

**Actualisation des connaissances relatives à l'évolution de la pollution radioactive de l'eau de mer et des sédiments issue du site nucléaire accidenté de Fukushima Dai-ichi**

## **1. Evolution de la pollution radioactive dans l'eau de mer**

### ***1.1 Quantification des apports liquides directs et des apports atmosphériques***

La pollution radioactive observée dans le milieu marin proche du site nucléaire de Fukushima Dai-ichi a deux origines :

- Les rejets radioactifs liquides venant du site accidenté qui ont débuté le 21 mars 2011 : ces rejets n'ont fait l'objet d'aucune quantification par TEPCO et il faut utiliser des techniques indirectes (modélisation, analyse de données de contamination de l'eau de mer) pour évaluer les quantités rejetées.
- Les retombées atmosphériques sur la surface de la mer au moment de la dispersion des rejets émis dans la mer. Là aussi, la quantification de ces apports est difficile dans la mesure, où contrairement au milieu terrestre, il n'existe aucune mesure directe de la contamination de l'air ou des dépôts sur le domaine marin, ce qui rend incertaine toute estimation de ces retombées qui repose sur des résultats de modélisation.

Il faut aussi noter que les fleuves et les eaux de ruissellement ayant lessivé des sols contaminés sur le territoire japonais apportent aussi des radionucléides au milieu marin sous forme solide ou particulaire. Ces contributions n'ont à ce jour pas encore fait l'objet de quantification.

A ce jour, plus d'une dizaine d'équipes ont procédé à des évaluations des apports de radioactivité dans l'Océan Pacifique qu'il s'agisse d'apports par rejets liquides directs ou d'apports liés aux retombées atmosphériques ou des deux. Dans toutes les études, le césium 137 (demi-vie de 30,15 ans) est utilisé comme indicateur représentatif de l'ensemble des radionucléides rejetés dans la mesure où, à partir de juin 2011, il est, avec le césium 134 (mais dont la demi-vie est beaucoup plus courte - 2,1 ans), le seul radionucléide détectable dans l'eau de mer. Le tableau I synthétise les résultats disponibles.

Les autorités japonaises (JNES) ont réévalué le rejet liquide direct après ré-analyse de l'accident de 1 à 5,7 PBq de césium rejeté. Elles ont également publié les résultats obtenus par des organisations japonaises (TEPCO, JAEA, JAMSTEC, CRIEPI) à partir de comparaisons entre les modèles et les mesures. Les résultats s'échelonnent entre 3,6 et 5,7 PBq. Les évaluations effectuées par les autres équipes sont comprises entre 3,5 et 27 PBq. Cette dernière valeur est celle obtenue par l'IRSN qui est le seul organisme à ne pas avoir utilisé la modélisation et qui a basé son évaluation sur l'inventaire des quantités présentes à partir des concentrations mesurées et de l'estimation du temps de résidence des masses d'eaux. Bien que les publications récentes ré-évaluent à la hausse les rejets liquides directs (de 1 - 4 PBq à 5 - 5,9 PBq), ceux estimés par l'IRSN restent cinq fois plus élevés que ceux obtenus avec les autres méthodes.

En réponse à l'observation de cette large dispersion des évaluations des rejets liquides directs issus de la centrale de Fukushima Dai-ichi, le Science Council of Japan a mis en place un groupe de travail destiné à comparer les résultats des modèles existants. L'IRSN et l'IFREMER sont associés à ce groupe dont les conclusions sont attendues en 2013.

Pour ce qui concerne les dépôts atmosphériques sur la mer, on notera là aussi une dispersion importante des évaluations faites par les différentes organisations avec des estimations allant de 1 à 9,7 PBq.

Source	Méthodes de calcul	Rejet direct <sup>137</sup> Cs	Rejet atmosphérique		Rejet direct + dépôt
			Total	Dépôt sur le Pacifique	
JNES - JAEA (Hoshi et al., 2012)	Avant le 17 mars : JNES - analyse de l'accident Après le 21 mars : JAMSTEC mesures / modèle CRIEPI mesures / modèle	5,5 - 5,7 3,6	7,3 - 13		
(Bailly du Bois et al., 2012) et (Bailly du Bois et al., Submitted)	Quantités déduites des mesures et du temps de résidence du <sup>137</sup> Cs + modèle pX pour l'atmosphère	27 (12 - 41)	20	3	30 (15 - 44)
(Estournel et al., in press)	Comparaison mesures / modèle SYMPHONIE + Polyphemus/Polair3D	5,1 - 5,5	17	5,7 - 5,9	10,8 - 11,4
(Honda et al., 2012)	Modèle AQF		15	0,18	
(Kawamura et al., 2011)	Comparaison mesures / modèle SEA-GEARN	4	13	5	9
(Miyazawa et al., submitted)	Comparaison mesures / modèle JCOJET + Polyphemus/Polair3D	5,5 - 5,9		5,5 - 9,7	11 - 15,6
(Morino et al., 2012)	Comparaison mesures / modèle CMAQ		9,94	1	
(Stohl et al., 2011)	Comparaison mesures / modèle FLEXPART		35,8 (23,3 - 50,1)	28	
(Tsumune et al., 2012)	Comparaison mesures / modèle ROM	3,5 (2,8 - 4,2)		Inférieur aux rejets directs	> 3,5 (2,8 - 4,2)
(Yasunari et al., 2011)	Comparaison mesures / modèle FLEXPART		12	1	

