufficiently large sampling ($n \geq 20$) is performed.

4.3. Comparison between the incubation and microelectrode fluxes

The two techniques used during this study to estimate the SOD (core incubation and microelectrode profiles) provide different insight on the diagenetic system. The surface

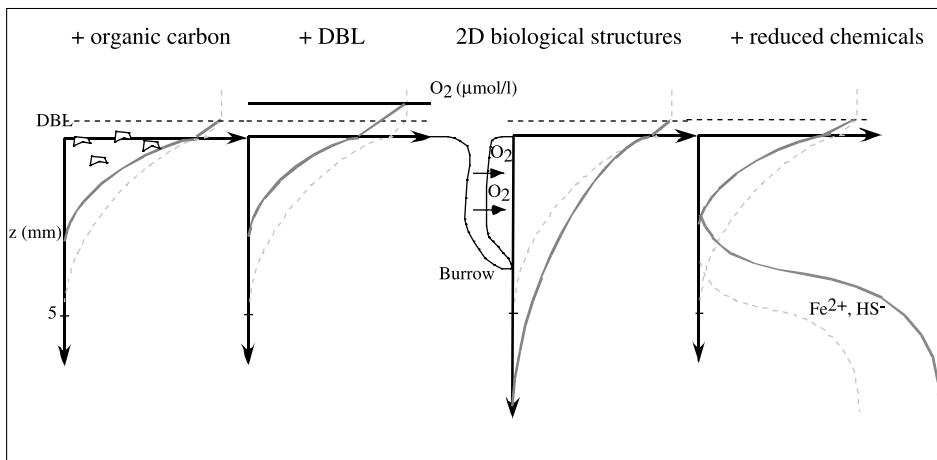


Fig. 7. Schematic plot of the effect of increasing the following parameters: organic carbon content or reactivity, DBL thickness, flux of reduced chemical species from anoxic sediments. The inclusion of burrows is also shown. On each graph, the dashed profile represents the “standard” situation and the plain curve represents the altered profile.

area and the processes covered by these techniques are very different. Core incubation typically integrates on the surface area of the core (177 cm^2 , in our case). We propose that the surface area studied by microelectrodes is not directly related to their tip size (in our case, an external diameter of 0.1 mm) but rather to the diffusion distance on a profile time scale (typically a few hours). Indeed, any changes occurring within this distance during the profiling operation will influence the profile shape and therefore the calculated diffusive oxygen flux. The typical diffusive distance can be calculated as follows:

$$x = \sqrt{2Dt} \quad (4)$$

For a diffusion coefficient (D) of $10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$, and a time (t) of 10,000 s (3 h), the value of x is 0.4 cm and the area investigated by the electrode is in the order 0.1 cm^2 , a factor of 1000 less than the core incubation. This is only a rough estimate and other calculation based on the oxygen residence time (around 30 min in our case) would provide x of 0.2 cm.

The processes taken into account by the two techniques are also different. Total flux estimated by core incubation typically integrates all processes linked to oxygen transfer: diffusion and advective movement of pore water induced by faunal activity (active pumping in burrows, biodiffusion due to erratic movements of the fauna,...). Diffusive fluxes estimated from microelectrode profiles assume that the transport of chemical species is accomplished by molecular diffusion excluding the other transport processes.

In our study, we find that the diffusive flux for the most documented period (Modelfos 2—May 2001) is very close to the total flux. The flux calculated by the interface gradient method exactly agrees with the total flux, whereas the flux estimated by the PROFILE method is 20% lower than the total flux. The presence of very large diffusive fluxes (above $25 \text{ mmol m}^{-2} \text{ day}^{-1}$, Fig. 6a) which are rather rare was statistically not caught by the previous studies relying on a reduced number of oxygen profiles. The inclusion of these fluxes in our calculation could explain the little difference between total and diffusive oxygen demand. In fact, removing these larger fluxes would drive the difference between the two types of fluxes up to 50%. Former studies (Lindeboom et al., 1985; Archer and Devol, 1992) have found a factor of 1.5 to 3 between total and diffusive fluxes for coastal or shelf stations. Other authors found a relatively good agreement between diffusive and total oxygen fluxes (Reimers et al., 1992) on the continental slope and rise between 1000 and 4000 m deep. In a recent review of margin and deep-sea oxygen demand in the Atlantic, Wenzhoefer and Glud (in press) showed that the ratio between total and diffusive fluxes vary from three to four on the upper continental slope to almost one in oligotrophic regions related to the irrigation by macrofauna (Rasmussen and Jorgensen, 1992; Glud et al., 1994a).

