HAL
open science

Transferts multi-échelles des apports continentaux dans le golfe de Gascogne

Pierre-Emmanuel Oms

To cite this version:

Pierre-Emmanuel Oms. Transferts multi-échelles des apports continentaux dans le golfe de Gascogne. Sciences de la Terre. Université de Bretagne occidentale - Brest, 2019. Français. NNT : 2019BRES0038 . tel-02354264

HAL Id: tel-02354264

https://theses.hal.science/tel-02354264

Submitted on 7 Nov 2019

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.

THESE DE DOCTORAT DE

L'UNIVERSITE
DE BRETAGNE OCCIDENTALE
COMUE UNIVERSITE BRETAGNE LOIRE

ECOLE DOCTORALE N° 598
Sciences de la Mer et du littoral
Spécialité : Océanographie, Physique et Environnement

Par
Pierre-Emmanuel OMS

Transferts multi-échelles des apports continentaux dans le golfe de Gascogne

Thèse présentée et soutenue à Brest, le 19 Juin 2019
Unité de recherche : IRSN/LRC et IFREMER/LPO

Rapporteurs avant soutenance :

Anne-Claire BENNIS	Maître de conférences à l'université de Caen et chercheur au laboratoire de Morphodynamique Continentale et Côtière
Pieter VAN BEEK	Professeur à l'université de Toulouse et chercheur au Laboratoire de Géophysique et Océanographie Spatiales

Composition du Jury :

Président du jury

Xavier CARTON	Professeur à l'université de Bretagne Occidentale (UBO)
Anne-Claire BENNIS	Maître de conférences à l'université de Caen
Philippe JEAN-BAPTISTE	Chercheur au Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE)
Sabine SCHMIDT	Directrice de Recherche CNRS, UMR5805, Université de Bordeaux
Pieter VAN BEEK	Professeur à l'université de Toulouse et chercheur au Laboratoire de Géophysique et Océanographie Spatiales (LEGOS)

Directeur de thèse

Pascal LAZURE	Chercheur à l'Institut Français de Recherche pour l'Exploitation de la Mer

Invité(s) (Co-encadrants)

Pascal BAILLY DU BOIS	Ingénieur chercheur à l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN)
Franck DUMAS	Ingénieur chercheur au Service Hydrographique de la Marine (SHOM)

Remerciements

Je tiens à remercier en premier lieu mes encadrants scientifiques Pascal Bailly du Bois, Franck Dumas et Pascal Lazure, qui m'ont suivi et soutenu durant ces quelques années. Vos qualités humaines, scientifiques et pédagogiques complémentaires qui m'ont permis de m'épanouir pleinement durant cette thèse.
Merci à Pascal BdB pour m'avoir pris sous son aile et m'avoir fait grandir aussi bien scientifiquement qu'humainement. Ton accompagnement, ta grande patience, et ton ingéniosité légendaire (à la MacGyver) m'ont permis de réaliser cette thèse avec confiance et enthousiasme.
Merci à Franck pour toutes ces heures passées sur le modèle MARS3D, à m'aiguiller sur les choix de simulations et à tes nombreux conseils et corrections, malgré la distance qui nous séparait entre Cherbourg et Brest.
Merci à Pascal L pour avoir dirigé cette thèse, en avoir suivi toutes les étapes importantes notamment lors de nos réunions (pluri-) annuelles d'avancement et lors de toute la campagne PLUME.

Mes remerciements vont ensuite aux personnes qui ont accepté de juger ce travail et d'en être les rapporteurs : Anne-Claire Bennis (Maître de conférence à l'université de Caen) et Pieter van Beek (Professeur à l'université de Toulouse), vos commentaires pertinents et constructifs auront permis l'amélioration de ce document. Je remercie également tous les autres membres du jury qui m'ont fait l'honneur d'évaluer mon travail : Xavier Carton (Professeur à l'université de Bretagne Occidentale) qui a accepté de prendre la présidence du jury, Sabine Schmidt (Directrice de recherche au CNRS) et Philippe Jean-Baptiste (Chercheur au LSCE). Je voudrais également remercier sincèrement Aldo Sottolichio (Maître de conférence à l'université de Bordeaux) et Frédéric Vandermeirsh (Chercheur à Ifremer) qui au même titre que Philippe Jean-Baptiste, ont pris le temps de veiller au bon déroulement de mes travaux dans le cadre de mon comité de suivi individuel.

Ce sujet de thèse s'inscrit dans le cadre d'un projet cofinancé par l'IRSN et Ifremer, je remercie ces deux institutions à ce titre. La thèse s'est déroulée principalement au sein du Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-en-Cotentin (LRC) dont je remercie toute l'équipe qui a été formidable dans leur implication, leur accueil et leur savoir-faire et à qui je dois une grande partie de la réussite de cette thèse. Je remercie ainsi Dominique Boust et Denis Maro les chefs successifs du laboratoire pour m'avoir accueilli et donner tous les moyens nécessaires à la réalisation ces travaux. Denis, je garde un très bon souvenir des conversations tardives sur des sujets aussi divers que mes problématiques de recherches ou que les nombreuses idées et projets dont ton esprit foisonne. Je tiens à remercier particulièrement Claire Voiseux et Mehd(m)i Morillon pour leur immense contribution aux différentes parties de ma thèse, leur bonne humeur quotidienne et leurs compétences. C'était un

véritable plaisir et un très grand confort que de travailler avec vous et de pouvoir m'appuyer sur vous. Un grand merci également à Olivier Ca (notamment pour la mise en place et la cueillette de pompes capricieuses), Johan, Olivier Co., Bruno, Claire G. (tes relectures tes corrections et tous tes conseils m'ont été très précieux), Didier, Philippe., Marianne L (sans qui je ne saurais toujours pas envoyer une lettre), Serge, Marianne R., Luc (que j'ai pu inonder de mesures tritium). Je tiens à remercier mes compagnons (post)-doctorants et stagiaires, qui ont eu le malheur de partager mon bureau : Hugo (alias Maurice), Geoffrey, Oumar-Telly, Vincent, Aurélie, Théo, Richard et Dina.

Tout ce travail n'aurait pas été possible sans toutes les personnes qui ont participé à l'échantillonnage du golfe de Gascogne durant les différentes campagnes d'opportunités. Je souhaite ainsi remercier l'ensemble des équipages des campagnes ASPEX 2009, 2010 et 2011, PELGAS 2016, DYNSEDIM PLUME dont plus particulièrement Paul Bourriau, et Elodie Marchès

Tous ces échantillonnages d'eau de mer s'accompagnent d'un nombre important de mesures à bas niveau de tritium. C'est pourquoi je remercie l'équipe du LMRE, particulièrement Cédric Le Corre et Catherine Cossonnet ainsi que Romain Vidal et Donovan Maire du LMN.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude à Marie Bouet de la Mairie de Royan, Valérie Penlou et toute son équipe de l'usine de production d'eau des Ponts-de-Cé, André Delabre et Alain Jocteur du service des Phares et Balises pour toute leur aide et leur assistance à la mise en place et la maintenance des automates de prélèvements sur la Loire et la Gironde.

J'adresse mes remerciements à Pierre-Yves Hemidy d'EDF et le Service de Protection Radiologique d'Orano La Hague pour la transmission de leurs données de rejets en tritium.

Je tiens à remercier chaleureusement mes proches, plus particulièrement mes parents, ma sœur et ma compagne Marie pour leur soutien sans failles ainsi que Madame Renard pour leurs importantissimes relectures.

Un grand merci à tous !

Table des matières

Remerciements 5
Table des matières 7
Liste des figures 9
Liste des tableaux 15
Introduction Générale 17
Chapitre 1. Le golfe de Gascogne 23
1.1 Caractéristiques géographiques 23
1.2 Caractéristiques hydrologiques 24
1.3 Caractéristiques hydrodynamiques 27
1.3.1 La plaine abyssale 27
1.3.2 Le talus continental 28
1.3.3 Le plateau continental 29
1.4 Les moteurs de la dispersion 30
1.4.1 La marée 30
1.4.2 Le vent 33
1.4.3 Les fronts de densité 37
1.5 Synthèse 43
Chapitre 2. Le tritium 47
2.1 Généralités 47
2.2 Formes chimiques et radiotoxicité du tritium 48
2.3 Sources de tritium dans l'environnement 48
2.3.1 Tritium naturel 48
2.3.2 Tritium anthropique 49
2.3.3 Bilan du tritium dans l'environnement en 2016 52
2.3.4 Mesure du tritium sous la forme HTO 52
2.4 Article: Inventory and distribution of tritium in the oceans in 2016 59
2.5 Synthèse 91
Chapitre 3. Evaluation des flux de tritium issus des CNPE dans le golfe de Gascogne 95
3.1 Données de rejets en tritium des installations nucléaires 96
3.2 Modélisation du transfert du tritium dans les rivières 100
3.2.1 Modèle CASTEAUR 100
3.2.2 Apports des termes sources (flux d'eau douce et de tritium) au domaine de calcul ... 101
3.3 Mesures du terme source 104
3.3.1 Echantillonnage mensuel, les hydrocollecteurs 105
3.3.2 Echantillonnage quotidien, les automates PASCALE 105

3.3.3 Comparaison entre les mesures quotidiennes (automate PASCALE) et les mesures mensuelles (hydrocollecteurs) aux Ponts-de-Cé 109
3.3.4 Comparaison entre les mesures quotidiennes (automate PASCALE) et le modèle CASTEAUR 111
3.4 Comparaisons entre les mesures mensuelles (hydrocollecteur) et le modèle CASTEAUR 112
3.4.1 Loire (Ponts-de-Cé) 112
3.4.2 Garonne (Laspeyres) 112
3.5 Apports en tritium par les fleuves hors influence directe des centrales nucléaires 114
3.6 Synthèse 114
Chapitre 4. Modélisation et mesure de la dispersion du tritium sur le plateau continental du golfe de Gascogne… 119
4.1 Description du modèle MARS3D 120
4.1.1 Hypothèses et équations 120
4.1.2 Advection/diffusion des traceurs 121
4.1.3 Coordonnées Sigma 122
4.1.4 Résolution numérique 123
4.1.5 Fermeture des équations : modèle de turbulence 124
4.1.6 Conditions aux frontières ouvertes 125
4.1.7 Conditions aux limites 126
4.2 Article (Soumis): Characterisation of river plume dispersion through tritium measurements and modelling in the Bay of Biscay 128
4.3 Comparaison du modèle aux mesures hydrologiques haute résolution 162
4.3.1 Comparaisons aux données de salinité et température Scanfish™ 162
4.3.2 Comparaisons aux données de température MODIS 167
4.4 Etude de sensibilité à la formulation de la tension du vent et au modèle météorologique . 169
4.4.1 Formulation de la tension du vent selon Charnock, 1955 et Geernaert *et al.*, 1986 ... 170
4.4.2 Comparaisons des simulations 171
4.5 Dynamique haute fréquence des stocks de tritium modélisés sur le plateau continental du golfe de Gascogne 175
4.5.1 Stocks de tritium modélisés entre 2007 et 2016 175
4.5.2 Traceur âge-concentration 180
4.6 Synthèse 183
Conclusions et perspectives 185
Bibliographie 191
Annexes 201

Liste des figures

Figure 1.1 – Carte du golfe de Gascogne, bathymétrie GEBCO 30's. 24

Figure 1.2 – Profils hydrologiques verticaux typiques du golfe de Gascogne issus des moyennes annuelles de température (A) et de salinité (B) de la base de données BOBYCLIM (Vandermeirsch *et al.*, 2010). (C) Diagramme Température-Salinité du golfe de Gascogne issu des moyennes annuelles de la base de données BOBYCLIM. Les isopycnes, (lignes d'iso-densité), sont représentées en pointillés. L'origine des masses d'eau est indiquée approximativement d'après Fraile-Nuez *et al.*, 2008. ETS : Eau de la thermocline de surface, ECNA : Eau Centrale Nord-Atlantique, EM : Eau Méditerranéenne, EISA : Eau Intermédiaire Subarctique, EML : Eau de la Mer du Labrador, EPNA : Eau Profonde Nord-Atlantique, EPL : Eau Profonde du Labrador. 26

Figure 1.3 – Représentation schématique de la circulation de surface dans le golfe de Gascogne modifiée d'après Koutsikopoulos et Le Cann, 1996. 1. Circulation générale de l'Atlantique Nord ; 2. Tourbillons anticycloniques ; 3. Courant de pente ; 4. Courant résiduel de surface ; 5. Courants de marée ; 6. Courants induits par les vents ; 7. Courants de densité induits par les apports d'eau douce. 27

Figure 1.4 – Circulation en surface de l'Atlantique Nord – Est d'après Michel *et al.*, 2009. Bathymétrie GEBCO 30 secondes d'arc. 28

Figure 1.5 – Climatologie de la circulation océanique de surface dans le golfe de Gascogne d'après Charria *et al.*, 2013. Les auteurs ont analysé les trajectoires de bouées dérivantes à la surface (entre 15 et 80 m) de 1992 à 2009. 29

Figure 1.6 – (A) Amplitude (m) de l'onde de marée M2 et (B) M4 modélisée avec le modèle T-UGOm 2D extrait de Pairaud *et al.*, 2008. (C) Vitesses maximales ($m.s^{-1}$) et (D) courants résiduels ($cm.s^{-1}$) modélisés durant un cycle de marée M2 avec le modèle MARS3D, extrait de Lazure et Dumas, 2008. Figure modifiée d'après Khojasteh Pour Fard, 2015. 31

Figure 1.7 – Critère de Simpson-Hunter (SH, Equation (1.1)) exprimé en échelle logarithmique, extrait de Lazure *et al.*, 2008. SH > 2,7 indique que la colonne d'eau est potentiellement stratifiable. 32

Figure 1.8 – Moyenne saisonnière de la pression atmosphérique au niveau de la mer entre 1998 et 2018 en été (A) et en hiver (B). HP : Haute pression, correspond à l'Anticyclone des Açores ; BP : Basse Pression correspondant à la Dépression Islandaise. La direction du vent dans le golfe de Gascogne est indiquée par une flèche blanche. Les données sont extraites des réanalyses du modèle NCEP/NCAR Reanalysis (Kalnay *et al.*, 1996) disponible en ligne : https://www.esrl.noaa.gov/psd/data/gridded/data.ncep.reanalysis.derived.html. 34

Figure 1.9 – Directions et vitesses du vent issues de la moyenne des composantes de vitesses du vent entre -6°W et 0°W de longitude, 43°N et 49°N de latitude du 01/01/2007 au 31/12/2016, issues des modèles météorologiques ARPEGE (2007 - 2011) et ARPEGE HR (2012 - 2016). 35

Figure 1.10 – Anomalie journalière de pression de surface (millibar) correspondant aux quatre régimes de temps d'hiver (Novembre à Mars) sur l'Atlantique Nord. Le pourcentage représente l'occurrence moyenne de ces régimes sur la période 1974-2007. D'après Cassou, 2008, disponible en ligne : http://www.insu.cnrs.fr/environnement/atmosphere/vers-une-prevision-de-la-meteo-depassant-la-semaine. Les flèches de direction des vents ont été insérées à la figure originale à titre indicatif. .. 36

Figure 1.11 – Principe des mécanismes d'upwelling (A) et de downwelling (B), cas théorique dans l'Hémisphère Nord. 37

Figure 1.12 – Représentation schématique des fronts de densité : (A) type I et (B) type II, d'après Hill et Simpson, 1989. Les fronts de densité sont représentés par les lignes noires continues. 39

Figure 1.13 – Représentation des différents fronts de densité et des courants associés en été à travers un plateau continental à fort mélange de marée. Extrait de Hill *et al.*, 2008. 40

Figure 1.14 – Moyennes mensuelles des débits de la Loire (bleu), de la Gironde (rouge), de la Vilaine (vert), de la Charente (cyan) et de l'Adour (noir) entre le 01/01/2005 et le 31/12/2015. (Données banque HYDRO). 41

Figure 1.15 – Cartographie de la variation saisonnière de la salinité de surface, issue de la climatologie BOBYCLIM extrait de Vandermeirsch *et al.*, 2010. 42

Figure 2.1 – Concentrations annuelles moyennes du tritium dans la pluie (en $Bq.L^{-1}$, échelle logarithmique base 10). Les points de prélèvements influencés par des masses d'air marines sont représentés avec des points et ceux influencés par des masses d'air terrestres sont représentés par des carrés. CAN, Canada ; AUT, Autriche ; FR, France ; ANT, Antarctique ; IRL, Irlande ; USA, Etats-Unis d'Amérique ; AZO, Açores ; NZ, Nouvelle-Zélande. 0,2 $Bq.L^{-1}$ et 1,5 $Bq.L^{-1}$ sont les limites inférieures et supérieures actuelles des concentrations annuelles moyennes du tritium dans la pluie. Source : IAEA, https://nucleus.iaea.org/wiser/index.aspx. 50

Figure 2.2 – Sources et inventaires du tritium dans l'environnement en 2016. 52

Figure 2.3 – Schéma d'un photomultiplicateur (Cassette, 2004). 53

Figure 2.4 – Schéma de principe d'un compteur à scintillation liquide (Cassette, 2004). 54

Figure 2.5 – Schéma de l'électrolyse de l'eau 54

Figure 2.6 – (A) Bouteille en acier inoxydable et son tube en cuivre avant transfert de l'échantillon d'eau de mer. (B) Echantillon d'eau de mer mis dans une bouteille fermée hermétiquement à l'aide de pinces, après le processus de dégazage. 56

Figure 2.7 – Système de dégazage d'échantillons d'eau installé au LRC 57

Figure 2.8 – Spectromètre de masse installé au LMRE pour la mesure des isotopes de l'hélium. 58

Figure 2.9 – Map of nuclear explosions between 1945 and 1998. Each marker corresponds to the sum of yield at a same location expressed in kilotons (kt) or megatons (Mt) of trinitrotoluene (TNT). Atmospheric explosions are represented with a circle and underground explosions are represented with a triangle. The edge color of circles corresponds to the state that carried out the explosion. The rectangles represent the sum of yield from atmospheric explosions in a given area for the indicated years. Atmospheric explosions include explosions from balloons, airdrops, rockets, towers, barges, water surface, surface or crater. Underground explosions include explosion from the bottom of drilled or mined vertical holes or shafts, tunnel and gallery, mine, wells in the ground and drilled in the lagoon of atolls. Data extracted from the report of the Swedish National Defence Research Institute (Bergkvist et Ferm, 2000). 64

Figure 2.10 – Latitudinal distribution of global 90Sr deposit at the end of the 1990's (adapted from (Monetti, 1996)) linked with atmospheric dynamics, and the main area of radioactive fallout from atmospheric testing of nuclear weapons. 90Sr is a radionuclide produced along with tritium during the atmospheric testing of nuclear weapons. Its distribution gives an approximation of tritium distribution from the radioactive fallouts of nuclear bomb tests. 65

Figure 2.11 – Mean decay-corrected tritium concentration (black) with their associated standard deviation and the maximum of the density distribution (mode) (in grey) for each 100 m layer between 0 and 1000 m depth, in areas II to IV in the North Atlantic Ocean, between years 1972 and 2013. 69

Figure 2.12 – Mean decay-corrected tritium concentrations in the oceans between 0 and 500 m depth (TU16), between years 1967 and 2016. Boxes boundaries and decay-corrected and non- decay–corrected tritium concentrations are listed in Table 2.2. If several measurements are available at one location over time, the average concentration is plotted. New tritium concentrations from this article are represented with squares, while data compiled from the literature are shown with circles. Nuclear power plants are indicated with red circles (data obtained from http://GlobalEnergyObservatory.org). 73

Figure 2.13. – Artificial inventory of tritium by unit of surface area ($kBq.m^{-2}$). 76

Figure 2.14 – Mean decay-corrected tritium concentrations (TU16) from 0 to 500 m between years 1967 and 2016 in the Arctic area and the surrounding areas. A simplified Arctic Ocean circulation scheme, modified from (Karcher *et al.*, 2007) and from (Bailly du Bois et Dumas, 2005) is shown with black dotted arrows. Nuclear Power plants are indicated with red circles, and the reprocessing plant of Sellafield (UK) is indicated with a red star. The boundaries of the Arctic box are indicated with the purple line, at latitude 60°N. EGC: East Greenland Current, IC: Irminger Current, WBC: western boundary current. The C in blue triangles indicates the positon of deepwater convection sites. 79

Figure 2.15 – Mean decay-corrected tritium concentrations (TU16) from 0 to 500 m between years 1967 and 2016 for the Southern Ocean area and the surrounding areas. Boundaries of the Southern Ocean box are indicated with the purple line, at latitude 40°S. 80

Figure 2.16 – Distribution of decay-corrected tritium (HTO) concentrations, expressed in TU16 in the North Atlantic surface ocean (0-500m), between years 1967 and 2016. Each dot (circle or square) represents the mean HTO concentration between 0-500 m. New tritium concentrations from this article are represented with squares, while data compiled from the literature are shown with circles. Four areas were defined for the purpose of the present study. The mean tritium concentration associated are indicated in the inset, represented as Area X = mean decay-corrected tritium concentration expressed in TU16, with the 95% confidence Interval (2σ) indicated in brackets, and n=number of available measurements. Dotted arrows correspond to simplified surface water hydrography of the North Atlantic currents modified from (Repschläger *et al.*, 2017) and from .(Bailly du Bois et Dumas, 2005) Abbreviations are AC: Azores Current, CC: Canary Current, EGC: East Greenland Current, IC: Irminger Current, GS: Gulf Stream; NAC: North-Atlantic Current, NEC: North Equatorial Current, NASTG: North-Atlantic Subtropical Gyre, WBC: Western Boundary Current. Nuclear reprocessing plant of Sellafield (UK) and La Hague (France) are indicated with red stars, while nuclear power plants are represented with red circles. The C in blue triangles indicates the positon of convection sites where denser waters sink into the deep basins. 82

Figure 2.17 – Temporal evolution of tritium concentrations in boxes II, III and IV between 0-500 m. Tritium concentrations from the literature are represented with black circles and new tritium measurements from the present study are represented with orange squares. The general frame accounts for measurements between 1988 and 2013; the insert shows measurements between 1972 and 2013. In the insert the tritium source function of (Doney et Jenkins, 1988) is represented with a purple line, it gives an evolution of tritium concentrations in the North-Atlantic Ocean between 1952 and 1981. Calculated annual means of tritium concentrations are represented with red circles. The blue line represents the non-linear regression of the tritium concentrations since 1988 (best least square fit for (2.11) with the associated standard deviation (light blue). The green dotted line represents the expected evolution of tritium concentrations due to the sole radioactive decay of the mean tritium concentrations measured in 1988 (2.10). 84

Figure 3.1 – Principales sources industrielles de tritium dans le golfe de Gascogne. ■ CNPE : Centre Nucléaire de Production d'Electricité ; ★ Usine de ret. : Usine de retraitement du combustible nucléaire. 97

Figure 3.2 – Activités mensuelles de tritium (en TBq) rejetées par les installations nucléaires situées sur les bassins versants de la Loire et de la Gironde, les centrales nucléaires bordant la Manche ainsi que les usines de retraitement du combustible nucléaire de La Hague et Sellafield. 1TBq =10^{12} Bq. . 98

Figure 3.3 – Activités mensuelles de tritium (en TBq) rejetées par les installations nucléaires situées sur les bassins versants de la Loire et de la Gironde, les centrales nucléaires bordant la Manche ainsi que les usines de retraitement du combustible nucléaire de La Hague et Sellafield. 1TBq =10^{12} Bq. . 99

Figure 3.4 – Réseau hydrographique (ligne bleue) et localisations des apports d'eau douce (croix verte) et de tritium (carré bleu) appliqués au modèle CASTEAUR, pour la Loire et la Vienne. La localisation des automates de prélèvement d'eau pour la comparaison entre les mesures et le modèle CASTEAUR est indiquée en noir. 102

Figure 3.5 – Réseau hydrographique (ligne rouge) et localisation des apports d'eau douce (croix verte) et de tritium (carré rouge) appliqués au modèle CASTEAUR, pour la Garonne. La localisation des

automates de prélèvement d'eau pour la comparaison entre les mesures et le modèle CASTEAUR est indiquée en noir. 104

Figure 3.6 – Automate PASCALE mis en place au Ponts-de-Cé (49130) et à Royan (17200). Le prélèvement d'eau est intégré sur 24h avec une capacité de 144 échantillons. 106

Figure 3.7 – Emplacement de l'usine de production d'eau potable des Ponts-de-Cé (49130) et de la station de pompage des eaux de la Loire. Source: Google Earth. 107

Figure 3.8 – Emplacement de l'automate PASCALE dans le feu de la jetée Sud du port de Royan (17200). Source: Google Earth. 108

Figure 3.9 – Concentrations en tritium des eaux de la Loire (Ponts-de-Cé) en bleu et de la Gironde (Royan) en rouge, échantillonnées avec les automates PASCALE entre le 15/12/2015 et le 24/10/2017. Les concentrations sont présentées en logarithme décimal (base 10). La période des campagnes océanographiques d'échantillonnage du golfe de Gascogne est représentée par un encadré bleu. 109

Figure 3.10 – (A) Evolution temporelle et (B) comparaisons des mesures de tritium (HTO) échantillonnées quotidiennement par l'automate PASCALE (rouge) et échantillonnées mensuellement par l'hydrocollecteur (bleu) aux Ponts-de-Cé (Loire). 110

Figure 3.11 – (A) Evolution temporelle et (B) comparaisons des concentrations de tritium (HTO) échantillonnées par l'automate PASCALE (rouge) et modélisées (bleu) par le modèle CASTEAUR aux Ponts-de-Cé (Loire). 111

Figure 3.12 – (A) Evolution temporelle et (B) comparaisons des concentrations de tritium (HTO) mesurées (noir) et modélisées (bleu) aux Ponts-de-Cé (Loire). (C) Evolution temporelle et (D) comparaisons des concentrations de tritium (HTO) mesurées (noir) et modélisées (rouge) à Laspeyres (Garonne). 113

Figure 4.1 – (A) Représentation schématique de la distribution verticale des 40 niveaux sigma (σ) pour les paramètres utilisés dans le modèle et présentés dans l'encadré. (B) Bathymétrie MARS3D utilisé pour le rang 1. 123

Figure 4.2 – (A) Map of the Bay of Biscay with main areas. (B) Locations of tritium inputs on the Bay of Biscay from nuclear power plants (NPP as squares), through the Loire watershed in blue, the Gironde watershed in red and the English Channel in green. Tritium inputs from the Sellafield (UK) and La Hague (FR) reprocessing plants (Repro. P) are indicated in black. The ^{3}H IRSN monitoring measurement stations (^{3}H Meas.) are indicated in brown. The study area of the continental shelf of the Bay of Biscay (BoB C. Shelf) is in orange. The -200 m, -1000 m and -2000 m isobaths are represented. 132

Figure 4.3 – Monthly mean of daily outflows of main rivers in the BoB (2005 to 2015). Data obtained from HYDRO-MEDDE/DE. 133

Figure 4.4 – Seasonal wind directions and speeds between 2007 and 2016 obtained from the meteorological model ARPEGE (2007 – 2011) and ARPEGE HR (2012 – 2016), between latitudes of 49°N and 43°N and longitudes of -6°W and 0°W. Spring is defined as from the 1st of March to the 31st of May; Summer is defined as from the 1st of June to the 31st of August; Autumn is defined as from the 1st of September to the 31st of November; Winter is defined as from the 1st of December to the last day of February. 134

Figure 4.5 – Location of *in-situ* measurements used for simulations comparisons. 139

Figure 4.6 – The 2D and 3D numerical area. The -100 m, -200 m and -2000 m isobath are represented. Bathymetry extracted from the GEBCO 30 arc-second interval grid (Weatherall *et al.*, 2015). 141

Figure 4.7 – Comparisons of monthly integrated tritium concentrations measured at Les Ponts-de-Cé (A) and Laspeyres (B) with the monthly averaged tritium concentrations simulated by the CASTEAUR model at the same location. The error bars represent the measurement uncertainty. 143

Figure 4.8 – Mean tritium concentrations between 0 and 15 m measured (A, B, C) and simulated (D, E, F) during the ASPEX 2009, 2010 and 2011 campaigns. 145

Figure 4.9 – Tritium and salinity concentrations measured and simulated during the spring 2016 campaigns. (A) Mean tritium concentration measured between 0 and 15 m depth; (B) Mean tritium concentration measured between 15 m and the bottom depth; (C) Mean salinity concentration measured between 0 and 15 m depth; (D) Mean tritium concentration simulated at the same locations that the measured ones between 0 and 15 m depth; (E) Mean tritium concentration simulated at the same locations that the measured ones between 15 m and the bottom depth; (F) Mean tritium concentration simulated at the same locations that the measured ones between 0 and 15 m depth.... 147

Figure 4.10 – (A) Simulated tritium concentrations according to the measured concentrations. The colours depend on the sampling depth. The 1:1 straight line is represented in green. The simulated concentrations with relative percentage error of less than 25% are included inside the blue lines and those lower than 50% are included inside the red lines. R^2 is the squared of the correlation coefficient (4.24); $\boldsymbol{dr}$is the Willmott, 2012 index of model performance (4.25) (B) Histogram of the absolute percentage errors (4.26). (C) Mapping of relative percentage errors of the simulated concentrations between 0 and 15 m. The orange-red colours indicate an overestimation of the simulated concentration and the green-blue colours indicate an underestimation. Measurements uncertainties higher than 70 $Bq.m^{-3}$ were discarded from the both comparisons, which included the six samples, n° 201669062; 201669063; 201669064; 201669065; 201669066; 201669155 (Annexe 4). 150

Figure 4.11 – Tritium and salinity relationships according to their original river sources. The percentage of the Loire contribution calculated from (4.29) is represented. Measurements in black are considered as a mixture between Loire and Gironde plumes. The orange line delimits the salinity border between the measurements considered as non-mixed and taken into account in the river regression and between the measurements considered as a mixture between Loire and Gironde freshwater discharges. The Vilaine station may have been significantly influenced by the freshwater discharge of the Vilaine River and was thus discarded from the regression..... 154

Figure 4.12 – (A) Surface and (D) bottom percentages of freshwater in the BoB. (B, E) Measured and (C, F) simulated freshwater contribution of the Loire River relative to the Gironde River. (A, B, C) are the surface representations and (D, E, F) are the bottom representations. The simulated freshwater contributions of the Loire River (surface and bottom) are the mean of the daily contributions in May 2016. 156

Figure 4.13 – Seasonal averages from daily output (2008-2015) of the simulated freshwater contribution of the Loire River relative to the Gironde River at the surface (top) and at the bottom (bottom) of the BoB. The 50% limit is highlighted with a green dashed line. The seasonal prevailing wind direction is indicated with an orange arrow. The freshwater outflow is indicated with a green arrow, with the size of the arrow dependent on the seasonal freshwater discharge in the BoB. 157

Figure 4.14 – Inventory per m² of tritium coming from the Loire and Gironde NPPs measured (A) and simulated (mean hourly output in May 2016) (B) in the BoB. The HTO inventory is the total amount of tritium measured or simulated in the BoB. The equivalent discharge time is the time required by the Loire and Gironde NPPs to discharge an equivalent amount of tritium. 160

Figure 4.15 – (A) Comparaisons des salinités mesurées par le scanfish le long des 4 transects (A, B, C et D) aux salinités modélisées, présentées Figure 4.16. (B) Comparaisons des températures mesurées par le scanfish le long des 4 transects (A, B, C et D) aux salinités modélisées, présentées Figure 4.17. R est le coefficient de corrélation (Equation ((4.24)) et drl'indicateur de Wilmott (Equation (4.25)). 164

Figure 4.16 – Mesures de salinité réalisées par le Scanfish et comparées aux résultats de simulation. Les trajectoires sont présentées pour chaque transect (A), (B), (C) et (D) sur la vignette de gauche. Le point rouge représente le point de départ du transect par rapport auquel la distance est calculée en abscisse des profils de température. Le point vert correspond au point d'arrivée du transect. 165

Figure 4.17 – Mesures de température réalisées par le Scanfish et comparées aux résultats de simulation. Les trajectoires sont présentées pour chaque transect (A), (B), (C) et (D) sur la vignette de gauche. Le point rouge représente le point de départ du transect par rapport auquel la distance est calculée en abscisse des profils de température. Le point vert correspond au point d'arrivée du transect. 166

Figure 4.18 – (A) Température de surface (°C) mesurée par le spectroradiomètre MODIS à bord du satellite Aqua et moyennée entre le 10 et 29 Mai 2016. (B) Température de surface (°C) simulée et moyennée toutes les heures entre le 10 et 29 Mai 2016. (C) Biais déterminé selon l'équation (4.26) et représentée dans l'encadré. (D) Mailles dont la valeur absolue du biais est supérieure à 1°C. 168

Figure 4.19 – Valeurs du coefficient de frottement du vent en fonction de la vitesse du vent selon les formulations de Charnock, 1955 et Geernaert *et al.*, 1986. 171

Figure 4.20 – Concentrations en tritium modélisées en surface et au fond, pour la simulation de référence, la simulation prenant en compte la formulation de la tension de vent de Geernaert *et al.*, 1986 et la simulation dont les forçages météorologiques proviennent du modèle CEP v2, à la date du 30/05/2016. 172

Figure 4.21 – Pourcentage d'écart relatif (Equation (4.26)) des simulations « Geernaert » (GEER.) et « CEP-v2 » (CEP.) par rapport à la simulation de référence (REF.), à la surface et au fond. 173

Figure 4.22 – Concentrations moyennes en tritium mesurées et modélisées pour chacune des simulations, en surface (0 -5 m) et au fond (15 m - fond) du golfe de Gascogne durant les campagnes DYNSEDIM, PELGAS et PLUME au printemps 2016. Le bruit de fond en tritium a été ajouté aux résultats de simulation afin que les simulations soient à un niveau comparable aux mesures..... 174

Figure 4.23 – (A) Evolution des stocks de tritium modélisés sur le plateau continental du golfe de Gascogne entre le 01-2007 et le 06-2016 (points noirs). Moyenne glissante sur un mois des stocks de tritium calculés (courbe noire). Moyennes glissantes sur un mois des stocks de tritium de la Loire (bleue) et de la Gironde (rouge). Cumul journalier des rejets de tritium de la Loire et de la Gironde (vert)..... 176

Figure 4.24 – (A) Hodographes des vents durant les différentes phases de recharges, identifiées Figure 4.23, (données de vents issues du modèle ARPEGE). (B) Hodographes des vents durant les différentes phases de décharges, identifiées (Figure 4.23), (données de vents issues du modèle ARPEGE). (C) Stocks de tritium normalisées par les rejets cumulés de la Loire et de la Gironde sur un an, représentés en noir. Débits quotidiens additionnés de la Loire et de la Gironde (bleu)..... 178

Figure 4.25 – Concentrations en tritium simulées en surface, entre Avril et Septembre lors la phase de décharge O (Figure 4.23). 179

Figure 4.26 – Climatologie des panaches de tritium modélisés à la surface et au fond du golfe de Gascogne. Les concentrations obtenues sont issues des moyennes des distributions quotidiennes pour chaque saison entre 2008 et 2015. Printemps : Mars, Avril et Mai ; Eté : Juin, Juillet et Aout ; Automne : Septembre, Octobre et Novembre ; Hiver : Décembre, Janvier, Février. 180

Figure 4.27 – Âge de la Loire, au début de la phase de décharge O (01/03/2014)) à la surface et au fond (vignettes de gauche). Âge de la Loire à la fin de la phase de recharge O (01/09/2014), à la surface et au fond (vignettes de droite). 182

Liste des tableaux

Table 1.1 – Débits annuels moyens des principaux affluents du Golfe de Gascogne et leur contribution relative entre le 01/01/2005 et le 31/12/2015. (Données banque HYDRO). 41

Table 2.1 – Information on original data: dates, area and measurement methods. 67

Table 2.2 – Total, natural and artificial tritium inventories and mean tritium concentrations between 0 – 500 m between years 1967 and 2016 corrected of radioactive decay (TU16), for all boxes shown on Figure 2.12. SD: Standard Deviation. [1] : from (Milliman et Farnsworth, 2013); [2] : from (Ludwig *et al.*, 2009). 74

Table 3.1 – Apports en eau (Q en $m^3.s^{-1}$) et en tritium (F en $Bq.s^{-1}$) au réseau hydrographique de la Vienne. Pkm : Point kilométrique. 102

Table 3.2 – Apports en eau (Q en $m^3.s^{-1}$) et en tritium (F en $Bq.s^{-1}$) au réseau hydrographique de la Loire. Pkm : Point kilométrique. 103

Table 3.3 – Apports en eau (Q en $m^3.s^{-1}$) et en tritium (F en $Bq.s^{-1}$) au réseau hydrographique de la Garonne. Pkm : Point kilométrique. 104

Table 4.1 – Modèles météorologiques et océanographiques (OBC) utilisés au cours de la simulation de la dispersion du tritium dans le golfe de Gascogne entre 2007 et 2016. 126

Table 4.2 – Mean of daily outflows of the main rivers of the BoB (2005 to 2015). Data obtained from HYDRO-MEDDE/ DE. 133

Table 4.3 – Sources and inventories of tritium entering the continental shelf of the Bay of Biscay during one year. The inventories were divided by the volume of the BoB (V_{BoB}) to obtain the equivalent tritium concentration. 137

Table 4.4 – Sampling campaigns in the Bay of Biscay. 138

Table 4.5 – Statistic indicator values for salinity and tritium comparisons. 149

Table 4.6 – Paramètres statistiques de validation du modèle pour les valeurs de température et de salinité mesurées par le SCANFISH™. 163

Table 4.7 – Résolution spatiale et temporelle des modèles Arpège et CEPv2. 171

Table 4.8 – Indicateurs statistiques des comparaisons entre les simulations et les mesures de tritium 174

Table 4.9 – Etude des maximums et des minimums des stocks de tritium modélisés sur le plateau du golfe de Gascogne entre 2007 et 2016, identifiés sur la Figure 4.23. 176

Introduction Générale

La connaissance du devenir des radionucléides dans l'environnement marin est essentielle à la maîtrise du risque nucléaire, que ce soit en cas de rejets chroniques ou accidentels. La prévention et l'évaluation des conséquences de ces rejets pour l'homme et l'environnement, concernent tous les acteurs et usagers du milieu maritime auxquels l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) se doit d'apporter des réponses. L'accident de la centrale nucléaire de Fukushima en 2011 est un exemple récent, qui nous amène à nous interroger sur les moyens d'évaluation et de prédiction du devenir des radionucléides le long des côtes françaises.

Depuis les années 1990, le développement des moyens de calculs informatiques, la mesure à bas niveaux des radionucléides dissous et la connaissance précise des flux de radionucléides émis en Manche ont permis la mise en place et la validation de modèles hydrodynamiques de dispersion en Manche et en Mer du Nord (Salomon *et al.*, 1988; Salomon *et al.*, 1991; Breton et Salomon, 1995; Bailly du Bois et Dumas, 2005). L'utilisation de ces modèles hydrodynamiques associés à des mesures de traceurs conservatifs a permis d'acquérir de nombreuses connaissances sur la circulation des masses d'eau et le devenir des substances solubles rejetées en mer (Bailly du Bois *et al.*, 1993; Bailly du Bois *et al.*, 1995; Bailly du Bois, 1997).

Le long de la façade Atlantique, les modèles hydrodynamiques mis en place, notamment par l'Institut Français de Recherche pour l'Exploitation de la Mer (Ifremer) utilisent depuis de nombreuses années la salinité comme un outil de validation de la dispersion des eaux continentales (Lazure et Salomon, 1991; Planque *et al.*, 2004; Lazure et Dumas, 2008; Lazure *et al.*, 2009). La salinité offre de nombreux avantages qui en font le traceur conservatif le plus largement utilisé en océanographie : une mesure simple, à moindre coût, qui est généralisée dans toutes les études océanographiques et dont les termes sources sont relativement bien estimés. Cependant le manque de traceurs conservatifs complémentaires à la salinité a laissé des questions encore sans réponse sur la dynamique des apports continentaux dans le golfe de Gascogne telles que :

- L'estimation des temps de résidence des eaux continentales ;
- Les contributions respectives des apports d'éléments dissous de la Loire, de la Gironde et de la Manche ;
- Les mécanismes et les conditions d'export des eaux continentales au-delà du plateau continental du golfe de Gascogne.

Afin de répondre à ces questions, un nouveau traceur des masses d'eaux continentales dans le golfe de Gascogne est proposé : le tritium. Introduit en grandes quantités dans l'océan durant les années 60,

par les retombées des essais nucléaires (520-550 kg), le tritium de demi-vie 12,32 ans, a très vite été utilisé comme un outil dans la compréhension des mécanismes océaniques. La circulation des masses d'eau, le taux de renouvellement des eaux ou le taux de ventilation des eaux profondes ont ainsi été mis en évidence à l'échelle de différents bassins océaniques (Jenkins et Clarke, 1976; Dreisigacker et Roether, 1978; Weiss *et al.*, 1979; Weiss et Roether, 1980; Andrié *et al.*, 1988; Doney *et al.*, 1993; Doney et Jenkins, 1994; Jean-Baptiste *et al.*, 2004; Roether *et al.*, 2013; Ayache *et al.*, 2015)

Aujourd'hui, il reste un excellent traceur notamment en milieu côtier où les rejets contrôlés et connus des installations nucléaires permettent de réaliser des bilans quantitatifs précis entre les flux rejetés et les quantités mesurées en mer (Bailly du Bois et Guéguéniat, 1999; Bailly du Bois et Dumas, 2005). Dans le golfe de Gascogne, les rejets de tritium provenant des installations autour de la Loire et de la Gironde marquent de manière différenciée les eaux de ces deux estuaires. Les concentrations très faibles résultantes du mélange de ces eaux continentales avec les eaux marines ont longtemps empêché l'utilisation du tritium en tant que traceur dans le golfe de Gascogne. La possibilité récente de réaliser au sein de l'IRSN des mesures de tritium à très bas niveaux, maîtrisées à travers le monde par peu de laboratoires (6), permet l'originalité de cette étude.

L'utilisation conjointe des traceurs tritium et salinité et de la simulation numérique de la dispersion des eaux continentales va permettre d'apporter des éléments de réponses aux différentes questions posées précédemment.

Les objectifs de la thèse sont :

i. Quantifier les flux de tritium entrant dans le golfe de Gascogne ;
ii. Valider la capacité du modèle hydrodynamique MARS3D à reproduire la dispersion à long terme du tritium dans le golfe de Gascogne ;
iii. Estimer les temps de résidence des eaux continentales au sein du plateau continental ;
iv. Déterminer les contributions relatives des apports de la Loire et de la Gironde ;
v. Préciser les processus d'export des panaches en dehors du plateau continental.

Afin de répondre aux différents objectifs fixés, l'étude menée s'articule en quatre chapitres :

Le premier décrit la zone d'intérêt, le golfe de Gascogne, avec ses caractéristiques géographiques, hydrologiques, hydrodynamiques et les moteurs de la dispersion.

Le second dresse l'état de l'art du tritium dans l'environnement. Dans un premier temps, les connaissances générales sur le tritium sont rappelées, puis dans un second temps les termes sources et mesures de tritium dans l'environnement sont précisées. Un troisième point aborde l'inventaire et la distribution du tritium dans les océans en 2016, déterminés à partir de la compilation de bases de données océanographiques.

Le troisième chapitre détaille l'évaluation des flux de tritium dans le golfe de Gascogne et la modélisation des transferts des radionucléides par les rivières (modèle CASTEAUR) ; puis, la validation et la quantification des incertitudes liées à la modélisation des flux par des mesures *in-situ* du terme source sont présentées.

Le dernier chapitre porte sur la mesure et la simulation de la dispersion du tritium sur le plateau continental. Ce chapitre présente les mesures réalisées dans le golfe de Gascogne et le modèle numérique utilisé (MARS3D). Les résultats de mesures et de simulations sont présentés et comparés. Les contributions relatives de la Loire par rapport à celles de la Gironde sont déterminées à la fois par la mesure et la simulation. Enfin les temps de résidence des eaux continentales sur le plateau sont calculés et discutés avec les résultats à haute fréquence du modèle.

Les principaux résultats de cette étude sont rappelés dans la conclusion.

CHAPITRE 1

LE GOLFE DE GASCOGNE

Chapitre 1. Le golfe de Gascogne

1.1 Caractéristiques géographiques

Le golfe de Gascogne se situe sur le bord Est de l'Océan Atlantique Nord et borde deux pays européens : la France et l'Espagne.

L'organisation hydrographique internationale définit la limite Nord du Golfe de Gascogne à la Pointe de Penmarc'h (47,80 °N, 4,37 °O ; Sud de la Bretagne) et la limite Sud et Ouest du Golfe de Gascogne au Cap Ortegal (43,77 °N, 7,87 °O) (Figure 1.1).

Le golfe de Gascogne est composé de trois principales structures topographiques, les plaines abyssales à l'Ouest situées à plus de 4000 m de profondeur (Figure 1.1), le plateau continental qui s'étend des côtes françaises et espagnoles jusqu'à 200 m de profondeur et le talus continental qui les sépare entre 200 et 4000 m de profondeur.

Le plateau continental du golfe de Gascogne se décompose du Nord au Sud en trois structures géographiques distinctes : le plateau Armoricain, le plateau Aquitain et le plateau Ibérique. Ces trois plateaux sont délimités au large par l'isobathe 200 m (zone bleue clair, Figure 1.1).

Le plateau Armoricain est orienté du Nord-Ouest au Sud-Est et s'étend sur une longueur de plus de 300 km pour plus de 150 km de large. Il est délimité au Nord par la mer d'Iroise et l'entrée de la Manche (48.64 °N, -4.56 °O) et au Sud par le plateau de Rochebonne (46,22 °N, -2,46 °O).

Le plateau Aquitain est moins large (50 – 150 km), il est orienté du Nord au Sud. Il est délimité au Nord par le plateau de Rochebonne (46,22 °N, -2,46 °O) et au sud par le Canyon du Capbreton (43,67 °N, -1,62 °O).

Le plateau Ibérique est le plus étroit (30 – 40 km), il est orienté de l'Est à l'Ouest de façon quasi horizontale. Il est délimité à l'Est par le Canyon du Capbreton (43,67 °N, -1,62 °O) et à l'Ouest par le Cap Ortegal (43,77 °N, -7,87 °O).