Tableau 1 : Synthèse des différentes estimations publiées des rejets liquides directs et des rejets atmosphériques de césium 137 dans l'Océan Pacifique.

Une étude menée par une équipe japonaise (Aoyama et al., 2012) permet d'illustrer l'impact des retombées atmosphériques sur l'Océan Pacifique. Cette équipe a procédé à des mesures de concentrations d'eau de mer en césium 134 dans l'Océan Pacifique le long du 40ème parallèle du 31 mars au 17 mai 2011 soit quelques semaines après l'accident. Les résultats de cette campagne de mesures sont présentés sur la figure 1. Un marquage significatif a été mesuré à cette échelle avec des concentrations en césium 137 allant de 2 à 1000 Bq/m<sup>3</sup> sachant qu'avant l'accident de Fukushima la concentration moyenne en césium 137 dans le Pacifique nord était de 1,5 Bq/m<sup>3</sup>. Eu égard au faible intervalle de temps entre l'accident et la campagne de mesures, l'étendue ce marquage est essentiellement le résultat des dépôts atmosphériques sur la surface de la mer. Ces concentrations peuvent expliquer en partie les marquages observés dans les poissons pêchés dans le Pacifique.

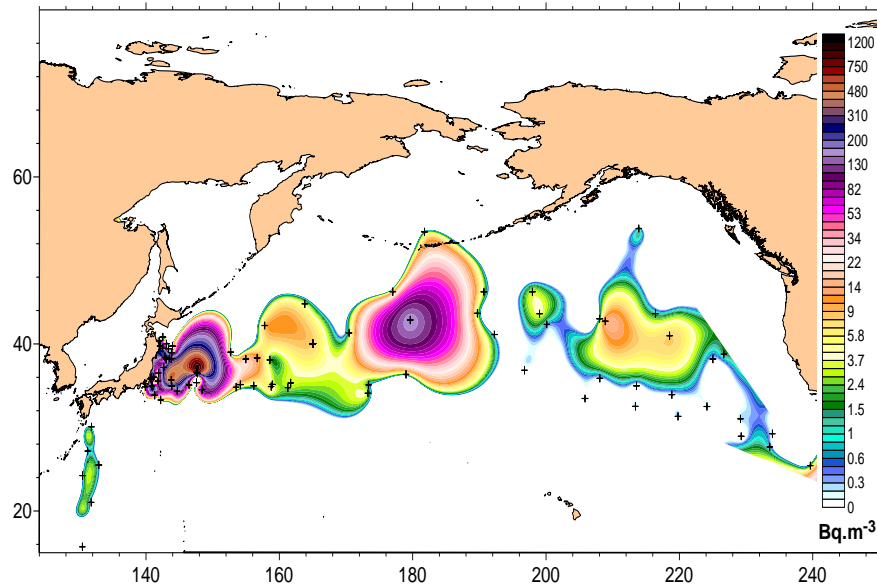


Figure 1 : Concentrations en  $^{134}\text{Cs}$  mesurées dans les eaux de surface du Pacifique du 31 mars au 17 mai 2011 (d'après Aoyama et al., 2012).

### 1.2 Evolution des concentrations en césium 137 dans l'eau de mer à proximité de la centrale de Fukushima Dai-ichi

Les résultats des modélisations de la dispersion des rejets de la centrale de Fukushima Dai-ichi effectués par l'IFREMER pour le compte de l'IRSN ont permis de reproduire de manière correcte l'évolution des quantités de césium 137 mesurées pour la période allant d'avril à juin 2011 (Figure 2). Le rejet direct de césium 137 utilisé dans ces simulations est celui déterminé à partir de l'analyse des mesures de concentrations de césium 137 dans l'eau de mer à savoir 27 PBq.