Yet, the studied area of the Golfe de Fos is occupied by a macrofaunal assemblage ($>250 \text{ }\mu\text{m}$) characteristic of muddy sand of sheltered areas (Pérès, 1982) presenting a mean density integrated over 20-cm depth of 5770 ± 1860 individuals for 0.1 m^2 . Polychaetes compose more than 60% of the community and crustaceans are the second most dominant group. Seventy percent of the organisms are surface deposit feeders. Macrofauna is present down to 20-cm depth in the sediment but more than 70% of the community colonize the first 5 cm of the sedimentary column. All species

present display small sizes and no collected individual is able to make large burrows capable of inducing a significant oxygen transfer towards deep sediment layers.

From our case study, it seems that the difference between diffusive and total fluxes is not solely related to the macrofaunal population density as stated earlier but also on the assemblage composition which defines the potential for bioirrigation.

5. Conclusions

In this paper, a detailed study of the benthic oxygen demand at a single station in the Golfe de Fos (Mediterranean Sea) is presented for two different periods (October 2000 and May 2001). The use of two different methods, core incubations and in situ micro-electrodes, allowed us to compare total and diffusive oxygen demands. Diffusive fluxes were calculated by two different computation methods: interface-gradient and PROFILE Software (Berg et al., 1998) on a large number of oxygen microprofiles ($n = 18$ for May 2001).

The main conclusion of this study is that temporal variation as recorded by the total sediment oxygen demand (21.5 ± 5 to 18.5 ± 4 mmol m⁻² day⁻¹) was not significant. Spatial variation of diffusive oxygen fluxes evidenced by microelectrode measurements was very large: a factor of 6–9 was found between the minimum and maximum values depending on the calculation methods. Since this variation was found on single lander deployments, it reflects the natural heterogeneity of the sedimentary system at the decimeter scale rather than at the station scale (75 m). This indicates that the observed spread of oxygen microprofiles is linked to small scale processes such as variation in the organic input, lateral input of oxygen from biological structures or enhanced supply of reduced species from deeper sediment layers.

Another conclusion concerns the difference between total and diffusive fluxes in these shallow coastal sediments (9-m deep), which is around 20% suggesting that the oxygen demand is mostly diffusive contrarily to previous observations in the coastal zone. This may be related to the large number of oxygen microprofiles performed, which thus took into account larger oxygen fluxes linked to rare “organic hot spots”. This little difference between total and diffusive fluxes in our study with a significant macrofaunal abundance largely composed of surface-deposit feeders points towards the assemblage composition as a controlling variable of bioirrigation rather than population density only.

Acknowledgements

We thank the captain and crew of the R.V. Georges Petit and Tethys II for their assistance during sampling and profiler deployment. P. L'henoret deployed the profiler during Modelfos 1 and V. Faure provided help during Modelfos 2. The divers R. Graille and N. Rouers assisted by B. Deligondes are specially thanked for the underwater operation of the lander. We also thank two anonymous reviewers for their detailed comments, which greatly improved the quality of the manuscript. This research was

supported by the EU (OAERRE: EVK3-CT1999-00002) and the CEA-CNRS through LSCE. This is LSCE contribution no. 631. [RW]