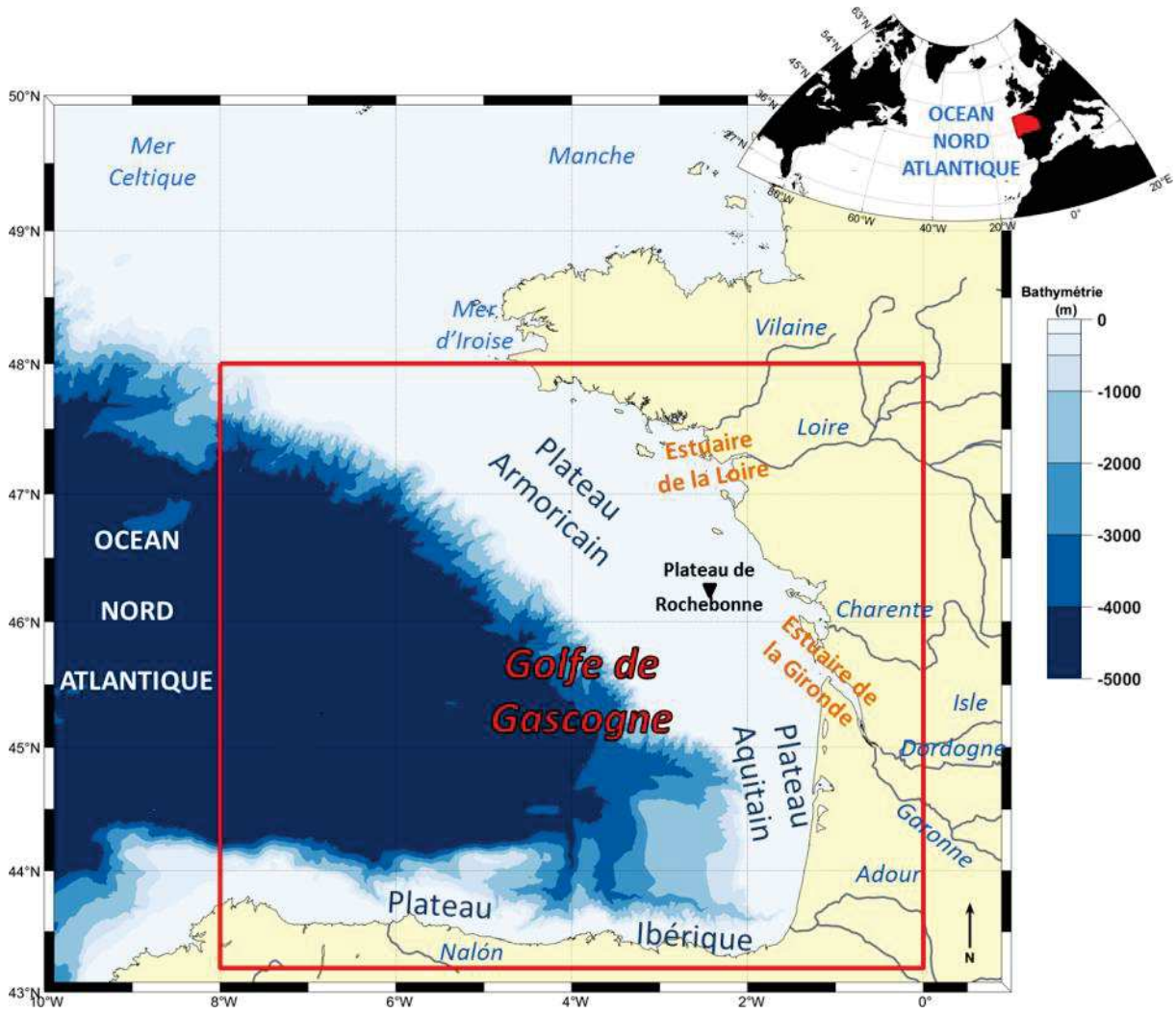


Figure 1.1 – Carte du golfe de Gascogne, bathymétrie GEBCO 30's.

1.2 Caractéristiques hydrologiques

Lorsqu'une masse d'eau océanique quitte le contact avec l'atmosphère et plonge en profondeur, ses propriétés physiques, température et salinité, ne sont plus modifiées que par mélange avec une autre masse d'eau de propriétés différentes. Isolés de l'atmosphère, la salinité (S) et la température (T) sont des traceurs dits conservatifs, qui permettent de caractériser et d'identifier l'origine des masses d'eau.

Les propriétés des masses d'eau présentes dans le golfe de Gascogne extraites de la base de données BOBYCLIM (Vandermeirsch *et al.*, 2010) sont présentées Figure 1.2. Le diagramme T/S est utilisé pour déterminer la provenance de ces masses d'eau, d'après Fraile-Nuez *et al.*, 2008.

En surface entre 0 et ~150 m (entre les isopycnes 26,4 et 27,1 kg.m^{-3}) de profondeur se trouve l'Eau de la Thermocline de Surface (ETS). En été, le réchauffement de la couche de surface entraine une

stratification de l'océan et un isolement des couches inférieures plus froides par une thermocline située vers 50 m de profondeur. En hiver, la couche de surface se refroidit, avec un mélange plus intense de par l'influence des dépressions atmosphériques. La couche de surface devient plus froide et plus épaisse. L'approfondissement de la couche de surface englobe l'Eau Centrale Nord-Atlantique (ECNA) jusqu'à environ 600 m de profondeur (isopycne 27,3 kg m^{-3}).

Entre 600 et 1500 m (isopycnes 27,3 et 27,9 $kg.m^{-3}$) on trouve successivement les eaux intermédiaires constituées de l'Eau Méditerranéenne (EM), de l'Eau Intermédiaire SubArctique (EISA) et de l'Eau de la Mer du Labrador (EML). Ces trois masses d'eau sont présentes sur le même intervalle restreint de densités.

L'EM qui circule dans le golfe de Gascogne depuis le détroit de Gibraltar est caractérisée par un maximum de salinité (S=36,2), à 1000 m bien visible à la fois sur le profil de salinité et le diagramme T/S (Figure 1.2B et C). Elle est localisée à des profondeurs entre 600 et 1400 m, pour une densité autour de 27,6 $kg.m^{-3}$. L'EISA est une masse d'eau originaire de la partie Nord-Ouest de l'Atlantique, caractérisée par températures entre 4 et 7°C et un minimum de salinité vers 800 m qui se distingue de l'EM. L'EML est une masse d'eau provenant de la Mer du Labrador, située entre 2500 et 3000 m, caractérisée par un minimum de salinité (S=34,7) et de densité proche de celles des eaux abyssales de l'Eau Profonde Nord Atlantique (EPNA) et de l'Eau Profonde du Labrador (EPL), entre 27,3 et 27,9 $kg.m^{-3}$.

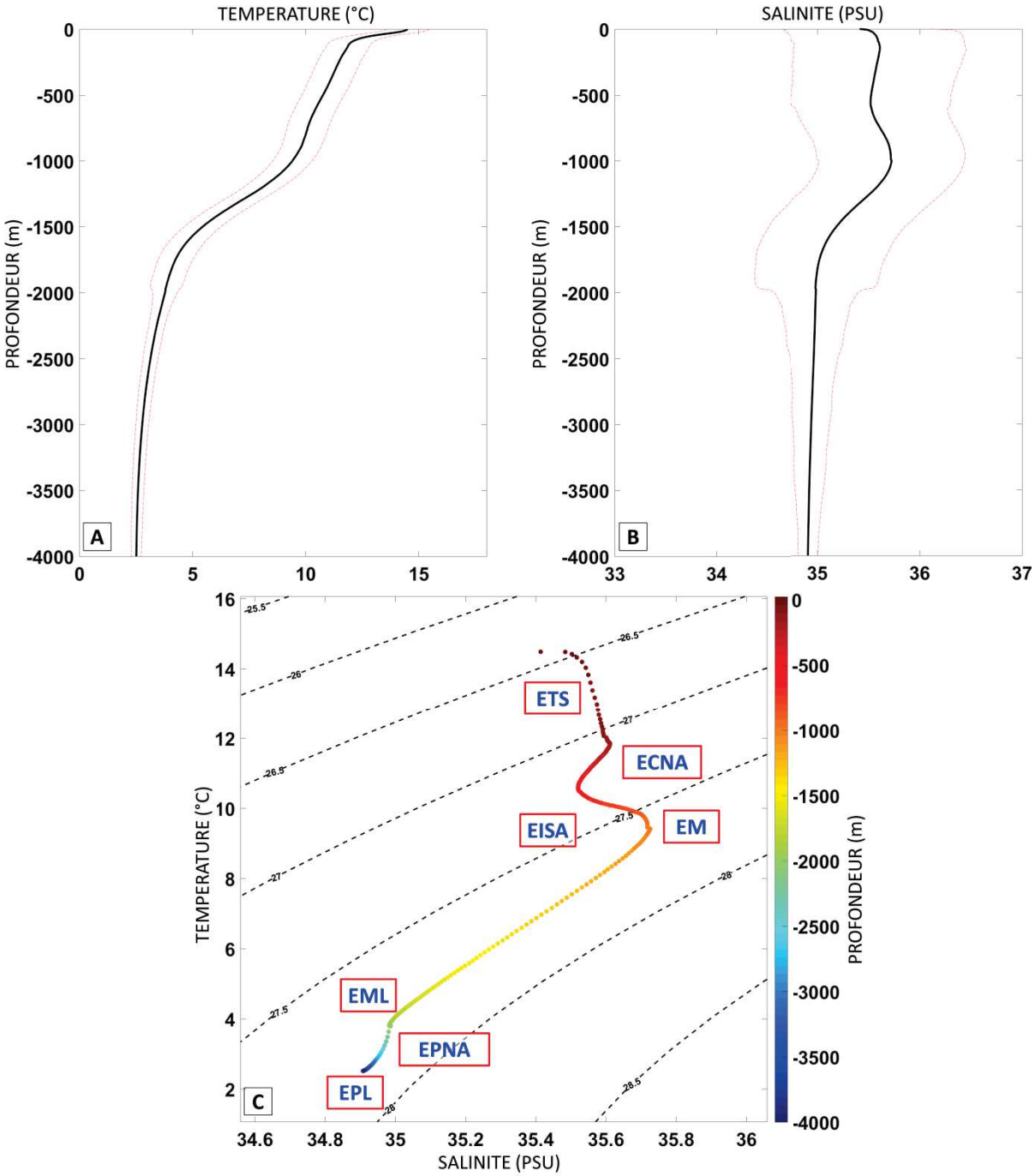


Figure 1.2 – Profils hydrologiques verticaux typiques du golfe de Gascogne issus des moyennes annuelles de température (A) et de salinité (B) de la base de données BOBYCLIM (Vandermeirsch *et al.*, 2010). (C) Diagramme Température-Salinité du golfe de Gascogne issu des moyennes annuelles de la base de données BOBYCLIM. Les isopycnes, (lignes d'iso-densité), sont représentées en pointillés. L'origine des masses d'eau est indiquée approximativement d'après Fraile-Nuez *et al.*, 2008. ETS : Eau de la thermocline de surface, ECNA : Eau Centrale Nord-Atlantique, EM : Eau Méditerranéenne, EISA : Eau Intermédiaire Subarctique, EML : Eau de la Mer du Labrador, EPNA : Eau Profonde Nord-Atlantique, EPL : Eau Profonde du Labrador.

1.3 Caractéristiques hydrodynamiques

La circulation générale dans le golfe de Gascogne peut être décrite en trois régions distinctes selon la bathymétrie du golfe de Gascogne : la plaine abyssale, le talus continental et le plateau continental. Koutsikopoulos et Le Cann (1996) ont synthétisé les caractéristiques hydrographiques pour ces trois régions (Figure 1.3).

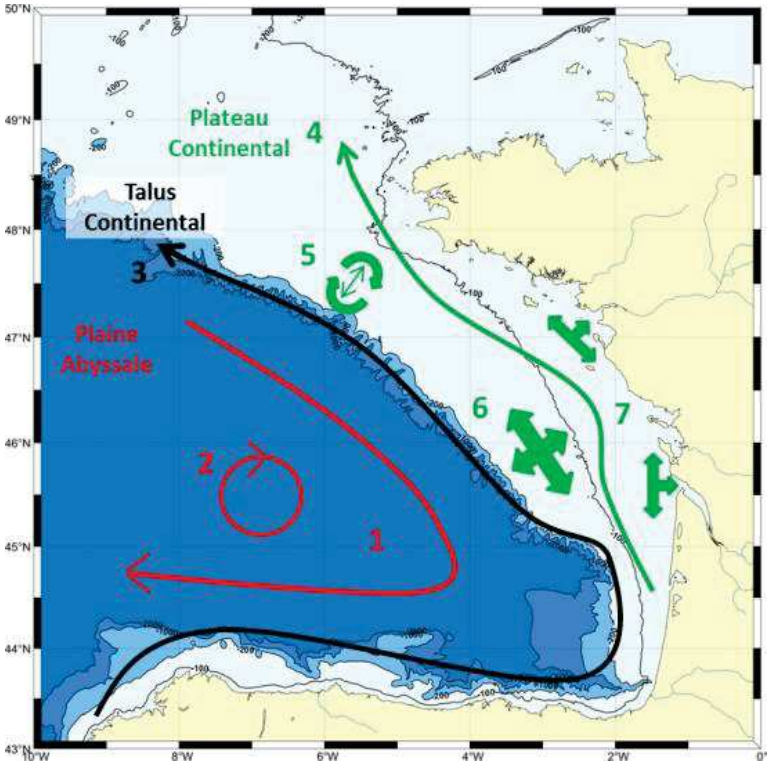


Figure 1.3 – Représentation schématique de la circulation de surface dans le golfe de Gascogne modifiée d'après Koutsikopoulos et Le Cann, 1996. 1. Circulation générale de l'Atlantique Nord ; 2. Tourbillons anticycloniques ; 3. Courant de pente ; 4. Courant résiduel de surface ; 5. Courants de marée ; 6. Courants induits par les vents ; 7. Courants de densité induits par les apports d'eau douce.

1.3.1 La plaine abyssale

La plaine abyssale du golfe de Gascogne est située entre deux branches de la circulation de l'Atlantique Nord : la dérive Nord Atlantique au Nord et le courant des Açores au Sud (Figure 1.4). Une branche retour de la dérive Nord Atlantique entre dans la plaine abyssale du golfe de Gascogne est présente en surface (0 - 75 m) traduite par une circulation anticyclonique associée à de faibles vitesses de surface (1 - 2 $cm.s^{-1}$), (Pingree, 1993; van Aken, 2002). Le changement du régime saisonnier des vents induit une inversion dans la circulation de surface qui devient cyclonique en automne et en hiver (Figure 1.5) (Charria *et al.*, 2013).

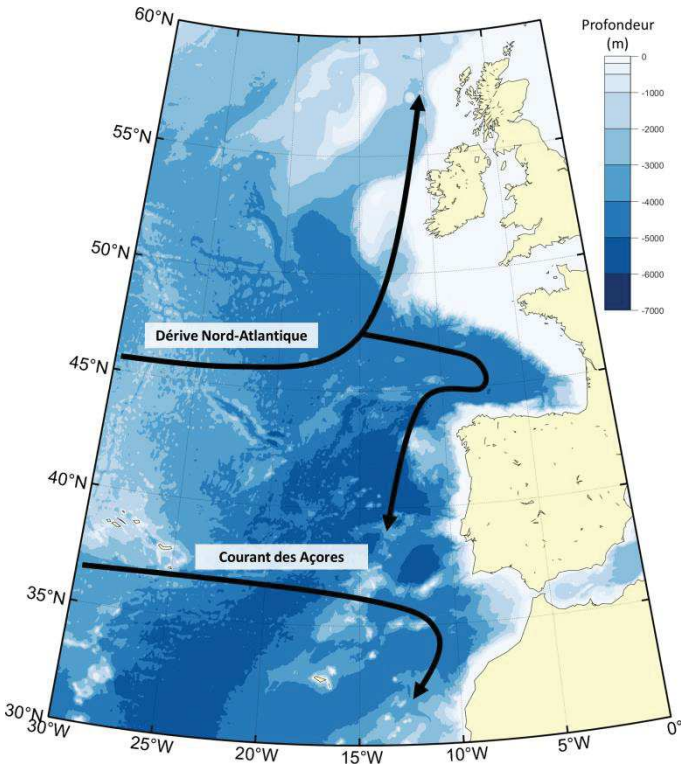


Figure 1.4 – Circulation en surface de l'Atlantique Nord – Est d'après Michel *et al.*, 2009. Bathymétrie GEBCO 30 secondes d'arc.

1.3.2 Le talus continental

Le long du talus continental, la circulation est typique des bords Est des bassins océaniques (EBC, Eastern Bounday Current) (Neshyba, 1989). Le flux d'eau vers l'Est généré par le gradient méridien de densité entraîne une accumulation d'eau au niveau du talus du golfe de Gascogne. La pente de la surface libre ainsi créée génère par équilibre géostrophique un courant dirigé vers le Nord (Huthnance, 1984). Ce courant, l'Iberian Poleward Current (IPC) a été observé et décrit dans plusieurs études (Pollard et Pu, 1985; Frouin *et al.*, 1990; Pingree et Le Cann, 1990; Pingree et Le Cann, 1992; Le Cann et Serpette, 2009). Ce courant de pente généralement faible (5 – 10 $cm.s^{-1}$) (van Aken, 2002; Xu *et al.*, 2015) sépare la dynamique du plateau de celle de la plaine abyssale ; il peut être contrarié spatialement et saisonnièrement selon le forçage des vents. En été, notamment sous l'action des vents de Nord-Ouest, le courant de pente s'inverse en diminuant d'intensité (1,5 $cm.s^{-1}$). L'IPC est formé au large des côtes du Portugal, il remonte vers le Nord en suivant le talus. Contraint par la bathymétrie, il pénètre le long du plateau Ibérique. En hiver, les vents de Sud-Ouest intensifient la circulation de l'IPC le long du talus. L'intensification hivernale de l'IPC, également appelé « Navidad » (Pingree et Le Cann, 1992) du fait de sa présence durant la période de Noël, transporte des eaux chaudes et salées jusqu'au talus Aquitain (Le Cann et Serpette, 2009).

1.3.3 Le plateau continental

La circulation sur le plateau est principalement influencée par les vents et les gradients de densité induits par les flux de chaleur et d'eau douce (Lazure et Jégou, 1998; Lazure *et al.*, 2008; Ferrer *et al.*, 2009) ainsi que de manière indirecte par la marée. Ces différentes influences donnent lieu à de fortes variabilités spatio-temporelles de la direction et des vitesses des courants. Cependant, la compilation des trajectoires de bouées dérivantes collectées entre 1992 et 2009 par Charria *et al.*, 2013 (Figure 1.5) met en évidence un flux moyen qui s'inverse notamment selon les saisons et le régime des vents. En hiver, la circulation résiduelle sur le plateau est dirigée vers le Nord (2 - 5 cm.s^{-1}), elle diminue d'intensité et s'inverse vers le Sud en été (2 cm.s^{-1}).

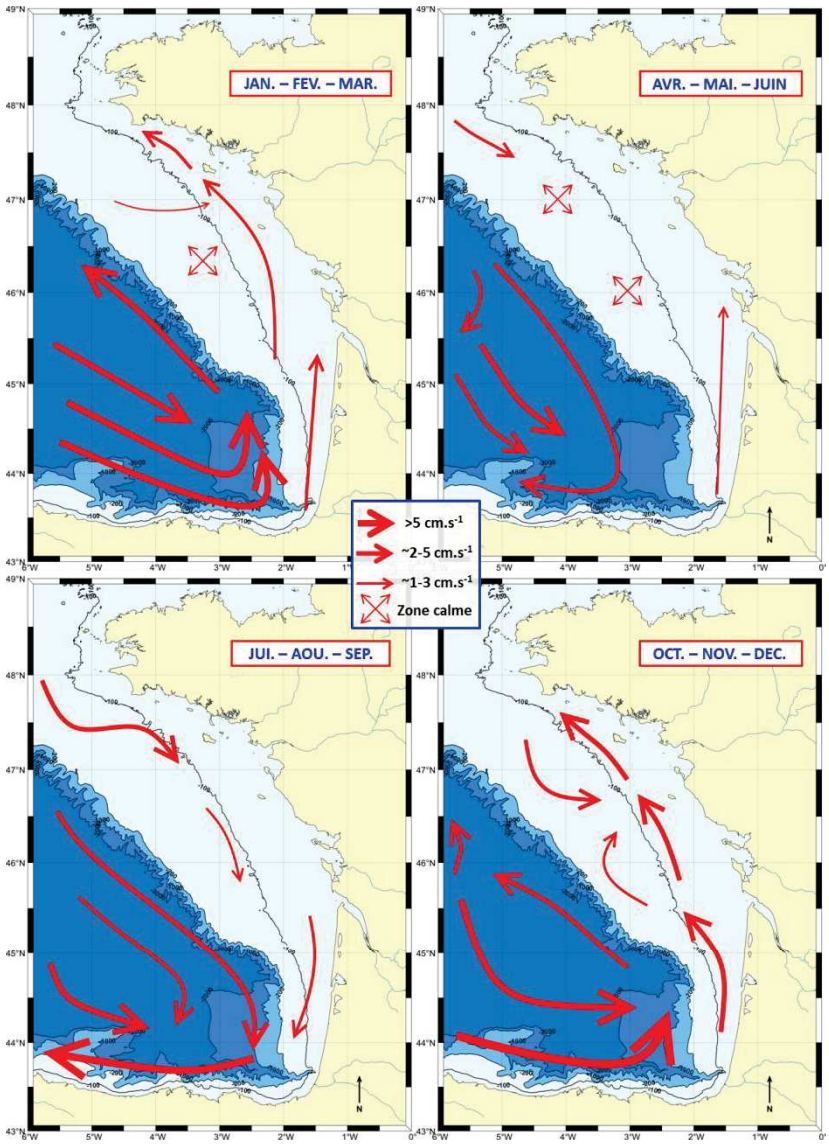


Figure 1.5 – Climatologie de la circulation océanique de surface dans le golfe de Gascogne d'après Charria *et al.*, 2013. Les auteurs ont analysé les trajectoires de bouées dérivantes à la surface (entre 15 et 80 m) de 1992 à 2009.

1.4 Les moteurs de la dispersion

1.4.1 La marée

La marée est la variation du niveau de la mer due principalement à la combinaison de l'attraction gravitationnelle exercée sur l'océan par la Lune, proche de la Terre, et de celle du Soleil, de par sa masse. La marée est constituée d'une somme de différentes composantes harmoniques associées pour certaines aux mouvements des astres et pour d'autres à des interactions non-linéaires des composantes de marée entre elles. La composante de marée qui prédomine dans le golfe de Gascogne est l'onde de marée semi-diurne M2 (période de 12,42 h) responsable de l'élévation de la surface d'environ 1,6 m à la côte (Le Cann, 1990). La composante quart-diurne M4, résultante de l'interaction de l'onde M2 avec elle-même, n'est pas négligeable et entraîne des surélévations de quelques dizaines de centimètres (Pairaud *et al.*, 2008) (Figure 1.6A et B). Les autres composantes de marée ont une influence relative moindre, néanmoins la prise en compte de l'ensemble de ces composantes est essentielle à la reconstitution d'un signal précis de marée dans le golfe de Gascogne.

L'onde de marée est amplifiée sur le plateau continental et se propage du large vers la côte. Les courants générés par la composante de marée M2 sont les plus forts là où le plateau est le plus large. Ils augmentent donc du Sud du golfe de Gascogne vers le Nord pour atteindre leur maximum à l'entrée de la Manche (50 $cm.s^{-1}$) (Le Cann, 1990). Sur le plateau Aquitain, les courants de marée sont d'environ 3 $cm.s^{-1}$, pour 15 $cm.s^{-1}$ sur le plateau Armoricain, avec des amplifications locales importantes de l'ordre de 1 $m.s^{-1}$, au niveau de l'embouchure de la Gironde par exemple. Sur un cycle complet de marée le courant résiduel de marée est très faible sur le plateau (<1 $cm.s^{-1}$) à l'exception près des côtes et des changements abrupts de bathymétrie où le courant résiduel peut être d'un ordre de grandeur supérieur (10 $cm.s^{-1}$) (Figure 1.6C et D) (Planque *et al.*, 2004; Lazure et Dumas, 2008; Lazure *et al.*, 2008).

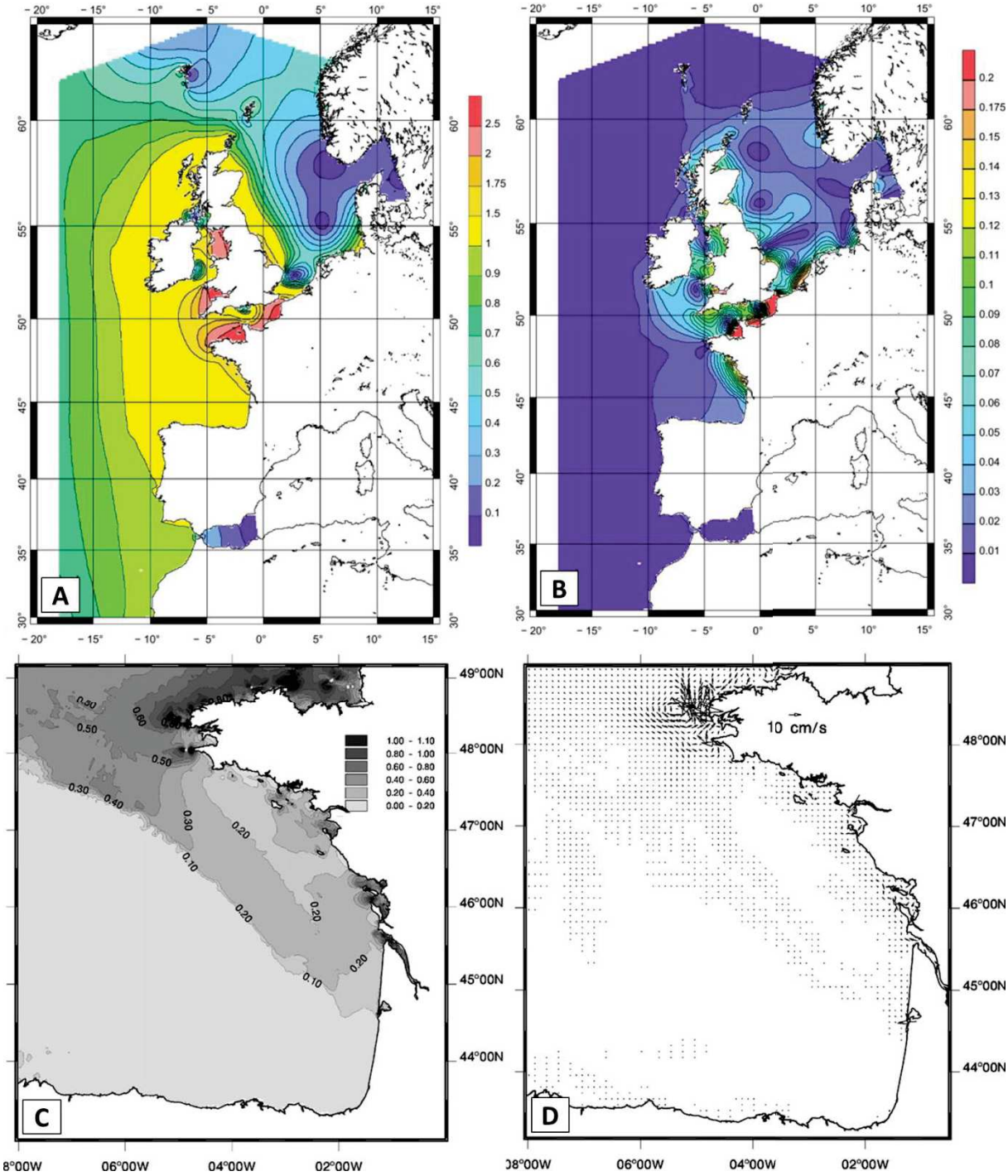


Figure 1.6 – (A) Amplitude (m) de l'onde de marée M2 et (B) M4 modélisée avec le modèle T-UGOm 2D extrait de Pairaud *et al.*, 2008. (C) Vitesses maximales ($m.s^{-1}$) et (D) courants résiduels ($cm.s^{-1}$) modélisés durant un cycle de marée M2 avec le modèle MARS3D, extrait de Lazure et Dumas, 2008. Figure modifiée d'après Khojasteh Pour Fard, 2015.

Cependant la marée contribue indirectement au transport des masses d'eau en générant de forts gradients de densité. La marée permet le mélange de la colonne d'eau par frottement sur le fond en générant une turbulence qui homogénéise la salinité et la température sur la verticale empêchant la thermocline saisonnière de se développer lorsque les courants de marée sont importants. Ce facteur

peut être quantifié par le paramètre de stratification de Simpson-Hunter (SH) (Simpson et Hunter, 1974). Ce paramètre représente la capacité de la turbulence, induite par le frottement sur le fond, à mélanger la colonne d'eau, il est défini tel que :

$$SH = \frac{H}{C_{d_{fond}} U^3} \tag{1.1}$$

Avec :

H : Hauteur de la colonne d'eau ;

$C_{d_{fond}}$: Coefficient de frottement sur le fond ;

U : Courant de marée moyenné sur la verticale.

La représentation de ce critère sur le plateau du golfe de Gascogne par Lazure *et al.*, 2008, (Figure 1.7), montre que les eaux présentes sur la grande majorité du plateau ont le potentiel pour être stratifiées (SH > 2). Ce critère est minimum au niveau des îles de Sein, d'Ouessant et de Belle-Ile. Il démontre le fort mélange de la marée à ces endroits. Au niveau des estuaires les faibles valeurs du critère de Simpson-Hunter n'indiquent pas une absence totale de stratification, car les apports d'eaux douces selon les saisons créent une stratification haline qui n'est pas prise en compte dans le calcul. Le mélange induit par le vent n'est également pas considéré dans ce critère.

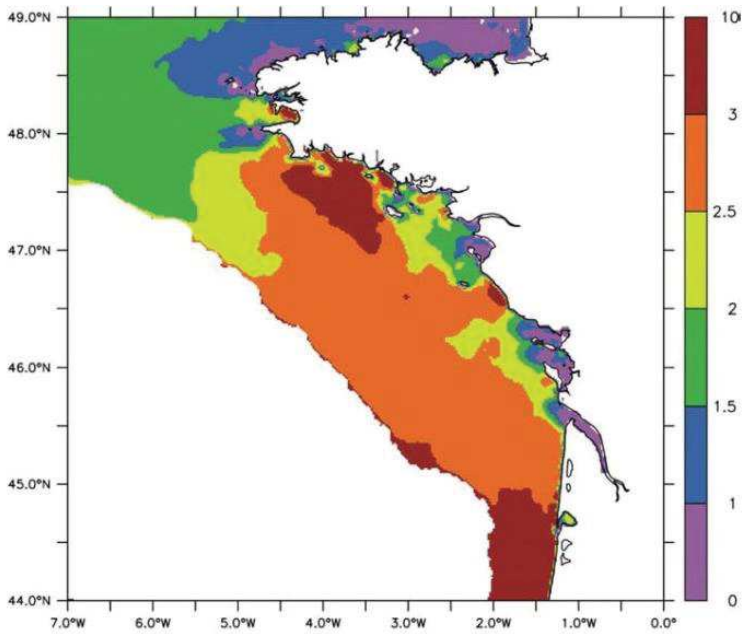


Figure 1.7 – Critère de Simpson-Hunter (SH, Equation (1.1)) exprimé en échelle logarithmique, extrait de Lazure *et al.*, 2008. SH > 2,7 indique que la colonne d'eau est potentiellement stratifiable.

La séparation entre une masse d'eau mélangée par la marée et une autre masse d'eau stratifiée est appelée front de marée (Huthnance, 1995; Pairaud, 2005). Dans le Golfe de Gascogne, ce phénomène

est responsable de la formation du bourrelet froid entre l'embouchure de la Loire et de la Gironde par des profondeurs de 50 à 120 m (Vincent et Kurc, 1969) (Puillat *et al.*, 2004), et également du front d'Ouessant en mer d'Iroise (*cf.* 1.4.3.1).

La marée contribue également au mélange de la couche de surface au niveau du talus continental à travers la génération d'ondes internes. Les ondes internes sont générées au niveau du talus continental. Les variations abruptes de la topographie créent une vitesse verticale importante lors du flux et du reflux des courants de marée barotropes qui induisent une oscillation des isopycnes au rythme de la marée semi-diurne. Ces ondes internes se propagent de part et d'autre du talus dans la thermocline. L'oscillation ainsi générée le long de la thermocline estivale contribue au mélange diapycnal dans la couche de surface (Pairaud, 2005). Le long du talus continental, ce mélange induit en surface, sur une étendue d'environ 30 km de large, des eaux dont la température de surface est de 1 à 2 °C plus froide que les eaux situées aux alentours. Cette langue d'eau froide est visible de la fin du printemps à l'automne (Pingree et New, 1995).

En résumé, le courant résiduel de marée étant très faible, le transport des masses d'eau dépend principalement du vent et des gradients de densité (Lazure et Jégou, 1998). Néanmoins la marée agit de façon indirecte sur le transport des masses d'eau en induisant de forts gradients de densité près des côtes et du talus continental.

1.4.2 Le vent

1.4.2.1 Régime saisonnier du vent

La circulation atmosphérique dans l'Atlantique Nord et l'Europe de l'Ouest est gouvernée par deux principaux centres d'activités atmosphériques : une zone de haute pression atmosphérique centrée en moyenne près des Açores (Anticyclone des Açores) et une zone de basse pression centrée en moyenne près de l'Islande (Dépression Islandaise) (Figure 1.8). La circulation géostrophique qui résulte de ce gradient méridien de pression entraîne une prédominance des vents d'Ouest sur le Golfe de Gascogne. Cette circulation zonale Ouest-Est varie en intensité et en direction selon les saisons. Les directions et vitesses de vents moyennées à l'échelle du golfe de Gascogne (Figure 1.9) mettent en évidence deux régimes de vents saisonniers. Durant le printemps et l'été la direction du vent est majoritairement Ouest-Nord-Ouest avec une faible occurrence de vitesses de vents supérieures à 10 $m.s^{-1}$. Durant l'automne et l'hiver le vent s'accélère et bascule en direction Sud-Sud-Ouest (Figure 1.9). Ces variations de directions saisonnières s'expliquent en partie par l'intensification de la Dépression Islandaise en hiver et de l'Anticyclone des Açores en été, qui entraine une différence d'inflexion dans la direction moyenne des vents.

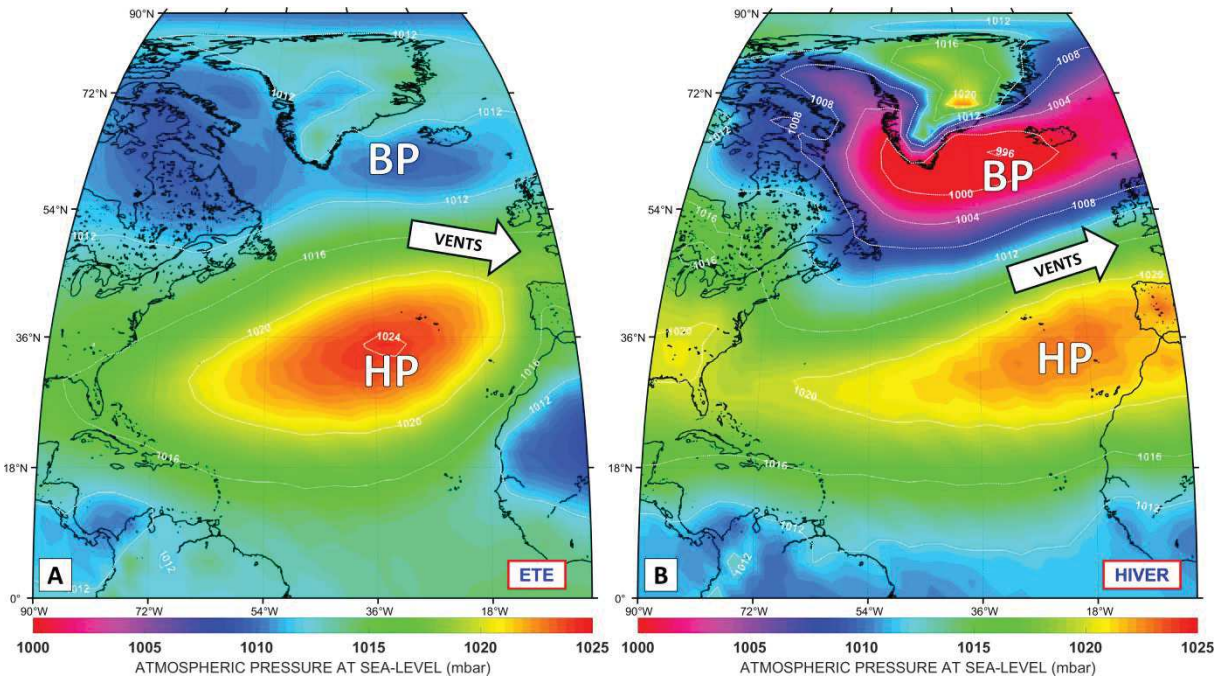


Figure 1.8 – Moyenne saisonnière de la pression atmosphérique au niveau de la mer entre 1998 et 2018 en été (A) et en hiver (B). HP : Haute pression, correspond à l'Anticyclone des Açores ; BP : Basse Pression correspondant à la Dépression Islandaise. La direction du vent dans le golfe de Gascogne est indiquée par une flèche blanche. Les données sont extraites des réanalyses du modèle NCEP/NCAR Reanalysis (Kalnay *et al.*, 1996) disponible en ligne : https://www.esrl.noaa.gov/psd/data/gridded/data.ncep.reanalysis.derived.html.

Le régime des temps dans l'Atlantique Nord ne se résume pas uniquement à la différence méridienne de pression entre la dépression islandaise et l'anticyclone des Açores, caractérisée par l'indice NAO (North-Atlantic Oscillation) (Hurrell, 1995). Il est également déterminé par des différences zonales de pression à savoir le régime de blocage et le régime de dorsale (Cassou, 2008) (Figure 1.10). Elles entraînent une grande variabilité du climat et de la direction des vents (Figure 1.9) sur l'Europe de l'Ouest à l'échelle de la semaine.

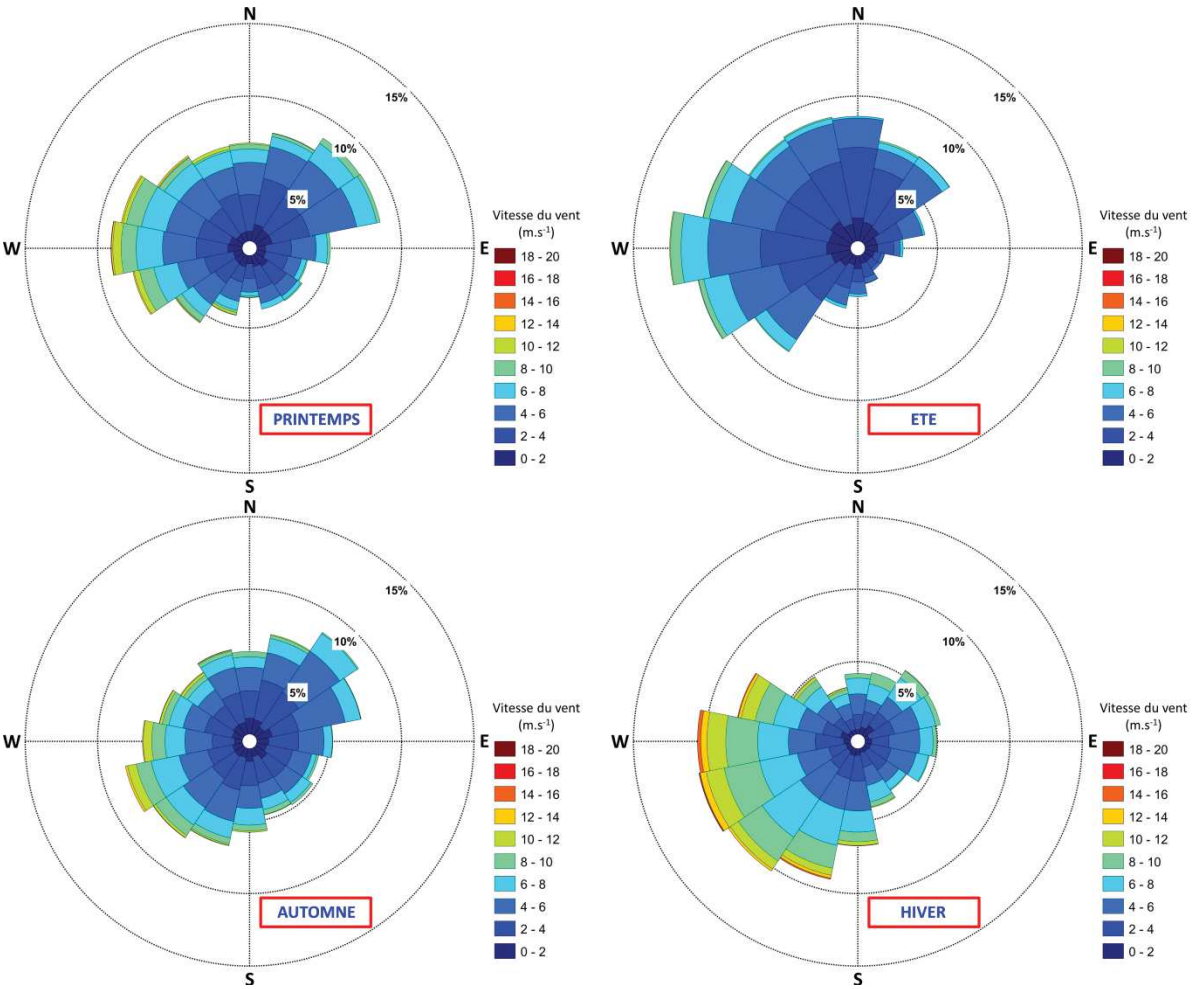


Figure 1.9 – Directions et vitesses du vent issues de la moyenne des composantes de vitesses du vent entre -6°W et 0°W de longitude, 43°N et 49°N de latitude du 01/01/2007 au 31/12/2016, issues des modèles météorologiques ARPEGE (2007 - 2011) et ARPEGE HR (2012 - 2016).

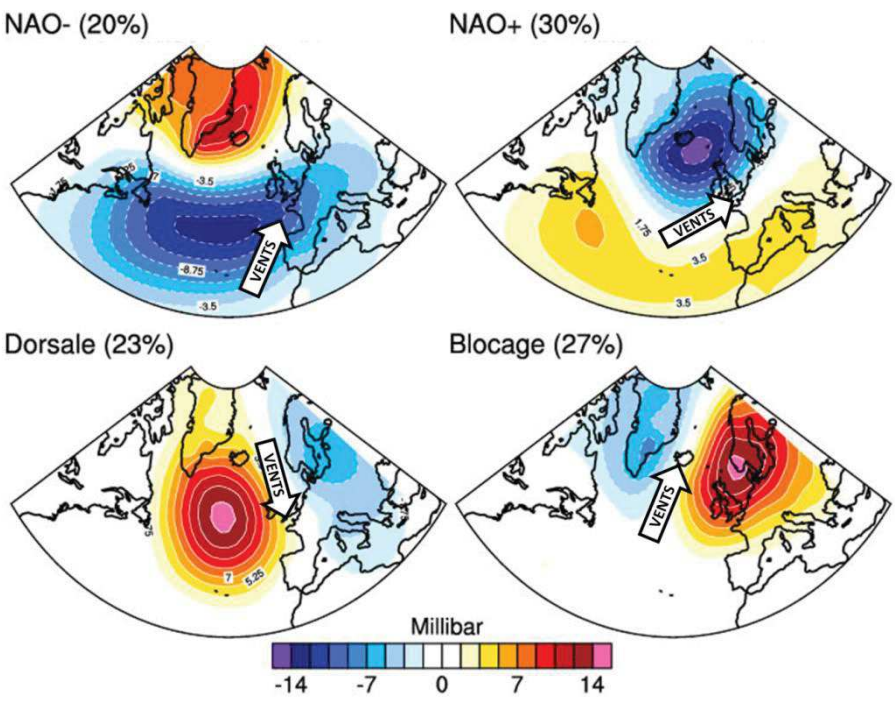


Figure 1.10 – Anomalie journalière de pression de surface (millibar) correspondant aux quatre régimes de temps d'hiver (Novembre à Mars) sur l'Atlantique Nord. Le pourcentage représente l'occurrence moyenne de ces régimes sur la période 1974-2007. D'après Cassou, 2008, disponible en ligne : http://www.insu.cnrs.fr/environnement/atmosphere/vers-une-prevision-de-la-meteo-depassant-la-semaine. Les flèches de direction des vents ont été insérées à la figure originale à titre indicatif.

1.4.2.2 Upwelling et Downwelling

Lorsque le vent souffle parallèlement à la côte, le transport d'Ekman associé à 90° de la direction du vent entraîne une divergence ou une accumulation de la masse d'eau à la côte, selon le sens de la tension du vent (Figure 1.11).

Dans le golfe de Gascogne, en été lorsque les vents-dominants de Nord-Nord-Ouest sont parallèles à la côte, l'eau de surface, transportée vers le large, induit une remontée des eaux situées en dessous de la couche d'Ekman. Ce processus est appelé « upwelling » (Figure 1.11A). Un upwelling apporte ainsi en surface des eaux profondes plus froides et riches en nutriments que les eaux de surface qu'elles remplacent. Les upwellings associés à une forte stratification saisonnière entrainent un découplage accentué entre la surface et le fond et renforcent l'advection vers le large et le Sud des panaches de surface.

À l'inverse en hiver, lorsque les vents-dominants de Sud-Sud-Ouest soufflent parallèlement à la côte, l'entraînement de la couche de surface vers la côte induit une accumulation d'eau contre cette dernière et une plongée des eaux en profondeur. Ce processus est appelé « downwelling » (Figure 1.11B). La

pente de la surface libre associée à l'accumulation des eaux à la côte renforce par géostrophie l'advection des panaches vers le Nord et près des côtes.

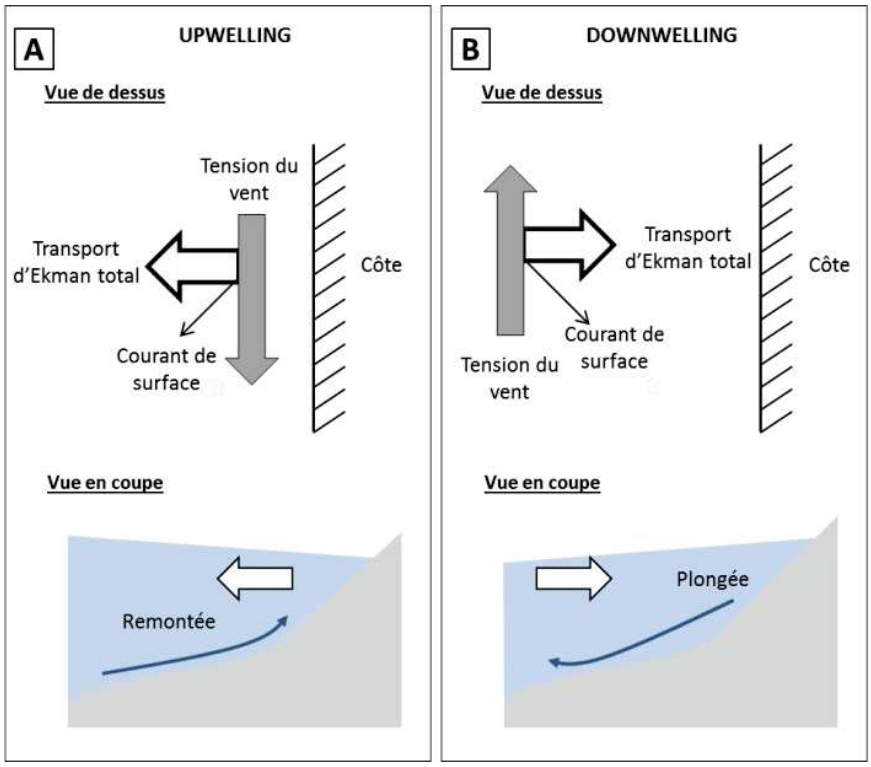


Figure 1.11 – Principe des mécanismes d'upwelling (A) et de downwelling (B), cas théorique dans l'Hémisphère Nord.

1.4.3 Les fronts de densité

La salinité et la température déterminent avec la pression la masse volumique ou densité (ρ) de l'eau de mer. L'influence de la température et de la salinité sur la densité n'est pas linéaire, elle est donnée par l'équation de l'état de l'eau de mer (TEOS-10, 2010).

Les variations de température et/ou de salinité forment des fronts de densité induisant par géostrophie des courants baroclines intensifiés en surface selon la relation du vent thermique (Equation (1.2)) :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial u}{\partial z} = + \dfrac{g}{\rho_0 f} \dfrac{\partial \rho}{\partial y} \\ \dfrac{\partial v}{\partial z} = - \dfrac{g}{\rho_0 f} \dfrac{\partial \rho}{\partial x} \end{cases} \tag{1.2}$$

Avec :

g: Accélération de la pesanteur ($m^2.s^{-1}$) ;

u, v : Composantes horizontales du vecteur vitesse ($m.s^{-1}$) ;

x, y, z : Coordonnées cartésiennes ;

ρ_0 : Masse volumique de référence de l'eau selon l'approximation de Boussinesq (kg.m^{-3}) ;

ρ : Masse volumique de l'eau (kg.m^{-3}) ;

f : Paramètre de Coriolis (s^{-1}).