L'évolution des concentrations en césium 137 présentes au large de Fukushima Dai-ichi a révélé une dilution très efficace des eaux marquées, avec une diminution rapide des concentrations locales qui pouvait laisser espérer un retour rapide aux concentrations présentes avant l'accident. La dilution locale résulte du transport des eaux marquées vers le centre du Pacifique Nord en suivant les courants à grande échelle (Figure 2).

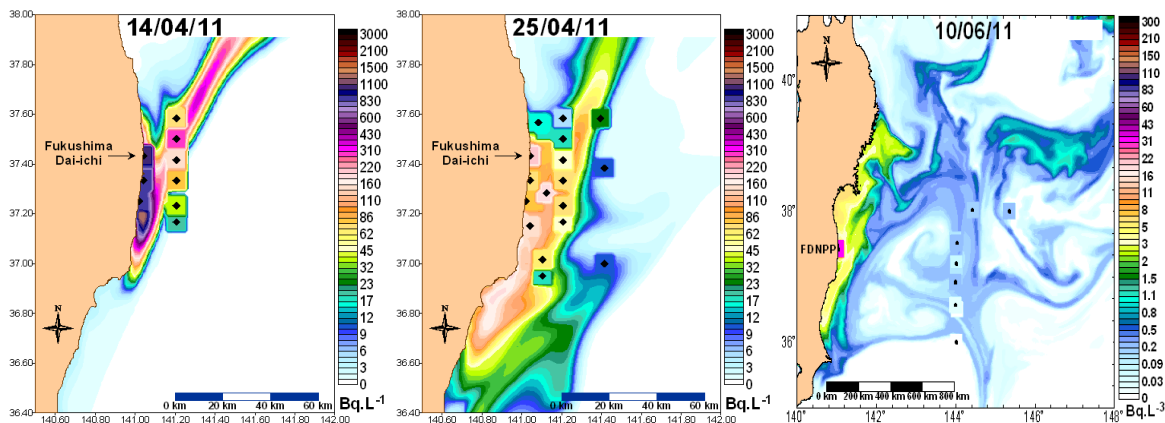


Figure 2 : Simulation de la dispersion du césium 137 dans l'eau de mer réalisée avec le modèle Ifremer Mars3D. Les panaches colorés en arrière-plan montrent la dispersion des rejets directs issus de la centrale de Fukushima Dai-ichi simulés d'avril à juin 2011 par le modèle Mars3D de l'Ifremer. Les marques noires au centre des carrés colorés représentent les mesures disponibles aux dates correspondantes.

L'observation de l'évolution de la concentration en césium 137 de l'eau de mer à proximité de la centrale de Fukushima Dai-ichi entre mars 2011 et décembre 2012 montre cependant que la dilution efficace observée durant les premiers mois s'est significativement ralentie. La Figure 3 montre l'évolution des concentrations dans trois zones distinctes :

- A moins de 10 km des côtes et à moins de 20 km de l'installation (marques bleues).

Deux périodes peuvent être distinguées : d'avril à mai 2011 on observe une période de décroissance des concentrations d'environ trois jours ; de mai 2011 à mai 2012 la période de décroissance observée est d'environ deux mois. Cette deuxième période intervient après la fin des apports massifs atmosphériques et les rejets directs depuis la centrale. Elle révèle des apports qui peuvent être attribués à trois origines : Des rejets résiduels en provenance de l'installation accidentée ; l'arrivée d'eaux marquées en césium 137 par les cours d'eau parvenant à la mer et la désorption du césium 137 préalablement fixé sur les sédiments. Les deux derniers phénomènes peuvent se combiner si des particules sédimentaires marquées sont transportées par les fleuves. Les concentrations mesurées en novembre 2012 s'échelonnent entre 0,008 et 4 Bq/L en césium 137.

- Vers le large à plus de 10 km des côtes (marques vertes).

A partir de septembre 2011 les concentrations diminuent régulièrement et s'échelonnent en novembre 2012 entre 0,033 et 0,001 Bq/L. La valeur de 0,001 Bq/L correspond au bruit de fond des retombées des essais nucléaires atmosphériques préexistant avant l'accident. A cette échelle les concentrations mesurées révèlent la dilution des apports côtiers par la circulation océanique générale qui va exporter les eaux contaminées vers le large du Pacifique.

- Le long des côtes et à plus de 20 km de l'émissaire (marques orange).

Depuis septembre 2011, les concentrations étaient en moyenne dix fois plus faibles qu'à proximité de la centrale. Cet écart relatif tend à se restreindre en novembre 2012 avec par endroits des valeurs comparables à celles mesurées à proximité de la centrale (maximum 1,6 Bq/L). Ces dernières valeurs peuvent, de même qu'à proximité de la centrale, révéler l'influence d'un marquage en provenance des fleuves après lessivage des sols ou des sédiments contaminés qui pourrait rester mesurable durant plusieurs années. Si la tendance générale est à la baisse des concentrations mesurées pour le césium 137, des radionucléides ayant une plus forte affinité pour les particules sédimentaires resteront présents encore plus longtemps (isotopes du plutonium et de l'américium par exemple).