References

- Andrews, D., Bennet, A., 1981. Measurements of diffusivity near the sediment–water interface with a fine-scale resistivity probe. *Geochim. Cosmochim. Acta* 45, 2169–2175.
- Archer, D., Devol, A., 1992. Benthic oxygen fluxes on the Washington shelf and slope: a comparison of in situ microelectrode and chamber flux measurements. *Limnol. Oceanogr.* 37, 614–629.
- Berg, P., Risgaard-Petersen, N., Rysgaard, S., 1998. Interpretation of measured concentration profiles in sediment pore water. *Limnol. Oceanogr.* 43, 1500–1510.
- Berner, R.A., 1980. *Early Diagenesis: A Theoretical Approach*. Princeton Univ. Press, Princeton.
- Canfield, D.E., Jorgensen, B.B., Fossing, H., Glud, R., Gundersen, J., Ramsing, N.B., Thamdrup, B., Hansen, J.W., Nielsen, L.P., Hall, P.O.J., 1993. Pathways of organic carbon oxidation in three continental margin sediments. *Mar. Geol.* 113, 27–40.
- Cowan, J.L.W., Boynton, W.R., 1996. Sediment–water oxygen and nutrient exchanges along the longitudinal axis of Chesapeake Bay: seasonal patterns, controlling factors and ecological significance. *Estuaries* 19, 562–580.
- Denis, L., 1999. Dynamique des flux d'oxygène et de sels nutritifs à l'interface eau-sédiment sur la marge continentale du Golfe du Lion (Méditerranée Nord-Occidentale). Univ. Méditerranée, Aix-Marseille II.
- Denis, L., Grenz, C., Alliot, E., Rodier, M., 2001. Temporal variability in dissolved inorganic nitrogen fluxes at the sediment–water interface and related annual budget on a continental shelf (NW Mediterranean). *Oceanol. Acta* 24, 85–97.
- Devol, A.H., 1991. Direct measurement of nitrogen gas fluxes from continental shelf sediments. *Nature* 349, 319–321.
- Devol, A.H., Christensen, J.P., 1993. Benthic fluxes and nitrogen cycling in sediments of the continental margin of the eastern North Pacific. *J. Mar. Res.* 51, 345–372.
- Elberling, B., Damgaard, L.R., 2001. Microscale measurements of oxygen diffusion and consumption in subaqueous sulfide tailings. *Geochim. Cosmochim. Acta* 65, 1897–1905.
- Elberling, B., Damgaard, L.R., 2001. Microscale measurements of oxygen diffusion and consumption in subaqueous sulfide tailings. *Geochim. Cosmochim. Acta* 65, 1897–1905.
- Epping, E.H.G., Helder, W., 1997. Oxygen budgets calculated from in situ oxygen microprofiles for Northern Adriatic sediments. *Cont. Shelf Res.* 14, 1737–1764.
- Glud, R.N., Gundersen, J.K., Jorgensen, B.K., Revsbech, N.P., Schultz, H.D., 1994a. Diffusive and total oxygen uptake of deep-sea sediments in the eastern South Atlantic Ocean: in situ and laboratory measurements. *Deep-Sea Res.* 41, 1767–1788.
- Glud, R.N., Gundersen, J.K., Revsbech, N.P., Jorgensen, B.K., 1994b. Effects of benthic diffusive boundary layer imposed by microelectrodes. *Limnol. Oceanogr.* 39, 462–467.
- Grasshoff, K., Ehrhardt, M., Kremling, K., 1983. *Methods of Seawater Analysis*, 2nd ed. Verlag Chemie, Berlin.
- Gundersen, J.K., Ramsing, N.B., Glud, R.N., 1998. Predicting the signal of O₂ microsenors from physical dimensions, temperature, salinity and O₂ concentration. *Limnol. Oceanogr.* 43, 1932–1937.
- Hall, P.O.J., Anderson, L.G., Rutgers van der Loeff, M., Sundby, B., Westerlund, F.G., 1989. Oxygen uptake in the benthic boundary layer. *Limnol. Oceanogr.* 34, 734–746.
- Hartnett, H.E., Keil, R.G., Hedges, J.I., Devol, A.H., 1998. Influence of oxygen exposure time on organic carbon preservation in continental margin sediments. *Nature* 391, 572–574.
- Jorgensen, B.B., Revsbech, N.P., 1985. Diffusive boundary layers and the oxygen uptake of sediments and detritus. *Limnol. Oceanogr.* 30, 111–122.
- Justic, D., Rabalais, N.N., Turner, R.E., 1994. Riverborne nutrient, hypoxia and coastal ecosystem evolution: biological responses to long-term changes in nutrient loads carried by the Po and the Mississippi rivers. In: Dyer, K.R., Orth, R.J. (Eds.), *Changes in Fluxes in Estuaries*. Olsen & Olsen, Denmark, 161–167.
- Lindeboom, H.J., Sandee, A.J.J., Driessche, H.A.J., 1985. A new bell jar/microelectrode method to meas-