Ces équations sont obtenues à partir des équations de Navier-Stokes selon l'approximation de Boussinesq, en supprimant l'accélération (courants permanents) et les termes de frottements. La relation (1.2) montre qu'un gradient horizontal de densité négatif ($\frac{\partial \rho}{\partial x} < 0$, selon un axe Ouest-Est) entraine un courant dirigé vers le Nord ($\frac{\partial v}{\partial z} > 0$). Un gradient horizontal de densité de 0,4 kg.m^{-3} sur 10 km génère 50 m au-dessus du fond, un courant de 20 cm.s^{-1} sur le plateau Nord-Ouest européen (Hill *et al.*, 2008). Sur le plateau continental les gradients de densité se forment principalement entre une masse d'eau stratifiée (flux atmosphérique ou apports d'eau douce) et une masse d'eau dé-stratifiée par des processus de mélanges verticaux comme la marée, le vent ou les ondes internes. Les courants générés par les fronts de densité sont d'après Hill *et al.*, 2008 les plus importants acteurs du transport saisonnier sur le plateau continental.

Hill et Simpson, 1989 classent les fronts en deux types I et II (Figure 1.12). Le type I est caractérisé par un front continu dont les isopycnes s'étendent de façon continue de la surface jusqu'au fond. Le type II est représenté par une divergence des isopycnes vers la surface et vers le fond. Ces deux types de fronts se rencontrent sur le plateau continental en fonction des saisons. Le type I est caractéristique des fronts halins lors d'apports importants d'eau douce par les fleuves. Le type II est caractéristique des fronts thermiques rencontrés en période de stratification estivale entre des eaux côtières homogénéisées par la marée et des eaux stratifiées. Ces deux types de fronts engendrent des courants géostrophiques dirigés vers le Nord.

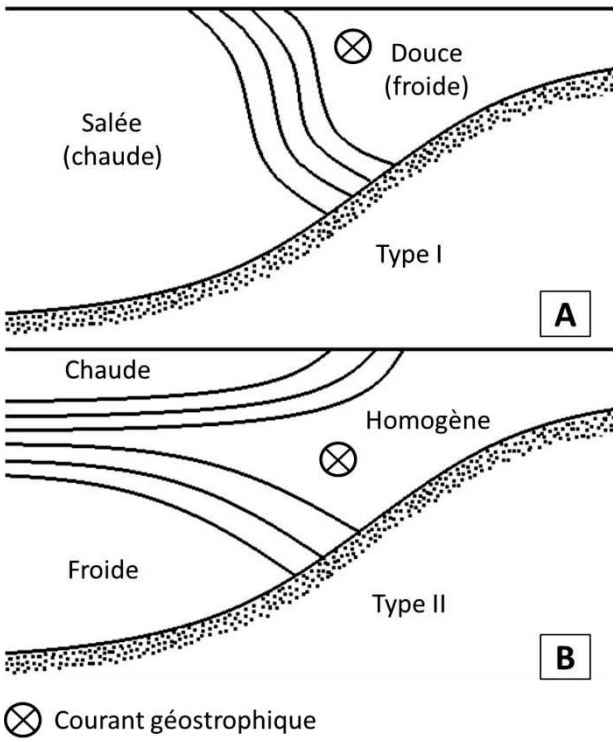


Figure 1.12 – Représentation schématique des fronts de densité : (A) type I et (B) type II, d'après Hill et Simpson, 1989. Les fronts de densité sont représentés par les lignes noires continues.

1.4.3.1 Les fronts thermiques de marée

L'homogénéisation jusqu'en surface de la colonne d'eau par le frottement des courants de marée sur le fond dépend fortement de la hauteur de la colonne d'eau à homogénéiser, de l'intensité des courants de marée et de la stratification saisonnière. Le plateau continental en pente du golfe de Gascogne et sa bathymétrie irrégulière près de certaines îles, engendrent des différences dans le mélange de la colonne d'eau par la marée, induisant des gradients de densité horizontaux illustrés (Figure 1.13).

L'intensification du rayonnement solaire au printemps et en été génère un réchauffement de la couche de surface mélangée par les vents. Ce réchauffement entraine une stratification de l'océan et un isolement des couches inférieures plus froides par une thermocline. Sur le plateau du golfe de Gascogne durant la période estivale, l'établissement de la stratification saisonnière, piège entre la thermocline et le fond, une masse d'eau froide surnommée « bourrelet froid» (Figure 1.13) (Vincent et Kurc, 1969) qui garde tout au long de l'année sa température hivernale. Au début de l'automne lorsque les flux de chaleur à l'océan deviennent négatifs, le mélange par la marée entraine la rupture de la stratification près des côtes. La colonne d'eau devient homogène de la surface jusqu'au fond (Figure 1.13) et un front de fond sépare la masse d'eau stratifiée de la masse d'eau côtière mélangée. Lazure *et al.*, 2008 ont montré à l'aide de bouées dérivantes et de modèles numériques

qu'en automne, sur le plateau Armoricain, de tels gradients de densité génèrent des courants dirigés vers le Nord, de 10 cm.s[1] en moyenne et pouvant atteindre jusqu'à 25 cm.s^{-1}.

En Mer d'Iroise, le front de marée d'Ouessant (Mariette et Le Cann, 1985; Le Boyer *et al.*, 2009) sépare les eaux stratifiées du large et les eaux côtières mélangées par le frottement de la marée. Les vitesses géostrophiques estimées à partir du gradient de densité du front de marée d'Ouessant sont de l'ordre de 30 cm.s^{-1}.

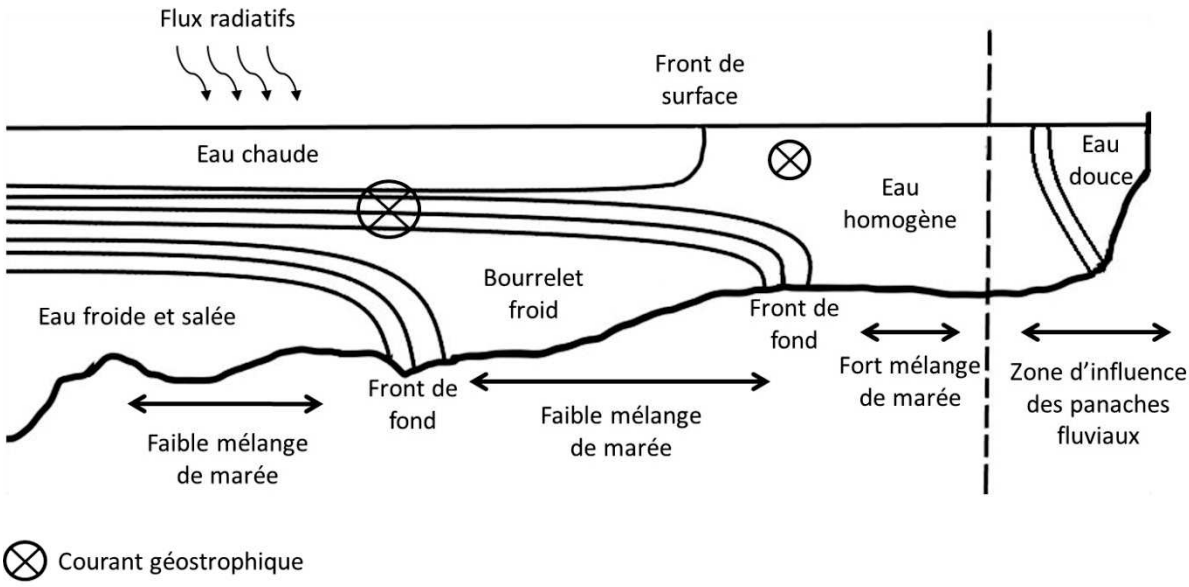


Figure 1.13 – Représentation des différents fronts de densité et des courants associés en été à travers un plateau continental à fort mélange de marée. Extrait de Hill *et al.*, 2008.

1.4.3.2 Les panaches fluviaux

Les apports d'eau douce dans le golfe de Gascogne induisent de fortes stratifications halines sur le plateau selon la propagation des panaches fluviaux à la surface. La stratification haline étant dépendante des débits, elle est en général minimale au début de l'automne, et maximale au début du printemps (Lazure et Jegou, 1998; Puillat *et al.*, 2004) (Figure 1.14). Les apports d'eau douce peuvent induire des gradients de densité importants (type I, Figure 1.12) qui génèrent d'intenses courants baroclines s'écoulant vers le Nord dans la couche de surface en suivant la relation du "vent thermique" (Equation (1.2)), du fait de la force de Coriolis (Chapman et Lentz, 1994; Yankovsky et Chapman, 1997). La vitesse modélisée de ce courant barocline peut atteindre 20 cm.s^{-1} (Lazure et Jégou, 1998).

Table 1.1 – Débits annuels moyens des principaux affluents du Golfe de Gascogne et leur contribution relative entre le 01/01/2005 et le 31/12/2015. (Données banque HYDRO)[1].

	Loire	Gironde	Vilaine	Charente	Adour	Total
Débits ($m^3.s^{-1}$)	744	762	74	64	283	1927
Contribution relative	38,6 %	39,5 %	3,9 %	3,3 %	14,8 %	100 %

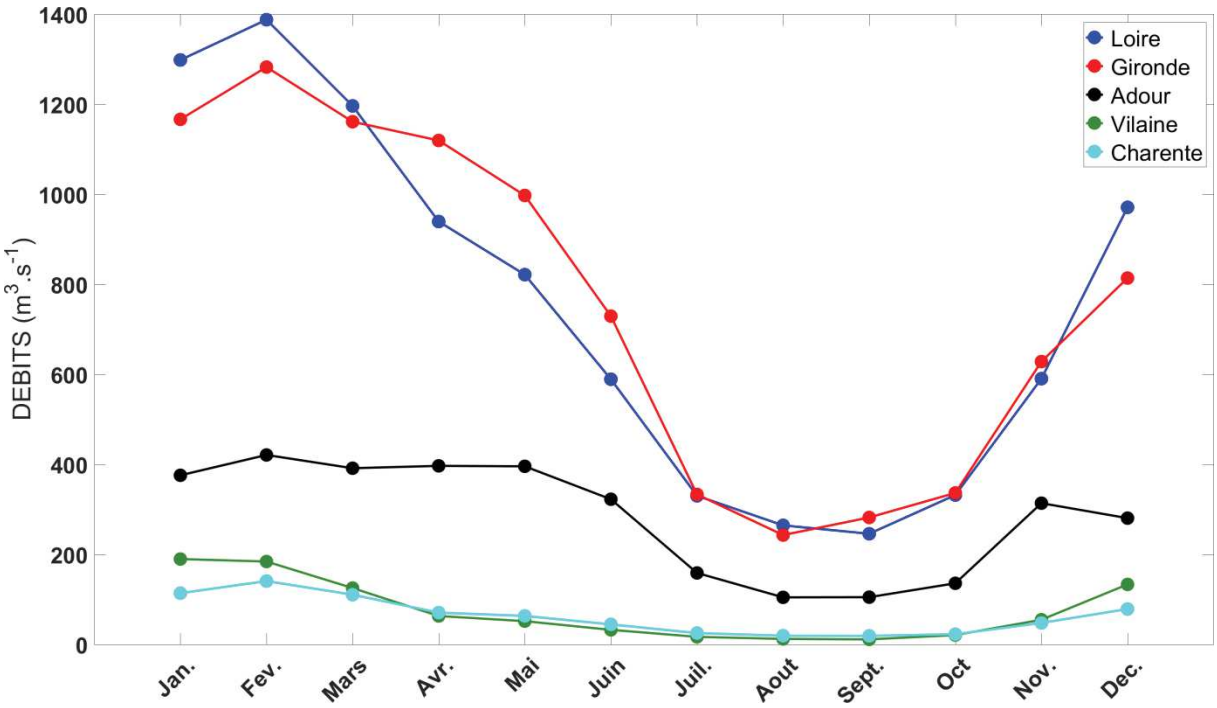


Figure 1.14 – Moyennes mensuelles des débits de la Loire (bleu), de la Gironde (rouge), de la Vilaine (vert), de la Charente (cyan) et de l'Adour (noir) entre le 01/01/2005 et le 31/12/2015. (Données banque HYDRO)[1].

En l'absence de forçage par le vent, les panaches fluviaux forment une cellule tourbillonnaire anticyclonique à l'embouchure de l'estuaire prolongée par un étroit courant côtier à droite de l'estuaire dans le sens de l'écoulement (Garvine, 1987). Horner-Devine *et al.*, 2006 ont démontré expérimentalement que le mouvement au sein du tourbillon anticyclonique est à l'équilibre cyclostrophique (la force centrifuge et la force de Coriolis équilibrent le gradient horizontal de

[1] Les moyennes annuelles et mensuelles des débits de la Loire ont été calculées avec les données de débits journaliers de la banque HYDRO pour la station de Montjean-sur-Loire disponibles entre le 01/01/1900 et le 31/12/2016.
Les moyennes annuelles et mensuelles des débits de la Gironde ont été calculées en additionnant les données de débits journaliers de la banque HYDRO pour les stations de Tonneins (Garonne), Abzac (Isle), Coutras (Dronne) et Bergerac (Dordogne) disponibles entre le 01/01/1989 et le 31/12/2015.
Les moyennes annuelles et mensuelles des débits de la Vilaine ont été calculées avec les données de débits journaliers de la banque HYDRO pour la station de Rieux disponibles entre le 01/01/2003 et le 31/12/2016.
Les moyennes annuelles et mensuelles des débits de la Charente ont été calculées avec les données de débits journaliers de la banque HYDRO pour la station de Chaniers disponibles entre le 01/01/2005 et le 31/12/2016.
Les moyennes annuelles et mensuelles des débits de l'Adour ont été calculées en additionnant les données de débits journaliers de la banque HYDRO pour les stations d'Escos (Gave d'Oloron), de St Vincent de Paul (Adour), de Combo-les-Bains (Nive) et Beranx (Gave de Pau) disponibles entre le 01/01/2000 et le 31/12/2016.

pression) et que celui du courant côtier est à l'équilibre géostrophique (le gradient horizontal de pression équilibre la force de Coriolis). L'action du vent sur le panache peut renforcer ou inverser cette circulation type selon sa direction (Chao, 1988).

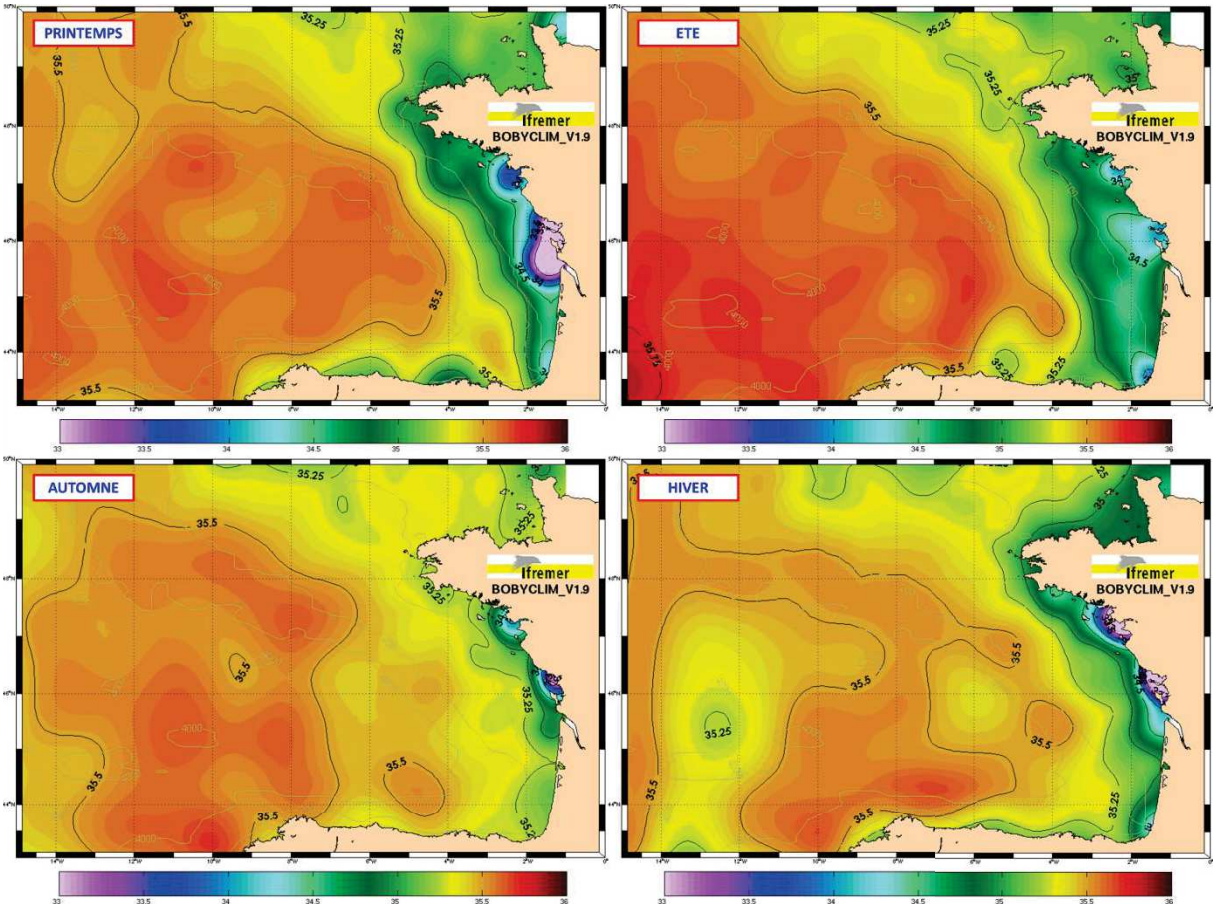


Figure 1.15 – Cartographie de la variation saisonnière de la salinité de surface, issue de la climatologie BOBYCLIM extrait de Vandermeirsch *et al.*, 2010.

La Figure 1.15 présente les variations saisonnières des panaches en surface déterminées à partir de la base de données BOBYCLIM (Vandermeirsch *et al.*, 2010). En Automne et en hiver on observe une advection préférentielle des panaches vers le Nord et restreinte à la côte. Alors qu'au printemps et en été, l'orientation des panaches est inversée, l'isohaline 35,25 atteint son extension maximale jusqu'au talus continental. Pour expliquer ces variations saisonnières (Lazure et Jégou, 1998) ont modélisé l'évolution des panaches de la Loire et de la Gironde sous l'effet combiné de la marée, du vent et des forçages thermiques et halins. En hiver, dans le golfe de Gascogne, les vents de Sud-Sud-Ouest entrainent des downwellings à la côte qui par compensation géostrophique vont intensifier l'advection des panaches vers le Nord, le long des côtes, jusqu'en Mer d'Iroise. En Été, les vents de Nord-Nord-Ouest entrainent des upwellings à la côte qui vont inverser l'advection des panaches vers le large et vers le Sud. De plus, la forte stratification de la colonne d'eau en été permet un découplage plus

important de la couche de surface moins dense que celle du fond. L'advection du panache vers le large est alors intensifiée et des dessalures sont visibles jusqu'au talus (Puillat *et al.*, 2004).

1.5 Synthèse

Ce chapitre a permis de décrire l'hydrologie et l'hydrodynamisme complexes du golfe de Gascogne. La circulation saisonnière moyenne des masses d'eau mise en évidence par Charria *et al.*, 2013 malgré de fortes variabilités spatio-temporelles a été présentée.

Elle se compose d'une circulation privilégiée vers le Nord en automne et en hiver et d'une inversion vers le sud au printemps et en été, conjointement à la renverse des vents dominants du Sud-Ouest au Nord-Ouest durant ces saisons.

Les notions sur les différents acteurs (la marée, le vent et les gradients de densité) régissant la dispersion en milieu côtier ont été introduites. Selon les échelles de temps étudiées, ces trois acteurs auront une importance relative différente dans les processus de dispersion.

L'évolution des panaches fluviaux décrit par Lazure et Jégou, 1998 sous les effets combinés de la marée, du vent et des gradients de densité, a été présentée. En été, la stratification thermique augmentant le découplage entre la surface et le fond, en plus de vents, upwelling favorables, il en résulte une dispersion des panaches vers le large et vers le Sud, confinée en surface. En période hivernale l'augmentation des apports d'eau douce par les fleuves et celle des vents downwelling favorables intensifie l'advection des panaches le long de la côte vers le Nord.

Un des objectifs de la thèse étant de différencier la contribution relative des apports continentaux de la Loire et de la Gironde à l'aide d'un traceur complémentaire à la salinité, le tritium, le chapitre suivant introduit et présente ce traceur.

CHAPITRE 2

LE TRITIUM

Chapitre 2. Le tritium

2.1 Généralités

Le tritium, symbolisé ^{3}H ou T, est comme le protium (^{1}H) ou le deutérium (^{2}H), un des trois isotopes naturels de l'hydrogène (H), qui se différencient par leur nombre de neutrons. Il a été identifié en 1932 par Urey puis découvert par Rutherford en 1934 et séparé par Alvarez en 1937 (Gaza et Amiard, 2010).

Les isotopes d'un même élément ont des propriétés chimiques identiques. Le tritium est différent du protium et du deutérium par son instabilité nucléaire et sa forte différence de masse atomique (3,01605 u pour ^{3}H et 1,00794 u pour ^{1}H). Ces différences de masses entre les isotopes stables de l'hydrogène et le tritium ne modifient pas les réactions chimiques en tant que telles, mais seulement leur cinétique de réaction. Le phénomène de ségrégation isotopique lors des changements de phase de l'eau est observé, avec un faible enrichissement en tritium dans la phase d'eau la plus condensée (ASN, 2010). En conditions naturelles, aucune accumulation de tritium significative n'est impliquée par cette faible discrimination isotopique (Belot *et al.*, 1996).

Le tritium est le seul isotope radioactif naturel de l'hydrogène, avec une période de demi-vie égale à 4497 ± 4 jours (~12,32 ans) (MacMahon, 2006). En se désintégrant, le tritium émet un atome de ^{3}He stable et un rayonnement β^{-} (électron) de faible énergie ($E_{moyenne}$=5,7 keV et E_{max}=18,6 keV) suivant l'équation suivante.

$$^{3}_{1}H \rightarrow ^{3}_{2}He + \beta^{-} \tag{2.1}$$

La faible énergie de l'électron émis suite à la désintégration entraîne un parcours maximum dans l'eau et dans l'air de 6 µm et 5 mm, respectivement (Hill et Johnson, 1993; Belot *et al.*, 1996).

Les quantités de tritium sont exprimées (i) en activité : l'unité est le Becquerel (Bq) sachant qu'1 Bq correspond à une désintégration par seconde; (ii) en activité massique : un gramme de tritium équivaut à une activité de $3{,}56\times10^{14}$ Bq ; (iii) en unité de concentration : TU sachant qu'1 TU représente la proportion d' un atome de tritium pour 10^{18} atomes de protium (^{1}H).

La conversion de TU en $Bq.kg^{-1}$ a varié au cours du temps en fonction des améliorations de la connaissance de la période radioactive du tritium. Pour un temps de demi-vie de 12,32 ans, 1 TU est égal à 0,1192 $Bq.kg^{-1}$ d'eau tritié (HTO).

2.2 Formes chimiques et radiotoxicité du tritium

Le tritium est présent sous plusieurs formes chimiques dépendant du compartiment auquel il est associé (*i.e* l'atmosphère, l'hydrosphère et la biosphère).

99% du tritium atmosphérique est présent sous la forme de vapeur d'eau tritiée HTO et aboutit dans les océans en suivant le cycle de l'eau. Néanmoins dans l'atmosphère, le tritium peut être également retrouvé sous la forme de dihydrogène tritié (HT) et de méthane tritié (CH_3T).

Le dihydrogène tritié (HT) dans l'atmosphère est peu oxydé en HTO (Ehhalt et Rohrer, 2009). Son temps de résidence y est de plusieurs années (Happell *et al.*, 2004) alors qu'il est d'un mois pour HTO (Taylor, 1966). L'oxydation bactérienne du HT en HTO dans les sols est le principal puit de HT atmosphérique (Novelli *et al.*, 1999).

Le tritium sous forme d'eau tritiée peut être incorporé dans la matière organique sous forme de tritium organiquement lié (organicaly bound tritium OBT) via les processus biologiques tels que la photosynthèse (Kim *et al.*, 2013; Bacchetta, 2014).

Le tritium a une faible radiotoxicité de par la faible énergie du rayonnement β^- émis lors de sa décroissance radioactive et de son faible parcours dans l'eau (6 µm). Les cellules cibles de la peau situées à 71 µm de profondeur ne sont pas exposées. Les risques liés à une exposition externe sont donc inexistants et seules les situations d'expositions internes sont à considérer (inhalation, ingestion ou absorption). L'eau tritiée est retenue dans l'organisme avec une période biologique de 10 jours (Belot *et al.*, 1996). Une faible partie de l'eau tritiée incorporée est métabolisée sous forme organique avec un temps de renouvellement de 40 à 450 jours (Okada et Momoshima, 1993; Belot *et al.*, 1996). Afin de mesurer l'impact d'un rayonnement ionisant sur des tissus biologiques, on définit la dose efficace pour une unité d'incorporation (DPUI). Il s'agit de la somme des doses équivalentes, pondérée par un facteur de risque qui est associé à chaque organe. La dose incorporée sous forme organique OBT est, pour une même activité incorporée, deux fois supérieures ($4{,}1\times10^{-11}$ Sv.Bq^{-1}) à la dose due au tritium sous forme HTO ($1{,}8\times10^{-11}$ Sv.Bq^{-1}) (ASN, 2010).

2.3 Sources de tritium dans l'environnement

2.3.1 Tritium naturel

Le tritium est produit naturellement par bombardement des principaux constituants de l'atmosphère (l'azote et l'oxygène) par les neutrons présents dans le rayonnement cosmique (Grosse *et al.*, 1951;

Kaufman et Libby, 1954). Les principales réactions de formation de tritium cosmogénique sont décrites par les équations suivantes (Belot *et al.*, 1996) :

$$^{14}N + n \rightarrow 3\ ^{4}He + \ ^{3}H \tag{2.2}$$

$$^{14}N + n \rightarrow \ ^{12}C + \ ^{3}H \tag{2.3}$$

$$^{16}O + n \rightarrow \ ^{3}H + \ ^{14}N \tag{2.4}$$

La production naturelle du tritium dans l'atmosphère est évaluée en moyenne à 3200 atomes.m^{-2}.s^{-1} (Masarik et Beer, 2009), ce qui représente une production annuelle de tritium de 180 Bq.m^{-2}, soit 258 g.an^{-1} (92 PBq.an^{-1}). En supposant que la production équilibre la décroissance radioactive, l'inventaire naturel du tritium sur Terre est évalué à environ 4,5 kg (1 600 PBq).

Une très faible fraction de tritium est d'origine tellurique, issue de la réaction entre les traces de lithium (^{6}Li) contenues dans les roches et les neutrons provenant de la fission spontanée de l'uranium et du thorium (Kaufman et Libby, 1954). La production tellurique pour une roche ignée de 1 km d'épaisseur est estimée à 10 atomes.m^{-2}.s^{-1} (0,56 Bq.m^{-2}.an^{-1}) (Kaufman et Libby, 1954). Dans les océans cette réaction produit moins de 0,01 atomes.m^{2}.s^{-1} (Fireman, 1953), ce qui représente à l'échelle des océans, une production annuelle de 0,1 mg.an^{-1}. Ces contributions telluriques et océaniques sont négligées en comparaison de la production naturelle atmosphérique.

2.3.2 Tritium anthropique

L'activité humaine contribue à la présence de tritium dans l'environnement, *via* les activités nucléaires militaires et civiles. A l'échelle mondiale, les rejets industriels de tritium sont estimés, entre 1998 et 2002, à environ 11,7 PBq.an^{-1} pour les rejets gazeux et à 16,0 PBq.an^{-1} pour les rejets liquides soit une activité totale de 27,7 PBq.an^{-1} (~78 g.an^{-1}) (UNSCEAR, 2016). De ce fait, le tritium est l'un des radionucléides rejetés par l'homme dans l'environnement ayant les flux les plus importants. Les principales sources de production du tritium anthropique sont par ordre d'importance : les essais nucléaires atmosphériques, les usines de retraitement du combustible nucléaire et les centres nucléaires de production d'électricité (CNPE).

2.3.2.1 Essais nucléaires

Entre 1945 et 1996, et essentiellement entre 1952 et 1963, les essais d'armes thermonucléaires réalisés par différents pays ont représenté des sources majeures de tritium d'origine anthropique. La quantité totale de tritium rejetée dans l'atmosphère durant cette période a été estimée entre 520 et 550 kg

(Michel, 1976; UNSCEAR, 2000; UNSCEAR, 2016). En tenant compte de la décroissance radioactive, ce stock équivaut en 2016 entre 22 et 24 kg, répartis entre les océans (90%), les eaux continentales (9 %) et l'atmosphère (1 %) (Belot *et al.*, 1996; Guétat *et al.*, 2008; Gazal et Amiard, 2010).

Avant les essais atmosphériques, les activités mesurées sur Terre étaient de 0,6 Bq.L^{-1} dans les eaux de pluie, 0,3 à 0,8 Bq.L^{-1} dans les fleuves et inférieures à 0,1 Bq.L^{-1} dans les océans (ASN, 2010). Lors de l'arrêt des essais atmosphériques (1968), la concentration en tritium dans l'eau de pluie moyennée dans l'hémisphère Nord a atteint 150 Bq.L^{-1} et a dépassé 700 Bq.L^{-1} localement (Belot *et al.*, 1996). Depuis 2010, les concentrations moyennes annuelles dans la pluie sont comprises entre 0,2 Bq.L^{-1} et 1,5 Bq.L^{-1}. Les concentrations à la surface de l'océan en 2016 sont comprises entre 0,006 Bq.L^{-1} et 0,12 Bq.L^{-1} (Oms *et al.*, 2018). L'échange de vapeur d'eau entre l'atmosphère et l'océan de surface moins tritié entraine une dilution de la masse d'air océanique et de la pluie en résultant (Figure 2.1).

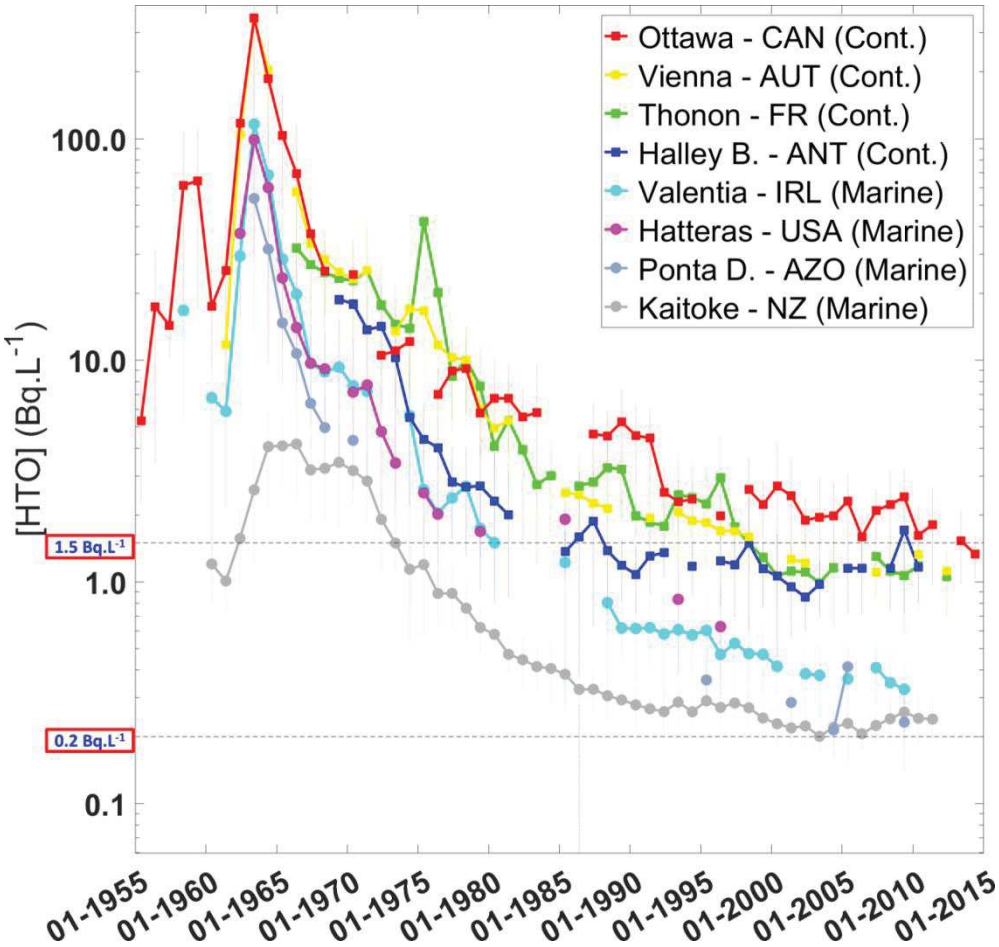


Figure 2.1 – Concentrations annuelles moyennes du tritium dans la pluie (en Bq.L^{-1}, échelle logarithmique base 10). Les points de prélèvements influencés par des masses d'air marines sont représentés avec des points et ceux influencés par des masses d'air terrestres sont représentés par des carrés. CAN, Canada ; AUT, Autriche ; FR, France ; ANT, Antarctique ; IRL, Irlande ; USA, Etats-Unis d'Amérique ; AZO, Açores ; NZ, Nouvelle-Zélande. 0,2 Bq.L^{-1} et 1,5 Bq.L^{-1} sont les limites inférieures et supérieures actuelles des concentrations annuelles moyennes du tritium dans la pluie. Source : IAEA, https://nucleus.iaea.org/wiser/index.aspx.

2.3.2.2 Centres Nucléaires de Production d'Electricité (CNPE)

Le tritium est produit dans les installations nucléaires de production d'électricité par activation de noyaux légers présents dans le circuit de refroidissement primaire du réacteur : bore, lithium, hydrogène de l'eau de refroidissement ainsi que de noyaux d'hélium produits (et/ou utilisés) notamment dans les crayons sources secondaires des réacteurs de 1300 et 1450 MWe. Il est également formé dans les crayons de combustible par fission ternaire de certains isotopes de l'uranium et du plutonium. La quantité rejetée dépend du type de réacteur nucléaire et de la quantité d'énergie produite.

En l'absence de procédé industriel permettant de récupérer le tritium présent dans les effluents radioactifs liquides des centrales, le tritium est rejeté de manière chronique et contrôlée dans l'environnement sous forme de rejets liquides et gazeux (Gazal et Amiard, 2010).

Afin de minimiser l'impact dosimétrique des rejets, EDF a fait le choix de réduire les rejets de tritium par voie atmosphérique. Les rejets liquides en tritium de l'ensemble des 58 tranches du parc nucléaires français représentent environ 1 $PBq.an^{-1}$ (~ 3 $g.an^{-1}$) tandis que les rejets gazeux représentent environ 0,034 $PBq.an^{-1}$ (~ 0,1 $g.an^{-1}$).

Pour la Loire, le CNPE de Saint-Laurent-des-Eaux coordonne, depuis 1999, les rejets liquides de l'ensemble des CNPE dans ce fleuve afin d'éviter un effet de cumul des concentrations rejetées. Ainsi, sauf dérogation, deux rejets ne peuvent être réalisés simultanément (IRSN, 2012). En période d'étiages et de crues les rejets liquides sont suspendus.

2.3.2.3 Usine de retraitement des déchets nucléaires

Les usines de retraitement des déchets nucléaires de Sellafield en Angleterre et de La Hague à la pointe du Cotentin en France sont des contributeurs importants de tritium pour l'environnement car elles traitent les crayons combustibles usés issus des CNPE. Ce traitement implique le cisaillage des gaines de combustible et la mise en solution de l'essentiel du tritium produit durant son exploitation. Le tritium rejeté par ces usines provient alors essentiellement des eaux utilisées dans le processus au sein duquel le tritium associé à la molécule (HTO) ne peut être extrait.

Les quantités de tritium rejetées annuellement sous forme liquide par La Hague et Sellafield sont estimées en moyenne à 11,2 $PBq.an^{-1}$ (30,5 $g.an^{-1}$) et 1,3 PBq (3,7 $g.an^{-1}$) respectivement, entre 2007 et 2015 (données RIFE 2008-2016 pour les rejets de Sellafield et rejets communiqués par l'exploitant pour l'usine de La Hague). Les rejets gazeux ne représentent que quelques pourcents des rejets liquides.

2.3.3 Bilan du tritium dans l'environnement en 2016

Les quantités globales des différentes sources de tritium peuvent être estimées à partir des flux annuels de production (naturels et industriels) en supposant un état d'équilibre *i.e.* les productions annuelles équilibrent les pertes annuelles par décroissance radioactive. La Figure 2.2 présente schématiquement les différentes sources de tritium dans l'environnement et leur stock à l'état d'équilibre en 2016. L'inventaire global du tritium produit lors des essais nucléaires est estimé entre 22 et 24 kg suite à la décroissance radioactive de la quantité initiale de tritium rejeté durant les années 1960, *i.e.* 520 - 550 kg (Michel, 1976; UNSCEAR, 2000; UNSCEAR, 2016). L'inventaire du tritium cosmogénique est estimé à 4,5 kg, à partir du taux de production moyen de tritium dans l'atmosphère ~3200 atomes.m^{-2}.s^{-1} (Masarik et Beer, 2009). Les rejets industriels de tritium estimés à 78 g.an^{-1} (UNSCEAR, 2016) représentent un stock à l'équilibre de 1,3 kg.

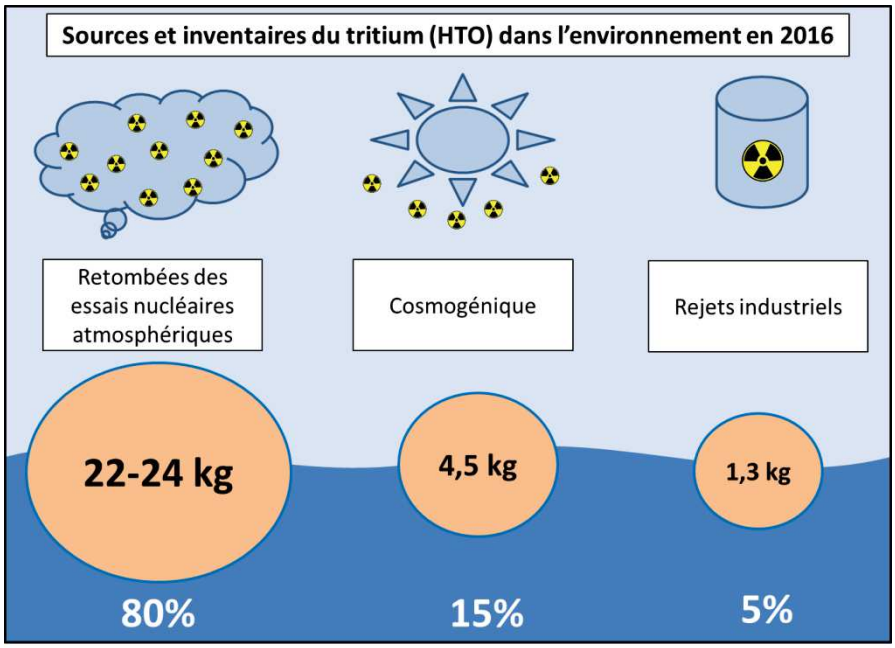


Figure 2.2 – Sources et inventaires du tritium dans l'environnement en 2016.

2.3.4 Mesure du tritium sous la forme HTO

Durant cette thèse, plus de 850 mesures de tritium ont été effectuées dans différentes matrices aquatiques *i.e.* rivière, fleuve, estuaire et océan, recouvrant une large gamme de concentrations [2 – 60 000] Bq.m^{-3}. Cette diversité de concentrations mesurées nécessitait des méthodes de mesures adaptées. Pour cela, trois techniques de mesures ont été utilisées dans différents laboratoires en fonction des concentrations en tritium attendues : (i) la mesure par scintillation liquide, (ii) la mesure

par comptage proportionnel après enrichissement électrolytique et (iii) la mesure par spectrométrie de masse de l'hélium-3 produit par désintégration du tritium.

2.3.4.1 Scintillation liquide

Le tritium se désintègre en émettant un rayonnement β-, dont la faible énergie le rend difficile à détecter. Sa détection par scintillation nécessite la conversion de ce rayonnement ionisant issu de la désintégration de l'atome radioactif en rayonnement lumineux détectable et quantifiable (Cassette, 2004). Le principe de la scintillation liquide consiste à mélanger la solution radioactive à mesurer à un solvant (le liquide scintillant) qui doit (i) pouvoir être excité suite à la désintégration de l'atome radioactif ; (ii) transférer l'énergie d'excitation pour ; (iii) exciter des solutés fluorescents et permettre ainsi la détection du nombre de désintégrations par l'intermédiaire de la lumière émise.

La lumière émise est détectée avec un photo-détecteur qui comporte une photocathode transparente émettant des électrons par effet photoélectrique après absorption de lumière (). Ces photoélectrons sont ensuite accélérés par un champ électrique pour atteindre une succession d'électrodes, les dynodes, où ils sont multipliés, puis mesurés par un circuit électronique, Figure 2.3 et Figure 2.4 d'après Cassette, 2004.

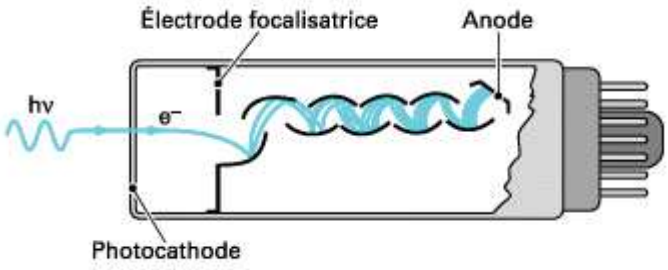


Figure 2.3 – Schéma d'un photomultiplicateur (Cassette, 2004).

L'amplitude des signaux est proportionnelle au nombre de photoélectrons émis par la photocathode, donc au nombre de photons ayant atteint le tube photomultiplicateur (Cassette, 2004). Cependant les photomultiplicateurs sont affectés de bruits : la chambre de mesure comporte deux photo-détecteurs fonctionnant en coïncidence afin d'éliminer le bruit de fond du signal. La limite de détection de cette méthode est de 1 $Bq.L^{-1}$.

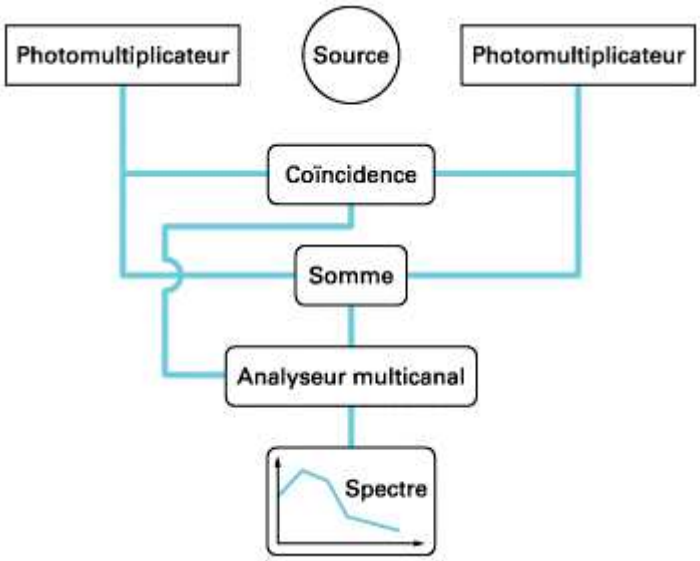


Figure 2.4 – Schéma de principe d'un compteur à scintillation liquide (Cassette, 2004).

2.3.4.2 Enrichissement électrolytique et comptage proportionnel à gaz

La mesure par enrichissement électrolytique (Ostlund et Werner, 1962) est basée sur le fait que lorsque l'eau tritiée est électrolysée (Figure 2.5), le tritium se décharge à la cathode plus lentement que l'hydrogène léger. La solution électrolytique (échantillon + NaOH) est enrichie en tritium lors de sa réduction en volume. Ainsi des échantillons initialement peu concentrés en tritium deviennent mesurables par des techniques de mesures dites « classiques ». Le Tritium Laboratory de Miami, utilise l'enrichissement électrolytique du tritium avant un comptage proportionnel à gaz. Cette méthode permet une limite de détection de l'ordre de 0,01 $Bq.L^{-1}$ pour un temps d'enrichissement d'une quinzaine de jours.

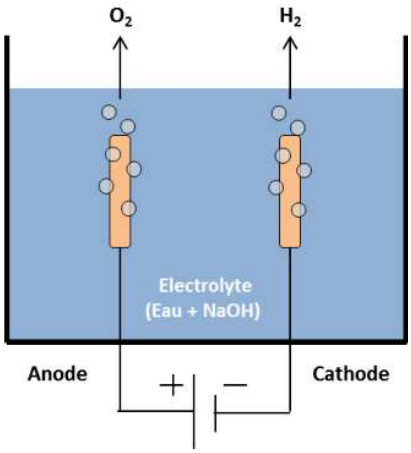


Figure 2.5 – Schéma de l'électrolyse de l'eau.

2.3.4.3 Spectrométrie de masse

La méthode de mesure du tritium sous forme HTO par émanation gazeuse d'hélium 3 tritiogénique (Clarke *et al.*, 1976; Jenkins, 1981; Jean-Baptiste *et al.*, 1988; Jean-Baptiste *et al.*, 1992) consiste à mesurer, par spectrométrie de masse, l'hélium-3 gazeux produit par la désintégration radioactive du tritium contenu dans un échantillon d'eau préalablement débarrassé de tous ses gaz. Le tritium se désintègre en donnant un atome d'hélium-3 suivant la réaction :

$$ {}^{3}_{1}H \rightarrow {}^{3}_{2}He + {}^{0}_{-1}e^{-} \tag{2.5} $$

La limite de détection atteinte par cette méthode est similaire, à celle obtenue avec la méthode par enrichissement électrolytique (~0,01 $Bq.L^{-1}$). Elle est de deux ordres de grandeurs inférieures à la mesure par scintillation classique (~1 $Bq.L^{-1}$).

Plusieurs étapes sont nécessaires à la mesure :

(i) Mise en bouteille de l'échantillon ;
(ii) Dégazage de l'échantillon ;
(iii) Recroissance de l'hélium-3 ;
(iv) Mesures par spectrométrie de masse.

Les phases de mise en bouteilles (i) et de dégazage des échantillons (ii) ont été mises au point et réalisées au Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-en-Cotentin (LRC) (Desplats, 2012) alors que la mesure par spectrométrie de masse (iv) a été adaptée et mise en place au Laboratoire de Métrologie de la Radioactivité dans l'Environnement d'Orsay (LMRE).

(i) <u>Mise en bouteilles de l'échantillon :</u>

Dans un premier temps, l'échantillon d'eau de mer doit être transféré dans une bouteille en acier inoxydable, parfaitement étanche aux gaz, avant de procéder à la phase de dégazage. Un tube en cuivre est soudé à un raccord en laiton de la bouteille inox (Figure 2.6). Ce tube en cuivre permet à l'aide de pinces de frigoriste, de sceller hermétiquement l'échantillon d'eau de mer une fois celui-ci débarrassé de tous ses gaz. Afin de limiter les échanges entre le tritium de l'échantillon et celui présent dans la vapeur d'eau de l'air lors du transfert de l'échantillon, le flacon d'origine ainsi que la bouteille en acier inoxydable sont remplis d'azote gazeux.