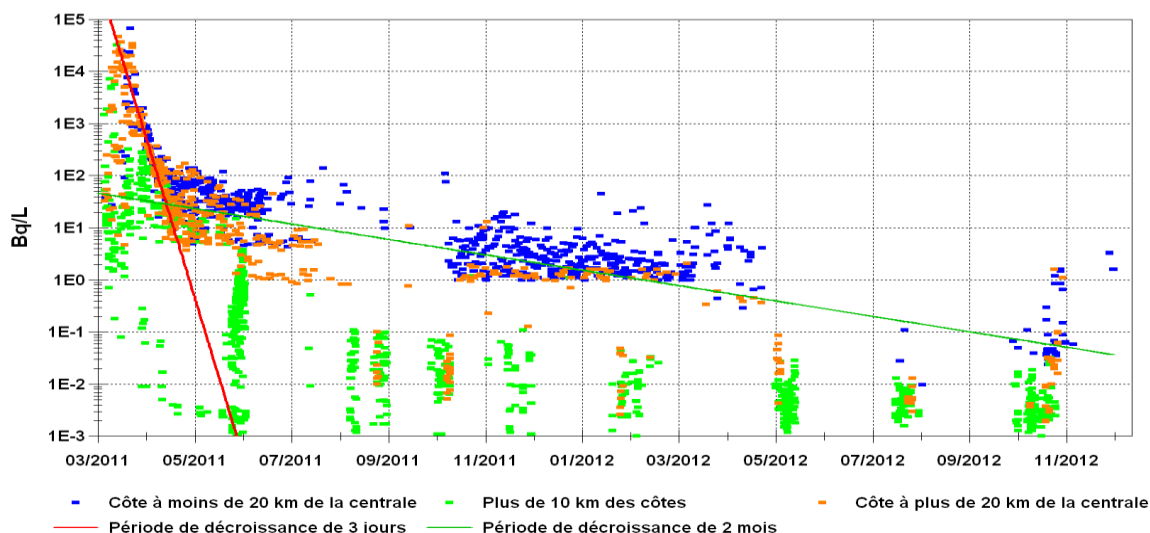


Figure 3 : Evolution des concentrations en césium 137 dans l'eau de mer à proximité de la centrale de Fukushima Dai-ichi entre le mois de mars 2011 et le mois de décembre 2012.

## 2. Evolution de la concentration en radionucléides dans les sédiments marins

Les concentrations en radionucléides dans les sédiments dépendent de la granulométrie des particules sédimentaires. Les particules les plus fines, ayant une plus grande surface d'échange, présentent les concentrations en radionucléides les plus élevées (Figure 4) et sont des vecteurs de radionucléides. Les particules sédimentaires peuvent aussi contribuer efficacement à l'épuration de la colonne d'eau quand elles trouvent des conditions favorables à leur dépôt. C'est le cas notamment dans les zones côtières où les activités halieutiques sont les plus importantes. À plus long terme, les radionucléides fixés sur les sédiments déposés peuvent se désorber et être réémis vers l'eau libre. Ces sédiments constituent donc à la fois des puits et des sources de radionucléides dans le milieu marin.

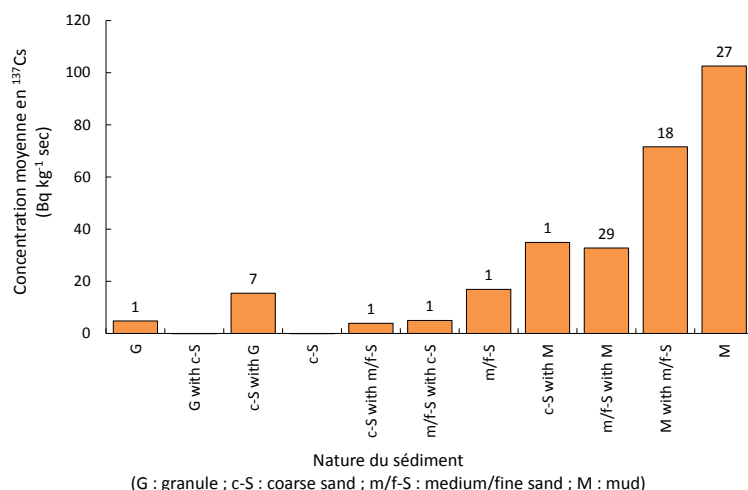


Figure 4 : représentation de la concentration moyenne des sédiments en césium 137 (Bq par kilogramme de matière sèche) en fonction de leur composition granulométrique pour 86 échantillons prélevés entre le 15/05/2012 et le 22/12/2012 entre les latitudes 35,46° et 38,50°, et les longitudes 139,84° et 142,08°. Le nombre d'échantillons ayant servi au calcul de la moyenne est indiquée au-dessus de chaque barre verticale.