- ure changing oxygen fluxes in illuminated sediments with a microalgal cover. *Limnol. Oceanogr.* 30, 693–698.
- Lohse, L., Epping, E.H.G., Helder, W., Van Raaphorst, W., 1996. Oxygen pore water profiles in continental shelf sediments of the North Sea: turbulent versus molecular diffusion. *Mar. Ecol., Prog. Ser.* 145, 63–75.
- Lovley, D.R., 1987. Organic matter mineralization with the reduction of ferric iron: a review. *Geomicrobiol. J.* 5, 375–399.
- Pérès, J.M., 1982. Major benthic assemblages. In: Kinne, O. (Ed.), *Marine Ecology*, Vol. 5: Ocean management (part 1), John Wiley & Sons Ltd., Chichester, p. 373–522.
- Rasmussen, H., Jorgensen, B.B., 1992. Microelectrode studies of seasonal oxygen uptake in a coastal sediment: role of molecular diffusion. *Mar. Ecol., Prog. Ser.* 81, 289–303.
- Reimers, C.E., Jahnke, R.A., McCorkle, R.A., 1992. Carbon fluxes and burial rates over the continental slope and rise off central California with implications for the global carbon cycle. *Glob. Biogeochem. Cycle.* 6, 199–224.
- Revsbech, N.P., 1989. An oxygen microsensor with a gaund cathode. *Limnol. Oceanogr.* 34, 474–478.
- Seitzinger, S.P., 1988. Denitrification in freshwater and coastal marine ecosystem: ecological and geochemical significance. *Limnol. Oceanogr.* 33, 702–724.
- Seitzinger, S.P., Giblin, A.E., 1996. Estimating denitrification in North Atlantic continental shelf sediments. *Biogeochemistry* 35, 235–260.
- Shaw, T.J., Gieskes, J.M., Jahnke, R.A., 1990. Early diagenesis in differing depositional environments: the response of transition metals in pore water. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 54.
- Shimmield, G.B., Pedersen, T.F., 1990. The geochemistry of reactive trace metals and halogens in hemipelagic continental margin sediments. *Rev. Aquat. Sci.* 3, 255–279.
- Smetacek, V., Bathmann, U., Nöthig, E.-M., Scharek, R., 1991. Coastal eutrophication: causes and consequences. In: Mantoura, R.F.C., Martin, J.-M., Wollast, R. (Eds.), *Ocean Margin Processes in Global Change*. Wiley, Chichester, pp. 251–279.
- Sweerts, J.-P.R.A., St Louis, V., Cappenberg, T.E., 1989. Oxygen concentration profiles and exchange in sediment cores with circulated overlying water. *Freshw. Biol.* 21, 401–409.
- Wenzhoefer, F., Glud, R.N., 2002. Benthic carbon mineralization in the Atlantic: a synthesis based on in situ data from the last decade. *Deep-Sea Res.* 49, 1255–1279.

Distribution et remobilisation du plutonium dans les sédiments du prodelta du Rhône (Méditerranée nord occidentale)

Résumé :

Ce travail pluridisciplinaire a pour objectif d'étudier la distribution et la remobilisation du plutonium (Pu) dans les sédiments situés face à l'embouchure du Rhône. Les isotopes ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ introduits dans le Rhône sont principalement issus des rejets d'effluents faiblement radioactifs effectués par l'usine de retraitement de Marcoule, située à 120 km de l'embouchure du Rhône. Etant données sa très forte affinité pour la phase particulaire et sa longue période radioactive, le ^{238}Pu présente un intérêt particulier en tant que traceur anthropique du devenir des apports solides du Rhône en Méditerranée.

Au cours de ce travail, les 3 campagnes REMORA ont permis d'échantillonner spécifiquement les sédiments du prodelta du Rhône et du plateau continental du golfe du Lion. Des mesures d'émetteurs alpha ont permis d'obtenir une première cartographie détaillée des concentrations des isotopes du Pu dans les sédiments situés face au Rhône. L'étude couplée du ^{137}Cs et des isotopes du Pu a permis d'estimer pour la première fois les inventaires en plutonium de la zone étudiée. En 2001, les stocks sédimentaires de Pu sont estimés à 92 ± 7 GBq en ^{238}Pu et 522 ± 44 GBq en $^{239,240}\text{Pu}$, pour une aire d'environ 500 km². Le prodelta du Rhône joue un rôle essentiel dans la séquestration du plutonium puisqu'il piège à lui seul environ 50 % de ces stocks sur une aire de 100 km².