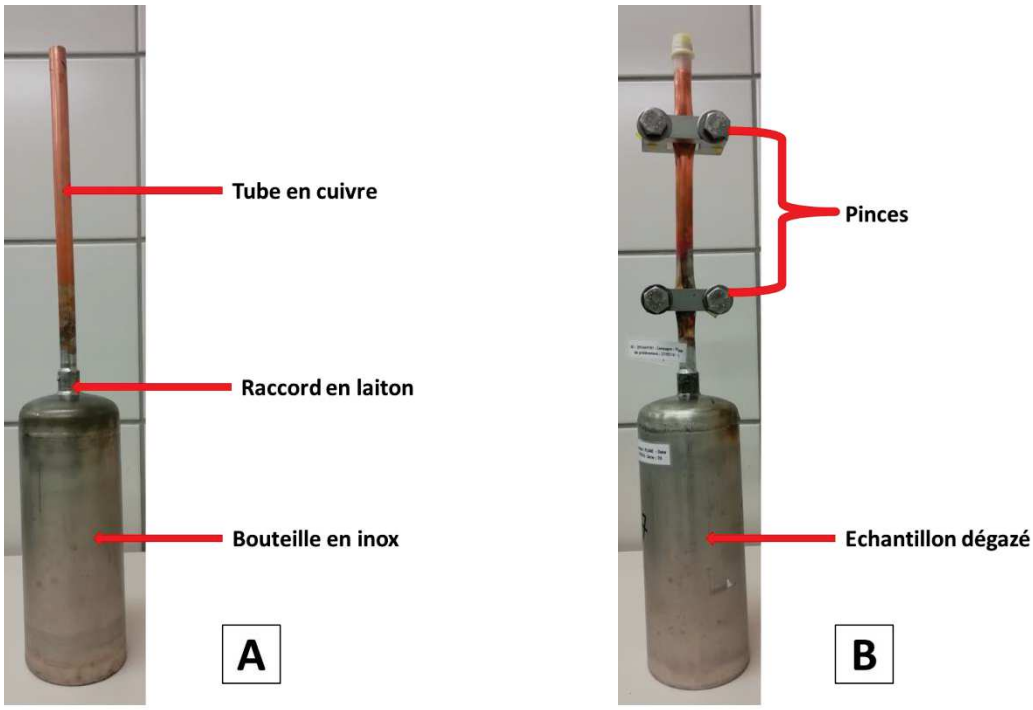


Figure 2.6 – (A) Bouteille en acier inoxydable et son tube en cuivre avant transfert de l'échantillon d'eau de mer. (B) Echantillon d'eau de mer mis dans une bouteille fermée hermétiquement à l'aide de pinces, après le processus de dégazage.

(ii) Dégazage de l'échantillon :

La phase de dégazage de l'échantillon est réalisée à l'aide d'un banc de dégazage (Figure 2.7). La bouteille inox contenant l'échantillon d'eau de mer est placée sous vide à l'aide de pompes et d'un piège froid permettant d'atteindre une pression de ~10^{-6} Pa. Un agitateur magnétique couplé à un bac à ultra-sons améliore les performances du dégazage. Une fois l'échantillon dégazé, deux pinces en acier vont comprimer le tube en cuivre jusqu'à le rendre totalement hermétique et maintenir le flacon sous vide.

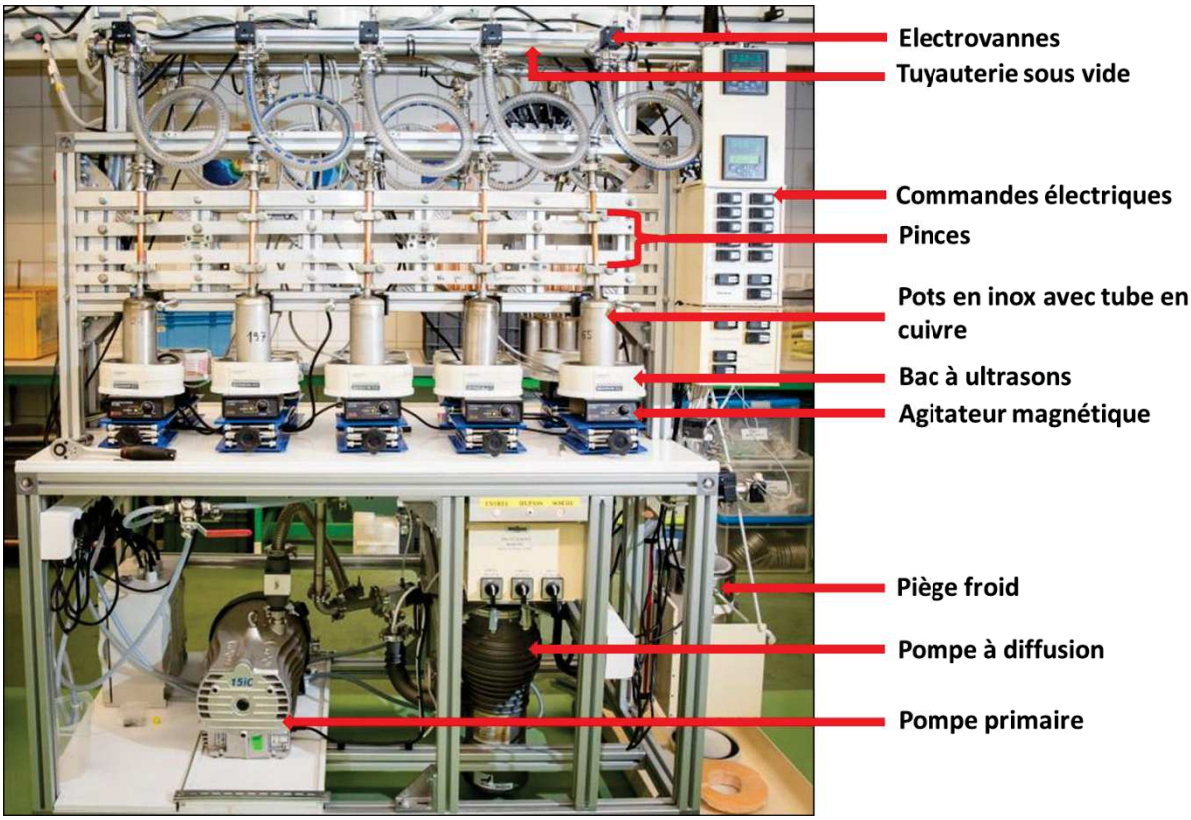


Figure 2.7 – Système de dégazage d'échantillons d'eau installé au LRC.

(iii) Recroissance de l'hélium 3:

Un temps de recroissance de quelques mois (~6 mois) est nécessaire afin d'obtenir une quantité significativement mesurable d'hélium 3 tritiogénique à partir d'un échantillon à bas niveau de tritium (<0,5 $Bq.L^{-1}$). Par exemple pour 400 ml d'eau de mer à 1 $Bq.m^{-3}$ de tritium, le nombre d'atomes d'^3He tritiogéniques présents après 180 jours (~6 mois) de recroissance est d'environ 6 200 atomes.

(iv) Mesures par spectrométrie de masse :

Une fois la recroissance de l'hélium 3 tritiogénique suffisante pour obtenir un signal détectable, l'échantillon est mesuré par un spectromètre de masse au LMRE, à Orsay. Pour cela l'échantillon est placé dans une ligne d'introduction sous vide et va subir un deuxième dégazage. Les gaz sont transférés d'abord dans un piège à froid dans lequel la vapeur d'eau est piégée. Les gaz passent ensuite à travers des charbons actifs où la quasi-totalité des gaz autres que l'hélium et le néon sont adsorbés. Un piège à gaz (getter) permet une absorption de surface des gaz dissous (CO_2, O_2, H). A la fin de toutes ces étapes, seuls subsistent encore l'hélium et une fraction du néon. Le néon restant est alors piégé sur une tête cryogénique à -250°C et seul l'hélium est admis dans le spectromètre de masse.

Le spectromètre utilisé est un spectromètre de masse à secteur magnétique conçu pour la mesure simultanée des isotopes de l'hélium $^3He/^4He$ (Figure 2.8). L'hélium est ionisé par bombardement

électronique et les ions $^4He^+$ et $^3He^+$ qui en résultent sont séparés par un champ magnétique. Les ions $^4He^+$ sont recueillis dans une cage de Faraday dont le signal converti est proportionnel au nombre d'ions $^4He^+$ introduits dans le spectromètre. Les ions $^3He^+$ sont recueillis dans un multiplicateur d'électrons. L'impact des ions $^3He^+$ sur les dynodes du multiplicateur génère des électrons à sa surface qui sont ensuite multipliés. Le signal obtenu est proportionnel au nombre d'ions $^3He^+$ récupérés.

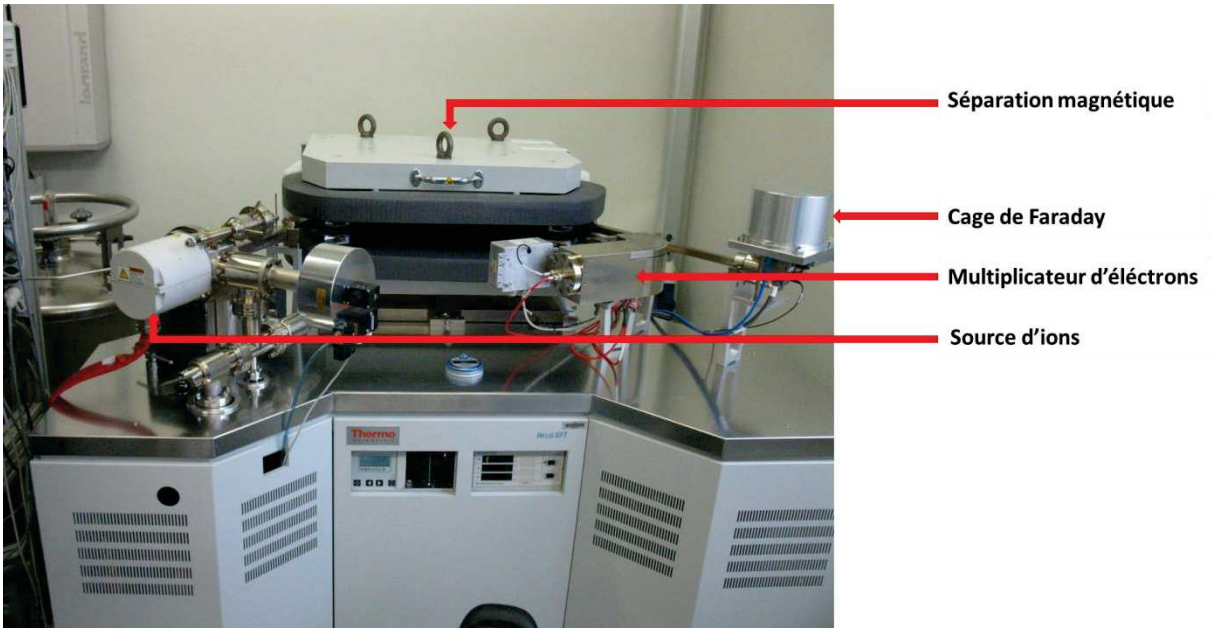


Figure 2.8 – Spectromètre de masse installé au LMRE pour la mesure des isotopes de l'hélium.

Idéalement l'échantillon ne devrait contenir que de l'hélium-3. Cependant on observe également un pic d'hélium-4 qui correspond au « blanc » de la méthode. L'hélium-4 mesuré provient essentiellement du résidu de dégazage initial de l'eau de mer. Son rapport isotopique ($^3He/^4He$) est sensiblement égal à celui de l'air (R_A=1,384×10^{-6}) (Jean-Baptiste *et al.*, 1988). Ainsi la quantité d'hélium-3 tritiogénique peut être calculée en corrigeant la quantité totale d'hélium-3 ($^3He_{Total}$) de la quantité d'helium-3 de « pollution ».

$$^3He_{Tritiogénique} = {}^3He_{Total} - {}^3He_{Pollution} \tag{2.6}$$

$$^3He_{Tritiogénique} = {}^3He_{Total} - R_A \times {}^4He \tag{2.7}$$

Avec :

R_A : Rapport isotopique de l'air ;

2.4 Article: Inventory and distribution of tritium in the oceans in 2016

Afin de déterminer le bruit de fond en tritium dans le golfe de Gascogne provenant des eaux de surface de l'Atlantique Nord, une compilation des mesures de tritium disponibles à la fois dans les bases de données océanographiques, dans la littérature et issues de mesures originales acquises par le LRC a été réalisée. Plus de 41 300 mesures ont ainsi été réunies dans tous les océans. Ces mesures ont permis de réaliser un inventaire océanique mondial du tritium. Cet inventaire a fait l'objet d'une publication dans Science of the Total Environment insérée ci-dessous.

La base de données obtenue est librement accessible:
https://doi.pangaea.de/10.1594/PANGAEA.892125 (Oms *et al.*, 2018).

Résumé de l'article

Les concentrations de tritium dans les océans ont été compilées à partir de données de la littérature, des bases de données en ligne ainsi que de nouvelles mesures afin de déterminer la distribution globale des concentrations de tritium selon la latitude et la profondeur dans tous les océans.

L'inventaire total du tritium, corrigé de la décroissance radioactive en 2016, a été estimé à partir de l'évaluation des contributions naturelles et artificielles dans 23 subdivisions spatiales de l'océan mondial. La masse du tritium dans les océans est trouvée égale à 26,8 ± 14 kg dont 3,8 kg de tritium cosmogénique. Cette estimation correspond aux données de la littérature concernant la somme des apports atmosphériques des essais nucléaires et de l'inventaire naturel du tritium estimé à partir des taux de production naturelle (*i.e.* 27,8 - 29,3 kg sur Terre). Nous confirmons l'augmentation globale du tritium selon la latitude observée dans l'hémisphère Nord depuis 1967 avec un maximum dans l'océan Arctique. Les concentrations minimales de tritium observées dans l'océan Austral sont proches de l'état d'équilibre avec des dépôts naturels connus de tritium.

Nous nous sommes concentrés sur l'évolution temporelle des concentrations de tritium en surface (0 à 500 m) dans une zone sélectionnée de l'océan Atlantique Nord (30°N - 60°N) où nous avons trouvé une concentration de 0,60 ± 0,10 TU (1σ). Les résultats ont montré que dans cette zone, entre 1988 et 2013, les concentrations de tritium : i) ont diminué plus rapidement que la seule désintégration radioactive, en raison d'un mélange avec des eaux moins concentrées plus profondes et latérales, et ii) tendent à se rapprocher d'une concentration d'équilibre. Le demi temps de mélange des eaux de surface et la concentration à l'état d'équilibre sont respectivement 23 ± 5 ans (1σ) et

0,38 ± 0,07 TU (1σ). Cette concentration apparente à l'état d'équilibre dans l'océan Atlantique Nord implique un dépôt moyen de tritium de 1870 ± 345 Bq.m^{-2} (1σ), soit cinq fois plus que les apports connus (naturels, retombées des essais nucléaires et rejets industriels, ~367 Bq.m^{-2}) dans cette région.

Inventory and distribution of tritium in the oceans in 2016

Pierre-Emmanuel Oms[1,2], Pascal Bailly du Bois[1], Franck Dumas[3], Pascal Lazure[2], Mehdi Morillon[1], Claire Voiseux[1], Cedric Le Corre[4], Catherine Cossonnet[4], Luc Solier[1], Pascal Morin[5]

[1] Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-Octeville, IRSN/PSE-ENV/SRTE/LRC, Rue max Pol Fouchet, BP 10, 50130 Octeville, France.

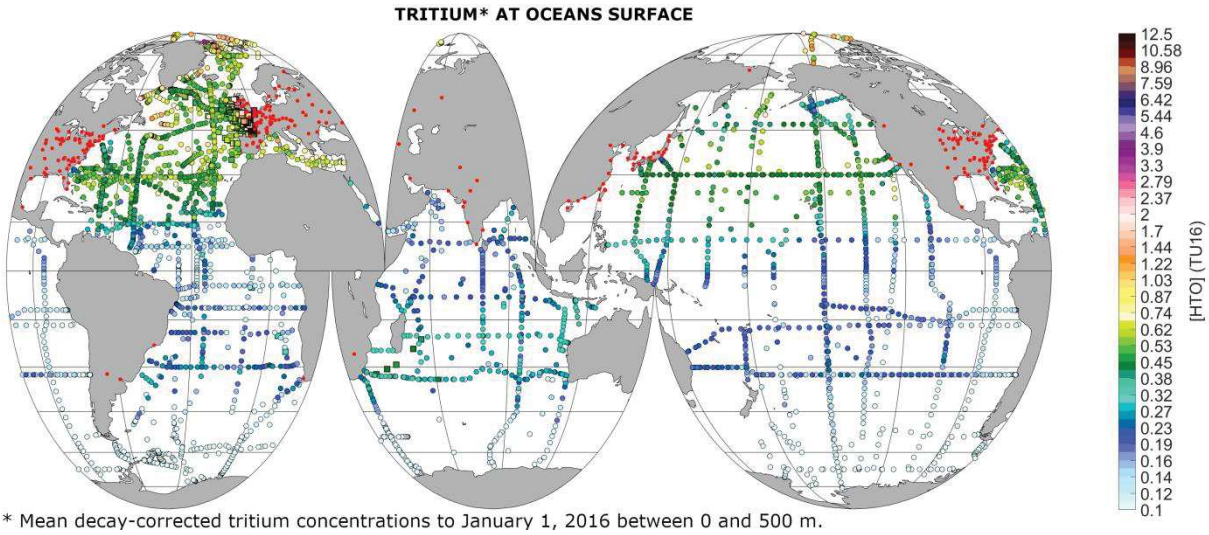
[2] Institut Français de Recherche pour l'Exploitation de la Mer, Laboratoire Océan Côtier, IFREMER/PDG-ODE/LOPS/OC, Centre Bretagne - ZI de la Pointe du Diable, 29280 Plouzané, France.

[3] Service Hydrographique et Océanographique de la Marine, SHOM/DOPS/HOM/REC, 13 Rue de Châtellier, 29200 Brest, France.

[4] Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, Laboratoire de Métrologie de la Radioactivité dans l'Environnement, IRSN/PSE-ENV/SAME/LMRE, Bois des Rames – Bâtiment 501, 91400 Orsay, France.

[5] Institut Français de Recherche pour l'Exploitation de la Mer, Laboratoire Océan Côtier, IFREMER/PDG-DFO, Centre Bretagne - ZI de la Pointe du Diable, 29280 Plouzané, France.

Corresponding authors: Pierre-Emmanuel Oms omspe@hotmail.fr; Pascal Bailly du Bois pascal.bailly-du-bois@irsn.fr



Abstract

Tritium concentrations in oceans were compiled from the literature, online databases and original measurements in order to determine the global distribution of tritium concentrations according to latitude and depth in all oceans.

The total inventory of tritium decay corrected in 2016 has been estimated using evaluation of the natural and artificial contributions in 23 spatial subdivisions of the total ocean. It is determined equal to 26.8 ± 14 kg including 3.8 kg of cosmogenic tritium. That is in agreement with the total atmospheric input of tritium from nuclear bomb tests and the natural inventory at steady-state estimated from natural production rates in the literature (27.8 – 29.3 kg in the Earth). We confirm the global increase in tritium according to latitude observed in the Northern hemisphere since 1967 with a maximum in the Arctic Ocean. The minimum tritium concentrations observed in the Southern Ocean were close to steady-state with known natural tritium deposition.

We focused on the temporal evolution of surface (0 to 500 m) tritium concentrations in a selected area of the North Atlantic Ocean (30°N - 60°N) where we found the 2016 concentration to be 0.60 ± 0.10 TU (1σ). Results showed that in that area, between 1988 and 2013, tritium concentrations: i) decreased faster than the sole radioactive decay, due to a mixing with lower and lateral less concentrated waters, and ii) decreased towards an apparent steady state concentration. The half-time mixing rate of surface waters and the steady state concentration were respectively calculated to be 23 ± 5 years (1σ) and 0.38 ± 0.07 TU (1σ). This apparent steady-state concentration in the North Atlantic Ocean implies a mean tritium deposition of 1870 ± 345 $Bq.m^{-2}$ (1σ), five folds higher than the known inputs (natural, nuclear tests fallout and industrial releases, ~367 $Bq.m^{-2}$) in this area.

Keywords: Radionuclide, Tracer, Database, Background concentration.

1 Introduction

Tritium (^3H) is a radioactive isotope of hydrogen with a half-life of 4497 ± 4 days (~12.32 years) (MacMahon, 2006). It has been mostly incorporated in the oceans since the late 1950's and the early 1960's by the fallouts of the atmospheric nuclear tests (Figure 2.9), with an estimated atmospheric input of about 520 – 550 kg of tritium (Michel, 1976; UNSCEAR, 2000).

Most of the tritium from the nuclear tests was injected into the stratosphere. Tritium remain into the stratosphere for years (mean residence time of 1.6 years (Craig et Lal, 1961) before crossing the tropopause down into the troposphere (Ehhalt *et al.*, 2002), with fluxes varying temporally and being almost one order of magnitude higher in spring and early summer than in the fall and winter, a phenomenon called "spring leak" (Suess, 1969). Once in the troposphere, tritium is rapidly removed, with a mean residence time of about one month (Taylor, 1966).

About 99% of the atmospheric tritium is in the form of tritiated water molecules (HTO) and thus follows the water cycle. Tritium reaches the ocean via three main processes: i) vapour exchange, ii) precipitation and iii) river runoff. Tritium inputs by vapour exchange exceed inputs by precipitation

by about three-folds (Weiss et Roether, 1980; Koster *et al.*, 1989; Doney *et al.*, 1992). In the case of the North East Atlantic, river runoffs contribute to no more than about 10% of the tritium deposition (Dreisigacker et Roether, 1978).

The tropospheric circulation in sub-tropical latitudes is composed of two convective cells, the Ferrel and Hadley cell (Figure 2.10) converging around 30° of latitude. The lower circulation of polar cell flows southward from the poles to around 60°N. Thus, given the location of nuclear explosions (Figure 2.9) and the tropospheric circulation in the northern hemisphere, tritium fallouts from atmospheric testing of nuclear weapons are mainly injected in the ocean between 30°N and 60°N (Bennett, 2002) (Figure 2.10). This increase of tritium in ocean according to latitude has been highlighted in the Northern Hemisphere since 1967 (Münnich et Roether, 1967).

In 2016, the inventory of tritium remaining from the fallout of the atmospheric testing of nuclear weapons is estimated to be 22–23.5 kg (deduced from the radioactive-decay of 520-550 kg of tritium since 1960). This input greatly exceeds tritium's natural abundance which is around 4.5 kg of tritium, produced at an average rate of about 3200 atoms.m^{-2}.s^{-1} (Masarik et Beer, 2009), *i.e.* a total of ~258 g.yr^{-1}. Tritium is also released in the environment by the civil and military nuclear industries. The global (liquid and atmospheric) annual tritium release from nuclear industries is estimated to be ~78 g.yr^{-1} for the period 1998-2002 (UNSCEAR, 2016).

Since the 1960s, measurements of tritium in the global ocean were performed regularly during large-scale observation programs: NAGS (1967-1972), GEOSECS (1972-1976), TTO (1981-1983), WOCE (1990-2002) and GEOTRACES (2010-2020). Scattered observations are also available in the literature and supplement the observation acquired during these programs. The distribution and temporal evolution of tritium in the global ocean provide information regarding oceanic ventilation timescales from a few years up to some decades (Jenkins et Clarke, 1976; Jenkins, 1987; Andrié *et al.*, 1988; Doney et Jenkins, 1988; Thiele et Sarmiento, 1990; Doney *et al.*, 1997; Jenkins, 1998). Tritium as HTO is a perfect conservative tracer of water masses and a global compilation of tritium concentrations over a large time scale (1967 – 2016) and all oceans has never been reported to date. Such a compilation could give valuable insights into inventories, mixing processes between the surface ocean and the deep ocean, as well as into natural and industrial inputs of tritium into the ocean.

We aimed at evaluating the tritium concentration in waters entering the European continental shelf in order to better appreciate the influence of industrial releases at this scale.

In this work, a compilation of global ocean tritium concentrations was carried out. It allows for the estimation of:

(i) the total inventory of tritium in 23 spatial subdivisions throughout the global Ocean;
(ii) the respective contributions of natural and artificial tritium sources in each of the spatial subdivision;
(iii) the tritium distribution and surface waters background level according to latitude and depth in the global ocean;
(iv) the mixing rate of surface water in the North-Atlantic Ocean with the underlying deep waters and the surrounding surface waters;
(v) the apparent steady state concentration in the North Atlantic Ocean (due to continuous natural and anthropic inputs).

In this context, a compilation of tritium concentrations in all oceans is presented with new additional measurements in the North-Atlantic Ocean. The global ocean was divided in boxes (spatial subdivisions) homogeneous in latitude and in depth, in order to highlight the meridional distribution of tritium. Since the North-Atlantic Ocean is the one surrounded by the highest number of nuclear facilities releasing tritium worldwide, a particular focus was made on that ocean, for which we report the temporal evolution of tritium concentration.

The European continental shelf includes the major marine tritium sources (reprocessing plants of La Hague in the English Channel and Sellafield in the Irish Sea). Our concern is to evaluate the tritium concentrations in waters entering these areas in order to evaluate the impact of local releases. It requests a good knowledge of the actual North Atlantic waters (30°N - 60°N) entering the European waters (*i.e.* the Bay of Biscay, the North-Sea and the English Channel).

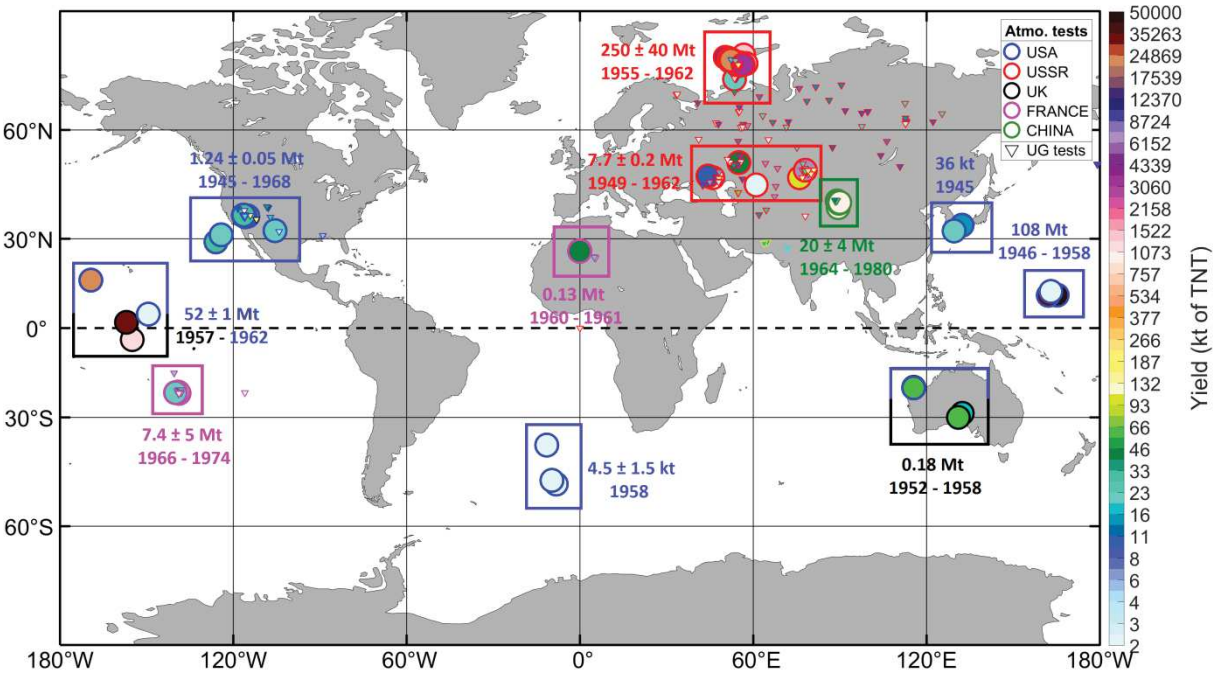


Figure 2.9 – Map of nuclear explosions between 1945 and 1998. Each marker corresponds to the sum of yield at a same location expressed in kilotons (kt) or megatons (Mt) of trinitrotoluene (TNT). Atmospheric explosions are represented with a circle and underground explosions are represented with a triangle. The edge color of circles corresponds to the state that carried out the explosion. The rectangles represent the sum of yield from atmospheric explosions in a given area for the indicated years. Atmospheric explosions include explosions from balloons, airdrops, rockets, towers, barges, water surface, surface or crater. Underground explosions include explosion from the bottom of drilled or mined vertical holes or shafts, tunnel and gallery, mine, wells in the ground and drilled in the lagoon of atolls. Data extracted from the report of the Swedish National Defence Research Institute (Bergkvist et Ferm, 2000).

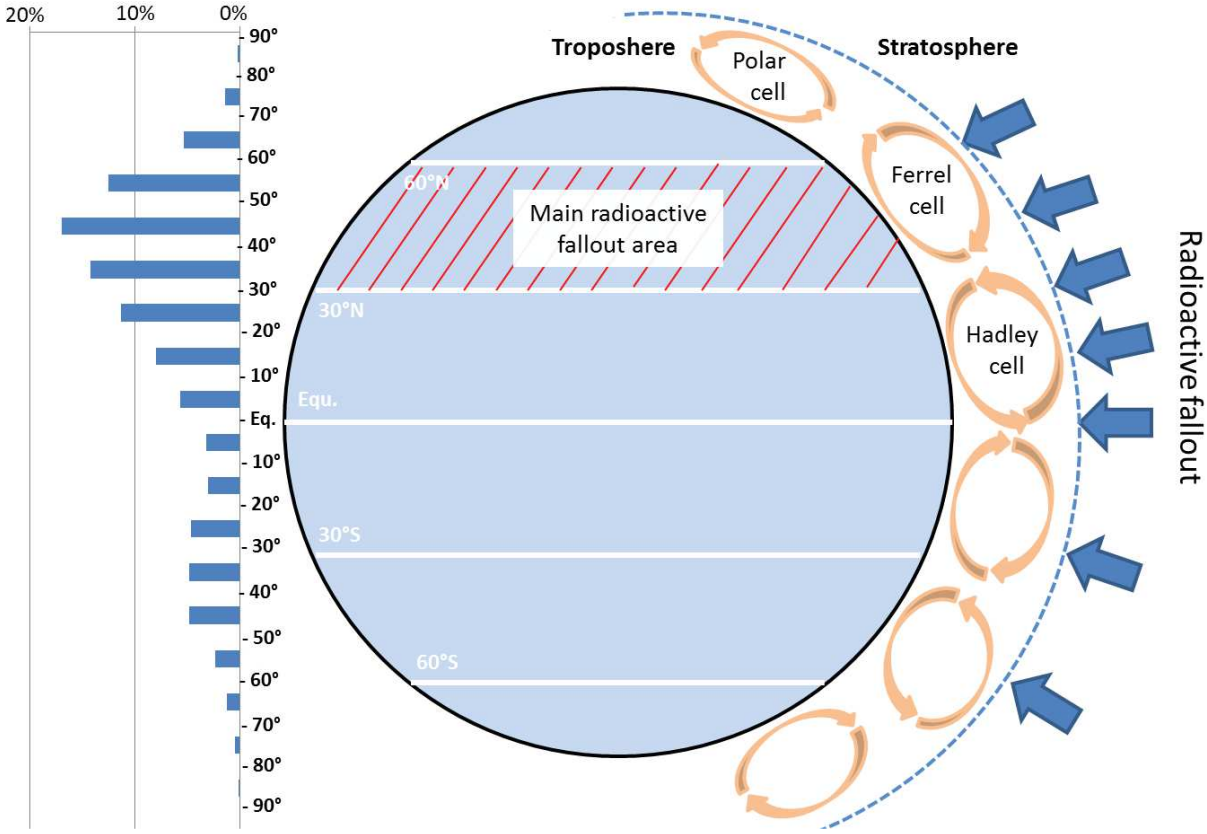


Figure 2.10 – Latitudinal distribution of global 90Sr deposit at the end of the 1990's (adapted from Monetti, 1996) linked with atmospheric dynamics, and the main area of radioactive fallout from atmospheric testing of nuclear weapons. 90Sr is a radionuclide produced along with tritium during the atmospheric testing of nuclear weapons. Its distribution gives an approximation of tritium distribution from the radioactive fallouts of nuclear bomb tests.

2 Materials and methods

We tried to gather all the oceanic tritium data available to perform a comprehensive review of tritium distribution in the oceans. Most of these data comes from online databases or publications. We completed that dataset with original measurements that were unpublished to date mostly for recent years and in the North-East Atlantic.

2.1 Compilation of published data

Databases and data used for this work were accessed online using the following sources: the GLobal Ocean Data Analysis Project v2 (Olsen *et al.*, 2016), the World Ocean Database (Boyer *et al.*, 2013), Clivar & Carbon Hydrographic Data Office (CCHDO), GEOTRACES (Schlitzer *et al.*, 2018), North Atlantic Gyre Studies (Östlund, 1984), Transient Tracers in the Ocean (Östlund et Grall, 1987), TOPOGULF cruise (Andrié *et al.*, 1988), PHYCEMED cruise (Andrié et Merlivat, 1988). Data ranged from year 1967 to year 2016. As the different databases may include the redundant datasets, a

comparison between databases was performed in order to remove duplicate tritium measurements. Each tritium measurement in each database was compared with all other measurements in the other tritium databases in terms of time, space, depth, and tritium concentration. Two tritium measurements were considered as identical if they had been performed within less than one day of each other, at a horizontal distance shorter than 30 km, at a depth less than 100 decibars (dbars) and differed in concentrations by less than 0.1 TU.

2.2 Original data

Between 1996 and 2016, 610 tritium concentrations have been measured by the Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg (LRC) during 12 oceanographic campaigns in the western English Channel, the Bay of Biscay, the Atlantic, and the Celtic Sea. They are listed in Table 2.1.

One liter of sea-water samples were collected using a Niskin bottle, and transferred to a tritium storage bottle. The storage bottle is filled with sea-water and sealed in order to minimize air bubbles and tritium exchange with the atmosphere. Tritium storage bottles were maintained at a temperature of 5°C, protected from light until measurements.

Two techniques have been used on these samples to determine low-level tritium concentrations:

i) electrolytic enrichment of water samples followed by ^{3}H analysis with gas proportional counting (Östlund *et al.*, 1974). It concerns SMSRB[2] and TL[3] laboratories.

ii) ^{3}He ingrowth and measure by mass spectrometry (Clarke *et al.*, 1976). It concerns LMRE/LRC[4] and LSCE[5] laboratories. Choice of the laboratory depends of their availability over time.

Intercomparisons have been performed on same samples between these laboratories to make sure they reported consistent results and could be used interchangeably. Additionally, the unique ^{3}He ingrowth method applied by the LMRE/LRC laboratories annually passed the IARMA Environmental Radioactivity Proficiency Test on the Determination of Tritium in Water to check for its performance. The IARMA tests include the measurement of two low-level tritium samples calibrated at <0.2 TU and 1.98 ± 0.07 TU. We measure 0.13 ± 0.03 TU and 2.19 ± 0.09 TU respectively.

[2] SMSRB: Commissariat à l'Energie Atomique (CEA), Service Mixte de Surveillance Radiologique et Biologique de l'homme et de l'environnement
[3] TL : Rosenstiel School, The Tritium Laboratory, Miami
[4] LMRE : Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), Laboratoire de Métrologie de la Radioactivité dans l'Environnement, in association with the LRC, Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-en-Cotentin.
[5] LSCE : Unité Mixte de Recherche 8212 (UMR 8212), Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement

Table 2.1 – Information on original data: dates, area and measurement methods.

OCEANOGRAPHIC CAMPAIGN	SHIP	SAMPLING DATES (MM/DD/YYYY)	AREA	Lat_{min} - Lat_{max} $Long_{min}$ - $Long_{max}$	^3H MEASUREMENTS Number	Method and laboratory
IRMA	Côte d'Aquitaine	11/24/1996 12/11/1996	West Channel, South Brittany	48.07°N – 50.52°N -6.09°W – -1.37°W	60	Electrolytic enrichment SMSRB ^{3}He ingrowth LMRE/LRC
ARCANE 2	Thalassa	08/07/1997 08/22/1997	East Atlantic Bay of Biscay	39.45°N – 45.58°N -12.75°W – -4°W	17	Electrolytic enrichment SMSRB
ATMARA	Suroît	07/21/1998 08/06/1998	West Channel Celtic Sea Bay of Biscay	45.45°N – 56.26°N -15°W – -3.07°W	87	Electrolytic enrichment SMSRB ^{3}He ingrowth LMRE/LRC
CIROLANA 2	Cirolana	03/02/2000 04/05/2000	West Channel Celtic Sea Bay of Biscay	47.25°N – 52.33°N -11.47°W – -1.49°W	35	Electrolytic enrichment SMSRB
OVIDE	Thalassa	06/12/2002 07/13/2002	North-Atlantic Ocean	40.33°N – 59.79°N -42.57°W – -9.75°W	32	Electrolytic enrichment TL
ASPEX 2009	Thalassa	07/13/2009 07/20/2009	Bay of Biscay	43.98°N – 47.79°N -6.01°W – -1.52°W	36	^{3}He ingrowth LSCE ; LMRE/LRC
ASPEX 2010	Suroît	08/31/2010 09/07/2010	Bay of Biscay	44°N – 48.27°N -6.41°W – -1.57°W	56	^{3}He ingrowth LMRE/LRC
ASPEX 2011	Thalassa	08/07/2011 08/15/2011	Bay of Biscay	44°N – 47.79°N -6°W – -1.52°W	36	^{3}He ingrowth LMRE/LRC
TRIMADU	Marion Dufresne	04/18/2013 05/11/2013	Offshore Gibraltar S.E. Atlantic S.W Indian Ocean	-32.36°S – 34.94°N -13.22°W – 55.5°E	12	^{3}He ingrowth LMRE/LRC Electrolytic enrichment TL
DYNSEDIM	Atalante	03/15/2016 03/20/2016	Bay of Biscay	45.9°N – 47.93°N -5.38°W – -2.68°W	27	^{3}He ingrowth LMRE/LRC
PELGAS	Thalassa	05/02/2016 05/27/2016	Bay of Biscay	43.67°N – 47.73°N -5.82°W – -1.27°W	76	^{3}He ingrowth LMRE/LRC
PLUME	Côte de la Manche	05/20/2016 05/29/2016	Bay of Biscay	44.68°N – 48.36°N -5.16°W – -1.05°W	136	^{3}He ingrowth LMRE/LRC Electrolytic enrichment TL

2.3 Data processing

All the data obtained online and the newly acquired data from this study were compiled into a single database. It contains a total of 41 390 tritium concentrations worldwide, between 1967 and 2016, in all the oceans and at all depths. The compiled database is available online at: https://doi.pangaea.de/10.1594/PANGAEA.892125 (Oms, 2018).

All tritium concentrations in this article are expressed in tritium unit (TU) (1 tritium atom per 10^{18} hydrogen atoms), with 1TU ~ 119.2 Bq.m^{-3}. The inventories of tritium are expressed in Becquerel (Bq) or PBq (10^{15} Bq). In order to compare tritium concentrations consistently over time, the tritium concentrations were decay-corrected to a reference date, January 1st, 2016, and expressed as TU16 according to (2.8):

$$[HTO]_{TU16} = [HTO]_T \times e^{-\lambda(T_{2016}-T)} \quad (2.8)$$

With:

$[HTO]_{TU16}$: Decay-corrected tritium concentration, in TU16;

$t_{2016} - t$: Time elapsed between 01/01/2016 and the sampling date, in s;

$[HTO]_t$: Tritium concentration at the sampling date, in TU;

λ: Radioactive decay constant, in s^{-1}, $\lambda = \frac{\log(2)}{t_{\frac{1}{2}tritium}}$, linked to the half-life period ($t_{\frac{1}{2}tritium}$) = 12.32 years (MacMahon, 2006).

Uncertainties about measurements could not be quantified because a majority of tritium concentrations in the databases were present without their associated measurements errors. The new data reported in the present article are for their part systematically associated with their measurements uncertainties. Uncertainties are ranged between 5% and 10% of the measurements.

2.3.1 Tritium concentrations in the surface ocean

In order to describe the distribution of tritium in the oceans, the Atlantic, Indian and Pacific oceans were subdivided into 20 boxes of 15° of latitude each, and 3 boxes corresponding to the Arctic and Southern oceans and the Mediterranean Sea were also considered (Table 2.2).

Nuclear power plants around the world are mostly located between 30°N and 60°N on the eastern and western North-Atlantic ocean coasts. In the North-Atlantic, eastern borders of the latitudinal boxes were positioned off the European continental shelves, in order to avoid direct inputs from the Sellafield and La Hague reprocessing plants in boxes II and IV. Indeed releases from the Sellafield and La Hague reprocessing plants are flowing to the Arctic Ocean trough the North Channel (Irish Sea) and the North Sea via the English Channel respectively (Bailly du Bois *et al.*, 1995; Kershaw et Baxter, 1995; Guéguéniat *et al.*, 1997; Nies *et al.*, 1999).

In order to limit the influence of potential hot-spot of tritium coming from non-yet well-mixed tritium releases from nuclear facilities along the Canadian and American coasts which could induce a bias in our calculation, western borders were positioned off the American continental shelf.

In the 30°N to 60°N latitude range in the North-Atlantic Ocean, the latitudinal boxes were divided in longitude to determine if there was a longitudinal gradient of tritium concentration. Therefore, four boxes encompass the 30°N and 60°N area in the North Atlantic ocean, box I, II, III and IV.

Tritium concentrations in the global ocean were averaged over the first 500 m of the water column. This depth range corresponds to a homogeneous tritium distribution in areas II, III and IV in the North

Atlantic Ocean (30°N – 60°N) as illustrated on.Figure 2.11. For comparison, all concentrations in the different boxes were averaged over this depth range.

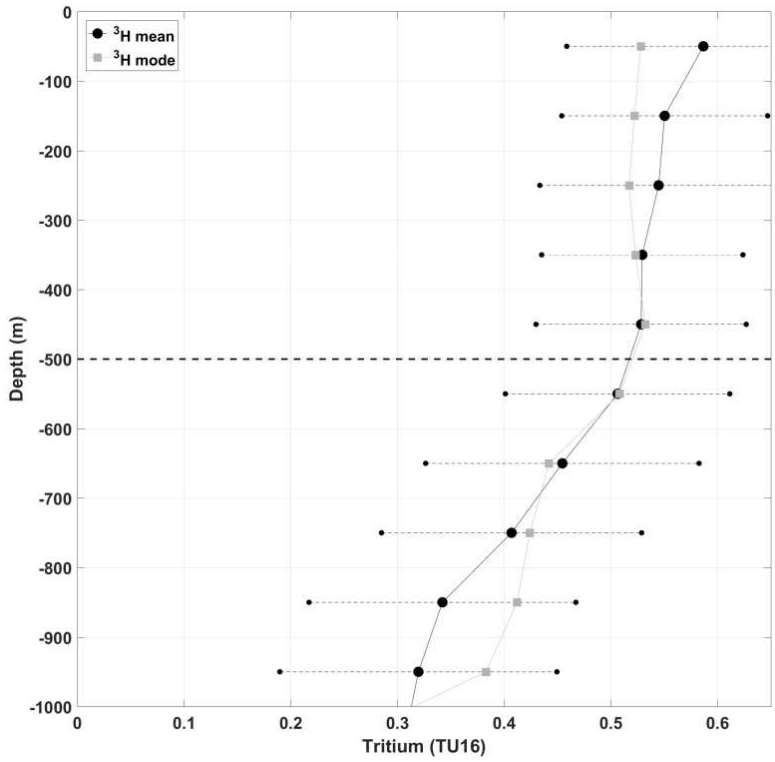


Figure 2.11 – Mean decay-corrected tritium concentration (black) with their associated standard deviation and the maximum of the density distribution (mode) (in grey) for each 100 m layer between 0 and 1000 m depth, in areas II to IV in the North Atlantic Ocean, between years 1972 and 2013.

2.3.2 Inventories of tritium in ocean

In order to compute the inventory of tritium in all boxes from the surface to the bottom, the GEBCO global 30 arc-second (~1 km), interval grid bathymetry (Weatherall *et al.*, 2015) was used. For each box, the tritium concentrations profiles were reconstructed from the 2016 decay-corrected tritium concentrations using mean concentration of each 100 m depth layer (some are presented in Annexe 2). For each mesh of the bathymetric grid, the integral of the tritium profile was summed starting from the bottom depth to the surface. Results summed for each box are presented in Table 2.2.

The natural inventory in all boxes was estimated from a cosmogenic production rate equal to 3200 atoms.m^{-2}.s^{-1} (Masarik et Beer, 2009) which corresponds to a global natural deposition of tritium per unit of surface area (D_{Nr}) equal to 180 Bq.m^{-2}.yr^{-1}. We make the assumption that all cosmogenic tritium produced in the atmosphere eventually ends up into the ocean by precipitation, vapour exchange and rivers discharges. In order to calculate the tritium deposition rate over an ocean basin it is necessary to take into account its drainage basin area (DBA).

In this way the global natural deposition rate (D_{Nr}) was multiplied by a factor (F_{Area}); (2.9), which depends on the drainage basin area DBA of the considered basin ocean (Ludwig *et al.*, 2009; Milliman et Farnsworth, 2013). This factor corresponds to the ratio between the DBA plus the basin ocean area (BOA) divided by the BOA (2.9):

$$F_{Area} = \frac{DBA + BOA}{BOA} \tag{2.9}$$

The DBA and the multiplying factor are indicated Table 2.2. The DBA of the Southern Ocean has been considered as null because we assume that no recent and significant freshwater comes from the Antarctic continent. The ocean basin natural production rate obtained has been multiplied by the boxes areas in order to calculate a yearly natural input. At steady state, this input amounts to an inventory of 17.28 times the yearly input.

The artificial inventory was deduced from the subtraction between the total and the natural inventory.

2.3.3 Evolution of tritium concentrations in the North-Atlantic Ocean

We aimed at evaluating the tritium concentration in waters entering the European continental shelf in order to better appreciate the influence of industrial releases at this scale. Indeed an accurate estimate of the tritium concentrations in the North-Atlantic Ocean is lacking to date. In order to determine past and projected future surface tritium concentrations in this area, the temporal evolution of the tritium concentrations was modelled by the non-linear regression of these concentrations between 1988 and 2016.

In contrast to the mean decay-corrected tritium concentrations method which gives a first approximation of the updated tritium concentrations in the ocean, the non-linear regression method takes into account mixing mechanisms which can remove and/or dilute tritium from surface waters with time. Additionally, the non-linear regression method highlights a threshold concentration the hereafter called "steady-state concentration”. This concentration represents the equilibrium between the tritium atmospheric inputs and the losses resulting from the radioactive decay of tritium contained in the seawater and exchanges with surrounding and deeper water masses. To quantify these mechanisms in the North-Atlantic Ocean, it is necessary to compare the temporal evolution of tritium concentrations in that area with the sole radioactive decay rate of tritium. For this purpose, expected tritium concentrations due to radioactive decay were expressed using the following expression (2.10) and compared with the non-linear regression of the temporal evolution of measured tritium concentrations, expressed using (2.11). The North-Atlantic Ocean was represented by boxes II, III and IV; (see §3.5 for the reason why area I was not taken into account).

$$[HTO]_t^{decay} = [HTO]_{1988}^{mean} \times e^{-\lambda(t-t_{1988})} \quad (2.10)$$

With:

$[HTO]_t^{decay}$: Tritium concentration (TU) at time t (days) taking into account radioactive decay only;

$[HTO]_{1988}^{mean}$: Mean tritium concentration for the initial year 1988 calculated from the measurements in the available dataset for that year, equal to 2.63 ± 0.18 TU (1σ, n=102);

$t - t_{1988}$: Time elapsed since 07/26/1988, the date on which the first tritium concentration is available, expressed in days;

λ: Radioactive decay constant equal to 1.54×10^{-4} days^{-1}.