Entre avril 2011 et décembre 2012, près de 1000 échantillons de sédiments ont été collectés au large du Japon par les organismes locaux (l'exploitant TEPCO, le ministère de l'Environnement et la préfecture de Fukushima). Les radionucléides présents en plus forte concentration ont été l'<sup>131</sup>I, les césiums 134, 136 et 137 (<sup>134</sup>Cs, <sup>136</sup>Cs et <sup>137</sup>Cs), puis les tellures 129 et 129m (<sup>129</sup>Te et <sup>129m</sup>Te), les strontiums 89 et 90 (<sup>89</sup>Sr et <sup>90</sup>Sr), et le lanthane 140 (<sup>140</sup>La) (Figure 5). Près de deux ans après l'accident, les principaux radionucléides détectés sont les césiums 134 et 137, à des concentrations moyennes de plusieurs dizaines à plusieurs centaines de Bq kg<sup>-1</sup>. À titre de comparaison, la concentration moyenne des sédiments en <sup>137</sup>Cs dans cette zone était d'environ 1 Bq kg<sup>-1</sup> en 2009. A des concentrations plus faibles, comprises entre 0,1 et 10 Bq kg<sup>-1</sup>, sont présents l'antimoine 125 (<sup>125</sup>Sb), l'argent 110m (<sup>110m</sup>Ag) et le strontium 90(<sup>90</sup>Sr). Ces derniers radionucléides ne font pas l'objet d'une mesure systématique sur les échantillons de sédiments collectés.

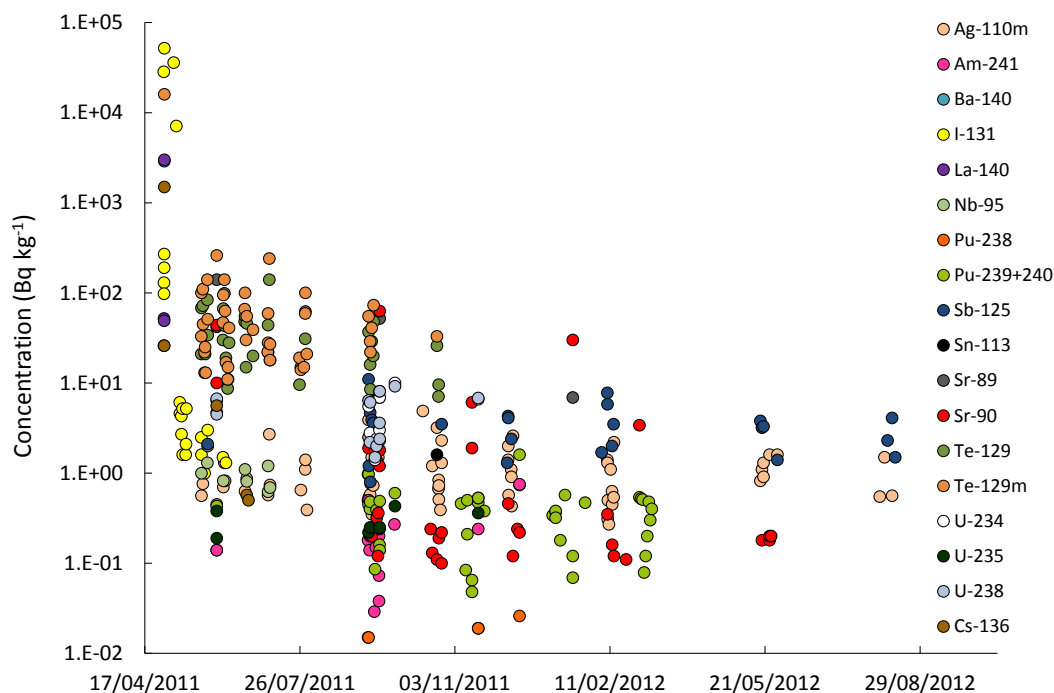


Figure 5 : évolution au cours du temps des concentrations d'éléments radioactifs autres que les césiums 134 et 137 dans les sédiments.