La remobilisation du plutonium a été appréhendée par des expériences originales de remise en suspension en canal à courant linéaire. Pour les sédiments du golfe du Lion et un stress hydrodynamique donné, les flux potentiels de remobilisation atteignent au maximum 0,08 Bq.m⁻².h⁻¹ en ^{238}Pu et 0,64 Bq.m⁻².h⁻¹ en $^{239,240}\text{Pu}$.

En parallèle, des mesures ADCP de courant et de houle ont été réalisées au printemps 2002 pour étudier in situ la dynamique sédimentaire du prodelta du Rhône. Ces mesures mettent en évidence le rôle prépondérant des houles de Sud-est dans l'érosion des sédiments prodeltaïques et dans leur exportation en direction du Sud-Ouest.

Un premier bilan sur le devenir du plutonium indique qu'au minimum 85 % du plutonium rejetés par l'usine de Marcoule, au cours des quarante dernières années, sont actuellement piégés dans les sédiments situés face à l'embouchure du Rhône. La remobilisation du plutonium est un phénomène potentiellement important mais la dispersion des sédiments contaminés serait relativement limitée dans l'espace. Ces résultats suggèrent alors une faible exportation du matériel particulaire originaire du Rhône vers l'ensemble du plateau continental du golfe du Lion et vers le bassin Nord méditerranéen.

Mots clés : Plutonium, radionucléides, remobilisation, dynamique sédimentaire, prodelta du Rhône, golfe du Lion

Plutonium distribution and remobilisation in the sediments off the Rhone River mouth (North-Western Mediterranean)

Abstract:

The aim of the present study was to describe the distribution and remobilisation of plutonium (Pu) in the sediments off the Rhone river mouth. Most of the ^{238}Pu and $^{239,240}\text{Pu}$ isotopes introduced into the Rhone River were discharged by the liquid effluents released from the Marcoule reprocessing plant, located 120 km upstream the river mouth. Due to its high affinity for particles and its long half life, ^{238}Pu is a promising tracer to follow the dispersion of particulate matter from the Rhone River to the Mediterranean Sea.

During the 3 REMORA cruises, sediment samples were specifically collected in the Rhone prodelta area and more offshore on the whole continental shelf of the Gulf of Lions. The measurements of alpha emitters gave a first detailed spatial distribution of Pu isotope concentrations in surface sediments off the Rhone mouth. Using ^{137}Cs concentrations and their correlations with Pu isotopes, we were able to give a first estimate of Pu inventories for the sediments of the study area. In 2001, plutonium inventories were estimated to 92 ± 7 GBq of ^{238}Pu and 522 ± 44 GBq of $^{239,240}\text{Pu}$ for an area of 500 km² in front of the Rhone River mouth. Roughly, 50 % of these inventories are trapped in an area of 100 km² corresponding to the extent of the Rhone prodelta zone.

In spring 2002, an ADCP, with current velocity and wave measurements, was moored off the Rhone River mouth. This unique in situ dataset highlights the major role of South-East swells in the erosion of prodeltaic sediments and their dispersion to the South-Westward direction.

Plutonium remobilisation was examined using a new experimental design based on sediment resuspension processes studied within a linear recirculating flume. For Gulf of Lions sediments and for a given hydrodynamic stress, remobilisation fluxes raised a maximum of 0.08 Bq.m⁻².h⁻¹ for ^{238}Pu and 0.64 Bq.m⁻².h⁻¹ for $^{239,240}\text{Pu}$.

A first plutonium budget determined for the study area indicates that at least 85 % of the Pu discharged over the 40 past years by the Marcoule reprocessing plant, are currently trapped in the sediments off the Rhone River mouth. Plutonium remobilisation is potentially an important process but dispersion of contaminated sediments appeared to be limited in space. These results suggest a low exportation of particulate matter introduced by the Rhone River towards the continental shelf of the Gulf of Lions and the North-Western Mediterranean basin.

Keywords: Plutonium, radionuclides, sediment dynamics, remobilisation, Rhone prodelta, Gulf of Lions