(2.11) is modified from (2.10) to take into account the aforementioned loss and/or dilution of tritium in the area, by introducing i) a factor F, representative of the mixing of the surface layer of the ocean in days^{-1}, and ii) a constant N, representative of tritium inputs in the area:

$$[HTO]_t = [HTO]_{07/26/1988}^{init} \times e^{-[(\lambda+F)\times(t-t_{1988})]} + N \quad (2.11)$$

With:

$[HTO]_t$: Tritium concentration (TU) at time t (days) taking into account radioactive decay, mixing processes and steady-state concentration (N);

$[HTO]_{07/26/1988}^{init}$: Initial concentration of tritium in areas II, III and IV on 07/26/1988 without N, equal to 2.274 ± 0.065 TU;

F= $\frac{\log(2)}{t_{\frac{1}{2}mix}}$ with $t_{\frac{1}{2}mix}$ is the half-mixing time (days) of surface waters (0-500 m) with deeper waters and by lateral advection of waters surrounding areas II, III and IV, F =8.193×10^{-5} ± 1.445×10^{-5} days^{-1} and $t_{\frac{1}{2}mix}$=8.4602×10^{3} days (~ 23.18 years).

N: N is the tritium concentration at steady state when the contribution from nuclear tests will become negligible. It represents an equilibrium between the natural and industrial inputs with the losses due to radioactive decay and mixing of the inventory over 500 m depth of tritium in the boxes II, III and IV. N is considered as constant in time after 2013, which assumes that industrial releases and natural production will remain constant over time.

The three parameters $[HTO]_{07/26/1988}^{init}$, F and N (2.11), are determined at the same time with the non-linear least-squares estimates of the non-linear model. This analysis was performed using R software (version 3.4.3) and R studio environment with the *nls* function of the *stats* package.

3 Results and Discussion

A map of mean decay-corrected tritium distribution in the upper layer (0-500 m) of the global ocean is shown on Figure 2.12. Mean concentrations within each box dividing each ocean with respect to latitude are presented in Table 2.2. Natural, artificial and total inventories are also presented in Table 2.2. The artificial inventory for each box is shown Figure 2.13 by m^2.

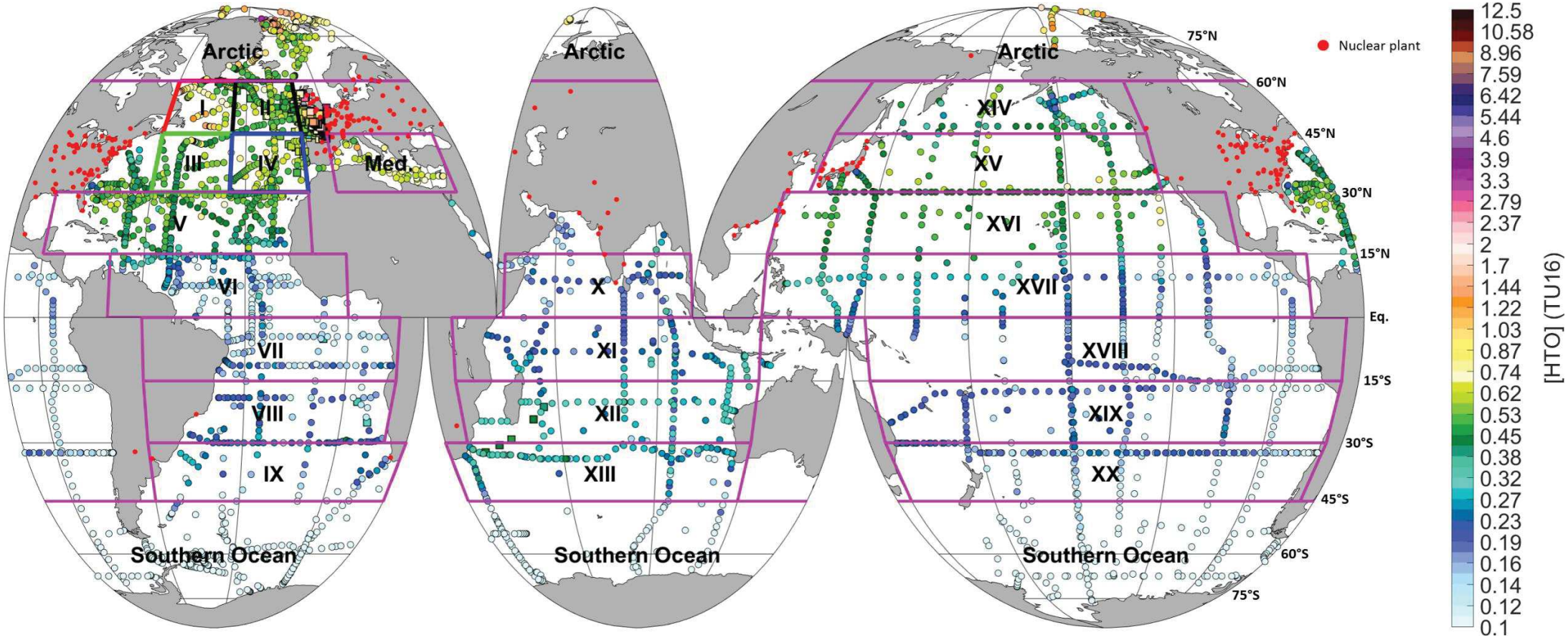


Figure 2.12 – Mean decay-corrected tritium concentrations in the oceans between 0 and 500 m depth (TU16), between years 1967 and 2016. Boxes boundaries and decay-corrected and non- decay–corrected tritium concentrations are listed in Table 2.2. If several measurements are available at one location over time, the average concentration is plotted. New tritium concentrations from this article are represented with squares, while data compiled from the literature are shown with circles. Nuclear power plants are indicated with red circles (data obtained from http://GlobalEnergyObservatory.org).

Table 2.2 – Total, natural and artificial tritium inventories and mean tritium concentrations between 0 – 500 m between years 1967 and 2016 corrected of radioactive decay (TU16), for all boxes shown on Figure 2.12. SD: Standard Deviation. [1] : from (Milliman et Farnsworth, 2013); [2] : from (Ludwig *et al.*, 2009).

Box	Region	Lat_{min} - Lat_{max} $Long_{min}$ - $Long_{max}$	Box Area ($\times 10^{12}$ m^2)	Box Volume ($\times 10^{15}$ m^3)	Drainage Basin Area ($\times 10^{12}$ m^2) [1]	F_{area}	Yearly natural input ($PBq.yr^{-1}$)	[HTO] ± SD (TU16, 500m)	Total inventory (PBq)	Natural inventory (PBq)	Artificial inventory (PBq)
Arctic	Arctic Ocean	60°N – 90°N 0°W – 360°E	16.9	20.3	21	2.24	6.78	1.00 ± 0.91	1293 ± 637	117	1176 ± 637
I	North Atlantic Ocean *Labrador Sea*	45°N – 60°N -60°W – -35°W	2.6	6.6	24.4 (without Mediterranean DBA)	1.49	0.73	0.80 ± 0.39	415 ± 108	13	402 ± 108
II	North Atlantic Ocean *Celtic Sea*	45°N – 60°N -35°W – -10°W	2.8	8.4			0.79	0.57 ± 0.08	408 ± 95	14	395 ± 95
III	North Atlantic Ocean	30°N – 45°N -60°W – -30°W	3.7	16.1			1.03	0.50 ± 0.14	438 ± 222	18	420 ± 222
IV	North Atlantic Ocean	30°N – 45°N -30°W – -10°W	3.7	14.1			1.03	0.59 ± 0.11	349 ± 142	18	331 ± 142
Med.	Mediterranean Sea	30°N – 45°N -1°W – 37°E	2.7	4.2	5.6 [2]	3.07	1.51	0.71 ± 0.19	272 ± 70	26	245 ± 70
V	Sub-Tropical North Atlantic Ocean	15°N – 30°N -90°W – -10°W	12.3	50.1	21.5	1.49	3.44	0.48 ± 0.12	705 ± 425	59	646 ± 425
VI	Sub-Equatorial North Atlantic Ocean	0°N – 15°N -70°W – 0°W	9.2	35.8			2.56	0.20 ± 0.14	235 ± 172	44	191 ± 172
VII	Sub-Equatorial South Atlantic Ocean	0°S – 15°S -60°W – 15°E	9.3	39.4			2.11	0.15 ± 0.08	165 ± 166	36	128 ± 166
VIII	Sub-Tropical South Atlantic Ocean	15°S – 30°S -60°W – 15°E	9.8	40.1	12	1.26	2.23	0.21 ± 0.12	176 ± 184	38	137 ± 184
IX	South Atlantic Ocean	30°S – 45°S -60°W – 22°E	11.4	45.8			2.59	0.19 ± 0.08	189 ± 103	45	145 ± 103
X	Indian Ocean	0°N – 15°N 45°E – 100°E	8.9	29.2			1.91	0.18 ± 0.12	140 ± 78	33	107 ± 78
XI	Indian Ocean	0°S – 15°S 30°E – 120°E	13.8	53.5	14	1.19	2.96	0.23 ± 0.11	197 ± 76	51	146 ± 76
XII	Indian Ocean	15°S – 30°S 30°E – 120°E	13.4	53.9			2.86	0.29 ± 0.07	377 ± 72	49	327 ± 72

XIII	Indian Ocean	30°S – 45°S 23°E – 120°E	13.8	54.4			2.95	0.27 ± 0.08	433 ± 229	51	382 ± 229
XIV	North Pacific Ocean	45°N – 60°N 128°E – 240°E	9.7	31.7			2.07	0.41 ± 0.16	394 ± 236	36	358 ± 236
XV	North Pacific Ocean	30°N – 45°N 128°E – 240°E	15.6	74.8			3.32	0.48 ± 0.13	636 ± 240	57	578 ± 240
XVI	Sub-Tropical North Pacific Ocean	15°N – 30°N 120°E – 260°E	22.7	105	15	1.18	4.82	0.45 ± 0.17	872 ± 413	83	788 ± 413
XVII	Sub-Equatorial North Pacific Ocean	0°N – 15°N 120°E – 280°E	28.8	124			6.11	0.23 ± 0.17	337 ± 202	106	231 ± 202
XVIII	Sub-Equatorial South Pacific Ocean	0°S – 15°S 150°E – 290°E	24.0	96.8			4.54	0.15 ± 0.09	214 ± 82	78	136 ± 82
XIX	South Pacific Ocean	15°S – 30°S 150°E – 290°E	23.5	87.4	5	1.05	4.46	0.17 ± 0.07	268 ± 113	77	191 ± 113
XX	South Pacific Ocean	30°S – 45°S 150°E – 290°E	20	78.3			3.76	0.15 ± 0.07	271 ± 131	65	206 ± 131
S. Ocean	Southern Ocean	45°S – 90°S 0°W – 360°E	75	199	/	1.0	13.48	0.05 ± 0.04	748 ± 886	233	515 ± 886
	TOTAL		353	1268	97	/	78.04 ***219 g.yr^{-1}***	/	9531 ± 5084 ***26.8 ± 14 kg***	1347 ***3.8 kg***	8184 ± 5084 ***23.0 ± 14 kg***

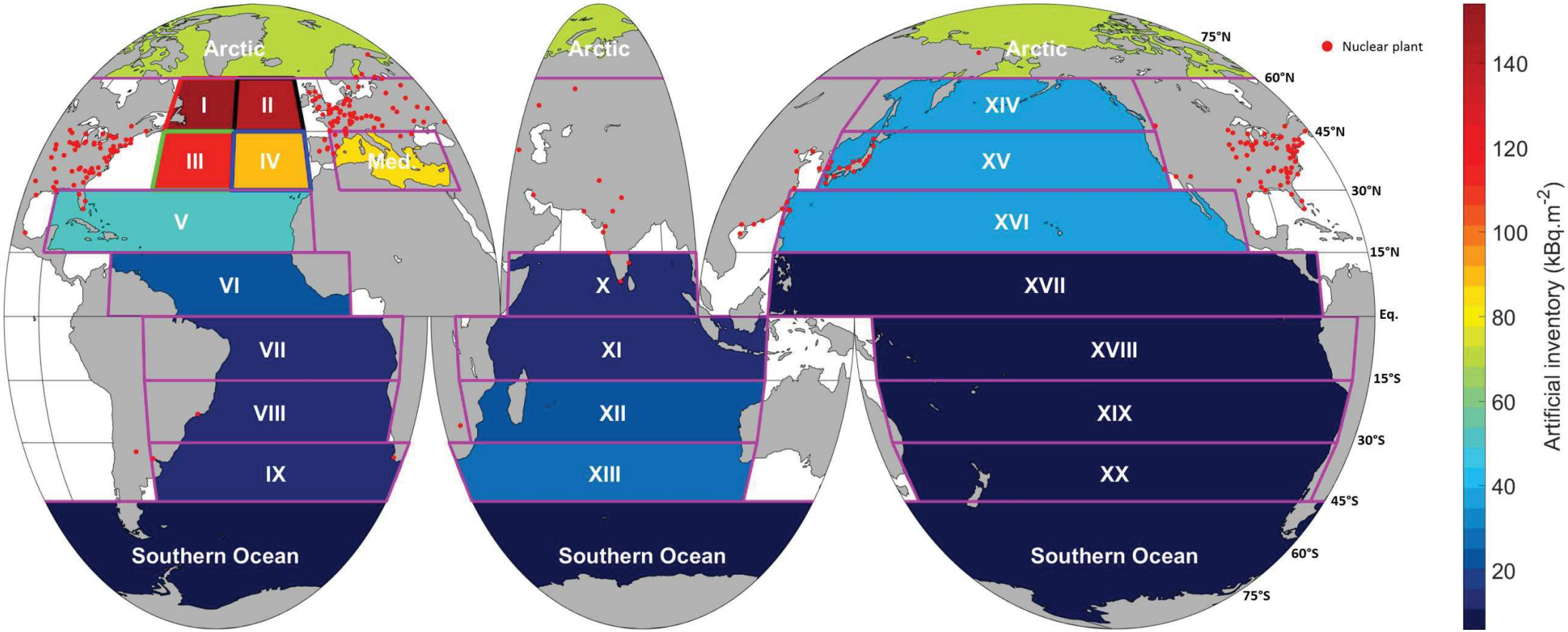


Figure 2.13. – Artificial inventory of tritium by unit of surface area (kBq.m^{-2}).

3.1 Inventory of tritium in the ocean

The total inventory of tritium in the global ocean calculated in all boxes is equal to 26.8 ± 14 kg, of which 3.8 kg are of natural origin and 23.0 ± 14 kg artificial derived (Table 2.2).

This value can be compared to the 2016 inventory of tritium remaining from the nuclear bomb tests estimated from the radioactive decay of 520 - 550 kg of tritium since 1960 (Michel, 1976; UNSCEAR, 2000), which is equal to 22 – 23.5 kg. The industrial inventory at steady-state is roughly estimated to 1.3 kg (from a yearly input of ~78 $g.yr^{-1}$). The natural inventory at steady-state is estimated equal to 4.5 kg (from a yearly natural input of ~258 $g.yr^{-1}$). It results a total (natural + industrial + nuclear tests) of 27.8 – 29.3 kg of tritium in Earth estimated from the literature. These values are in agreement with our estimation of the total and natural inventory in the global ocean (~90% of the Earth inventory).

From the difference between the total and the natural inventory, the artificial inventory in each box was deduced (Table 2.2). Figure 2.13, shows the artificial inventory of tritium contained by unit of surface area in each box. The difference between the Northern and the Southern Hemisphere is significant, with higher artificial inventories in the Northern Hemisphere. The higher values of artificial inventory present in the Indian Ocean (boxes XII and XIII) than at the same latitude in the Atlantic (boxes VIII and IX) and in the Pacific Ocean (boxes XIX and XX) may be due to the transport of water masses from the North-Western Pacific via the Indonesian Seas to the Indian Ocean highlighted by (Povinec *et al.*, 2010).

The highest values of artificial inventory by unit of surface area located in the Arctic Ocean, the North-Atlantic Ocean, and in the Mediterranean Sea. It represents a quantity of artificial tritium by m^2 more than three folds higher than for the same latitude in the Pacific Ocean. Sections 3.3 and 3.5 discuss these excess.

3.2 Latitudinal tritium distribution in the global ocean

Results of the latitudinal distribution reported on Annexe 1 show: (i) about three folds higher tritium concentrations in the Northern Hemisphere (0.51 ± 0.50 TU16, n=8711; mean ± standard deviation, number of samples) than in the Southern Hemisphere (0.15 ± 0.11 TU16, n=8176), (ii) a global increase of tritium concentrations with latitude in the Northern Hemisphere with especially high tritium concentrations in the Arctic Ocean (1.00 ± 0.91 TU16, n=1610), (iii) a similar latitudinal distribution of tritium in the Pacific and Atlantic oceans, and (iv) that the lowest tritium concentrations are found in the Southern Ocean (0.05 ± 0.04 TU16, n=2280). Mean decay-corrected tritium concentration in the Mediterranean Sea is equal to 0.71 ± 0.19 TU16, n=312, which is

significantly higher than the concentration in North-Atlantic waters for the same latitude (0.55 ± 0.13 TU16, n=852).

The difference in surface concentrations between the northern hemisphere and the southern hemisphere is directly attributable to the preferential injection of tritium from fallout of nuclear bomb tests into the northern hemisphere (Figure 2.9 and Figure 2.10). This discrepancy is highlighted by the difference in artificial inventory between the North and the South Hemisphere (Figure 2.13). The sum of the artificial tritium inventory in the North – Hemisphere is calculated equal to ~16 ± 8 kg, and ~7 ± 6 kg in the South – Hemisphere (Table 2.2).

The vertical distribution of tritium presented in Annexe 2 shows a decrease of tritium concentrations between 0 and 500 m depth over all oceans, and homogenous concentrations below 800 m depth (~0.02 TU16), except for the Arctic Ocean, the North-Atlantic Ocean and the Mediterranean Sea, which present significantly higher in-depth concentrations ~0.34 TU16, ~0.25 TU16 and ~0.40 TU16, respectively.

3.3 Arctic Ocean

High tritium concentrations are found in the Arctic Ocean (1.00 ± 0.91 TU16 in the surface layer above 500 m depth, Figure 2.14). Those high concentrations lead to a high global tritium inventory equal to 1293 ± 637 PBq (~ 3.6 ± 1.8 kg) (Table 2.2).

It includes the natural inventory at steady-state estimated to be 117 PBq (328 g). As for artificial sources we assume that the entirety of the releases between 1952 and 2016 of the European nuclear reprocessing plants of Sellafield and La Hague are introduced in the Arctic Ocean through water transport (Figure 2.14). Their total contribution is calculated equal to 203 PBq (570 g) after radioactive decay. From these values we deduce that the tritium inventory in the Arctic Ocean is composed of 9% coming from the natural production, 16% of tritium coming from European nuclear reprocessing plants and 75% of tritium coming from bomb tests and others unknown sources.

This highly tritiated waters of the upper Arctic Ocean are leaving that enclosed basin to the North Atlantic Ocean via the East Greenland Current (EGC) (Dorsey et Peterson, 1976) and sink into the deep North Atlantic Ocean at convection sites (Doney et Jenkins, 1994) (Figure 2.14).

Nowadays, in term of annual inputs the residual input of atmospheric bomb tests can be considered as weak (around 10 % of the natural input). The annual input of cosmogenic tritium is estimated to be 6.78 $PBq.yr^{-1}$ (19 $g.yr^{-1}$). For comparison the mean annual release of European nuclear facilities in the English Channel from 1984 to 2016 is equal to 11.5 $PBq.yr^{-1}$ (32 $g.yr^{-1}$) and is therefore twice as high as the natural flux in the Arctic Ocean.

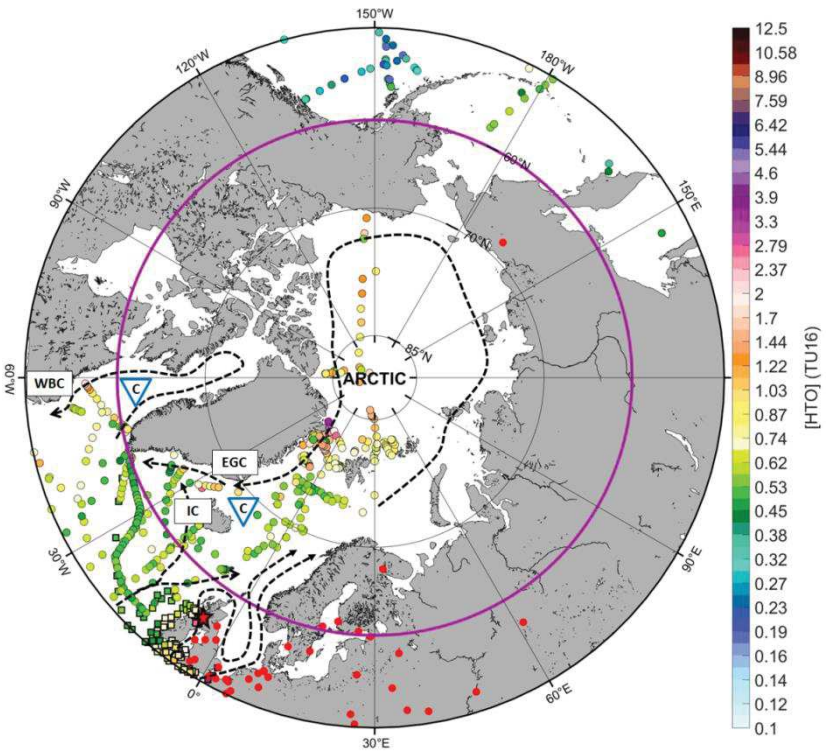


Figure 2.14 – Mean decay-corrected tritium concentrations (TU16) from 0 to 500 m between years 1967 and 2016 in the Arctic area and the surrounding areas. A simplified Arctic Ocean circulation scheme, modified from (Karcher *et al.*, 2007) and from (Bailly du Bois et Dumas, 2005) is shown with black dotted arrows. Nuclear Power plants are indicated with red circles, and the reprocessing plant of Sellafield (UK) is indicated with a red star. The boundaries of the Arctic box are indicated with the purple line, at latitude 60°N. EGC: East Greenland Current, IC: Irminger Current, WBC: western boundary current. The C in blue triangles indicates the positon of deepwater convection sites.

3.4 Southern Ocean

Lowest decay-corrected tritium concentrations measured in the Southern Ocean (0.05 ± 0.04 TU16) and highlighted on Figure 2.15 should represent the best estimation of the natural tritium inputs in the upper layer of the oceans (0 - 500 m). The most recent mean annual tritium concentration observations were performed over years 2009, 2010 and 2011, with similar tritium concentrations of 0.06 TU, 0.06 TU, and 0.05 TU respectively.

$$S_{Inv.}^{S.O.} = [\mathrm{HTO}]_{500\mathrm{m}}^{\mathrm{S.O.}} \times \mathrm{ConvBq} \times \mathrm{Z} \tag{2.12}$$

With:

$S_{Inv.}^{S.O.}$: Southern Ocean tritium inventory per unit of surface area expressed in Bq.m^{-2};

$[\mathrm{HTO}]_{500\mathrm{m}}^{\mathrm{S.O.}}$: Decay – corrected or latest measured tritium concentration between 0 and 500 m depth in the Southern Ocean, equal to 0.05 TU16;

ConvBq: Conversion of TU in Bq.m^{-3}, 1 TU ~ 119.2 Bq.m^{-3};

Z: Thickness of tritium mixed layer, equal to 500 m.

Using (2.12), we calculate the tritium inventory (over 500 m) for the Southern Ocean area to be 2980 Bq.m^{-2}. During one year, this area loses 163 Bq.m^{-2} of tritium via radioactive decay. With the hypothesis of a steady-state tritium concentration in Arctic surface waters (over 500 m), tritium from natural inputs must counterbalance the loss of tritium due to radioactive decay. The global natural production rate (D_{Nr}) has been previously estimated to be ~180 Bq.m^{-2}.yr^{-1}. This natural deposition rate is very close to the one calculated using the annual losses of tritium due to radioactive decay of a water column of 500 m with a tritium concentration of 0.05 TU (2.12). Therefore, we hypothesize that the Southern Ocean is close to an apparent steady-state with natural tritium inputs and represents a close estimation of the natural tritium inputs in the upper ocean layer (0 - 500 m). The total inventory of tritium in the Southern Ocean show a high uncertainty (748 ± 886 PBq, Table 2.2) which encompass the estimated natural inventory (233 PBq). This is not in conflict with a near steady-state of the Southern Ocean with the natural inputs.

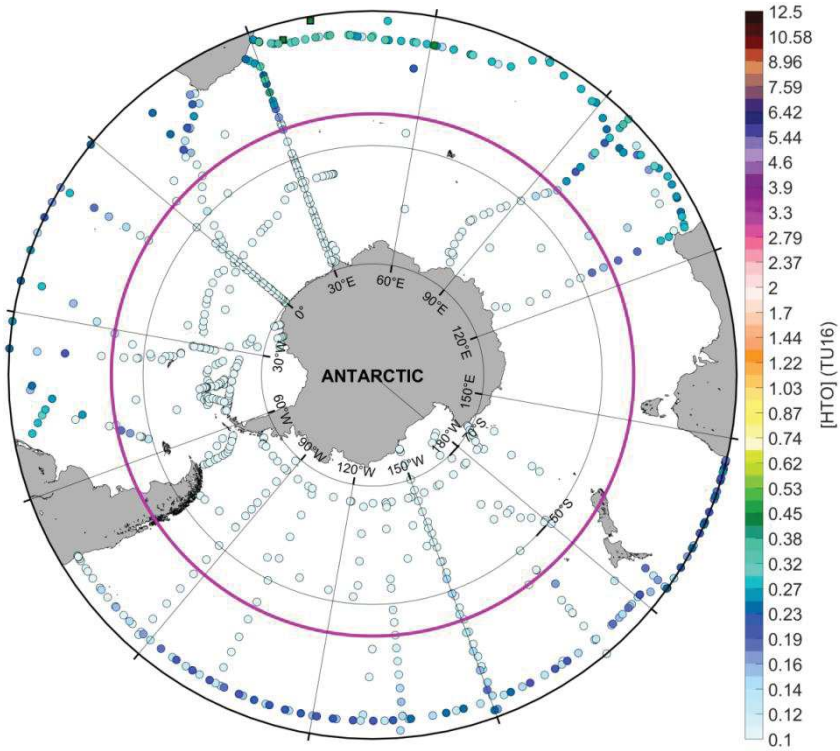


Figure 2.15 – Mean decay-corrected tritium concentrations (TU16) from 0 to 500 m between years 1967 and 2016 for the Southern Ocean area and the surrounding areas. Boundaries of the Southern Ocean box are indicated with the purple line, at latitude 40°S.

3.5 North-Atlantic Ocean

The goal of the following sections is to estimate the value of the steady-state concentration in the North-Atlantic Ocean. For this purpose it is necessary firstly to have an overview of the distribution of tritium in this area and secondly to investigate the temporal evolution of these concentrations.

3.5.1 Tritium distribution on the North-Atlantic area (II, III and IV)

Mean decay-corrected and probability density functions of tritium concentrations of boxes I, II III and IV over 500 m depth are presented in Annexe 3. The maximum of the probability density function called mode which represent the value that have the highest probability to appear is indicated over 500 m on boxes I, II, III and IV in Annexe 3 and plotted each 100 m between 0 and 1000 m on boxes II, III and IV in Figure 2.11.

Between 45°N and 60°N in the North-Atlantic Ocean, the mean decay-corrected tritium concentration and the mode of these concentrations over 500 m depth in the box I (western box), are significantly higher (0.80 ± 0.39 TU16 and 0.63 TU16 respectively) than in box II (eastern box; 0.57 ± 0.08 TU16 and 0.52 TU16 respectively) (Annexe 3). Conversely, mean tritium concentrations and mode in areas II, III, and IV were found to be similar over first 500 m depth, around 0.56 TU16 on average [0.37 - 0.82] (2σ, n=1360), with a mode of 0.52 TU16 (Annexe 3 and Figure 2.11). Subsequently box I will not be taken into account in estimating tritium concentrations in the North Atlantic and only homogeneous boxes II, III and IV are considered by the designation “North-Atlantic Ocean”.

The almost homogeneous vertical distribution of tritium concentrations over 500 m depth on box II, III and IV seen Figure 2.11, has determined the comparison depth for all others boxes.

Decay-corrected mean tritium concentration in the surface layer (0-500 m) of the North Atlantic Ocean (30°N-60°N) is equal to 0.56 TU16 on average [0.37 - 0.82] (2σ, n=1360).

The water mass transport by the EGC of highly tritiated water from the Arctic Ocean explains the relative high tritium concentrations in box I compared to box II at the same latitude (45°N-60°N) in the North-Atlantic Ocean. It explains why we decided to discard box I from our estimate of the tritium concentration in 2016 on the North Atlantic surface layer, based on its non-homogenous tritium distribution compared to the other three boxes.

Homogenous concentrations (~0.56 TU16) in boxes II, III and IV can be linked to the fact that they all are under the influence of the North Atlantic sub-tropical anticyclonic gyre (NASTG, Figure 2.16), which likely recirculates and homogenises the tritium concentrations in those areas. Indeed, the Gulf Stream forms the upper west limit of the NASTG, expanding from area III to area II. The east side of the NASTG is formed by the southward recirculation of the Azores current, which becomes the Canary current and feeds the North Equatorial current, thereby forming the South side of the NASTG. The recirculation in the NASTG feeds back into the Gulf Stream through the Caribbean Sea, thereby likely homogenising tritium concentrations between areas II to IV.

Considering the mean decay-corrected tritium concentration of the Mediterranean Sea (0.71 ± 0.19 TU16, Table 2.2), one could assume that the Mediterranean Sea is a source of tritium in the North-Atlantic Ocean, especially for box IV. However Mediterranean waters flow out through the Strait of Gibraltar and sink to around 1000 m, where they spread out across the Atlantic (Piepgras et Wasserburg, 1983). Therefore, tritiated Mediterranean waters do not impact North-Atlantic tritium concentration between 0 and 500 m depth.

The average tritium concentration in areas II, III and IV reported in the present study (0.56 ± 0.12 TU16) is a first approximation of the 2016 tritium background level in the surface of the North-Atlantic Ocean. But the decay corrected method does not take into account mixing mechanisms which can remove tritium from surface waters. The regression of the temporal evolution of tritium concentrations would highlight these mechanisms and would give us an estimation of the steady-state concentration.

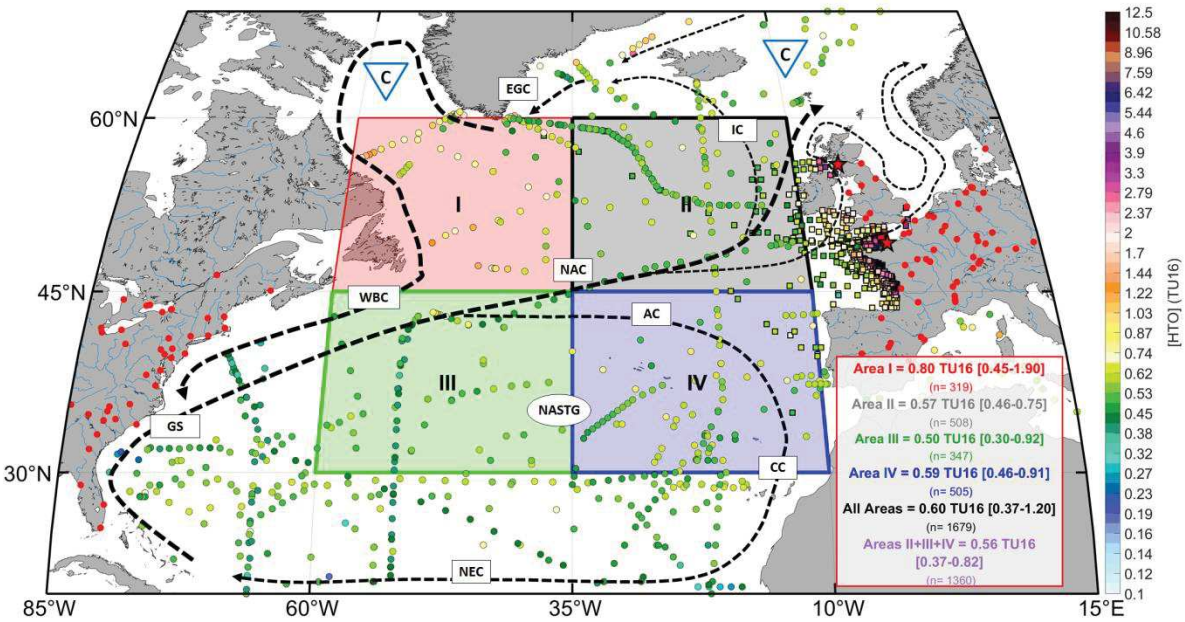


Figure 2.16 – Distribution of decay-corrected tritium (HTO) concentrations, expressed in TU16 in the North Atlantic surface ocean (0-500m), between years 1967 and 2016. Each dot (circle or square) represents the mean HTO concentration between 0-500 m. New tritium concentrations from this article are represented with squares, while data compiled from the literature are shown with circles. Four areas were defined for the purpose of the present study. The mean tritium concentration associated are indicated in the inset, represented as Area X = mean decay-corrected tritium concentration expressed in TU16, with the 95% confidence Interval (2σ) indicated in brackets, and n=number of available measurements. Dotted arrows correspond to simplified surface water hydrography of the North Atlantic currents modified from Repschläger *et al.*, 2017 and from Bailly du Bois et Dumas, 2005 Abbreviations are AC: Azores Current, CC: Canary Current, EGC: East Greenland Current, IC: Irminger Current, GS: Gulf Stream; NAC: North-Atlantic Current, NEC: North Equatorial Current, NASTG: North-Atlantic Subtropical Gyre, WBC: Western Boundary Current. Nuclear reprocessing plant of Sellafield (UK) and La Hague (France) are indicated with red stars, while nuclear power plants are represented with red circles. The C in blue triangles indicates the positon of convection sites where denser waters sink into the deep basins.

3.5.2 Temporal evolution of tritium distribution in the North-Atlantic Ocean

The temporal evolution of tritium concentrations in boxes II, III and IV, over the first 500 m beneath the surface are presented on Figure 2.17. On this figure, the tritium source function of (Doney et Jenkins, 1988) obtained using the hydrological model of (Weiss *et al.*, 1979), gives an evolution of tritium concentrations in the North-Atlantic Ocean between 1955 and 1981. Tritium concentrations before 1988 are highly variable due to atmospheric testing of nuclear weapons, and were therefore not taken into account in our calculations of (2.10) and (2.11).

The temporal evolution of the mean annual concentrations of tritium, represented by the red dots on Figure 2.17, showed that:

(i) tritium concentrations were decreasing at a rate faster than the sole radioactive decay rate of tritium between 1988 and 2013;

(ii) tritium concentrations reach a lower threshold value expressed as N in (2.11). N represents, assuming constant natural and artificial releases in the future, the steady-state concentration of these artificial and natural inputs with the loss of tritium due to radioactive decay and mixing with surrounding waters. N is equal to 0.38 ± 0.07 TU. According to the (2.11) we assess the mixing half-time of surface waters in the North Atlantic Ocean, $t_{\frac{1}{2}mix}$ = 23 ± 5 years (1σ), and we estimate the tritium concentration for the year 2016 to be 0.60 ± 0.10 TU (1σ).

We obtain for $[HTO]^{init}_{07/26/1988}$ = 2.274 ± 0.065 TU; $t_{\frac{1}{2}mix}$ = 8.4602×10^3 days (~ 23.18 years) and N = 0.38 ± 0.07 TU.

The calculated mixing half-time, $t_{\frac{1}{2}mix}$ = 23 ± 5 years (1σ), can be compared with previous results based on a two-box mixing model (Weiss *et al.*, 1979) and (Dreisigacker et Roether, 1978). For the first 534 m deep layer of the North Atlantic Ocean, they reported a mixing time of 30 years ± 30% through losses into the deep ocean (*i.e.* 3.33%.yr^{-1}). Another estimate reported a ventilation time of 14 years for the first 500 m deep layer of the north-eastern Atlantic (Andrié *et al.*, 1988). The mixing half-time we estimated for the 0-500 m top layer of the ocean translates to a rate of mixing of about 3%.year^{-1} using (2.13), which is comparable to the estimate of (Dreisigacker et Roether, 1978).

$$R_{mix} = 100 \times [1 - e^{-F}] \tag{2.13}$$

With:

R_{mix}: Annual rate of mixing (%);

F= $\frac{\log(2)}{t_{\frac{1}{2}mix}}$ with $t_{\frac{1}{2}mix}$ is the mixing half-time (years) of surface waters (0-500 m) with deeper waters and by lateral advection of waters surrounding areas II, III and IV, F = 0.0299 ± 0.0053 years^{-1} (with $t_{\frac{1}{2}mix} = 23.18$ years).

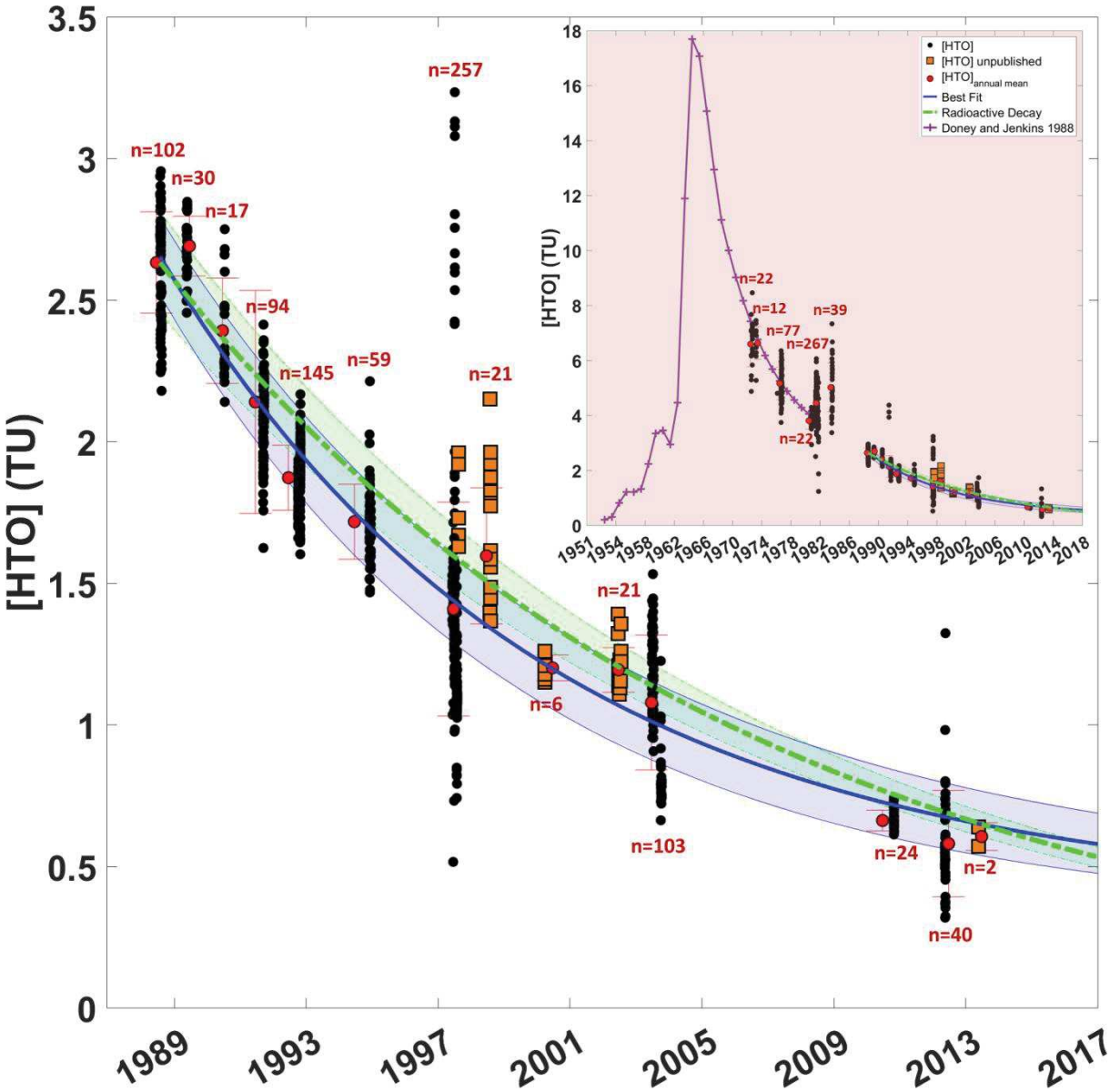


Figure 2.17 – Temporal evolution of tritium concentrations in boxes II, III and IV between 0-500 m. Tritium concentrations from the literature are represented with black circles and new tritium measurements from the present study are represented with orange squares. The general frame accounts for measurements between 1988 and 2013; the insert shows measurements between 1972 and 2013. In the insert the tritium source function of Doney et Jenkins, 1988 is represented with a purple line, it gives an evolution of tritium concentrations in the North-Atlantic Ocean between 1952 and 1981. Calculated annual means of tritium concentrations are represented with red circles. The blue line represents the non-linear regression of the tritium concentrations since 1988 (best least square fit for (2.11) with the associated standard deviation (light blue). The green dotted line represents the expected evolution of tritium concentrations due to the sole radioactive decay of the mean tritium concentrations measured in 1988 (2.10).

In the North-Atlantic Ocean (boxes II, III and IV), the fact that tritium concentrations between 1988 and 2013 were overall decreasing at a faster rate than the sole radioactive is indicative of a loss by mixing with underlying waters and lateral exchange with external surface waters. The steady-concentration of the North-Atlantic Ocean surface (N, (2.11)) means that the loss of tritium due to radioactive decay and mixing must be compensated by an equivalent tritium input.

The loss of tritium during one year of a North-Atlantic water column of 500 m depth (Z) at a steady-state concentration of 0.38 TU (N) was determined in two successive steps:

i) estimation of the inventory of tritium contained in a water column of 500 m concentrated at 0.38 ± 0.07 TU, following (2.14);

$$S_{Inv.}^{NA} = N \times \mathrm{ConvBq} \times \mathrm{Z} \tag{2.14}$$

With:

$S_{Inv.}^{NA}$: Steady-state North-Atlantic tritium inventory per unit of surface area expressed in (Bq.m^{-2});

N: Steady state concentration for the North-Atlantic Ocean (boxes II, III and IV), equal to 0.38 ± 0.07 TU (2.11);

ConvBq: Conversion of TU in Bq.m^{-3}, 1 TU ~119.2 Bq.m^{-3};

Z: Thickness of the mixed tritium concentration layer, equal to 500 m.

It results that the steady-state tritium inventory per unit of surface area (S_{HTO}^{NA}) over 500 m depth was equal to 22 648 Bq.m^{-2}.

ii) Calculation of the loss of tritium during one year (L) associated to the steady–state tritium inventory ($S_{Inv.}^{NA}$) by radioactive decay and mixing with deeper and surrounding waters, following (2.15).

$$L = S_{Inv.}^{NA} - [\, S_{Inv.}^{NA} \times e^{-[(\lambda+F) \times T]} \,] \tag{2.15}$$

With:

L: Loss of tritium of the steady-state North-Atlantic tritium inventory ($S_{Inv.}^{NA}$) (Bq.m^{-2}.yr^{-1}).

We obtain that during one year the loss associated with radioactive decay and mixing with deeper and surrounding waters was: 1870 ± 345 Bq.m^{-2}.y^{-1} (L).

This loss of tritium (L) must be compensated by an equivalent input of tritium to maintain the steady state concentration (N) in the North-Atlantic surface waters. In order to estimate the annual tritium

input at the surface of the North-Atlantic Ocean, which will be compared to the loss of tritium (L) in this area, two independent methods were applied:

(i) by using measured tritium concentrations in precipitation accounted for in the hydrological model proposed by Doney *et al.*, 1993;

(ii) by estimation the contribution of known sources over the North-Atlantic surface waters, *i.e.* the natural production rate (Masarik et Beer, 2009), the reported atmospheric tritium releases from nuclear facilities (UNSCEAR, 2016) and the estimated residual from nuclear bomb tests remaining in the atmosphere (Guétat *et al.*, 2008).

The model of Doney *et al.*, 1993 computes the atmospheric tritium deposition per unit of surface area. It takes into account tritium inputs by rain and vapour–exchange following (2.16). The tritium concentrations in the rainfalls was measured monthly in 2009 at Valentia, Ireland (IAEA/WMO, 2018). Valentia is considered as representative of the North-Atlantic rainfall as it is an island located at the south-western part of Ireland at the Middle East border of the box II. We assume that this island is mainly under influence of oceanic air masses crossing the North Atlantic from west to east under the atmospheric general circulation.

$$\mathrm{D}_{atm} = PC_p + \mathrm{E}\frac{h}{(1-h)} \times C_v - E\frac{1}{a(1-h)} \times C_s \tag{2.16}$$

With:

$\mathrm{D}_{\mathrm{atm}}$: Atmospheric tritium deposition (Bq.m^{-2});

P: Precipitation rate (m), ~1 m (Dorman et Bourke, 1981);

C_p: Precipitation concentration in 2009 (Bq.m^{-3}), equal to 328 ± 41 Bq.m^{-3} (1σ) Valentia (Ireland) (IAEA/WMO, 2018);

E: Evaporation rate ~ Precipitation rate in the North Atlantic Ocean (Schmitt *et al.*, 1989);

h: Water vapour content in 10 m above sea-level relative to saturation, h=0.74 (Weiss et Roether, 1980);

C_v: Vapour concentration set equal to $\frac{1}{a} \times C_p$;

a: Isotopic fractionation factor 0.7 ± 0.1 (Doney *et al.*, 1992);

C_s: Tritium concentration at steady-state, equal to 0.38 ± 0.07 TU (~45 ± 8 Bq.m^{-3}) (1σ), from (2.11).

The atmospheric tritium deposition (D_{atm}) obtained is equal to 1413 ± 170 Bq.m^{-2}.yr^{-1}. This value is comparable to the loss of tritium in the surface of the North-Atlantic Ocean at steady-state (L=1870 ± 345 Bq.m^{-2} yr^{-1}, (2.15)).

The second method used the known sources of tritium given in the literature in order to calculate the inputs of tritium at the surface of the North-Atlantic Ocean. The known inputs are:

(i) the natural production rate calculated from (Masarik et Beer, 2009) and corrected of the North-Atlantic factor area (F_{Area}, (2.9)), equal to ~268 Bq.m^{-2};

(ii) the industrial releases. Between 1998 and 2002, the global annual releases of tritium to the atmosphere from nuclear facilities[6] were estimated at 11.7 PBq.yr^{-1} (UNSCEAR, 2016). Considering that almost all atmospheric tritium release occurs in northern hemisphere over a surface area of 2.55×10^{14} m², the industrial tritium deposition rate is around 69 Bq.m^{-2} after correction of the North-Atlantic factor area (F_{Area}, (2.9));

(iii) the remaining tritium from nuclear weapons tests. According to an estimation by (Guétat *et al.*, 2008) the tritium released by the atmospheric nuclear weapons tests is still present in 2016 in the atmosphere at an amount of 86 PBq. The annual percentage deposition is deduced from the ratio between the natural inventory (4.5 kg) divided by the yearly natural input (258 g). It is equal to ~6%.yr^{-1}. With a hypothesis of an equivalent deposition rate of the residuals inventory in the Northern hemisphere, the deposition rate of atmospheric nuclear testing is estimated to be 30 Bq.m^{-2}.yr^{-1} after correction of the North-Atlantic factor area (F_{Area}, (2.9)).

It results that a total of 367 Bq.m^{-2}.yr^{-1} of tritium is added in the Northern Hemisphere by known natural, residuals fallout from nuclear weapons testing and industrial deposition. This value is five folds lower than the deposition rate required to maintain a steady-state tritium concentration of 0.38 TU in areas II, III and IV (L=1870 ± 345 Bq.m^{-2}.yr^{-1}, (2.15). It is four folds lower than the deposition rate calculated by the hydrological model (D_{atm} =1413 ± 170 Bq.m^{-2}.yr^{-1}, (2.16).