De manière globale, le suivi des concentrations en césium 137 dans les sédiments jusqu'à fin 2012 (Figure 6) montre une plage de variation constante comprise entre environ 10 et 1000 Bq/kg, ce qui n'exclut pas des variations locales liées à une redistribution des sédiments, à la désorption ou encore à des apports de particules contaminées par les bassins versants. Ces valeurs sont relativement faibles compte tenu des concentrations maximales qui ont été mesurées dans l'eau de mer en mars 2011. Cette observation pourrait s'expliquer par le fort taux de renouvellement des eaux qui a limité le temps de contact entre l'eau contaminée et les sédiments. Par ailleurs, des concentrations de plus de 10 000 Bq/kg ne sont plus observées depuis novembre 2011. Ces valeurs élevées ont probablement été mesurées dans les sédiments les plus fins, maintenant dispersés et dilués.

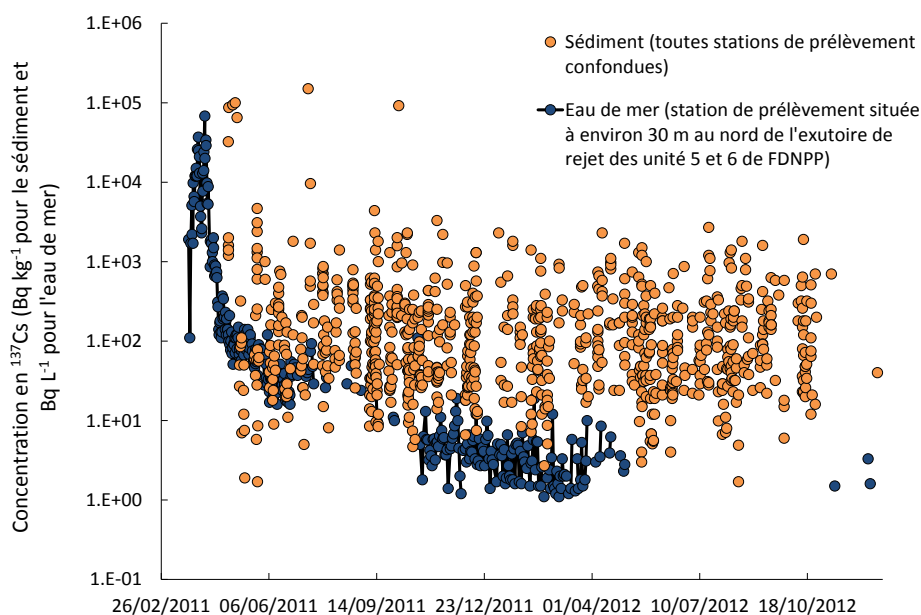


Figure 6: évolution au cours du temps des concentrations de césium-137 dans l'eau de mer à proximité immédiate de FDNPP et dans les sédiments sur l'ensemble des stations de prélèvement (901 données représentatives sur des sédiments collectés entre les latitudes 35,46° et 38,88°, et les longitudes 139,84° et 142,08°).

La figure 7 présente les concentrations en césium dans les sédiments pour différentes zones autour du site nucléaire de Fukushima Dai-ichi. On observe par endroits (zones 2 et 3) une tendance moyenne à la diminution des concentrations en césium 137 dans les sédiments au cours du temps, tandis qu'ailleurs, cette évolution s'infléchit à partir de juin 2012 pour l'enveloppe supérieure des mesures (zones 1, 4, 5 et 7). Cette observation qualitative est vraisemblablement liée aux apports de particules contaminées des bassins versants au milieu marin.

Il convient d'interpréter ces résultats avec prudence, étant donnée l'absence d'information quant aux conditions de prélèvement, à la nature des sédiments, au conditionnement et au traitement des échantillons, ainsi qu'aux techniques de comptage employées. Par ailleurs, il est important de souligner que le retrait de la vague du tsunami, qui a pénétré dans les terres jusqu'à 10 kilomètres par endroits, a charrié des masses considérables de matériaux naturels et anthropiques. Les capacités d'adsorption/désorption de ces particules sédimentaires ainsi que leur mobilité dans le domaine marin sont probablement très différentes de celles étudiées jusqu'à présent en radioécologie à partir de sédiments marins naturels.

Une partie des radionucléides fixés sur les particules sédimentaires est désormais susceptible d'être remobilisée vers la colonne d'eau, les dépôts sédimentaires se comportant comme des sources différées, distantes et diffuses. Les concentrations en césium 137 actuellement mesurées sur les sédiments ne devraient cependant pas entraîner un marquage important de l'eau de mer. En revanche, les organismes benthiques filtreurs pourraient être davantage concernés par cette pollution rémanente. Le ruissellement des eaux sur les bassins versants devraient également poursuivre l'introduction dans le milieu marin de matières en suspension contaminées, via les exutoires des fleuves principalement. Pour le moment, la contribution de cette source secondaire n'est pas encore quantifiée.