In term of budget, the yearly loss of tritium in boxes II, III and IV by radioactive decay and mixing with deeper and surrounding water (L, (2.14)), accounted for a total of 19 ± 5 PBq.yr^{-1}.

The tritium inputs from known sources (367 Bq.m^{-2}.yr^{-1}) accounted for a yearly input over the whole area of 4 PBq.yr^{-1}. Consequently an input of 15 ± 5 PBq.yr^{-1} is lacking from the know sources to maintain the steady-state concentration (N, (2.11)) in areas II, III and IV. For comparison a deposition rate of 367 Bq.m^{-2}.y^{-1} over a water column of 500 m depth would corresponds to an expected steady-state concentration of ~0.075 TU in the North-Atlantic Ocean.

This discrepancy is also highlighted by the excess of artificial tritium per unit of surface area found in the North-Atlantic Ocean (Figure 2.13), which suggests higher artificial inputs in the North-Atlantic Ocean.

[6] Nuclear facilities include nuclear reactors, fuel reprocessing plants, waste storage and waste disposal sites.

This discrepancy in North-Atlantic Ocean might be partly explained by the liquid releases from nuclear power plants on western boundaries of the North-Atlantic Ocean (~5 $PBq.yr^{-1}$ which represents the liquid releases from (UNSCEAR, 2016) without the 11 $PBq.yr^{-1}$ issued from European reprocessing plants), sea-dumping of low-level radioactive waste (~2 PBq of tritium remaining in 2016 in North-Atlantic Ocean according to (IAEA, 1991), and releases of tritium which are not accounted in (UNSCEAR, 2016) (military and others). As an example, the atmospheric emissions of the French military industry of 12 $PBq.yr^{-1}$ between 1968 -2007 are not taken into account (Gazal et Amiard, 2010).

4 Conclusion

We investigated the tritium distribution in the global ocean using a global compilation of more than 41 000 measurements (including 610 new measurements acquired during recent oceanographic campaigns). This compilation (available on https://doi.pangaea.de/10.1594/PANGAEA.892125) provides an overview of tritium over the whole ocean. It allowed us to make quantitative comparisons of natural and artificial tritium inventories according to latitude as well as comparisons of the mean tritium concentrations on the first 500 meters of the water column.

Despite the uncertainties of the results obtained, this study gives an estimation of the inventories of tritium at a global scale. The total oceanic tritium was calculated equal to 26.8 ± 14 kg, *i.e.* 3.8 kg of natural (cosmogenic) tritium and 23 ± 14 kg of artificial tritium. This total inventory was found in agreement with previous estimation of the total oceanic stock calculated from the natural inventory at steady-state (~3.6 – 4.5 kg) plus the total release of tritium by nuclear bomb tests in the atmosphere since the late 1950's and the early 1960's (~22 – 23.5 kg) plus the industrial inventory at steady-state (~1.3 kg).

The influence of the anthropogenic tritium was found significantly higher in the Northern Hemisphere than in the Southern Hemisphere, in particular in the North-Atlantic Ocean and the Arctic Ocean. In the opposite Hemisphere, in the Southern Ocean, the artificial influence was found weak.

We estimated the contribution of each tritium sources in the Arctic Ocean from the calculation of the total and natural inventory and the knowledge of the liquid tritium releases of the European reprocessing plants. The resulting tritium inventory in Arctic is composed of 9% coming from the natural production, 16% of tritium coming from European nuclear facilities and 75% of tritium coming from bomb tests and others unknown sources.

By addressing the temporal evolution of tritium concentrations in the North Atlantic Ocean from 1988 to 2013, we provide ocean mixing rate and a model describing the evolution of surface tritium concentrations. The half-time mixing rate of surface waters and the steady state concentration were

respectively calculated to be 23 ± 5 years (1σ) and 0.38 ± 0.07 TU (1σ). The 2016 tritium concentration deduced from this temporal evolution is equal to 0.60 ± 0.10 TU (1σ).

The steady-state tritium concentration calculated in the North-Atlantic Ocean is balanced by the estimated tritium inputs from concentrations measured in the rainfalls. But the tritium inputs estimated from known natural and anthropic deposition in the northern hemisphere (367 $Bq.m^{-2}$) is five folds weaker than the required input to maintain this steady-state (1870 ± 345 $Bq.m^{-2}$).

This excess of tritium in the North-Atlantic Ocean is also highlighted by high values of artificial inventory of tritium by unit of surface area in this area compared to the North-Pacific Ocean. We cannot detail the origins of this discrepancy.

Conversely the balance calculated for the Southern Ocean shows an equilibrium between the natural input (180 $Bq.m^{-2}$) and the inventory of tritium by m^2 over 500 m depth (163 ± 130 $Bq.m^{-2}$).

This study focused on tritium background estimation in the surface waters of the North-Atlantic Ocean, which provides highly needed insights for monitoring the impact of releases from the European nuclear facilities, particularly in the Irish Sea, the Bay of Biscay and the English Channel and accurately determining their contribution.

It could be extended to others part of the oceans where controlled and accidental releases may occur in order to differentiate the open ocean contribution from the local releases.

Acknowledgments

We thanks to the three anonymous reviewers who provide useful comments that significantly enhance this work.

We are grateful to the crew of the various oceanographic expeditions during which tritium samples were collected, particularly Bernard Le Cann, Pierrick Penven, the Ifremer, SHOM and IPEV team. We would like to thank people and laboratories that helped to measure the original dataset used in the present work. We thank Claire Godinot for her assistance in writing and correcting this article. We thank Dina Okhrimchuk for help in compiling the locations of nuclear power plants worldwide. This work was supported by the Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire and the Institut Français de Recherche pour l'Exploitation de la Mer.

Erratum

Dans l'équation (2.16) correspondant au flux de tritium atmosphérique à la surface de l'Atlantique Nord d'après (Doney *et al.*, 1993), la concentration de la vapeur d'eau (C_v) est définie égale à $\frac{1}{a} \times C_p$ avec a le facteur du fractionnement isotopique égale à 0,7 et C_p la concentration de tritium dans la pluie. Or a= 1,12 et non pas 0,7 ;

Cette erreur de formulation de ma part change la valeur du dépôt atmosphériques (D_{atm}) précédemment obtenu égale à 1413 ± 70 $Bq.m^{-2}.yr^{-1}$. Avec la formulation correcte de la concentration de tritium dans la vapeur d'eau le dépôt atmosphérique est de 1060 ± 280 $Bq.m^{-2}.yr^{-1}$.

Ainsi le dépôt de tritium atmosphérique calculé à partir des rejets connus de tritium (367 $Bq.m^{-2}.yr^{-1}$) n'est plus que de trois fois inférieurs (au lieu de quatre fois) au calcul de dépôt de tritium modélisé par le modèle de Doney *et al.*, 1993, (D_{atm}= 1060 ± 280 $Bq.m^{-2}.yr^{-1}$).

2.5 Synthèse

Ce chapitre a permis de présenter le tritium, l'isotope radioactif de l'hydrogène qui est utilisé dans cette étude comme un traceur des masses d'eau continentales dans le golfe de Gascogne. Les différentes sources de tritium dans l'environnement ont été identifiées et quantifiées. En 2016, les trois principales sources de tritium dans l'environnement étaient les retombées des essais nucléaires lors des années 1960 (22-24 kg), le tritium cosmogénique (4,5 kg) et les rejets industriels (1,3 kg). Associé à la molécule d'eau, le tritium se retrouve à terme dans les océans. Un inventaire mondial du tritium dans les océans a été réalisé à partir de la compilation de différentes bases de données océanographiques. Cet inventaire a permis de calculer le stock de tritium présent dans les océans et d'en quantifier les différentes sources pour les différentes subdivisions établies. Il a également permis d'estimer l'évolution temporelle du bruit de fond en tritium à la surface de l'Atlantique Nord. En 2016, ce bruit de fond est estimé à ~71 ± 13 $Bq.m^{-3}$. La connaissance de ce bruit de fond est essentielle pour quantifier les différents termes sources en tritium dans le golfe de Gascogne. Les concentrations rencontrées dans l'océan ouvert ; entre 6 et 120 $Bq.m^{-3}$; nécessitent des techniques de mesures tritium adaptées à de faibles niveaux qui diffèrent des mesures de routine du tritium par scintillation liquide (LD > 1000 $Bq.m^{-3}$). Afin de mesurer des concentrations comprises entre 1 et 10000 $Bq.m^{-3}$, la méthode choisie et mise en place par l'IRSN est la mesure de l'hélium-3 ; produit de la décroissance radioactive du tritium ; par spectrométrie de masse. Cette méthode nécessite plusieurs mois de recroissance avant mesure et de nombreuses étapes de préparation tout au long du processus, ce qui en fait une mesure longue mais très précise (LD ~ 10 $Bq.m^{-3}$).

Le prochain chapitre présente les flux de tritium entrant dans le golfe de Gascogne par les rejets chroniques des installations nucléaires.

CHAPITRE 3

EVALUATION DES FLUX DE TRITIUM ISSUS DES CNPE DANS LE GOLFE DE GASCOGNE

Chapitre 3. Evaluation des flux de tritium issus des CNPE dans le golfe de Gascogne

Afin de modéliser la dispersion du tritium dans le golfe de Gascogne entre Janvier 2007 et Juin 2016, il est nécessaire de déterminer le terme source en tritium provenant des installations nucléaires et de quantifier les erreurs associées. Les principaux mécanismes de dispersion, vu dans le chapitre 1, recouvrent des échelles de temps allant de l'heure à la semaine au rythme des cycles saisonniers, il est donc nécessaire de connaitre le flux de tritium entrant dans le domaine de calcul du modèle hydrodynamique à une échelle de temps la plus précise possible.

Les données de rejets en mer des installations nucléaires côtières situées dans l'emprise du modèle sont directement utilisées comme données d'entrées dans le modèle de dispersion. Lorsque les rejets parviennent en mer via les fleuves, il est nécessaire de prendre en compte leur transit dans les rivières. Ces rejets fluviaux concernent les centrales nucléaires situées en bordure de la Loire, la Vienne et la Garonne. Pour cela des mesures intégrées mensuellement réalisées par l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) dans le cadre de la surveillance de l'état radiologique des cours d'eau français ainsi que des mesures intégrées pendant 24h et réalisées dans le cadre de cette thèse sont exploitées.

Cependant, l'ensemble de ces mesures ne recouvrant pas entièrement la période d'étude, le recours à la modélisation du transfert du tritium par les rivières est nécessaire. Pour cela le modèle de transport des radionucléides par les rivières « CASTEAUR » de l'IRSN est utilisé. Les mesures permettront la validation et la quantification de l'erreur moyenne induite par le modèle.

Ce chapitre a pour but d'évaluer les flux de tritium des installations nucléaires aboutissant dans l'environnement marin. La première partie présente l'ensemble des flux de tritium rejetés par les installations nucléaires impactant ou potentiellement impactant le golfe de Gascogne. La deuxième partie présente le modèle CASTEAUR utilisé pour modéliser le transfert du tritium par les rivières. Les mesures automatiques du flux de tritium dans les rivières sont présentées dans une troisième partie. Enfin, la quatrième et dernière partie présente les comparaisons entre les mesures et les résultats du modèle CASTEAUR.

3.1 Données de rejets en tritium des installations nucléaires

Le tritium présent au sein du golfe de Gascogne a pour principale origine les installations nucléaires de production d'électricité présentent en bordure des fleuves Loire et Garonne. Les centrales nucléaires aux abords des côtes de la Manche et de la façade Atlantique (Figure 3.1) ainsi que les usines de retraitement des déchets nucléaires de Sellafield (Angleterre) et La Hague (France) sont également prises en compte.

Les données de rejets en tritium des centres nucléaires de production d'électricité (CNPE) et des usines de retraitement utilisées dans la thèse sont présentées mensuellement (Figure 3.2 et Figure 3.3) entre le 01/01/2007 et le 31/06/2016.

Les données de rejets liquides de tritium des CNPE ont été transmises par l'exploitant (EDF) ainsi que par l'Autorité de Sûreté Nucléaire (ASN) sous la forme d'activités (Bq) mensuelles de tritium.

Entre le 01/01/2007 au 31/12/2015, les données mensuelles de rejets de l'ASN pour les centrales de la Loire et de la Vienne sont utilisées car elles ont l'avantage d'indiquer la date du premier rejet et celle de la fin du dernier rejet pour chaque mois. Du 01/01/2016 au 30/05/2016, les données de rejets mensuelles transmises par EDF sont utilisées, les données de rejets de l'ASN n'étant pas disponibles pour cette période. Pour toutes les autres centrales (Manche et Gironde) les données de rejets proviennent des données mensuelles transmises par EDF à l'IRSN de 2007 à 2016.

Les données de rejets liquides de l'usine de retraitement des déchets nucléaires de La Hague sont communiquées à l'IRSN rejet par rejet depuis 1982. Les activités rejetées sous forme liquide ($\sim 10^{16}$ Bq.an^{-1}) sont environ dix fois supérieures aux rejets annuels de toutes les CNPE françaises cumulées ($\sim 10^{15}$ Bq.an^{-1}).

Les données de rejets du complexe nucléaire de Sellafield en Angleterre sont indiquées annuellement dans les rapports du Centre for Environment, Fisheries and Aquaculture Science (CEFAS) de 2007 à 2015. Les valeurs de 2016 alors non publiées ont été déterminées en prenant en compte la moyenne annuelle des rejets liquides de Sellafield entre 2007 et 2015 soit $1{,}3\times10^{15}$ Bq.an^{-1}.

Les données mensuelles des rejets liquides de tritium des centrales de la Loire et de la Garonne sont utilisées dans un modèle de transfert des radionucléides par les rivières afin d'obtenir une estimation quotidienne du terme source. Les données de rejets des CNPE de la Manche, du Blayais et des usines de retraitements de La Hague et Sellafield sont directement utilisées comme données d'entrées dans le modèle hydrodynamique de dispersion.

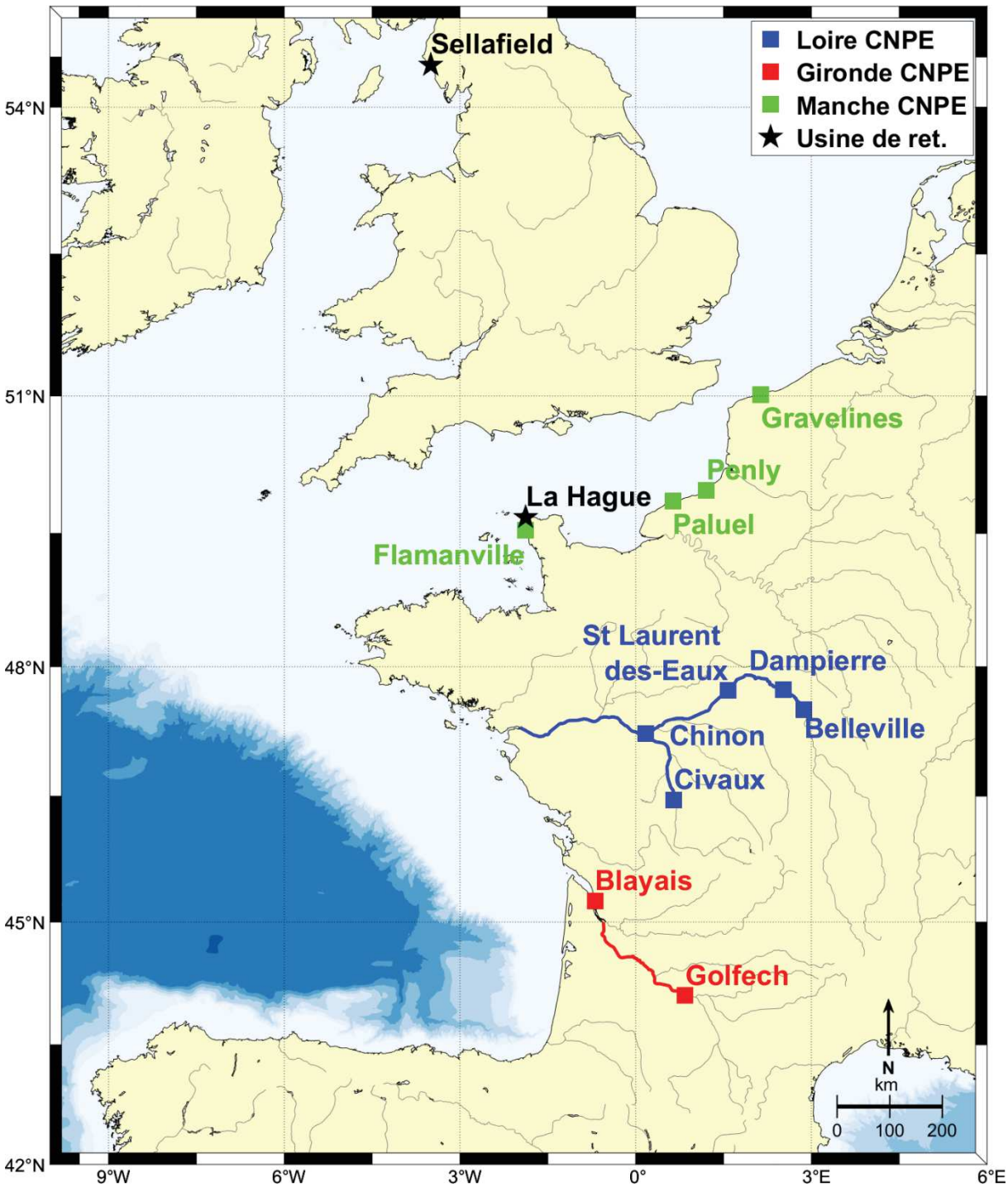


Figure 3.1 – Principales sources industrielles de tritium dans le golfe de Gascogne. ■ CNPE : Centre Nucléaire de Production d'Electricité ; ★ Usine de ret. : Usine de retraitement du combustible nucléaire.

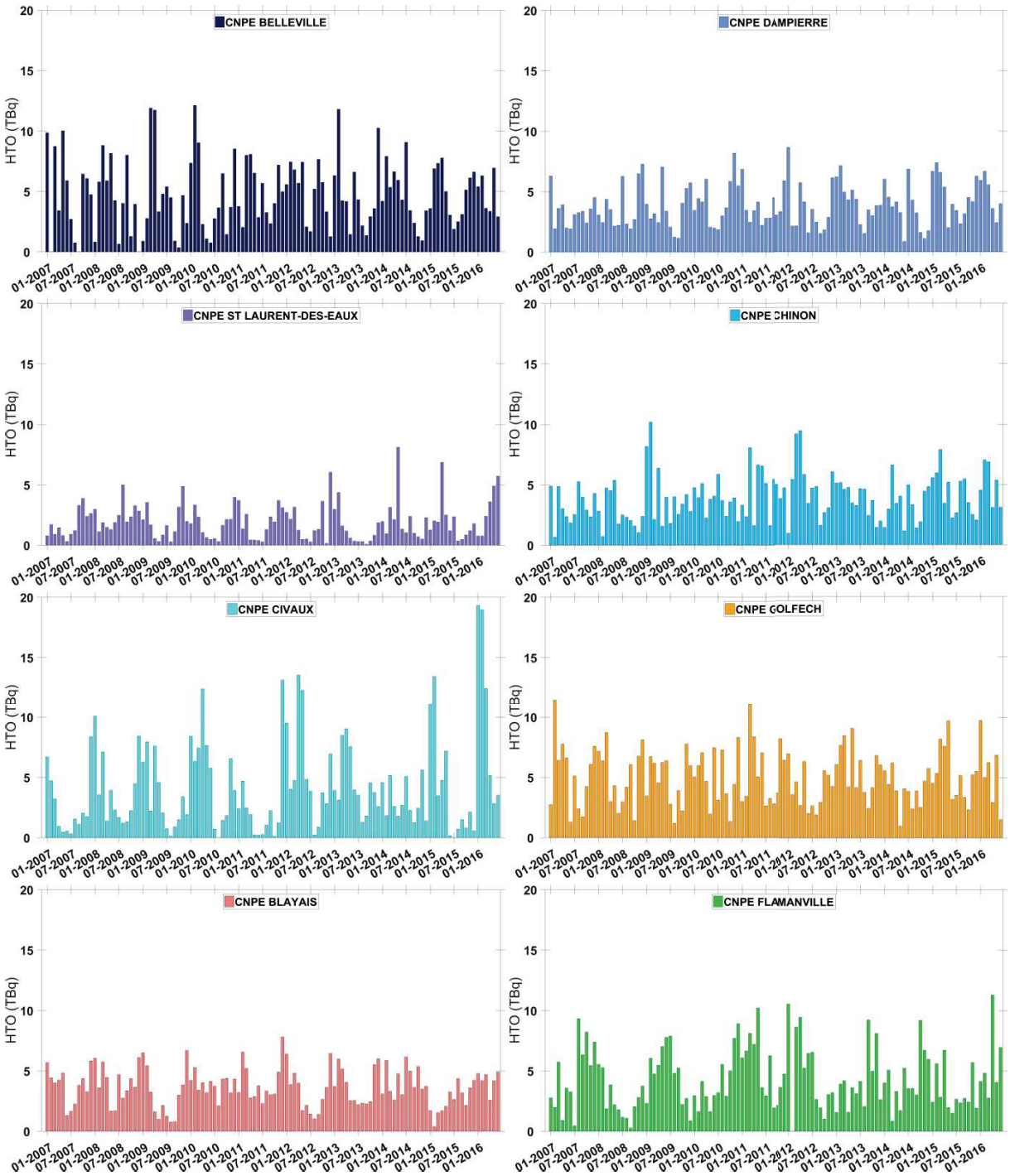


Figure 3.2 – Activités mensuelles de tritium (en TBq) rejetées par les installations nucléaires situées sur les bassins versants de la Loire et de la Gironde, les centrales nucléaires bordant la Manche ainsi que les usines de retraitement du combustible nucléaire de La Hague et Sellafield. 1TBq $=10^{12}$ Bq.

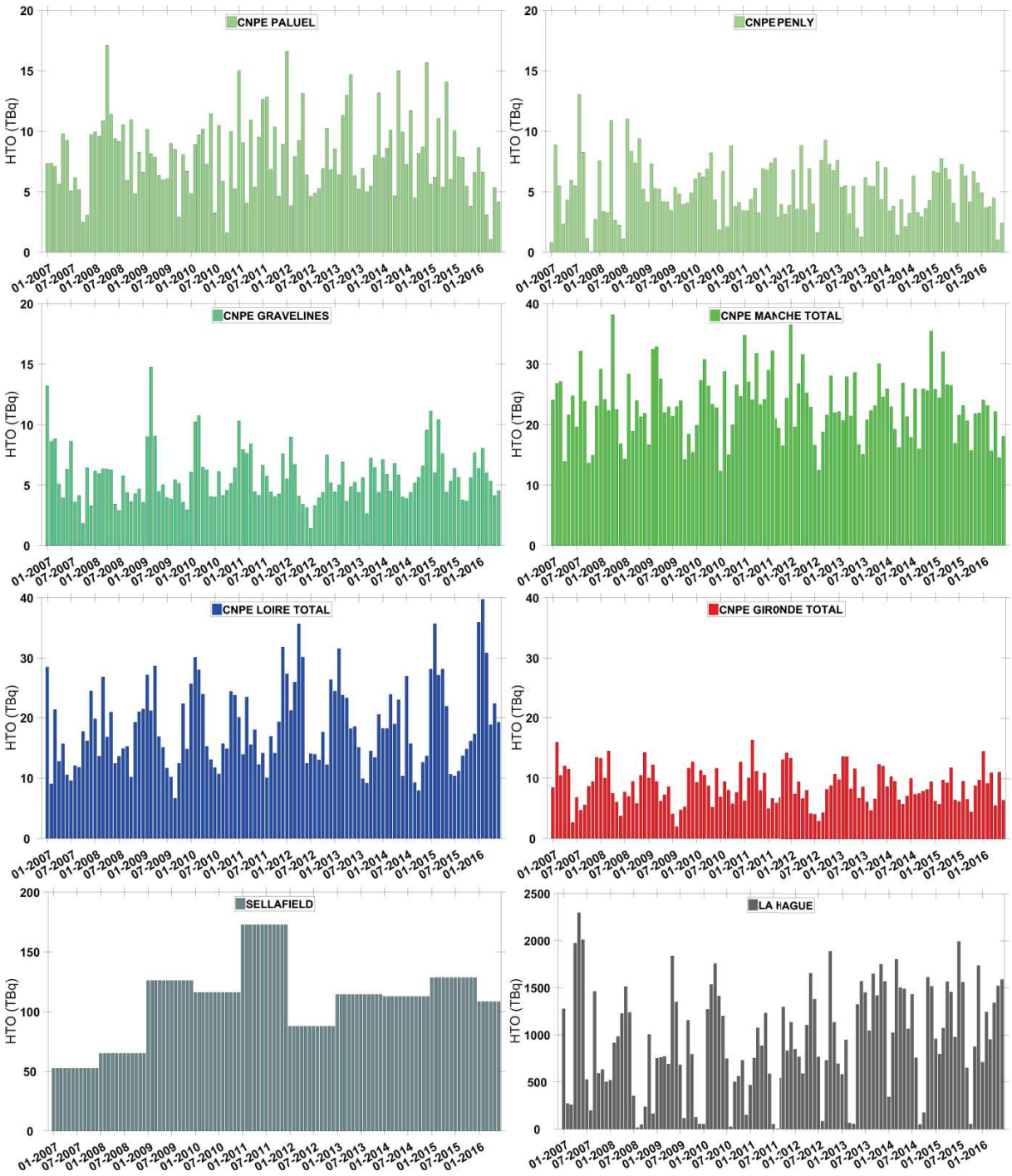


Figure 3.3 – Activités mensuelles de tritium (en TBq) rejetées par les installations nucléaires situées sur les bassins versants de la Loire et de la Gironde, les centrales nucléaires bordant la Manche ainsi que les usines de retraitement du combustible nucléaire de La Hague et Sellafield. 1TBq $=10^{12}$ Bq.

3.2 Modélisation du transfert du tritium dans les rivières

3.2.1 Modèle CASTEAUR

Afin de déterminer les flux de tritium parvenant en mer après leur transit par les eaux de la Loire et de la Garonne, un modèle de transfert simplifié des radionucléides dans les rivières, le modèle CASTEAUR (Calcul Simplifié des Transferts dans les cours d'EAUx Récepteurs) (Beaugelin Seiller *et al.*, 2002) est utilisé du point de rejet en tritium des centrales jusqu'aux limites aval de la marée dynamique (limite de validité du modèle).

Il comprend deux modèles imbriqués : un modèle hydrographique qui représente les principales caractéristiques géométriques du cours d'eau et un modèle hydraulique qui détermine les conditions d'écoulement pour chaque pas de temps et d'espace. Il est basé sur une équation de bilan des masses d'eau (3.1) et l'équation de Manning-Strickler (3.3) (Boyer et Ternat, 2005).

Le modèle hydrographique est composé de biefs successifs constituant un réseau hydrographique linéaire. Chaque bief est caractérisé par un coefficient de Strickler qui représente le frottement sur le fond et une pente homogène. Les biefs peuvent comporter plusieurs sections décrivant la largeur, l'angle des berges et la côte de fond de chacune des sections. Pour cette étude, les biefs sont composés de sections ayant un profil unique de forme trapézoïdale (Boyer et Ternat, 2005).

A l'aide des données hydrographiques et d'un pas d'espace défini par l'utilisateur le réseau est ensuite discrétisé en mailles de calculs (Boyer, 2011).

Le modèle hydraulique calcule pour chaque maille l'évolution temporelle du débit Q_b^j ($m^3.s^{-1}$), du volume de la colonne d'eau wc_b^j et de la contrainte de cisaillement sur le fond. Il permet de déterminer les activités en tritium (Bq) de chaque maille (Boyer, 2011).

$$\frac{d(SM_x^t)}{dt} = \frac{d(Qwcw_x^t)}{dx} \tag{3.1}$$

$$Qwcw_x^t = V_x^t \times SM_x^t \tag{3.2}$$

$$V_x^t = Ks_x \times Rh_x^{t\frac{2}{3}} \times p_x^{\frac{1}{2}} \tag{3.3}$$

Avec:

SM : Section mouillée (m^2) ;

Qwc : Débit volumique ($m^3.s^{-1}$) ;

V : Vitesse moyenne ($m.s^{-1}$) ;

Ks : Coefficient de Strickler ($m^{1/3}.s^{-1}$) ;

Rh : Rayon hydraulique (m) ;

p : Pente ($m.m^{-1}$).

La construction et la configuration des réseaux hydrographiques de la Loire, de la Vienne et de la Garonne utilisés dans cette thèse ont été préalablement réalisées durant le stage de master 2 d'Aurélie Taormina (Taormina, 2015).

3.2.2 Apports des termes sources (flux d'eau douce et de tritium) au domaine de calcul

Les termes sources sont apportés au domaine de calcul sous la forme de flux d'eau ($m^3.s^{-1}$) et de flux de tritium ($Bq.s^{-1}$) (Table 3.1, Table 3.2 et Table 3.3).

Les apports en eau sont déduits des débits fournis dans la Banque Hydro (http://hydro.eaufrance.fr/). Ce sont les débits moyens journaliers qui ont été pris en compte entre le 01/01/2007 et le 01/06/2016. En cas de données manquantes, les débits sont estimés par interpolation linéaire entre les débits aux dates voisines. Les débits sont apportés tout au long du réseau et après chaque affluent, en déduisant de leurs valeurs brutes, la valeur du débit en amont. Seul l'apport supplémentaire du bassin versant ou des affluents est ainsi apporté au modèle.

Les apports en tritium sont déduits des données de rejets présentées (Figure 3.2 et Figure 3.3) et converties en flux ($Bq.s^{-1}$). Ils sont apportés au modèle au point kilométrique (Pkm) correspondant à l'emplacement du rejet des centrales nucléaires sur le réseau (Figure 3.4 et Figure 3.5). La Vienne étant un affluent de la Loire, il est nécessaire de procéder en deux étapes : (i) détermination du flux de tritium issu de la centrale nucléaire de Civaux arrivant à la confluence de ces deux réseaux (Table 3.1), (ii) prise en compte de ce point de confluence comme un apport d'eau tritiée dans la Loire (Table 3.2, apport n°8).

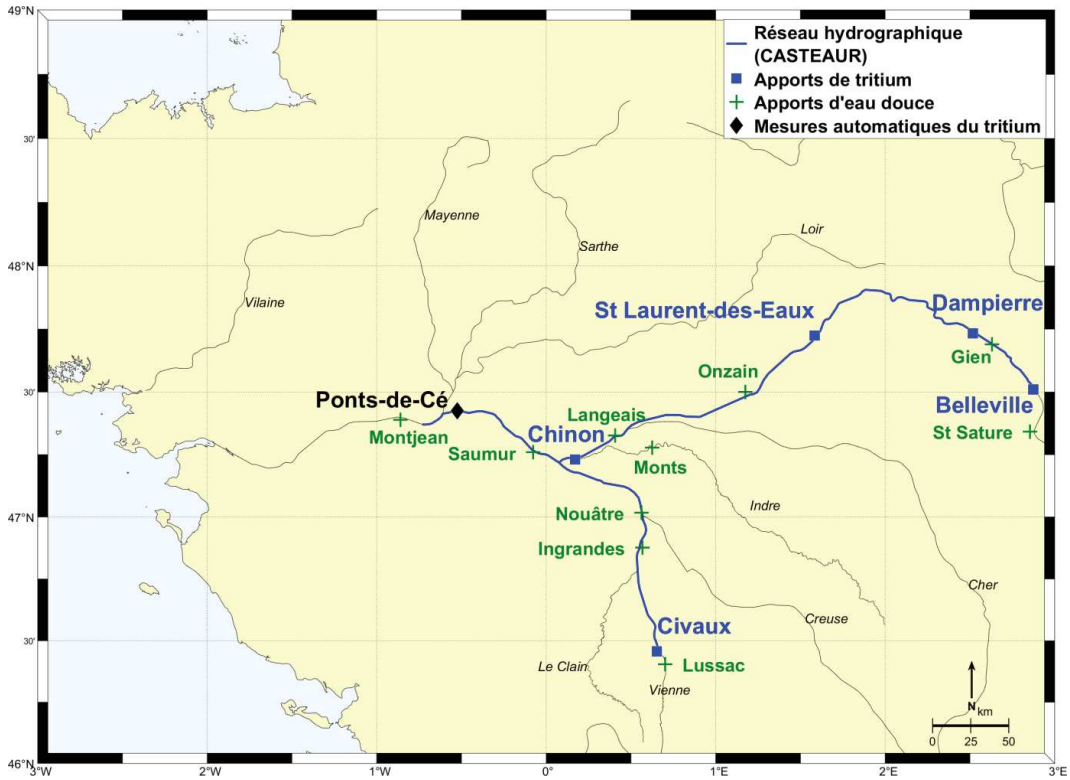


Figure 3.4 – Réseau hydrographique (ligne bleue) et localisations des apports d'eau douce (croix verte) et de tritium (carré bleu) appliqués au modèle CASTEAUR, pour la Loire et la Vienne. La localisation des automates de prélèvement d'eau pour la comparaison entre les mesures et le modèle CASTEAUR est indiquée en noir.

Table 3.1 – Apports en eau (Q en $m^3.s^{-1}$) et en tritium (F en $Bq.s^{-1}$) au réseau hydrographique de la Vienne. Pkm : Point kilométrique.

N° Apport	Nature	Pkm	Nom du rejet	Calcul de l'apport
1	Flux d'eau	0	Lussac	Q_{Lussac}
2	Flux de tritium	0	CNPE Civaux	F_{Civaux}
3	Flux d'eau	43	Ingrandes	$Q_{Ingrandes} - Q_{Lussac}$
4	Flux d'eau	70	Nouâtre	$Q_{Nouâtre} - Q_{Ingrandes}$

Table 3.2 – Apports en eau (Q en $m^3.s^{-1}$) et en tritium (F en $Bq.s^{-1}$) au réseau hydrographique de la Loire. Pkm : Point kilométrique.

N° Apport	Nature	Pkm	Nom du rejet	Calcul de l'apport
1	Flux d'eau	0	St Satur	$Q_{St\ Satur}$
2	Flux de tritium	0	CNPE Belleville	$F_{Belleville}$
3	Flux d'eau	36	Gien	$Q_{Gien} - Q_{St\ Satur}$
4	Flux de tritium	36	CNPE Dampierre	$F_{Dampierre}$
5	Flux de tritium	133	CNPE St Laurent	$F_{St\ Laurent}$
5	Flux d'eau	175	Onzain	$Q_{Onzain} - Q_{Gien}$
6	Flux d'eau	242	Langeais	$Q_{Langeais} - Q_{Onzain}$
7	Flux d'eau	260	Monts	Q_{Monts}
8	Flux de tritium	264	CNPE Chinon	F_{Chinon}
8	Flux d'eau + Flux de tritium	271	Confluence	Résultats Modèle Vienne $F_{Confluence}$; $Q_{Confluence}$
9	Flux d'eau	287	Saumur	$Q_{Saumur} - (Q_{Vienne\ Confluence} + Q_{Monts} + Q_{Langeais})$
10	Flux d'eau	331	Montjean	$Q_{Montjean} - Q_{Saumur}$

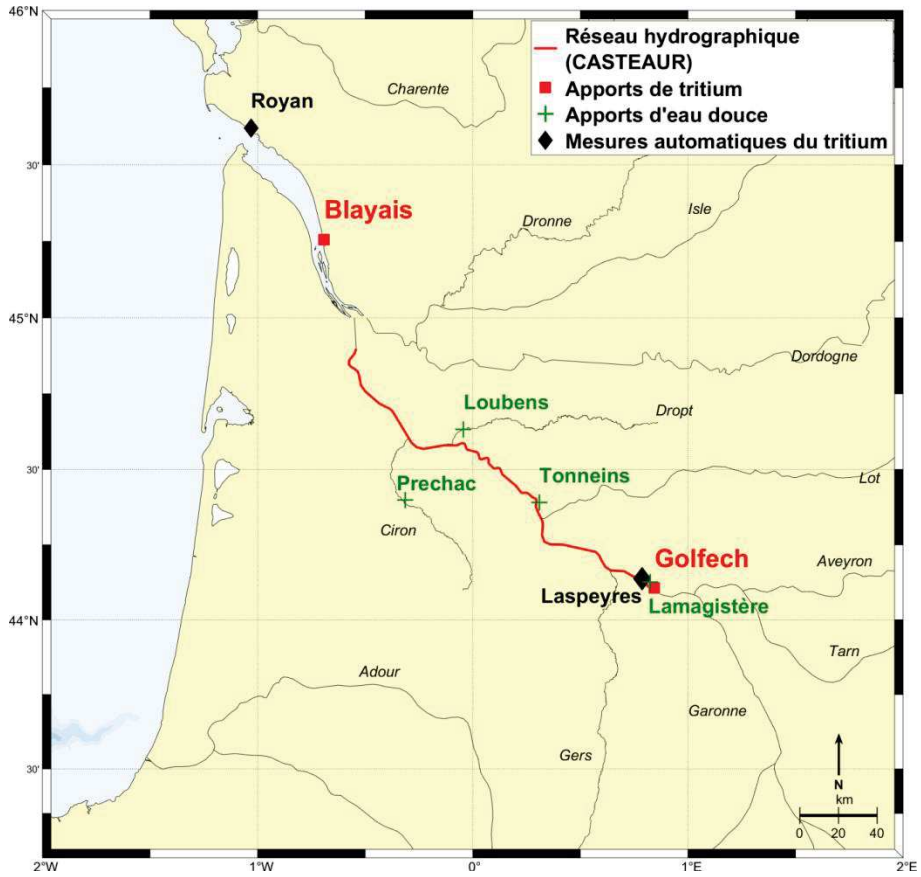


Figure 3.5 – Réseau hydrographique (ligne rouge) et localisation des apports d'eau douce (croix verte) et de tritium (carré rouge) appliqués au modèle CASTEAUR, pour la Garonne. La localisation des automates de prélèvement d'eau pour la comparaison entre les mesures et le modèle CASTEAUR est indiquée en noir.

Table 3.3 – Apports en eau (Q en $m^3.s^{-1}$) et en tritium (F en $Bq.s^{-1}$) au réseau hydrographique de la Garonne. Pkm : Point kilométrique.

N° Apport	Nature	Pkm	Nom du rejet	Calcul de l'apport
1	Flux d'eau	0	Lamagistère	$Q_{Lamagistère}$
2	Flux de tritium	0	CNPE Golfech	$F_{Golfech}$
3	Flux d'eau	3	Tonneins	$Q_{Tonneins}$
4	Flux d'eau	76	Loubens	$Q_{Loubens}$
5	Flux d'eau	131	Préchac	$Q_{Préchac}$

3.3 Mesures du terme source

Afin de valider les activités en tritium modélisées en sortie des différents fleuves, des comparaisons ont été effectuées avec les mesures disponibles en aval des centrales nucléaires. Ces mesures proviennent de deux systèmes distincts de prélèvements automatiques : un premier système mis en place par l'IRSN/LS3E dans le cadre de la surveillance des centrales nucléaires appelé hydrocollecteur et un deuxième système développé et mis en place par LRC, spécifiquement dans le

cadre de cette thèse. Le système mise en place par le LRC est composé de deux automates PAsCalE (Préleveur Automatique et Continue d'Eau).

3.3.1 Echantillonnage mensuel, les hydrocollecteurs

Implanté en aval de toute installation nucléaire, le réseau d'hydrocollecteurs mis en place par l'IRSN a pour but la surveillance radiologique du compartiment aquatique. Les hydrocollecteurs sont placés dans la zone de bon mélange, en aval immédiat de chaque centrale nucléaire, en plus d'une installation aux Ponts-de-Cé en aval de toutes les centrales nucléaires de la Loire.

Au niveau de chaque hydrocollecteur, l'eau est pompée au rythme moyen de 15 ml par heure afin de générer un échantillon d'environ 2 L tous les six jours. Les flacons sont laissés ouverts jusqu'à l'intervention manuelle de fermeture des flacons chaque fin de mois. Des échanges de tritium avec la vapeur d'eau de l'air sont donc possibles. Les flacons sont ensuite mélangés pour obtenir un échantillon mensuel moyen, dont les fractions d'eau brute sont filtrées à 0.45 µm et mesurées par scintillation liquide (LD ~ 1 $Bq.L^{-1}$, *cf.* 2.3.4.1).

3.3.2 Echantillonnage quotidien, les automates PASCALE

3.3.2.1 Elaboration des automates

Deux automates de prélèvements des eaux de la Loire et de la Gironde ont été fabriqués et programmés afin d'échantillonner quotidiennement les eaux en aval de toutes les centrales nucléaires de la Loire et de la Gironde. Les deux principales innovations de ces automates (Figure 3.6) sont :

1. Le prélèvement en continu du milieu à analyser, avec un échantillonnage autonome avec un maximum de 144 prélèvements sans nécessité d'intervention humaine ;
2. L'échantillon est conservé à l'abri de toute contamination extérieure telle que les échanges de vapeur d'eau avec l'air, grâce à l'utilisation d'un septum en caoutchouc comme bouchon hermétique. Le septum garde son étanchéité à l'air même après sa perforation par une aiguille médicale.

Le principe de fonctionnement de ces automates consiste à faire tourner à l'aide d'un moteur pas à pas, une vis sans fin qui tire progressivement le piston d'une seringue reliée par un capillaire au point de piquage d'eau. Une fois par jour, à minuit, le moteur s'inverse et la seringue injecte l'échantillon d'eau prélevée tout au long de la journée dans un flacon fermé hermétiquement par un septum en caoutchouc. Trois moteurs permettent le déplacement selon les trois axes (X, Y et Z, Figure 3.6) de la tête d'injection composé d'une double aiguille. La première aiguille permet la percée du septum et

l'injection de l'échantillon dans le flacon, la deuxième aiguille régule la pression dans le flacon en permettant l'évacuation du trop-plein d'air. Le tout est piloté informatiquement à l'aide d'un programme exécuté par un nano-ordinateur Raspberry PI. L'automate peut être également piloté à distance à l'aide d'un routeur 3G. Un système de photos (et/ou vidéos) permet la surveillance à distance et en temps réel du fonctionnement de l'automate.

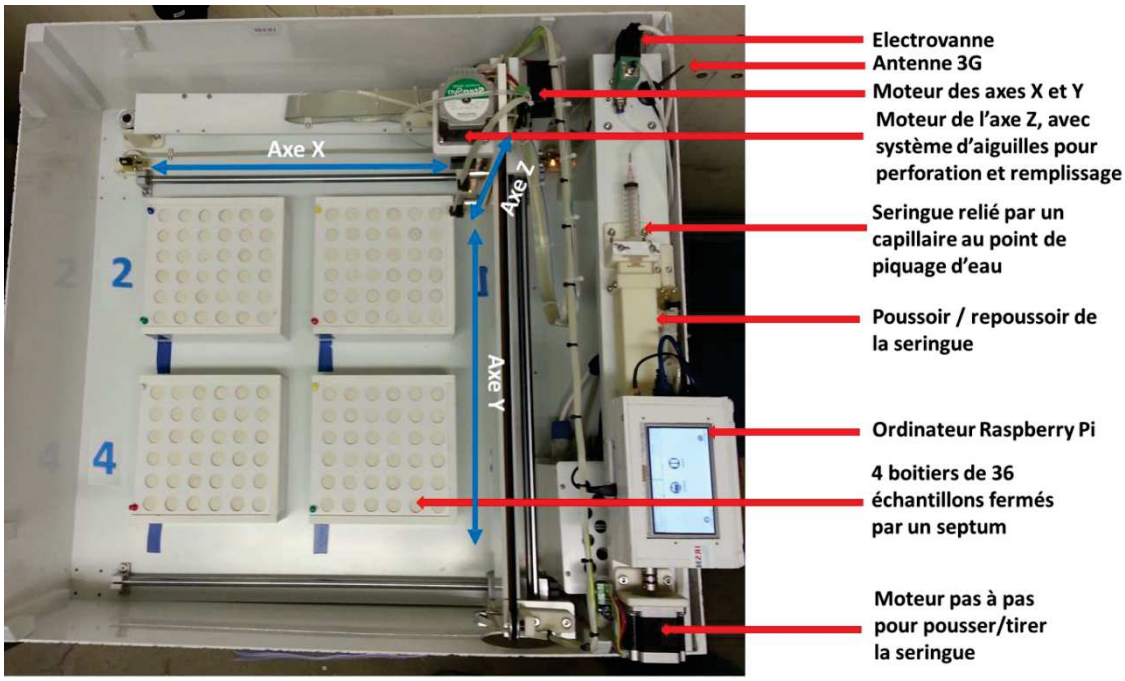


Figure 3.6 – Automate PASCALE mis en place au Ponts-de-Cé (49130) et à Royan (17200). Le prélèvement d'eau est intégré sur 24h avec une capacité de 144 échantillons.

3.3.2.2 Mise en place des automates

Les automates PASCALE devaient être mis en place avant les campagnes de prélèvements de tritium dans le golfe de Gascogne prévues pour le printemps 2016. Le lieu de leur emplacement a été choisi afin de remplir les conditions suivantes :

1. En aval de toutes les installations nucléaires de la Loire et de la Gironde ;
2. Un accès à l'électricité, à l'abri des intempéries ;
3. Un accès en continu à la masse d'eau à échantillonner.

Ainsi l'automate PASCALE de la Loire a été installé dans l'usine de production d'eau d'Angers aux Ponts-de-Cé (49130), sur le même point de prélèvement d'eau que l'hydrocollecteur utilisé pour la surveillance radiologique de l'IRSN (Figure 3.7). L'envoi des échantillons et la maintenance légère (changement de filtres et/ou d'aiguilles, remplacement des boitiers d'échantillons) ont été réalisés gracieusement par les employés de l'usine une fois par mois.

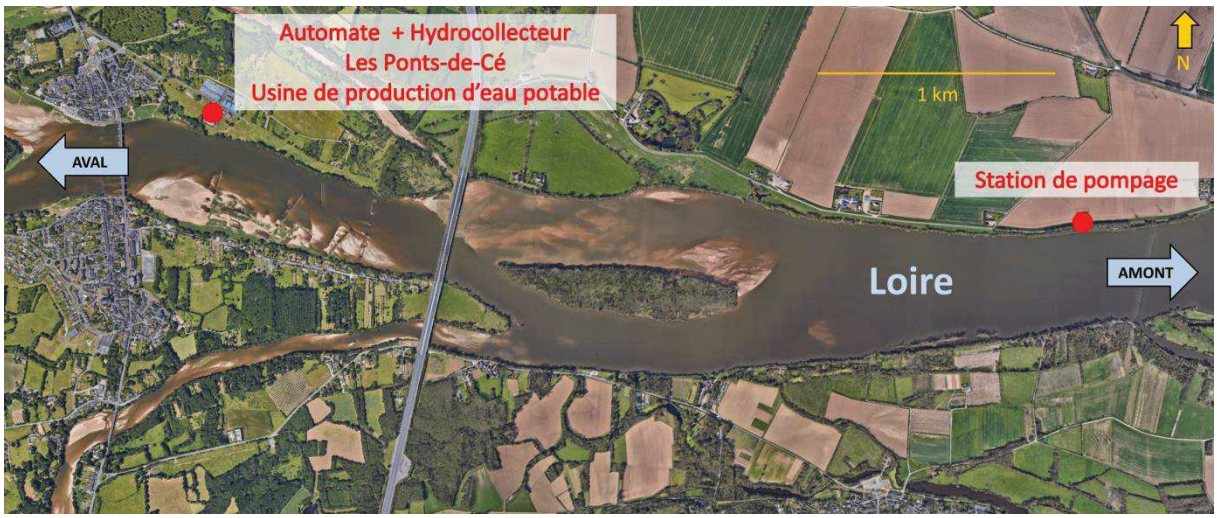


Figure 3.7 – Emplacement de l'usine de production d'eau potable des Ponts-de-Cé (49130) et de la station de pompage des eaux de la Loire. Source: Google Earth.

L'emplacement de l'automate en Gironde a fait l'objet d'une modélisation préalable par l'Ifremer avec les modèles hydrodynamiques MARS 2D et 3D afin d'étudier le comportement des eaux douces dans l'estuaire. Les simulations ont montré un écoulement préférentiel des eaux douces par le bord Nord de l'estuaire et des concentrations de tritium mesurables en « routine » par scintillation liquide (LD > 1Bq.L^{-1}) jusqu'au niveau de la pointe de Grave. Le choix définitif s'est porté sur le feu de la jetée Sud du port de Royan (17200) avec la coopération et l'assistance du service des phares et balises pour la mise à disposition du feu et de la mairie de Royan pour la maintenance de l'automate et l'accès au réseau électrique de la ville.

Figure 3.8 – Emplacement de l'automate PASCALE dans le feu de la jetée Sud du port de Royan (17200). Source: Google Earth.

3.3.2.3 Résultats de mesures du tritium dans la Loire et la Garonne

Durant la période de prélèvements (du 15/12/2015 au 24/10/2017) les concentrations en tritium mesurées dans la Loire fluctuent fortement d'un jour à l'autre. Les concentrations varient entre un minimum de 1 $Bq.L^{-1}$ à un maximum de 56 $Bq.L^{-1}$ pour une concentration moyenne de 16,7 $Bq.L^{-1}$.

Les concentrations en tritium mesurées dans la Gironde à Royan sont plus faibles que celles mesurées dans la Loire aux Ponts-de-Cé de par la forte dilution avec les eaux océaniques entrant dans l'estuaire à chaque marée ainsi que le plus faible nombre de réacteurs nucléaires en fonctionnement sur le bassin versant de la Gironde. Ainsi 50% des échantillons mesurés dans la Gironde ont une concentration en tritium inférieure à la limite de détection par scintillation liquide « classique » (1 $Bq.L^{-1}$), et ne sont pas représentés sur la Figure 3.9. Les concentrations en tritium de la Gironde dont les mesures par scintillation liquide sont significatives varient entre 1 $Bq.L^{-1}$et 2,8 $Bq.L^{-1}$ avec une concentration moyenne de 1,5 $Bq.L^{-1}$.

Des problèmes techniques ont empêché les deux automates d'être complètement fonctionnels durant la période des campagnes entre Mars 2016 et Mai 2016 (Figure 3.9), mais les mesures récoltées permettent de rendre de compte de la variabilité journalière du signal en tritium. Elles permettront

également de valider la représentativité des mesures échantillonnées par les hydrocollecteurs, dont les échanges de tritium avec la vapeur d'eau de l'air sont permis.

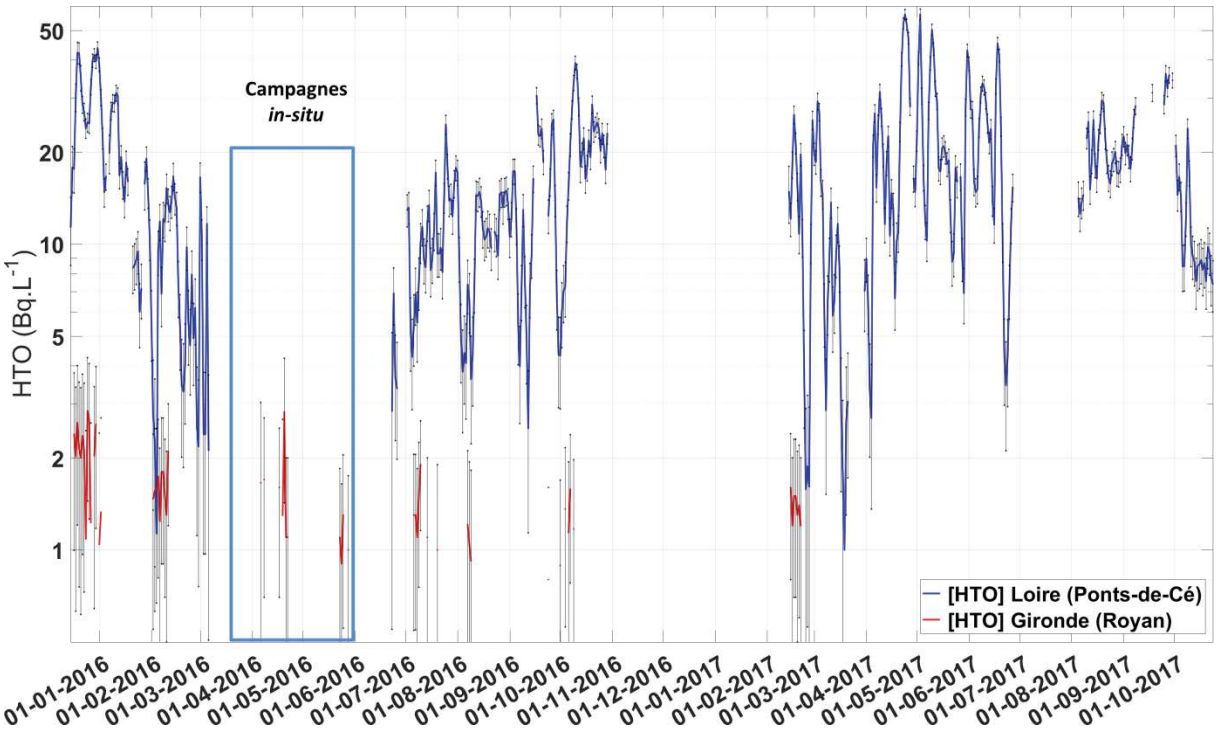


Figure 3.9 – Concentrations en tritium des eaux de la Loire (Ponts-de-Cé) en bleu et de la Gironde (Royan) en rouge, échantillonnées avec les automates PASCALE entre le 15/12/2015 et le 24/10/2017. Les concentrations sont présentées en logarithme décimal (base 10). La période des campagnes océanographiques d'échantillonnage du golfe de Gascogne est représentée par un encadré bleu.

3.3.3 Comparaison entre les mesures quotidiennes (automate PASCALE) et les mesures mensuelles (hydrocollecteurs) aux Ponts-de-Cé

Les séries temporelles mesurées à partir des automates de prélèvements PASCALE ne couvrent qu'un faible intervalle de temps (Décembre 2015 à Octobre 2017) comparées à la série temporelle totale des flux de tritium modélisés (Janvier 2007 à Juin 2016). Les mesures intégrées mensuellement des hydrocollecteurs couvrent une plus longue période temporelle (Janvier 2008 à Juin 2016). Ce sont donc les mesures des hydrocollecteurs qui sont utilisées pour la comparaison modèle / mesures des flux de tritium. Cependant il est important de vérifier que l'intégration mensuelle des mesures réalisées à partir des hydrocollecteurs n'induise pas de biais significatifs. Pour cela les concentrations mesurées quotidiennement à partir des automates PASCALE ont été moyennées durant le même intervalle de temps que celui durant lequel l'intégration des mesures des hydrocollecteurs a été réalisée. Les comparaisons sont présentées sur la Figure 3.10.

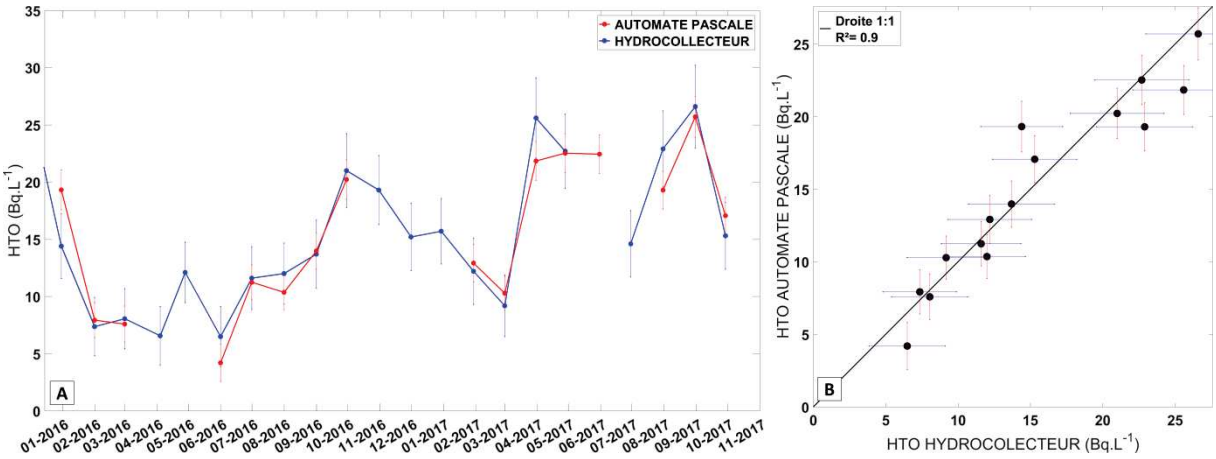


Figure 3.10 – (A) Evolution temporelle et (B) comparaisons des mesures de tritium (HTO) échantillonnées quotidiennement par l'automate PASCALE (rouge) et échantillonnées mensuellement par l'hydrocollecteur (bleu) aux Ponts-de-Cé (Loire).

La comparaison entre les mesures effectuées sur les échantillons prélevés sur la Loire à l'aide d'un hydrocollecteur et ceux prélevés avec l'automate PASCALE (Figure 3.10), montrent une bonne corrélation (r^2 =0,9). Aucune sur- ou sous-estimation systématique n'est observée, cela confirme ainsi que les moyennes mensuelles sont cohérentes avec les mesures quotidiennes.

Malgré d'importantes fluctuations journalières des concentrations en tritium, les moyennes mensuelles réalisées à partir de prélèvements intégrés tous les 6 jours par l'hydrocollecteur sont représentatives des moyennes mensuelles réalisées à partir de prélèvement intégrés sur la journée, par les automates PASCALE.

Ainsi les données échantillonnées par hydrocollecteur aux Ponts-de-Cé sur la Loire et à Laspeyres sur la Garonne, disponibles sur une plus longue période (2008-2015), permettront de confronter les résultats du modèle CASTEAUR.

3.3.4 Comparaison entre les mesures quotidiennes (automate PASCALE) et le modèle CASTEAUR

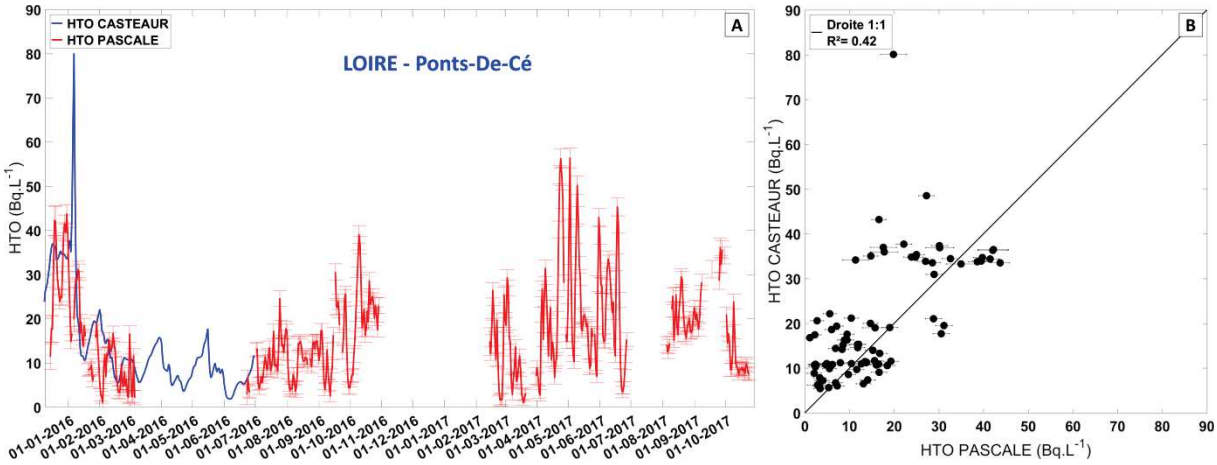


Figure 3.11 – (A) Evolution temporelle et (B) comparaisons des concentrations de tritium (HTO) échantillonnées par l'automate PASCALE (rouge) et modélisées (bleu) par le modèle CASTEAUR aux Ponts-de-Cé (Loire).

L'intervalle temporel de comparaison entre les mesures intégrées quotidiennement par l'automate PASCALE et les résultats du modèle CASTEAUR est court (les données de rejets de l'exploitant n'étant pas disponible après Juin 2016), mais l'évolution des concentrations en tritium au cours du temps semble relativement corrélée (r^2=0,42). Les différences obtenues entre le modèle CASTEAUR et les données de mesures, sont principalement dues au fait que les apports en tritium du modèle proviennent de moyennes mensuelles de rejets et que les mesures sont issues de prélèvements intégrés sur une journée.

Les rejets liquides de tritium par les centrales nucléaires ne sont pas continus sur un mois complet mais effectués durant quelques jours. Le fait de prendre en compte dans le modèle des apports mensuels entraine un effet de lissage des fluctuations des concentrations des résultats du modèle CASTEAUR (Figure 3.11, courbe bleue) et donc des écarts relatifs absolus moyens importants (~ 100 %). Il y a également (Figure 3.11B) une surestimation des concentrations du modèle CASTEAUR par rapport aux mesures de l'hydrocollecteur (4,4 $Bq.L^{-1}$ en moyenne).

Les mesures quotidiennes ont mis en évidence la haute variabilité du signal au cours du temps. Cette variabilité lissée par la modélisation du terme source à partir de données mensuelles de rejets va se répercuter sur la représentation à haute fréquence des panaches de tritium près des estuaires. Cependant à l'échelle mensuelle, les apports de tritium modélisés sont représentatifs de la réalité, ils permettront une bonne représentation de la dispersion à l'échelle du plateau continental.

3.4 Comparaisons entre les mesures mensuelles (hydrocollecteur) et le modèle CASTEAUR

3.4.1 Loire (Ponts-de-Cé)

La Figure 3.12 (A et B) présente les comparaisons entre les concentrations en tritium calculées par le modèle CASTEAUR au point kilométrique correspondant aux Ponts-de-Cé et les moyennes mensuelles des mesures de tritium échantillonnées par l'hydrocollecteur situé aux Ponts-de-Cé.

On observe sur la Figure 3.12A que les concentrations résultantes du modèle CASTEAUR et les moyennes mensuelles des mesures suivent la même évolution temporelle. La comparaison modèle / mesures présentée (Figure 3.12B) met en évidence la bonne corrélation (r^2=0,9) entre les résultats du modèle et les résultats de mesures, notamment pour les concentrations en tritium mesurées inférieures à 20 $Bq.L^{-1}$. On observe qu'au-delà de 20 $Bq.L^{-1}$ le modèle a tendance à surestimer les concentrations de tritium. La moyenne des concentrations mensuelles simulées par le modèle CASTEAUR est de 17,2 $Bq.L^{-1}$ contre 15,5 $Bq.L^{-1}$ pour les mesures issues des prélèvements de l'hydrocollecteur durant la même période. La différence moyenne de 1,7 $Bq.L^{-1}$, représente une surestimation moyenne de 10% du terme source en tritium de la Loire par rapport aux concentrations échantillonnées par l'hydrocollecteur. Cependant la surestimation du tritium est inférieure à l'incertitude moyenne liée à la mesure, égale à 24%.

La surestimation du modèle par rapport aux mesures peut avoir deux origines : l'incertitude sur la mesure des quantités de tritium rejetées fournis par l'exploitant et les incertitudes sur la mesure des débits de la Loire et de ses affluents. Les incertitudes sur les quantités de tritium rejetées ne sont pas connues, nous devons nous fier aux données de l'exploitant. En ce qui concerne les débits, les incertitudes ne sont également pas connues, mais selon la méthode de mesure utilisée elles sont comprises entre 5% et 15% (Despax, 2016).

3.4.2 Garonne (Laspeyres)

La Figure 3.12 (C et D) présente les comparaisons entre les concentrations en tritium calculées par le modèle CASTEAUR et mesurées au point kilométrique correspondant au point d'échantillonnage de l'hydrocollecteur à Laspeyres, en aval de la centrale de Golfech (Garonne) (Figure 3.5).

L'évolution temporelle des concentrations moyennes mensuelles calculées par le modèle CASTEAUR et mesurées à partir des prélèvements de l'hydrocollecteur présente des variations similaires au cours du temps (Figure 3.12C). La corrélation entre le modèle et les mesures est correcte

(r^2=0,77) (Figure 3.12D), l'ordre de grandeur entre les concentrations mesurées et calculées est également respecté.

Néanmoins la moyenne des concentrations mensuelles déterminée à partir des résultats du modèle CASTEAUR est de 6 $Bq.L^{-1}$, contre 8,3 $Bq.L^{-1}$ pour la moyenne des concentrations mesurées issues des prélèvements effectués avec l'hydrocollecteur durant la même période. Cette différence de 2,3 $Bq.L^{-1}$ représente une sous-estimation de 28% du terme source en tritium par la Garonne par rapport aux mesures échantillonnées par l'hydrocollecteur. La sous-estimation du modèle reste comme pour la Loire comprise dans l'intervalle d'incertitude de la mesure qui est de 30% en moyenne.

Les sources d'erreurs restent les mêmes que pour la Loire : les quantités de tritium rejetées et les mesures de débits de la Garonne et de ses affluents. Il est néanmoins à noter que l'hydrocollecteur à Laspeyres est situé proche (~5 km) du point de rejet de la centrale de Golfech, dans la zone de bon mélange théorique. Un biais peut exister quant au fait que les rejets de tritium soient effectivement bien mélangés à cet endroit.

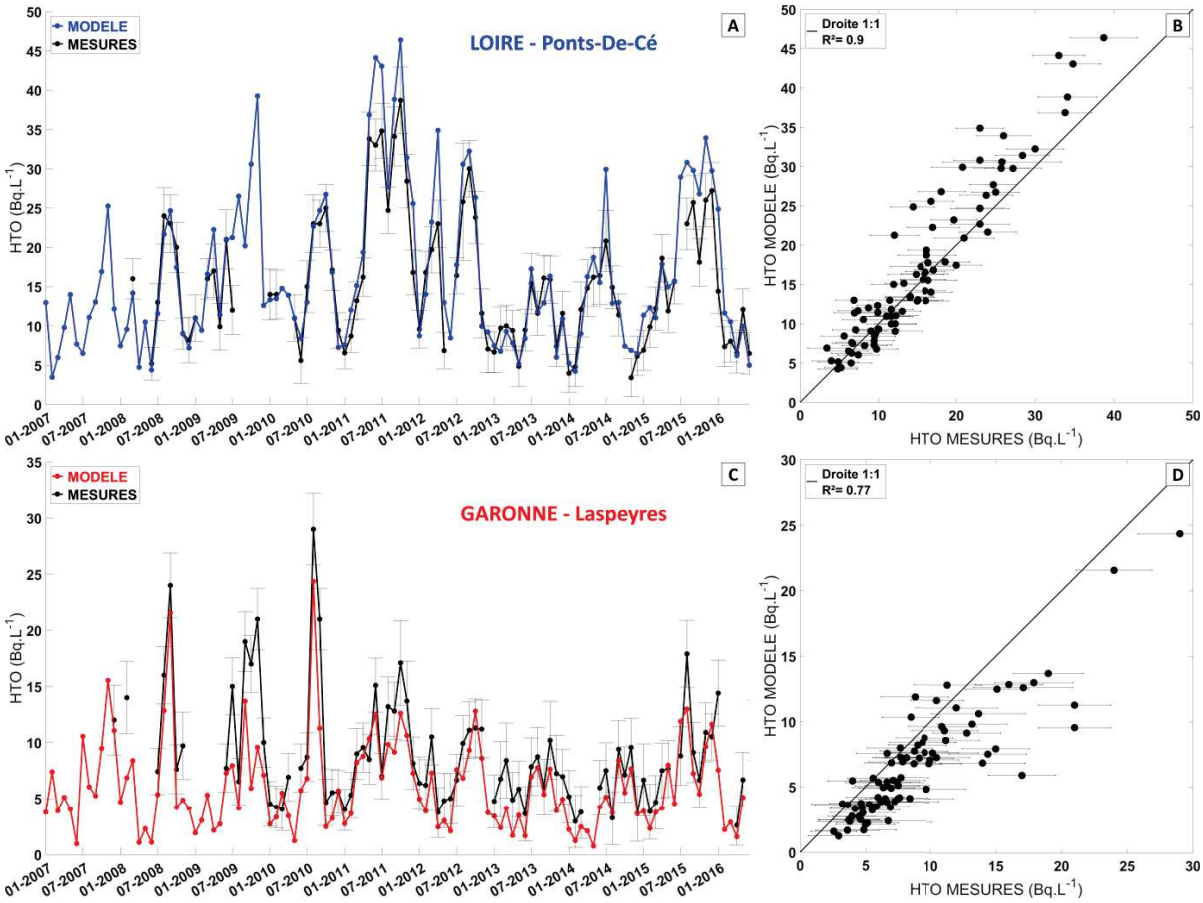


Figure 3.12 – (A) Evolution temporelle et (B) comparaisons des concentrations de tritium (HTO) mesurées (noir) et modélisées (bleu) aux Ponts-de-Cé (Loire). (C) Evolution temporelle et (D) comparaisons des concentrations de tritium (HTO) mesurées (noir) et modélisées (rouge) à Laspeyres (Garonne).

3.5 Apports en tritium par les fleuves hors influence directe des centrales nucléaires

La connaissance de la concentration en tritium de l'ensemble des fleuves (dont la Loire et la Garonne), hors influence de rejets direct des centrales nucléaires, (ou également appelée bruit de fond) est nécessaire afin d'estimer l'importance relative de ce flux de tritium vis-à-vis des rejets des centrales nucléaires. Ce bruit de fond des rivières doit être pris en compte dans l'estimation du terme source.

Le bruit de fond en tritium hors influence directe des centrales nucléaires a été déterminé à partir de 41 mesures réparties sur 17 rivières du Sud de la France (dont la Garonne) égale en moyenne ± l'écart-type à 0,41 ± 0,17 $Bq.L^{-1}$ (Ducros *et al.*, 2018).

Ce bruit de fond mesuré dans le Sud de la France est compatible avec 31 mesures ponctuelles effectuées sur la Loire à Bannay en amont de toutes les centrales nucléaires entre Septembre 2009 et septembre 2017 (source : Réseau National de Mesures de la radioactivité de l'environnement ; https://www.mesure-radioactivite.fr/). Sur ces 31 mesures, 29 sont inférieures au seuil de décision donné par l'appareil de mesure *i.e.* < ~2 $Bq.L^{-1}$. En complément 3 mesures ont été effectuées à Bouchemaine sur La Maine, un affluent de la Loire, dont les concentrations en tritium étaient inférieures à la limite de détection *i.e.* < 1 $Bq.L^{-1}$).

Le bruit de fond mesuré sur la Garonne à Mauzac (en amont de la centrale de Golfech) lors de l'étude de Ducros *et al.*, 2018 en Février 2015 est égale à 0,39 ± 0,16 $Bq.L^{-1}$.

Le flux annuel moyen de tritium hors rejets des centrales nucléaires estimé à partir de la somme des débits annuels moyens des principaux affluents du golfe de Gascogne (Table 1.1) et du bruit de fond moyen déterminé d'après Ducros *et al.*, 2018 est d'environ 25 ± 10 TBq. Pour comparaison le rejet annuel moyen en tritium de l'ensemble des CNPE de la Loire et de la Gironde est de 318 ± 29 TBq. Ainsi, le bruit de fond en tritium provenant des rivières représente environ 8% du terme source en tritium des centrales nucléaires.

3.6 Synthèse

Ce chapitre a permis d'évaluer les différents termes sources en tritium provenant directement des installations nucléaires ainsi que celui apporté par le bruit de fond des rivières au golfe de Gascogne. Ces apports de tritium serviront à modéliser la dispersion du tritium dans le golfe de Gascogne par le modèle hydrodynamique MARS3D.

Les installations nucléaires côtières ayant un impact potentiel sur la dispersion du tritium dans le golfe de Gascogne rejettent directement le tritium en mer (*i.e.* le CNPE du Blayais, les CNPE de la Manche et les usines de retraitement de La Hague et de Sellafield). Ces rejets marins sont connus à l'échelle annuelle (Sellafield), mensuelle (CNPE de la Manche) ou rejet par rejet (Blayais et La Hague). Ils peuvent être directement injectés dans le domaine de calcul du modèle hydrodynamique. Cependant les principaux apports au golfe de Gascogne de tritium provenant des installations nucléaires se font à travers les estuaires de la Loire et de la Gironde (dont la Garonne est un affluent).

Afin de modéliser la dispersion de ces apports dans le golfe de Gascogne avec une échelle de temps la plus fine possible, deux automates de prélèvements d'eau (PAsCalE) ont été élaborés. Ils ont été mis en place, en aval de toutes les centrales nucléaires de la Loire et de la Gironde pour permettre la mesure quotidienne du flux de tritium entrant dans le golfe de Gascogne par ces deux estuaires. Les automates n'étaient pas fonctionnels le temps des campagnes, ils ont cependant permis de rendre compte de la grande variabilité du signal entrant quotidiennement dans le golfe de Gascogne et de valider le flux mensuel de tritium mesuré par les hydrocollecteurs.

Néanmoins les mesures mensuelles des hydrocollecteurs ne sont également pas disponibles pour toute la période de simulation. Le choix a été donc été pris de modéliser les processus de transfert du tritium des centrales jusqu'au domaine de calcul du modèle hydrodynamique. Pour cela le modèle de transfert des radionucléides dans les rivières CASTEAUR, développé par l'IRSN a été utilisé, ce modèle prend en compte les données mensuelles de rejets en tritium des centrales nucléaires et des débits journaliers au point kilométrique correspondant.

Les mesures récoltées par les hydrocollecteurs dans le cadre de la surveillance radiologique du territoire par l'IRSN ont permis d'évaluer la représentabilité du terme source modélisé. Les différences obtenues entre le modèle et les mesures de l'ordre de grandeur des incertitudes de mesure impacteront la cinétique de représentation des panaches de tritium dans le champ très proche des estuaires. Ces différences s'estomperont à plus grandes échelles de temps et d'espaces.

Les flux de tritium hors influence des centrales nucléaires apportées par les rivières au golfe de Gascogne ont également été estimés annuellement. Ces flux serviront à évaluer le bruit de fond en tritium dans le golfe de Gascogne à partir du bruit de fond en tritium de l'Atlantique Nord déterminée dans le chapitre 2.

CHAPITRE 4

MODELISATION ET MESURE DE LA DISPERSION DU TRITIUM SUR LE PLATEAU CONTINENTAL DU GOLFE DE GASCOGNE

Chapitre 4. Modélisation et mesure de la dispersion du tritium sur le plateau continental du golfe de Gascogne

Deux objectifs de cette thèse sont de mesurer et simuler la dispersion du tritium apporté par les installations nucléaires dans le golfe de Gascogne de manière réaliste durant une longue période de temps (2007-2016).

Dans ce but, le modèle hydrodynamique MARS3D (Model for Applications at Regional Scales) développé par l'Ifremer et décrit en détails par Lazure et Dumas, 2008 est utilisé. Ce modèle permet de calculer la circulation et le transport de matières dissoutes en milieu côtier.

Ce chapitre présente dans une première partie le modèle MARS3D, son implémentation sur la région étudiée et les paramètres utilisés. La deuxième partie est constituée d'un article soumis à Continental Shelf Research, le 21/03/2019, intitulé « Characterisation of river plume dispersion through tritium measurements and modelling in the Bay of Biscay ».

Cet article présente les résultats de mesures du tritium dans le golfe de Gascogne obtenus durant six campagnes d'échantillonnages réalisées entre 2009 et 2016. Les concentrations mesurées sont comparées avec celles modélisées. Les contributions relatives des apports continentaux de la Loire et de la Gironde sont déterminées sur l'ensemble du plateau, grâce à l'utilisation conjointe des traceurs salinité et tritium. Pour terminer, une première estimation du temps de résidence des eaux continentales de la Loire et de la Gironde est calculée à partir des stocks de tritium mesurés et simulés sur le plateau du golfe de Gascogne et des flux entrant de tritium.

Dans une troisième partie, le modèle est confronté à des mesures hydrologiques à haute résolution spatiale et temporelle. La sensibilité du modèle vis-à-vis de changements dans la formulation de la tension du vent et des forçages météorologiques est présentée. Les stocks de tritium, calculés tout au long de la simulation sont analysés en fonctions des rejets cumulés, de la direction des vents et des apports d'eau douce. Pour terminer un traceur d'âge des masses d'eau implémenté dans le modèle permet d'estimer les cinétiques de transport des panaches sur le plateau continental.

4.1 Description du modèle MARS3D

4.1.1 Hypothèses et équations

Le modèle MARS3D résout en différences finies les équations primitives de l'hydrodynamique au sens des moyennes de Reynolds (*i.e.* Reynolds Averaged Navier-Stokes, RANS) en considérant les approximations suivantes :

(i) Boussinesq : La masse volumique varie peu dans l'espace et dans le temps autour d'une valeur moyenne de référence (ρ_0). La masse volumique est donc considérée comme constante lorsqu'elle intervient avec les quantités de mouvement mais sa variation est prise en compte dans le terme de flottabilité intervenant dans le calcul de pression (4.4). Ainsi, l'approximation de Boussinesq n'implique pas que la masse volumique soit uniforme : elle varie en fonction de la température et de la salinité ; dans le modèle ces variations sont reliées selon la formulation de Mellor, 1991.

(ii) hydrostaticité : Les mouvements horizontaux sont supposés prépondérants par rapport aux mouvements verticaux. Ainsi, les accélérations verticales $\frac{Dw}{Dt}$ sont considérées comme négligeables comparées à l'accélération de la pesanteur, ce qui permet de simplifier fortement l'équation de conservation de la quantité de mouvement selon l'axe vertical.

Les équations primitives s'expriment dans un repère cartésien (x, y, z) de la manière suivante :

- L'équation de continuité (issue du principe de conservation de la masse pour un fluide incompressible) :

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} + \frac{\partial w}{\partial z} = 0 \tag{4.1}$$

- Les équations du mouvement sur l'horizontale (issues du principe fondamental de la dynamique) :

$$\frac{\partial u}{\partial t} + u\frac{\partial u}{\partial x} + v\frac{\partial u}{\partial y} + w\frac{\partial u}{\partial z} - fv = -g\frac{\partial \zeta}{\partial x} - \frac{1}{\rho_0}\frac{\partial Pa}{\partial x} - \frac{1}{\rho_0}\frac{\partial p'}{\partial x} + \frac{\partial(N_z\frac{\partial u}{\partial z})}{\partial z} + F_x \tag{4.2}$$

$$\frac{\partial v}{\partial t} + u\frac{\partial v}{\partial x} + v\frac{\partial v}{\partial y} + w\frac{\partial v}{\partial z} + fu = -g\frac{\partial \zeta}{\partial y} - \frac{1}{\rho_0}\frac{\partial Pa}{\partial y} - \frac{1}{\rho_0}\frac{\partial p'}{\partial y} + \frac{\partial(N_z\frac{\partial v}{\partial z})}{\partial z} + F_y \tag{4.3}$$

(1) (2) (3) (4) (5) (6) (7) (8)

- L'équation du mouvement sur la verticale :

$$\frac{\partial p'}{\partial z} = \rho_0 b \tag{4.4}$$

Avec :

u, v, w : Composantes du vecteur vitesse ;

ζ : Surélévation de la surface libre ;

Pa : Pression atmosphérique ;

f : Paramètre de Coriolis ;

g : L'accélération de la pesanteur ;

b : Flottabilité, $b = -g(\rho - \rho_0)/\rho_0$;

ρ : Masse volumique de l'eau ;

ρ_0 : Masse volumique de référence ;

N_z : Coefficient de viscosité turbulente verticale ;

p' : Anomalie de pression, $p' = \rho_0 \int_Z^\zeta b dz$.

Les différents termes des équations du mouvement sur l'horizontale (4.2) et (4.3) sont (1) l'évolution temporelle, (2) l'advection, (3) le terme de Coriolis, (4) le gradient de pression lié aux variations de la surface libre, (5) le gradient de pression atmosphérique, (6) le gradient de pression interne, (7) la diffusion turbulente verticale, (8) la diffusion turbulente horizontale.

La diffusion turbulente horizontale est définie par :

$$F_x = \frac{\partial}{\partial x}\left(v_x \frac{\partial u}{\partial x}\right) + \frac{\partial}{\partial y}\left(v_y \frac{\partial u}{\partial x}\right) \tag{4.5}$$

$$F_y = \frac{\partial}{\partial y}\left(v_y \frac{\partial v}{\partial y}\right) + \frac{\partial}{\partial x}\left(v_x \frac{\partial v}{\partial x}\right) \tag{4.6}$$

Avec :

v_x, v_y : Coefficients de viscosité turbulente horizontale.

4.1.2 Advection/diffusion des traceurs

L'évolution des traceurs dissous (*i.e.* température, salinité et tritium) est calculée avec l'équation d'advection/diffusion qui est issue du principe de conservation de la masse (pour la salinité et le

tritium) et du principe de conservation de l'énergie interne d'après le premier principe de la thermodynamique (pour la température) :

$$\frac{\partial Tr}{\partial t}+\frac{\partial uTr}{\partial x}+\frac{\partial vTr}{\partial y}+\frac{\partial wTr}{\partial z}=\frac{\partial(K_h\frac{\partial Tr}{\partial x})}{\partial x}+\frac{\partial(K_h\frac{\partial Tr}{\partial y})}{\partial y}+\frac{\partial(K_z\frac{\partial Tr}{\partial z})}{\partial z}+Src-Pt \tag{4.7}$$

Avec :

Tr : Traceur considéré;

K_h : Coefficient diffusion turbulente horizontale ;

K_z : Coefficient diffusion turbulente verticale ;

Src, Pt : Termes sources et puits, respectivement.

4.1.3 Coordonnées Sigma

La coordonnée verticale utilisée est la coordonnée sigma (σ), bien adaptée en milieu côtier où les variations de la surface libre sont importantes par rapport à la hauteur d'eau totale. Ici la verticale est discrétisée en différences finies, selon une grille C, étagée et composée de 40 niveaux. Le système de coordonnées sigma a l'avantage de présenter le même nombre de maille de calcul sur la verticale quelle que soit la hauteur d'eau totale. Les coordonnées sigma classiques sont définies par :

$$\sigma=\frac{z+H}{\zeta+H} \tag{4.8}$$

Avec :

H : Profondeur ;

z : Profondeur du niveau sigma ;

ζ : Surélévation de la surface libre.

Mais dans MARS3D c'est la transformation en coordonnées σ généralisées qui est utilisée, définie selon Hedström, 2000 par :

$$z=\zeta(1+\sigma)+H_c\sigma+(H-Hc)C(\sigma) \tag{4.9}$$

Avec :

H : Profondeur ;

H_c : Profondeur intermédiaire au-dessus de laquelle la résolution est augmentée, qui peut par exemple être la base de la thermocline saisonnière ou l'immersion de la thermocline profonde ;

ζ : Elévation de la surface libre ;

f : Paramètre de Coriolis ;

g : Accélération de la pesanteur ;

$C(\sigma)$: est défini comme :

$$C(\sigma) = (1-\beta)\frac{\sinh(\theta\sigma)}{sinh\theta} + \beta\frac{\tanh[\theta(\sigma + {}^{1}/_{2})] - \tanh({}^{\theta}/_{2})}{2tanh({}^{\theta}/_{2})} \tag{4.10}$$

Avec :

θ et β : Paramètres de contrôle de l'étirement et de la contraction de la grille.

Cette coordonnée offre l'avantage de mieux suivre les variations de la topographie et donc de mieux représenter la couche de surface et de fond selon les paramètres utilisés.

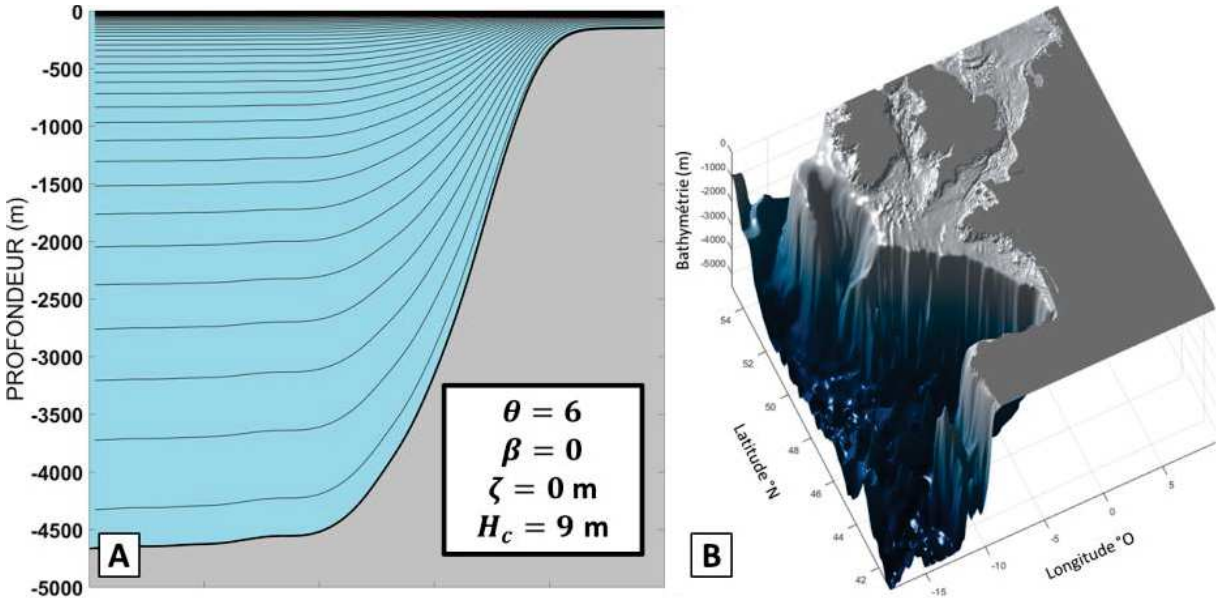


Figure 4.1 – (A) Représentation schématique de la distribution verticale des 40 niveaux sigma (σ) pour les paramètres utilisés dans le modèle et présentés dans l'encadré. (B) Bathymétrie MARS3D utilisé pour le rang 1.

4.1.4 Résolution numérique

Le modèle résout séparément les modes barotrope (dit externe) et barocline (dit interne) (Blumberg et Mellor, 1987). Le mode externe donne l'évolution temporelle de la surface libre et des courants moyennés sur la verticale alors que le mode interne fournit les champs de courants, des structures de densités et des traceurs considérés sur les trois dimensions (x, y, σ). Les deux modes sont résolus avec le même pas de temps grâce à la méthode itérative semi-implicite de type ADI (Alternative Direction Implicit) (Leendertse et Gritton, 1971) employée pour résoudre le mode externe. Cette méthode à direction alternée découple la résolution des équations sur l'horizontale : au

premier pas de temps les équations sont résolues selon l'axe 0x et au demi-pas de temps suivant selon l'axe 0y.

Une discrétisation horizontale uniforme (en longitude et latitude) est utilisée. La grille numérique est de type étagée "Arakawa-C" (Arakawa et Lamb, 1977) avec des mailles de 2500 m de côté à la latitude moyenne de la grille. La configuration Manche-Gascogne (MANGAE2500) comporte 623×821 mailles. La grille numérique C est telle que les composantes de courants sont localisées sur les bords des mailles alors que les traceurs (température, salinité, tritium) et l'élévation de la surface libre sont calculés aux centres des mailles. Sur le plan vertical, les vitesses horizontales et les traceurs sont calculés au niveau sigma qui coïncide avec le centre de la maille et la vitesse verticale est calculée au bord de ces mailles.

L'advection des traceurs est réalisée à chaque demi pas de temps en utilisant un schéma numérique multidimensionnel du 3ème ordre, le Ultimate Quickest Macho (Leonard, 1991). L'advection de la quantité de mouvement sur l'horizontale est résolue en utilisant un schéma du 3ème ordre, le Quick (Leonard, 1979). Sur la verticale l'advection est résolue avec un schéma du 5ème ordre, le COMPACT.

4.1.5 Fermeture des équations : modèle de turbulence

Les processus d'échanges verticaux de petite échelle non résolus par la discrétisation appliquée au modèle sont paramétrés par la fermeture turbulente. Le schéma de fermeture en présence est basé sur un modèle à deux équations de type (k-Ɛ), qui résout l'équation d'évolution de l'énergie cinétique turbulente (k) et de la dissipation de l'énergie cinétique turbulente (Ɛ).

$$\frac{\partial k}{\partial t} + u\frac{\partial k}{\partial x} + v\frac{\partial k}{\partial y} + w\frac{\partial k}{\partial z} = \frac{\partial (N_z \frac{\partial u}{\partial z})}{\partial z} + Prod + Dest - \varepsilon \tag{4.11}$$

Avec :

$Prod$: Terme de production d'énergie cinétique turbulente par cisaillement vertical :

$$Prod = N_z \left[\left(\frac{\partial u}{\partial z}\right)^2 + \left(\frac{\partial v}{\partial z}\right)^2 \right] \tag{4.12}$$

$Dest$: Terme de destruction d'énergie turbulente (amortissement par stratification) :

$$Dest = -K_z \frac{\partial b}{\partial z} \tag{4.13}$$

Ɛ : La dissipation de l'énergie cinétique turbulente est défini comme :

$$\varepsilon = \frac{Ck^{\frac{3}{2}}}{l_m} \tag{4.14}$$

C : Constante empirique;

l_m : Longueur de mélange calculée comme :

$$l_m = kz_*(1 - \frac{z_*}{H}) \tag{4.15}$$

z_*: Distance par rapport au fond.

Sur l'horizontale, la fermeture turbulente sert à estimer la valeur des coefficients de viscosité (pour la vitesse : ν_H) et de diffusion turbulente horizontale (pour les traceurs : κ_H). La formulation utilisée dépend d'un coefficient f_{visc} et de la taille de la maille Δy (Okubo, 1971) :

$$\nu_H = \kappa_H = f_{visc} \times 0.01 \times \Delta y^{1,15} \tag{4.16}$$

4.1.6 Conditions aux frontières ouvertes

Aux frontières ouvertes du modèle, la température, la salinité et l'élévation en surface libre (SSH) sont prescrites à partir de solutions numériques de grande échelle : celles utilisées ici proviennent des analyses du système Mercator Ocean (Table 4.1). La dynamique de la marée n'étant pas prise en compte dans le modèle de circulation globale, cette composante aux frontières ouvertes est donc estimée indépendamment par un modèle barotrope de grande emprise ($2D_H$, Figure 4.6) en prenant en compte les 32 composantes de marée données par le modèle global FES 2012 (Finite Element Solution) (Carrère *et al.*, 2013). Le modèle 2D, de résolution 6 km, fournit les composantes barotropes du courant et les dénivellations du niveau de la mer aux limites ouvertes du domaine 3D liées à la marée seule. Ces dernières sont ajoutées linéairement aux dénivellations de la surface libre liées à la circulation thermohaline et aux forçages météorologiques.

Le modèle 3D est initialisé avec les champs de température, de salinité et de surface libre du modèle de circulation globale GLORYS2v2. Une période de spin-up de 2,5 ans avant l'exploitation des résultats pour la première campagne de mesure a été simulée afin que les imprécisions des conditions initiales appliquées aient un impact mineur pour la période de comparaison. Le système océanique analysé (le plateau du golfe de Gascogne) a une inertie de l'ordre de l'année comme le montre les estimations faites à l'aide des traceurs de cette étude (*cf.* paragraphe 4.2).

Les variables atmosphériques nécessaires au calcul des échanges air-mer (vent à 10 m, température, humidité à 2m, pression au niveau de la mer, couverture nuageuse) sont fournies par le système d'analyse et de prévision de météo France (Arpège). Les modèles Arpège (0.5° de résolution) et

Arpège HR (0.1° de résolution) de Météo-France sont utilisés pour couvrir la période de simulation (2007-2016) (Table 4.1).

Table 4.1 – Modèles météorologiques et océanographiques (OBC) utilisés au cours de la simulation de la dispersion du tritium dans le golfe de Gascogne entre 2007 et 2016.

Date début	Date fin	Météo	OBC
01.01.2007 00:00	30.12.2009 00 :00	Arpege (6h, 0,5°)	Mercator_glorys2V2 (0.25°)
01.01.2010 00:00	24.11.2011 00 :00	Arpege (6h, 0,5°)	Mercator_psy2V4_rejeu (0.0833°)
24.11.2011 00 :00	03.04.2013 00 :00	ArpegeHR (1h, 0,1°)	Mercator_psy2V4_rejeu (0.0833°)
03.04.2013 00 :00	30.06.2016 00 :00	ArpegeHR (1h, 0,1°)	Mercator_psy2V4 (0.0833°)

4.1.7 Conditions aux limites

Les conditions aux limites de surface prescrivent les flux de chaleurs et de quantité de mouvement dus au vent ; sur le fond, les échanges de chaleur sont supposés nuls et la friction des courants est estimée dans le cadre conceptuel de la couche limite de Prandt :

Conditions limites à la surface (z= ζ)	Conditions limites au fond (z=-d)
$N_z \frac{\partial u}{\partial z} = \frac{\tau_{surf}^x}{\rho_0}$	$N_z \frac{\partial u}{\partial z} = \frac{\tau_{fond}^x}{\rho_0}$
$N_z \frac{\partial v}{\partial z} = \frac{\tau_{surf}^y}{\rho_0}$	$N_z \frac{\partial v}{\partial z} = \frac{\tau_{fond}^y}{\rho_0}$
$K_z \frac{\partial T}{\partial z} = \frac{Q_{Ther}}{\rho_0 C_p}$	$K_z \frac{\partial T}{\partial z} = 0$
$K_z \frac{\partial S}{\partial z} = 0$	$K_z \frac{\partial S}{\partial z} = 0$
$w = \frac{\partial \zeta}{\partial t} + u \frac{\partial \zeta}{\partial x} + v \frac{\partial \zeta}{\partial y}$	$w = -u \frac{\partial d}{\partial x} - v \frac{\partial d}{\partial y}$

Avec :

Q_{Ther} : Flux de chaleur reçu à la surface de la mer ;

C_p : Chaleur spécifique de l'eau de mer ;

Les termes de frictions en surface dus au vent sont tels que :

$$\tau_{surf}^x = \rho_a C_d u_w \sqrt{{u_w}^2 + {v_w}^2} \tag{4.17}$$

$$\tau_{surf}^{y} = \rho_a C_d v_w \sqrt{{u_w}^2 + {v_w}^2}$$

Avec :

$\tau_{surf}^{x}, \tau_{surf}^{y}$: Composantes de friction du vent à la surface de l'eau ;

ρ_a : Masse volumique de l'air ;

C_d : Coefficient de frottement du vent paramétré dans cette étude selon Charnock, 1955 et Geernaert *et al.*, 1986 ;

u_w, v_w : Composantes de vitesses du vent à 10 m.

$$\tau_{fond}^{x} = \rho_0 C_{d_{fond}} u \sqrt{u^2 + v^2}$$

$$\tau_{fond}^{y} = \rho_0 C_{d_{fond}} v \sqrt{u^2 + v} \tag{4.18}$$

Avec :

$\tau_{fond}^{x}, \tau_{fond}^{y}$: Composantes de la tension de friction sur le fond ;

u, v : Composantes du courant à l'altitude (z_u) au-dessus du fond ;

$C_{d_{fond}}$: Coefficient de frottement sur le fond tel que :

$$C_{d_{fond}} = \left[\frac{K}{log\left(\frac{z_u}{Z_0}\right)}\right]^2 \tag{4.19}$$

Avec :

K : Constante de von Karman ;

z_0 : Longueur de rugosité au-dessus du fond ;

z_u : Altitude au-dessus du fond à laquelle sont calculées u et v.