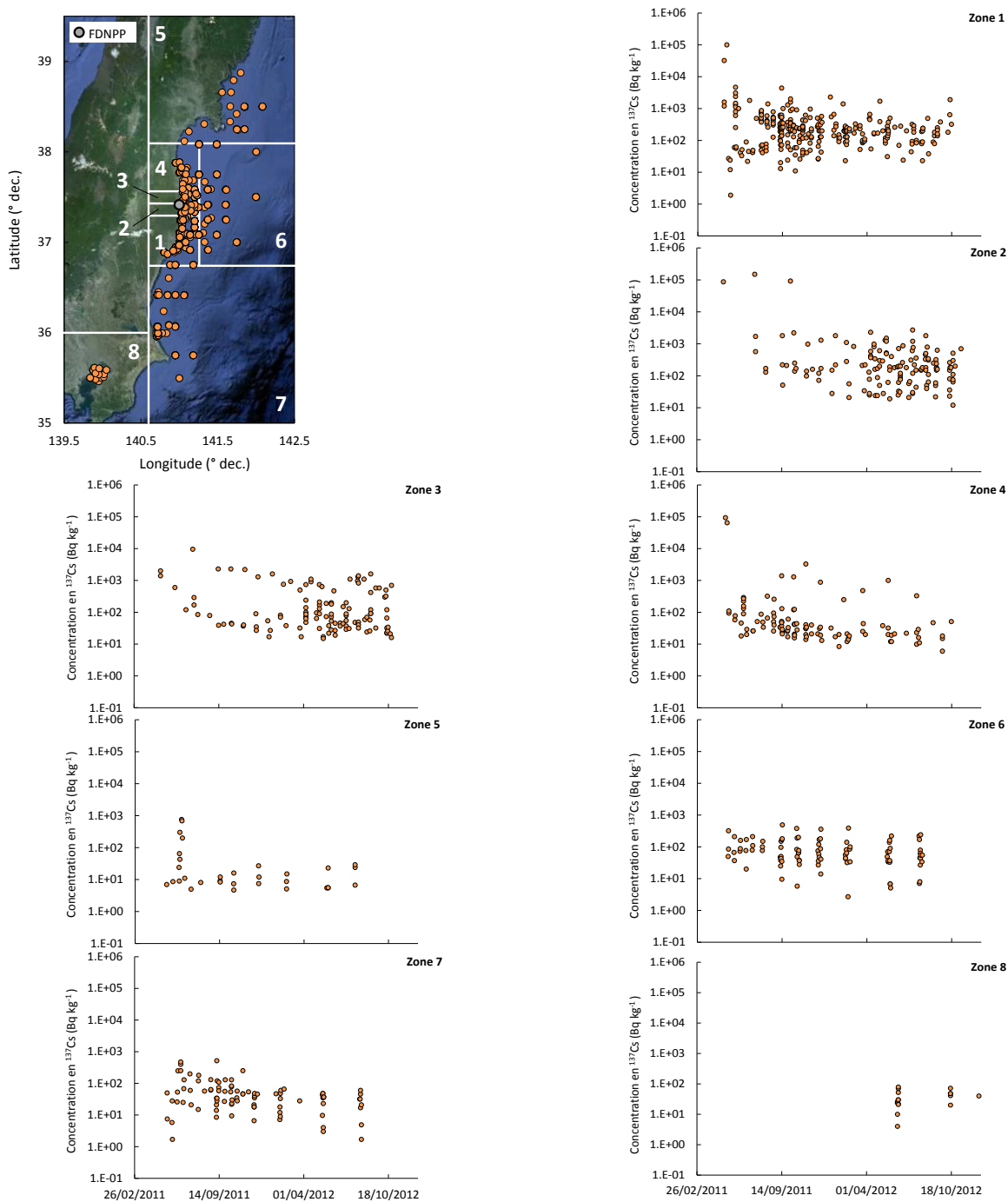


Figure 7 : évolution temporelle de la concentration en césium 137 dans les sédiments prélevés par les organismes japonais à partir d'avril 2011, par zone de prélèvement (1 à 8). Il s'agit de l'ensemble des données significatives (résultats de mesure supérieurs aux limites de détection (LD) publiés sur les sites internet de TEPCO (<http://www.tepco.co.jp/en/index-e.html>), du MEXT (<http://www.mext.go.jp/english/>) et de la NSR (<http://www.nsr.go.jp/english/>)). Dans 75 % des cas, il est précisé que les résultats sont exprimés par kilogramme de sédiment sec (et dans 100 % des cas à partir d'avril 2012). Les zones 2 et 3 sont situées à proximité immédiate de FDNPP : elles s'étendent à 20 km à l'est et à 20 km au sud (zone 2) et au nord (zone 3). Les zones 1 et 4 prolongent les zones 2 et 3, respectivement vers le sud et vers le nord. La zone 6 est située plus au large, au-delà de la bande côtière des 20 km, et jouxte les zones 1 à 4. La zone 5 englobe les prélèvements situés plus au nord (latitude supérieure à 38.10°) et la zone 7 ceux situés plus au sud (latitude inférieure à 36.74°). Quant à la zone 8, elle est représentative de la baie de Tokyo.

## Bibliographie

- Aoyama M., Tsumune D., Hamajima Y., 2012. **Distribution of <sup>137</sup>Cs and <sup>134</sup>Cs in the North Pacific Ocean: impacts of the TEPCO Fukushima-Daiichi NPP accident.** Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 1-5. 10.1007/s10967-012-2033-2
- Bailly du Bois P., Laguionie P., Boust D., Korsakissok I., Didier D., Fiévet B., 2012. **Estimation of marine source-term following Fukushima Dai-ichi accident.** Journal of Environmental Radioactivity 114,0 2-9. 10.1016/j.jenvrad.2011.11.015
- Bailly du Bois P., Garreau P., Laguionie P., Korsakissok I., Submitted. **Comparison between modelling and measurement of marine dispersion, environmental half-time and <sup>137</sup>Cs inventories after the Fukushima Dai-ichi accident.** Ocean Dynamics.
- Estournel C., Bosc E., Bocquet M., Ulses C., Marsaleix P., Winiarek V., Osvath I., Nguyen C., Duhaut T., Lyard F., Michaud H., Auclair F., in press. **Assessment of the amount of Cesium-137 released into the Pacific Ocean after the Fukushima accident and analysis of its dispersion in Japanese coastal waters.** Journal of Geophysical Research. 10.1029/2012JC007933
- Honda M.C., Aono T., Aoyama M., Hamajima Y., Kawakami H., Kitamura M., Masumoto I.Y., Miyazama Y., Takigawa M., Saino T., 2012. **Dispersion of artificial caesium-134 and -137 in the western North Pacific one month after the Fukushima accident.** Geochemical Journal 46e1-e9.
- Hoshi H., Hirano M., Iijima M., Homma T., 2012. **Severe Accident Analyses of Fukushima-Daiichi Units 1 to 3,** in: (JNES), J.A.E.A.J.J.N.E.S.O. (Ed.), Dt. Hydrogr. Z. Erg. -H.B.
- Kawamura H., Kobayashi T., Furuno A., In T., Ishikawa Y., Nakayama T., Shima S., Awaji T., 2011. **Preliminary Numerical Experiments on Oceanic Dispersion of <sup>131</sup>I and <sup>137</sup>Cs Discharged into the Ocean because of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Disaster (English).** Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY 48,11 1349-1356.
- Miyazawa Y., Masumoto Y., Varlamov S.M., Miyama T., Takigawa M., Honda M., Saino T., submitted. **Inverse estimation of source parameters of oceanic radioactivity dispersion models associated with the Fukushima accident.** Biogeosciences. 10.5194/bgd-9-13783-2012
- Morino Y., Ohara T., Nishizawa M., 2012. **Atmospheric behavior, deposition, and budget of radioactive materials from the Fukushima Daiichi nuclear power plant in March 2011.** Geophysical research letters 38, L00G11,7. 10.1029/2011GL048689
- Stohl A., Seibert P., Wotawa G., Arnold D., Burkhart J.F., Eckhardt S., Tapia C., Vargas A., Yasunari T.J., 2011. **Xenon-133 and caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant: determination of the source term, atmospheric dispersion, and deposition.** Atmos. Chem. Phys. Discuss. Volume 11, Issues 10, Pages 28319-28394.
- Tsumune D., Tsubono T., Aoyama M., Hirose K., 2012. **Distribution of oceanic <sup>137</sup>Cs from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant simulated numerically by a regional ocean model.** Journal of Environmental Radioactivity 111100-108. 10.1016/j.jenvrad.2011.10.007
- Yasunari T.J., Stohl A., Hayano R.S., Burkhart J.F., Eckhardt S., Yasunari T., 2011. **Cesium-137 deposition and contamination of Japanese soils due to the Fukushima nuclear accident.** Proceedings of the National Academy of Sciences 108,49 19530-19534. 10.1073/pnas.1112058108