4.2 Article (Soumis): Characterisation of river plume dispersion through tritium measurements and modelling in the Bay of Biscay

L'article "Characterisation of river plume dispersion through tritium measurements and modelling in the Bay of Biscay" présente les principaux résultats obtenus à l'aide des mesures et des simulations numériques. Dans une première partie le bruit de fond en tritium dans le golfe de Gascogne est estimé à partir du bruit de fond Atlantique, des apports par les rivières et par la pluie. Les six campagnes de prélèvements de tritium réalisées dans le golfe de Gascogne entre 2007 et 2016 sont présentées ainsi que les techniques de mesure utilisées. L'implémentation du modèle hydrodynamique MARS3D est présentée de même que les termes sources en tritium utilisés. Dans une deuxième partie la distribution du tritium mesurée dans le golfe de Gascogne est présentée et confrontée aux résultats du modèle. Les droites de dilution du tritium et de la salinité pour la Loire et de la Gironde sont calculées : elles permettent de différencier les contributions relatives des apports continentaux de la Loire et de la Gironde. Une « climatologie » des contributions relatives est réalisée à partir des résultats de simulation. La présentation des résultats se termine par une estimation du temps de résidence du tritium sur le plateau continental du golfe de Gascogne.

Characterisation of river plume dispersion through tritium measurements and modelling in the Bay of Biscay

Pierre-Emmanuel Oms[1,2], Pascal Bailly du Bois[1], Franck Dumas[3], Pascal Lazure[2], Mehdi Morillon[1], Claire Voiseux[1], Cédric Le Corre[4], Catherine Cossonnet[4], Luc Solier[1]

[1] Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-Octeville, IRSN/PSE-ENV/SRTE/LRC, Rue max Pol Fouchet, BP 10, 50130 Octeville, France.

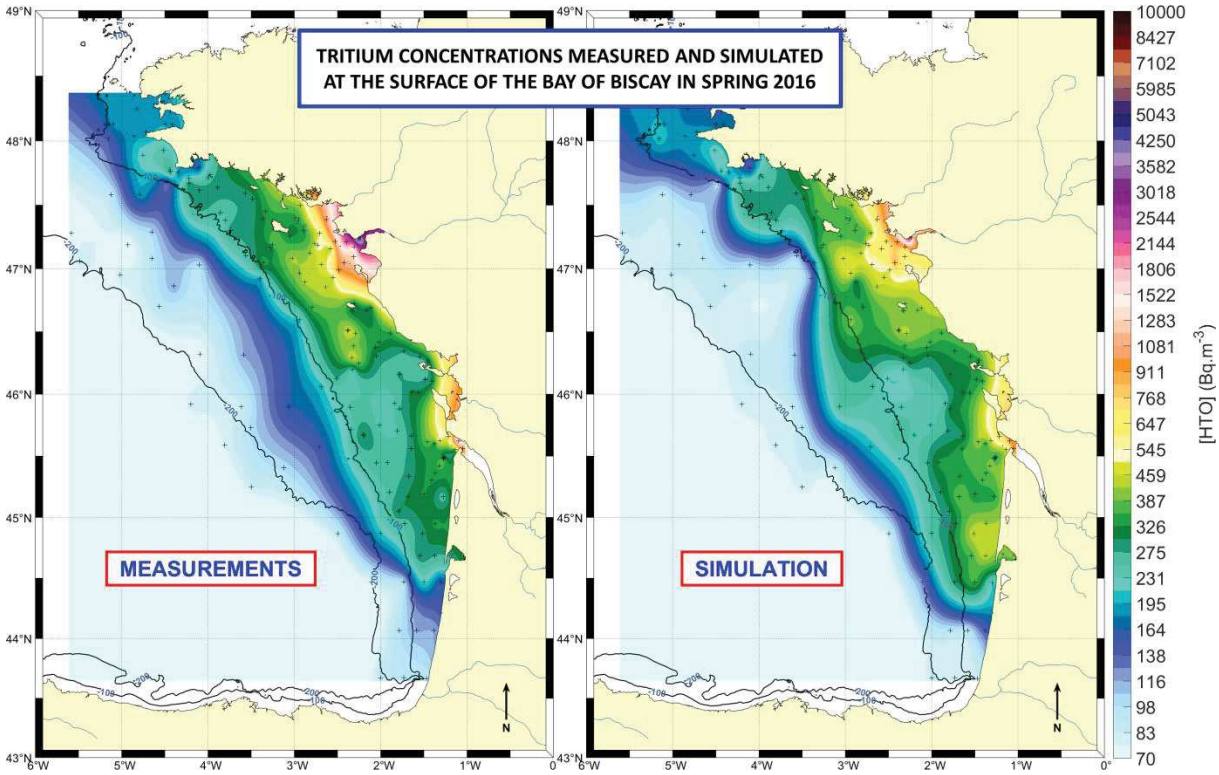
[2] Institut Français de Recherche pour l'Exploitation de la Mer, Laboratoire Océan Côtier, IFREMER/PDG-ODE/LOPS/OC, Centre Bretagne - ZI de la Pointe du Diable, 29280 Plouzané, France.

[3] Service Hydrographique et Océanographique de la Marine, SHOM/DOPS/HOM/REC, 13 Rue de Châtellier, 29200 Brest, France.

[4] Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, Laboratoire de Métrologie de la Radioactivité dans l'Environnement, IRSN/PSE-ENV/SAME/LMRE, Bois des Rames – Bâtiment 501, 91400 Orsay, France.

[5] Institut Français de Recherche pour l'Exploitation de la Mer, Laboratoire Océan Côtier, IFREMER/PDG-DFO, Centre Bretagne - ZI de la Pointe du Diable, 29280 Plouzané, France.

Corresponding authors: Pierre-Emmanuel Oms omspe@hotmail.fr; Pascal Bailly du Bois pascal.bailly-du-bois@irsn.fr



Résumé de l'article

La dispersion des eaux continentales à l'échelle du plateau continental du golfe de Gascogne est étudiée à l'aide de simulations numériques et de mesures conjointes de salinité et de tritium. Les panaches de la Loire et de la Gironde ont fait l'objet de 6 campagnes de mesures de tritium et de salinité entre 2009 et 2016. En parallèle une simulation à long terme (2007-2016) de la dispersion du tritium a été effectuée à l'aide du modèle océanique hydrodynamique MARS3D (Model for Application at Regional Scale). La capacité du modèle à reproduire la dispersion a été démontrée, 91 % des concentrations simulées ont une erreur inférieure à 50 % par rapport aux mesures. La salinité et le tritium, utilisés conjointement comme traceurs des eaux continentales, ont permis d'estimer la contribution en eau douce de la Loire par rapport à la Gironde dans le golfe de Gascogne. De plus, le temps de séjour dans le plateau continental a été estimé à l'aide d'un bilan quantitatif du tritium. Des temps de résidences cohérents de 380 ± 13 jours et de 437 ± 78 jours ont été respectivement estimés par les mesures et la modélisation

Abstract

The dispersion of continental waters at the scale of the continental shelf of the Bay of Biscay is investigated using comparable measurements and 3D simulated distributions of salinity and tritium concentrations. The Loire and Gironde plumes have been studied using tritium measurements for

several years. A long term simulation (2007-2016) of tritium dispersion was computed using the hydrodynamic ocean model, MARS3D (Model for Application at Regional Scale), encompassing the *in-situ* sampling range time. The ability of the model to reproduce the dispersion was demonstrated in this study, with 91% of simulated concentrations having relative error of less than 50%. Salinity and tritium, jointly used as tracers of continental waters, have made it possible to estimate the freshwater contribution of the Loire River relative to the Gironde River in the Bay of Biscay. In addition, the residence time in the continental shelf was estimated using a quantitative tritium budget. Consistent residence times of 380 ± 13 days and 437 ± 78 days were estimated using measurements and modelling respectively.

1 Introduction

The Bay of Biscay ("BoB") (Figure 4.2A) is a semi-enclosed area located at the eastern edge of the Atlantic Ocean, bounded by the French and Spanish coasts. It is composed of three main topographic structures (i) an abyssal plain offshore to the west with depth of about 4000 m, (ii) a continental slope from 4000 m to 200 m and (iii) a continental shelf extended from isobaths 200 m to the coast. The continental shelf is divided into three parts from North to South, (i) a wide Armorican shelf (~ 180 km) off Brittany, (ii) a narrower Aquitaine shelf from the Rochebonne plateau to the Adour River and (iii) a narrow Iberian (~30 km) shelf off the Spanish coast.

Previous studies have identified a mostly poleward general circulation over the continental shelf highly dependent on the season (equatorward in summer) with a speed in the order of 3 $cm.s^{-1}$ (Pingree et Le Cann, 1989; Charria *et al.*, 2013; Le Boyer *et al.*, 2013; Kersalé *et al.*, 2015). With the residual tidal current being weak over the large part of the continental shelf (< 1 $cm.s^{-1}$), the long term water mass transport is mainly driven by wind forcings and density gradients (Lazure et Jégou, 1998) induced by freshwater discharge and thermal stratification.

The catchment basins represent the major sources of freshwater in the BoB through five main French rivers: the Loire, Gironde, Adour, Vilaine and Charente rivers (Table 4.2). The total annual averaged freshwater discharge is around 2000 $m^3.s^{-1}$ and shows high seasonal variability. The highest freshwater discharge occurs during winter and spring (an averaged discharge of 3400 $m^3.s^{-1}$ during February) while the lowest occurs during summer and autumn (an average discharge of 640 $m^3.s^{-1}$ during August) (Figure 4.3). The Loire and Gironde rivers contribute an average of 78% of the freshwater discharge into the BoB.

In the absence of wind forcing, the river plume typically forms an anticyclonic bulge prolonged by a narrower buoyant costal current flowing to the right of the estuary mouth (Garvine, 1987). The freshwater inputs can induce significant density gradients which generate intense baroclinic currents

flowing northward in the surface layer following the 'thermal wind' relation (Chapman et Lentz, 1994; Yankovsky et Chapman, 1997). Through wind action this typical feature of plume circulation can be enhanced or reversed (Chao, 1988).

In the BoB, due to the influence of the Azores High and Icelandic Low pressure systems, two wind regimes prevail depending on the season, specifically South-West winds in autumn and winter and West North-West winds in spring and summer (Figure 4.4).

The progression of the Loire and Gironde plume has been previously modelled and described seasonally by (Lazure et Jégou, 1998) under the influence of wind and density gradients. In autumn and winter, South-West downwelling of favourable winds and cooling of the surface layer reduce thermal stratification while river discharges increase. The river plumes remain near the coast flowing northward from the surface to the bottom. In spring and summer, upwelling of favourable NW winds and low river run off lead to offshore or southward plumes spreading above the thermocline.

However the long-term dispersion of each of the freshwater plumes in the Bay of Biscay is still poorly understood due to the lack of an appropriate conservative tracer to complement salinity. One way to improve understanding is to apply hydrodynamic models which are useful tools for describing the water masses circulation at different times and space scales. However the representability and accuracy of the models still needs to be further assessed and quantified as much as possible. In this study, measurements of a radioactive tracer, tritium, at very low levels (<1000 $Bq.m^{-3}$) are used in conjunction with an hydrodynamic model MARS3D (Lazure et Dumas, 2008) to demonstrate and simulate the dispersion pathways of the dye-like tritium tracer in the continental shelf of the Bay of Biscay for the period between 2007 and 2016.

Tritium (^3H) is a radioactive isotope of hydrogen with a half-life of 4497 ± 4 days (~12.32 years) (MacMahon, 2006). Tritium in the form of tritiated water (HTO) has been traditionally used in oceanography since the early 70's as a tracer to study the parameters of global oceanic circulation, such as ventilation timescales, renewal rates or residence times (Jenkins et Clarke, 1976; Jenkins, 1987; Andrié *et al.*, 1988; Doney et Jenkins, 1988; Thiele et Sarmiento, 1990; Doney *et al.*, 1997; Jenkins, 1998). These applications result from the large quantities of tritium introduced into ocean surfaces during nuclear weapons testing in the atmosphere from 1945 to 1980. Nowadays, tritium could be an appropriate tracer to use, especially in the coastal areas where controlled and well known sources are released into surface waters (rivers or coastal zones) by nuclear facilities. Several studies (Bailly du Bois et Guéguéniat, 1999; Bailly du Bois *et al.*, 2002; Bailly du Bois et Dumas, 2005) already use radioactive tracers in order to validate the long-term dispersion in the English Channel, North-Sea and Celtic Sea obtained using hydrodynamic models.

Tritium in the Bay of Biscay comes mainly from: (i) North-Atlantic Ocean waters; (ii) Loire and Gironde nuclear power plants (NPP) (Figure 4.2B); (iii) air-sea exchanges of water vapor; (iv) river outflows, (excluding liquid discharges from the Loire and Gironde nuclear power plants) and (v) precipitation. The La Hague and Sellafield nuclear fuel reprocessing plants and the French nuclear power plants in the English Channel may have a minor contribution to tritium inputs depending on meteorological forcing.

In this work, an understanding of these different source terms in the BoB makes it possible to establish a quantitative budget to estimate a residence time of the continental waters on the BoB continental shelf as done previously in the English Channel (Bailly du Bois et Dumas, 2005). Furthermore, measurements of the salinity and tritium concentration, both tracers of continental waters, will allow the relative contributions of the freshwater inputs from the Loire and Gironde rivers to the Bay of Biscay to be distinguished. All measurement results will be compared to the equivalent simulated results. A quantitative assessment of the dispersion using the MARS3D model will also be performed.

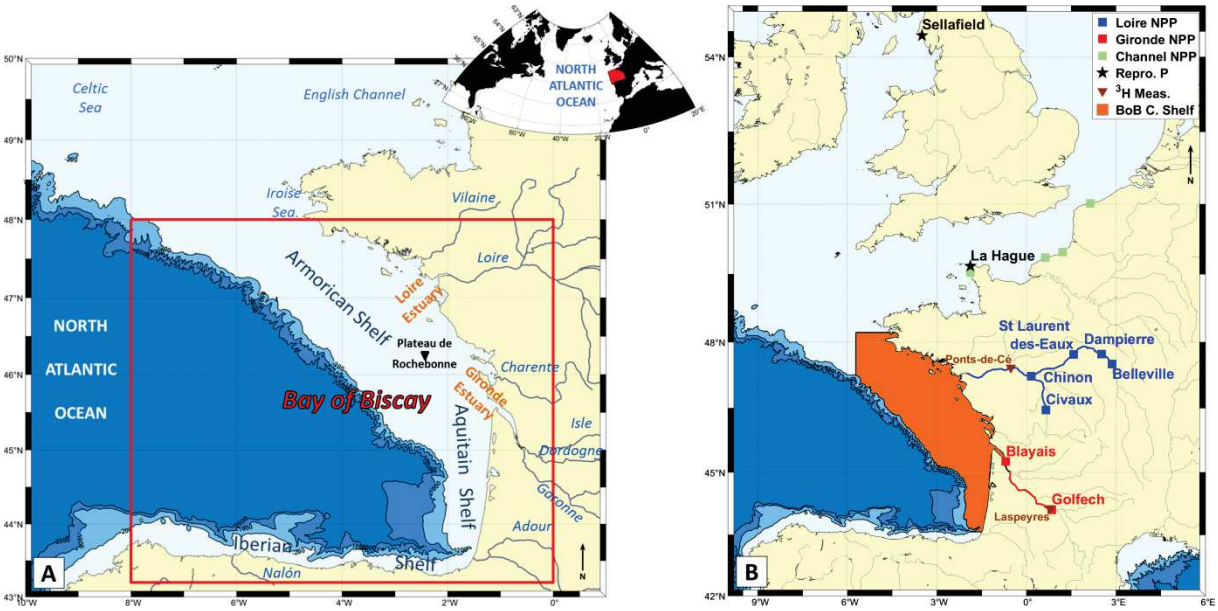


Figure 4.2 – (A) Map of the Bay of Biscay with main areas. (B) Locations of tritium inputs on the Bay of Biscay from nuclear power plants (NPP as squares), through the Loire watershed in blue, the Gironde watershed in red and the English Channel in green. Tritium inputs from the Sellafield (UK) and La Hague (FR) reprocessing plants (Repro. P) are indicated in black. The ^{3}H IRSN monitoring measurement stations (^{3}H Meas.) are indicated in brown. The study area of the continental shelf of the Bay of Biscay (BoB C. Shelf) is in orange. The -200 m, -1000 m and -2000 m isobaths are represented.

Table 4.2 – Mean of daily outflows of the main rivers of the BoB (2005 to 2015). Data obtained from HYDRO-MEDDE/ DE.

	Loire	Gironde	Adour	Vilaine	Charente	Total
Average flow rate ($m^3.s^{-1}$) (2005 2015)	744	762	283	74	64	1927
Relative contribution	38.6 %	39.5 %	14.8 %	3.9 %	3.3 %	100 %

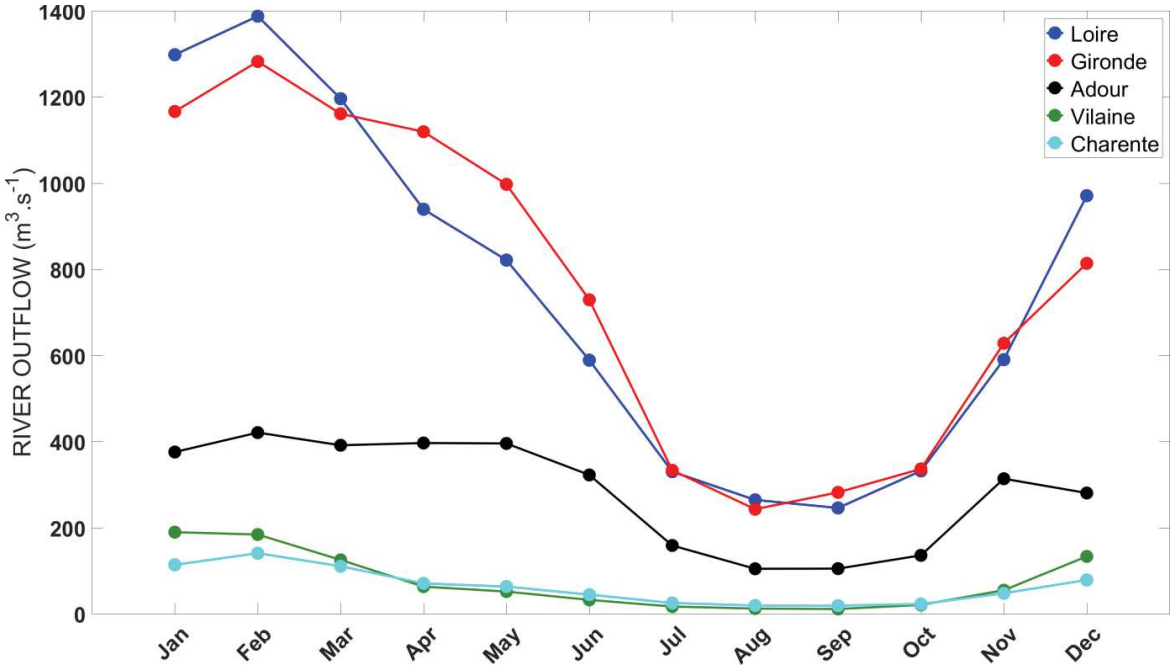


Figure 4.3 – Monthly mean of daily outflows of main rivers in the BoB (2005 to 2015). Data obtained from HYDRO-MEDDE/DE.

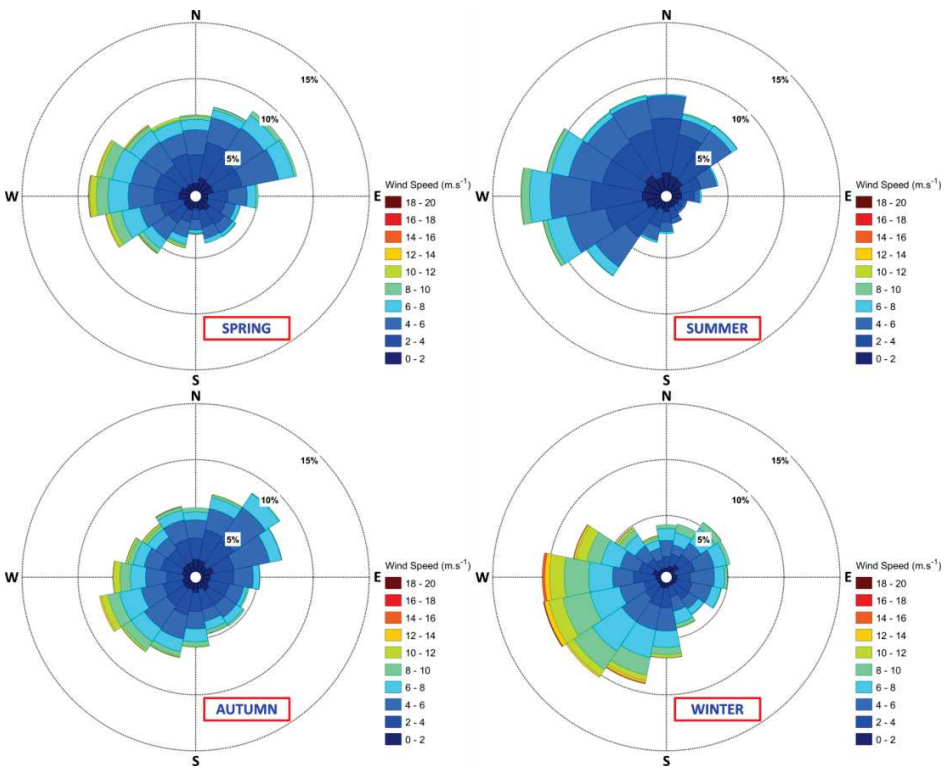


Figure 4.4 – Seasonal wind directions and speeds between 2007 and 2016 obtained from the meteorological model ARPEGE (2007 – 2011) and ARPEGE HR (2012 – 2016), between latitudes of 49°N and 43°N and longitudes of -6°W and 0°W. Spring is defined as from the 1st of March to the 31st of May; Summer is defined as from the 1st of June to the 31st of August; Autumn is defined as from the 1st of September to the 31st of November; Winter is defined as from the 1st of December to the last day of February.

In the following sections we detail how the tritium background level was determined in the BoB. Then we describe the tritium sampling and measurements methods as well as the model configuration used to simulate the tritium dispersion in the BoB.

Results of the measured and simulated tritium concentrations are shown section 3 and the error of the model is quantified. Finally we used the model and the measurements in order to represent the relative freshwater contribution of the Loire River in the BoB as well as to estimate the residence time of tritium on the continental shelf.

2 Materials and Methods

In this work the continental shelf of the Bay of Biscay was taken as the Armoricain and Aquitain shelves between 0 and 200 m depth (the orange area on Figure 4.2B). Its volume (V_{BoB}) was calculated from the bathymetry relative to the mean level used in the hydrodynamic model, Mars 3D. Its volume was determined as equal to ~6 700 km^3 with a total surface area (S_{BoB}) of ~72 000 km^2.

2.1 Estimation of the BoB background concentration out of NPP's influence

In order to compare measured and simulated tritium concentrations, it was first necessary to estimate the tritium background concentration in the Bay of Biscay (BoB BC). This is the concentration of tritium which does not directly originate from the liquid releases from nuclear facilities through Loire and Gironde outfall (*i.e.* tritium coming from North-Atlantic surface water, precipitation, river outflow without NPP inputs and vapour exchange). To distinguish these contributions from the background concentration in the BoB, we assumed that the residence time of water masses at this scale is one year. This assumption was confirmed by the results in section 0. The following estimations in this section were performed at an annual scale.

The inventory of tritium present in the BoB from North-Atlantic surface water ($I_{N.A._y}$) was determined (4.21) by multiplying the North-Atlantic tritium concentration ($C_{N.A._y}$) at year y by the BoB volume (V_{BoB}). The annual North-Atlantic concentration was obtained by applying the model of (Oms *et al.*, 2018), (4.20).

$$C_{N.A._y} = A\, e^{-BT} + C \tag{4.20}$$

With:

$C_{N.A._y}$: North-Atlantic tritium surface concentration (Bq.m^{-3}) on the first of January of the year y;

A, B and C: Constants, with A=271.0608 ± 7.7480 Bq.m^{-3}, B=2.36072 ± 0.1445 10^{-4} day^{-1} and C=45.5225 ± 8.3440 Bq.m^{-3};

T: Time elapsed in days between the first day of the year y and the date 07/26/1988.

$$I_{N.A._y} = C_{N.A._y} V_{BoB} \tag{4.21}$$

With:

$I_{N.A._y}$: Inventory of tritium (Bq) in the BoB from the concentration estimated in North-Atlantic surface water for year y;

V_{BoB}: Volume of the continental shelf of the BoB, equal to ~ 6.7 × 10^{12} m^3.

The annual inventory of tritium that is not influenced by the liquid releases of nuclear power plants that flows through the main rivers in the BoB (*i.e.* Loire, Gironde, Adour, Vilaine and Charente) was estimated using (4.22) by multiplying the annual mean flow rate ($Ø_{riv.}$) of these rivers (Table 4.2) by the mean tritium concentration measured in 17 rivers out of influence of liquid nuclear releases in the

south of France (Ducros *et al.*, 2018). This method, however, introduced bias through the assumption that the totality of tritium coming from the rivers was well mixed in the entire volume of the BoB at the annual scale.

$$\mathrm{I}_{riv.} = [C_{riv.}Ø_{riv.}]T \tag{4.22}$$

With:

$I_{riv.}$: Inventory of tritium out of direct influence of NPP's that entering the BoB through the main rivers (Loire, Gironde, Vilaine, Charente and Adour) (Bq);

$C_{riv.}$: Mean "background level" of tritium measured in 17 rivers out of influence of nuclear releases in the south of France, equal to 410 ± 170 Bq.m^{-3} (Ducros *et al.*, 2018);

$Ø_{riv.}$: Mean annual river outflow from the Loire, Gironde, Vilaine, Charente and Adour rivers gathered between 2005 and 2015, and equal to 1927 m^3.s^{-1} (obtained from HYDRO-MEDDE/DE, Table 4.2);

T: Number of seconds in 365 days *i.e.* 31.536.000 s.

The input of tritium into the BoB along with precipitation was calculated using (4.23) by multiplying the tritium concentration measured in the rain with the precipitation rate estimated over the area of the BoB. The tritium concentration in precipitation ($C_{rain.}$) was measured each month in a station in Valentia (Ireland) from 1957 to 2009 (IAEA/WMO, 2018). This station was assumed to be representative of the oceanic tritium in rain, and weakly influenced by the continental sources. In 2009 the average tritium concentration was equal to 328 ± 41 Bq.m^{-3}. The precipitation rate (P_{rate}) is considered homogenous over the BoB and equal to 1000 mm.yr^{-1} (Dorman et Bourke, 1981).

$$\mathrm{I}_{rain} = [C_{rain.}P_{rate}]S_{BoB} \tag{4.23}$$

With:

I_{rain}: Inventory of tritium entering in the BoB through precipitation (Bq);

$C_{rain.}$: Mean tritium concentration in 2009 at Valentia (Ireland) equal to 328 ± 41 Bq.m^{-3};

P_{rate}: Precipitation rate over the BoB estimated equal to 1 m;

S_{BoB}: BoB area, equal to ~7.2×10^{10} m^2.

The exchange of tritium in the form of vapour at the ocean/atmosphere interface is poorly known, in particular its kinetics. Exchanges are closely related to the concentration gradient between ocean surface seawater and air vapour. Some hydrological models have been developed to take into account the input of HTO from the atmosphere to the ocean and the back-flux of HTO due to re-evaporation (Weiss et Roether, 1980; Doney *et al.*, 1993). However, these models are valid at the scale of an open ocean, over time scales of years and with slight horizontal variations of tritium surface concentrations.

These conditions are not met in the BoB where strong gradient concentrations exist between the coast and open sea because of the Loire and Gironde outflows. Moreover, water mass transport depends on mechanisms that can be induced locally and at time scale of days. Considering this lack of understanding, tritium vapour exchange was not accounted for in this study. According to (Weiss et Roether, 1980; Koster *et al.*, 1989; Doney *et al.*, 1992) the input of tritium at the sea surface is estimated about three folds the inputs of tritium by precipitation (in the case where the tritium concentration in the air vapour is greater than the tritium concentration at the ocean surface). The precipitation accounting for 3.5 $Bq.m^{-3}$ (cf. Table 4.3), the order of magnitude of tritium inputs by vapour exchanges can be roughly estimated to ~11 $Bq.m^{-3}$.

The BoB inputs of tritium entering in one year through river outflows and precipitation are listed in Table 4.3. The inventory of tritium remaining in the BoB due to the tritium concentration of the North-Atlantic surface water in 2016 was calculated as 476 ± 88 TBq (4.21) in 2016, based on a North-Atlantic tritium concentration of 71 ± 13 $Bq.m^{-3}$ (Oms *et al.*, 2018). Comparatively, the mean annual liquid tritium from the nuclear power plants through Loire and Gironde watershed between 2006 and 2015 was equal to 215 ± 20 TBq and 103 ± 9 TBq respectively. This means that less than 50% of the tritium remaining in the BoB came from the Loire and Gironde nuclear power plants.

The inventories of tritium from rivers and precipitation divided by the volume of the BoB provided an average estimation of their resulting concentrations in the BoB. This results in a 2016 BoB tritium background concentration of 78.2 ± 15 $Bq.m^{-3}$ which represents an increase of 7.2 $Bq.m^{-3}$ of tritium compared to the North-Atlantic background concentration.

Table 4.3 – Sources and inventories of tritium entering the continental shelf of the Bay of Biscay during one year. The inventories were divided by the volume of the BoB (V_{BoB}) to obtain the equivalent tritium concentration.

Source	**Annual mean inventory of tritium entering the BoB (TBq)**	**BoB Background Concentration (BoB BC) ($Bq.m^{-3}$)**			
		2009	**2010**	**2011**	**2016**
North-Atlantic surface water (2016)	/	~92.1±15	~88.2±15	~84.7±15	~71±13
Rivers outflow	25 ± 10 (4.22)	3.7 ± 1.5			
Precipitation	23.5 ± 3 (4.23)	3.5 ± 0.5			
Loire NPP	215 ± 20	/			
Gironde NPP	103 ± 9	/			
Total	**366.5 ± 42**	**~99.3±17**	**~95.5±17**	**~91.9±17**	**~78.2±15**

Once the background tritium concentration was determined, it was possible to use measurements obtained through *in-situ* tritium sampling to estimate the other BoB inputs. This background concentration was added to the simulated concentrations in order to compare the measured and simulated distributions of tritium. Few measurements were located outside the continental shelf at

depths deeper than 200 m, therefore the background concentration profile shown Annexe 5 was applied.

2.2 Tritium sampling and measurements

From 2009 to 2016, six oceanographic campaigns were performed in the Bay of Biscay where tritium samples were collected (Table 4.4 and Figure 4.5). For each sample, one litre of sea-water was collected using a Niskin bottle, then transferred to a tritium storage bottle. The storage bottles were filled with sea-water and sealed in order to minimize air bubbles and tritium exchange with the atmosphere. Tritium storage bottles were maintained at a temperature of 5°C, and protected from light until measurement.

Table 4.4 – Sampling campaigns in the Bay of Biscay.

CAMPAIGN	SHIP	SAMPLING DATES (MM/DD/YYYY)	Lat_{min} - Lat_{max} $Long_{min}$ - $Long_{max}$	^3H Number sampling
ASPEX 2009	Thalassa	07/13/2009 07/20/2009	43.98°N – 47.79°N 6.01°W – 1.52°W	36
ASPEX 2010	Suroît	08/31/2010 09/07/2010	44°N – 48.27°N 6.41°W – 1.57°W	56
ASPEX 2011	Thalassa	08/07/2011 08/15/2011	44°N – 47.79°N 6°W – 1.52°W	36
DYNSEDIM	Atalante	03/15/2016 03/20/2016	45.9°N – 47.93°N 5.38°W – 2.68°W	27
PELGAS	Thalassa	05/02/2016 05/27/2016	43.67°N – 47.73°N 5.82°W – 1.27°W	75
PLUME	Côte de la Manche	05/20/2016 05/29/2016	44.68°N – 48.36°N 5.16°W – 1.05°W	134
Total				**364**

Different techniques were used to determine low-level tritium concentrations in the samples (Annexe 4): i) electrolytic enrichment of the water samples and ^3H analysis by gas proportional counting (Östlund *et al.*, 1974) at the Tritium Laboratory of Miami (RSMAS), ii) ^3He regrowth and measurement by mass spectrometry (Clarke *et al.*, 1976) at the IRSN-LMRE/LRC[7] or LSCE[8] laboratories and iii) liquid scintillation counting (Cassette, 2004) at the IRSN-LMN[9] and IRSN-LRC. All measurement results are presented in Annexe 4 and are expressed in Tritium Units (TU) (1 tritium atom per 10^{18} hydrogen atoms), with 1TU ~ 119.2 $Bq.m^{-3}$. The ^3He ingrowth method applied by the LMRE/LRC laboratories passed the IARMA Environmental Radioactivity Proficiency Test on the Determination of Tritium in Water each year to check for its performance. The IARMA test includes measurement of two low-level tritium samples calibrated at <0.2 TU and 1.98 ± 0.07 TU. We obtained 0.13 ± 0.03 TU and 2.19 ± 0.09 TU respectively. The tritium results were interpolated using the kriging method (Marcotte, 1991).

[7] IRSN-LMRE/LRC: Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), Laboratoire de Métrologie de la Radioactivité dans l'Environnement (LMRE) and the Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-en-Cotentin (LRC)
[8] LSCE: Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement
[9] LMN: Laboratoire de Mesure Nucléaire

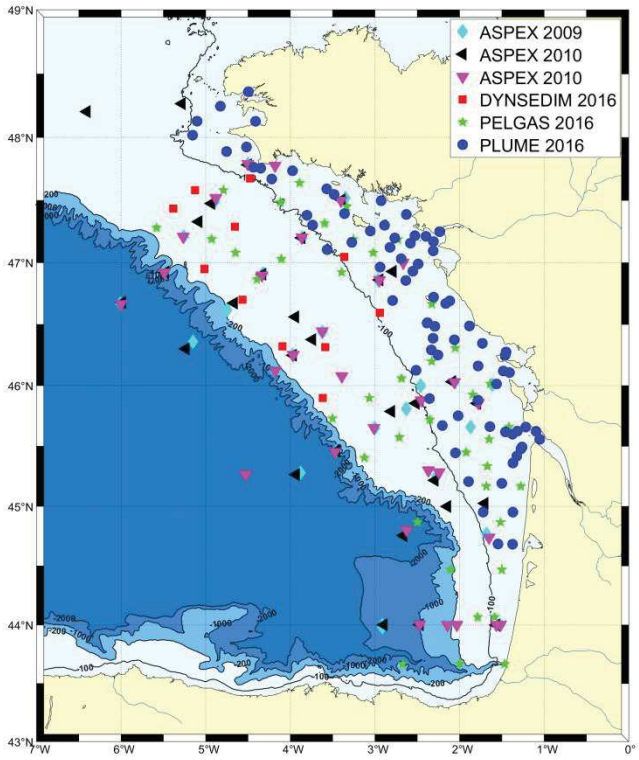


Figure 4.5 – Location of *in-situ* measurements used for simulations comparisons.

2.3 The MARS3D Model

2.3.1 Model configuration

Simulation of tritium dispersion in the Bay of Biscay was performed with the three dimensional MARS3D model (Model for Applications at Regional Scale, Ifremer) as described in detail by (Lazure et Dumas, 2008). The simulation ran from 01/01/2007 to 30/06/2016. The model used a 3D finite difference scheme, applying the Boussinesq approximation and hydrostaticity to solve primitive equations. A uniform horizontal discretization was applied on a "Arakawa-C" numerical grid (Arakawa et Lamb, 1977) with 623×821 meshes ~2500 m in size for its Channel and BoB configurations (MANGAE2500). Vertical discretization was performed using a generalized sigma-coordinate system composed of 40 sigma levels.

The ULTIMATE QUICKEST MACHO multidimensional scheme with the universal limiter (Leonard, 1991) was used for the tracers' advection. Momentum advection used the 3rd order QUICK scheme. Vertical advection used a 5th order COMPACT scheme and vertical turbulence was based on a Generalized Length Scale formulation of the k-epsilon scheme (Umlauf et Burchard, 2005). The horizontal diffusion coefficient was set to 2.0 $m^2.s^{-1}$, according to a fitted estimation from Bailly du Bois *et al.*, 2012.

The model was computed using the Datarmor high performance computing and data processing infrastructure for marine and sciences (Ifremer).

2.3.2 Open boundary conditions

The temperature, salinity and free surface elevation (SSH) were interpolated at open boundaries from a global oceanographic model provided by Mercator Ocean system analysis. The tides were not taken into account in this global circulation model so a broader vertical integrated model ($2D_H$) with a grid size of about 6 km encompassed the 3D domain (Figure 4.6). This 2D model provided barotropic current components and the sea-surface height due to the tide at the open boundaries of the 3D domain. It was forced by the FES 2012 (Finite Element Solution) global tide model which provided 32 tidal constituents (Carrère *et al.*, 2013) and also by atmospheric pressure gradients provided from the METEO FRANCE meteorological model ARPEGE (Déqué *et al.*, 1994).

Atmospheric forcings (atmospheric pressure, wind components at 10 m, air temperature, relative humidity at 2 m and cloud cover) were provided by the ARPEGE model (2007 to 2011) and the ARPEGE HR model (2011 to 2016). Daily rivers discharges were extracted from HYDRO-MEDDE/DE between 2007 and 2016 and Ifremer climatology, 97 rivers discharges were taken into account all around the 3D domain.

Inside the domain the model was initialized with temperature, salinity and sea-surface height fields from the global circulation model of Mercator Ocean. A spin up time of 2.5 years was applied before the first model measurement comparison.

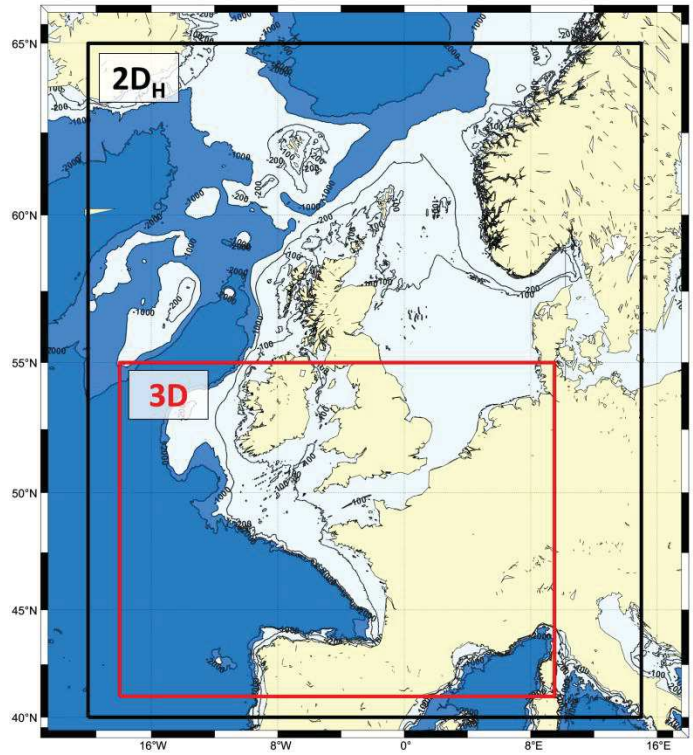


Figure 4.6 – The 2D and 3D numerical area. The -100 m, -200 m and -2000 m isobath are represented. Bathymetry extracted from the GEBCO 30 arc-second interval grid (Weatherall *et al.*, 2015).

2.3.3 Tritium releases

The liquid tritium releases from the nuclear facilities taken into account in this study and located (Figure 4.2B) were discharged in the environment in a discontinuous manner. The tritium was released in the environment (marine waters or rivers) by quantified and identified batches over a period of few hours.

The tritium releases from each batch of La Hague (Fr) reprocessing plant (Orano[10] personal communication) and the Blayais nuclear power plant (EDF[11] personal communication) were known in its entirety (time and quantity). However, tritium releases from all other nuclear power plants were only known in a monthly integrated way and in an annually integrated way in the case of the Sellafield reprocessing plant.

Annual tritium releases from the Sellafield (UK) reprocessing plant were given in the CEFAS reports (RIFE, 2008; RIFE, 2009; RIFE, 2010; RIFE, 2011; RIFE, 2012; RIFE, 2013; RIFE, 2014; RIFE, 2015; RIFE, 2016). The tritium release for the year 2016 was not published at the time of the calculations, and therefore it was set as equal to the mean of the annual releases between 2007 and 2015 (~1.3 10^{15} Bq). Finally, liquid tritium releases from Sellafield for the year 2016 were later made

[10] Orano is a multinational nuclear fuel cycle company that owns the La Hague facility
[11] Electricité de France, a French electricity production company

available and were equal to 2.02 10^{15} Bq (RIFE, 2017). In any case, this release had a weak influence on the BoB concentration as it will be confirmed further on.

Tritium releases from Sellafield, La Hague, Le Blayais and the Channel's nuclear power plants were injected directly in the 3D model at the mesh corresponding to the location of the discharge.

However, for tritium released from inland nuclear power plants, an intermediate model was required to simulate tritium flows from rivers to the ocean. Tritium flows from the Loire nuclear power plants and the Golfech nuclear power plants on the banks of the Garonne river were computed using a model of radionuclides transfer in receiving waterways (CASTEAUR) (Beaugelin-Seiller *et al.*, 2002). The river model links the release of tritium from nuclear power plants into continental rivers into the MARS3D oceanic model. The simulated tritium fluxes in rivers were compared (Figure 4.7) to monthly integrated measurements of tritium at Pont-de Cé (Loire) and Laspeyres (Garonne) (Figure 4.2B). Measurements of river tritium were performed by IRSN monitoring at the LMN laboratory using the liquid scintillation method. Measurements are available in the following database: Réseau National de Mesures de la radioactivité de l'environnement; https://www.mesure-radioactivite.fr.

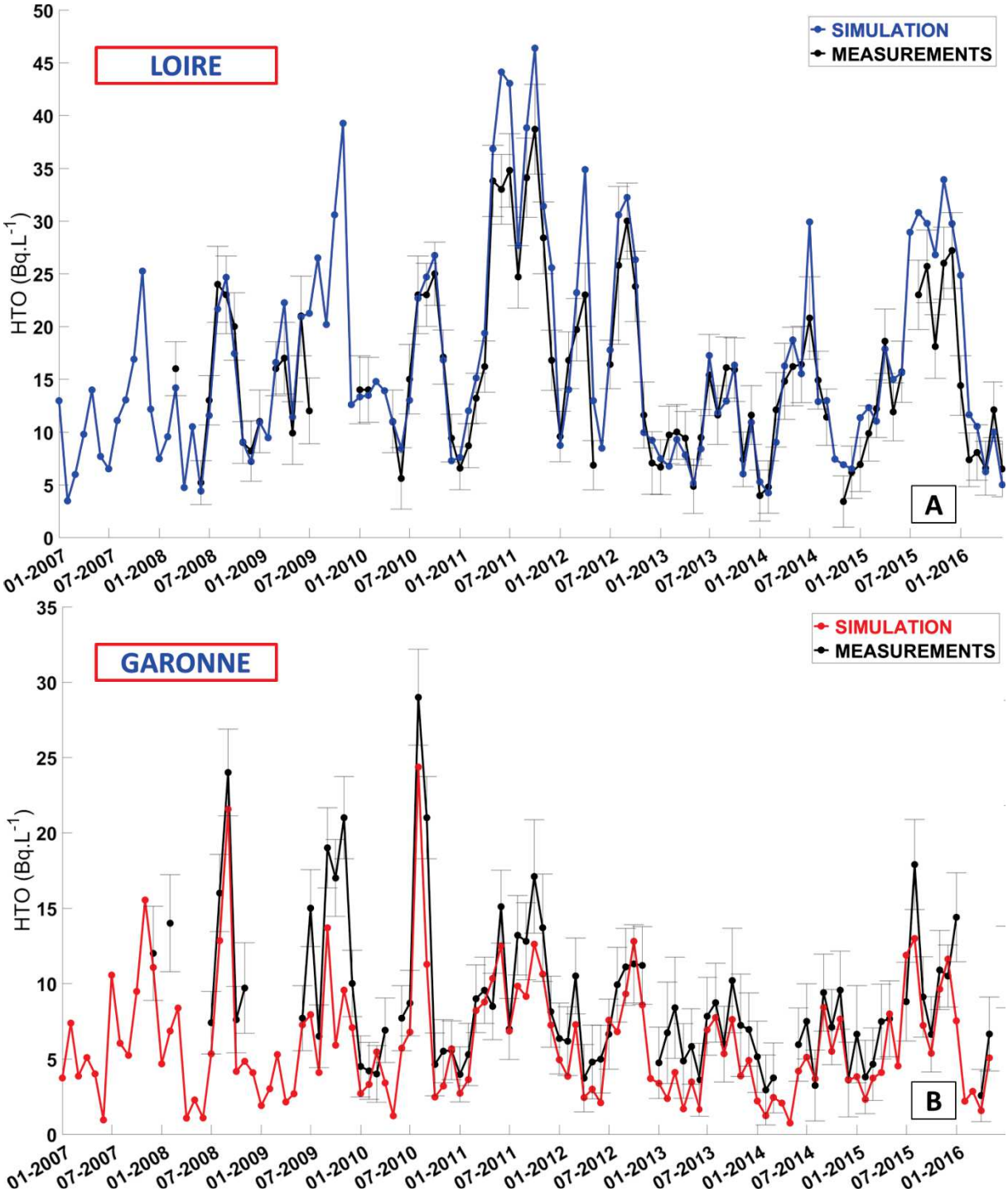


Figure 4.7 – Comparisons of monthly integrated tritium concentrations measured at Les Ponts-de-Cé (A) and Laspeyres (B) with the monthly averaged tritium concentrations simulated by the CASTEAUR model at the same location. The error bars represent the measurement uncertainty.

Tritium flux simulated at Ponts-de-Cé from the monthly releases of Loire nuclear power plants (Figure 4.7A) had a mean absolute percentage error (MAPE, (4.27)) of 20% compared to measurements. This value was in the range of the mean measurement uncertainty of 24%. Tritium flux simulated at Laspeyres (Garonne River) from the monthly releases of the Golfech nuclear power plants (Figure 4.7B) had a mean absolute percentage error of 30% compared to the measurements.

This value was in the range of the mean measurement uncertainty of 35%. The discrepancy of measurement uncertainties between the Loire River (24%) and the Garonne River (30%) was due to the mean tritium activity being lower at Laspeyres in the Garonne River (~6.0 $Bq.L^{-1}$) than that at Ponts-de-Cé in the Loire River (~16.5 $Bq.L^{-1}$). The measurement uncertainty of tritium using liquid scintillation was lower at higher concentrations.

3 Results and Discussion

3.2 Comparison model/measurements

3.2.1 Tritium distribution comparisons

For each *in-situ* measurement, a simulated concentration was computed at the same location (depth and horizontal coordinates) and date. They were reported with their corresponding measurements in Annexe 4 and spatially interpolated in the whole area (Figure 4.8 and Figure 4.9). Tritium concentration levels during summer ASPEX campaigns (2009, 2010 and 2011) (Figure 4.8) appear to be lower than in the spring 2016 campaigns (Figure 4.9A). This may have been due to a sampling bias as sampling for the ASPEX opportunity campaigns was performed prior to this work in order to assess our ability to measure tritium at low concentrations. This explains the sparse sampling of these studies in particular near the coast, and consequently a potential bias exists in the tritium plume representations. Nevertheless, the tritium distributions measured during these campaigns made it possible to assess the ability of the model to reproduce such localized concentration levels from year to year.

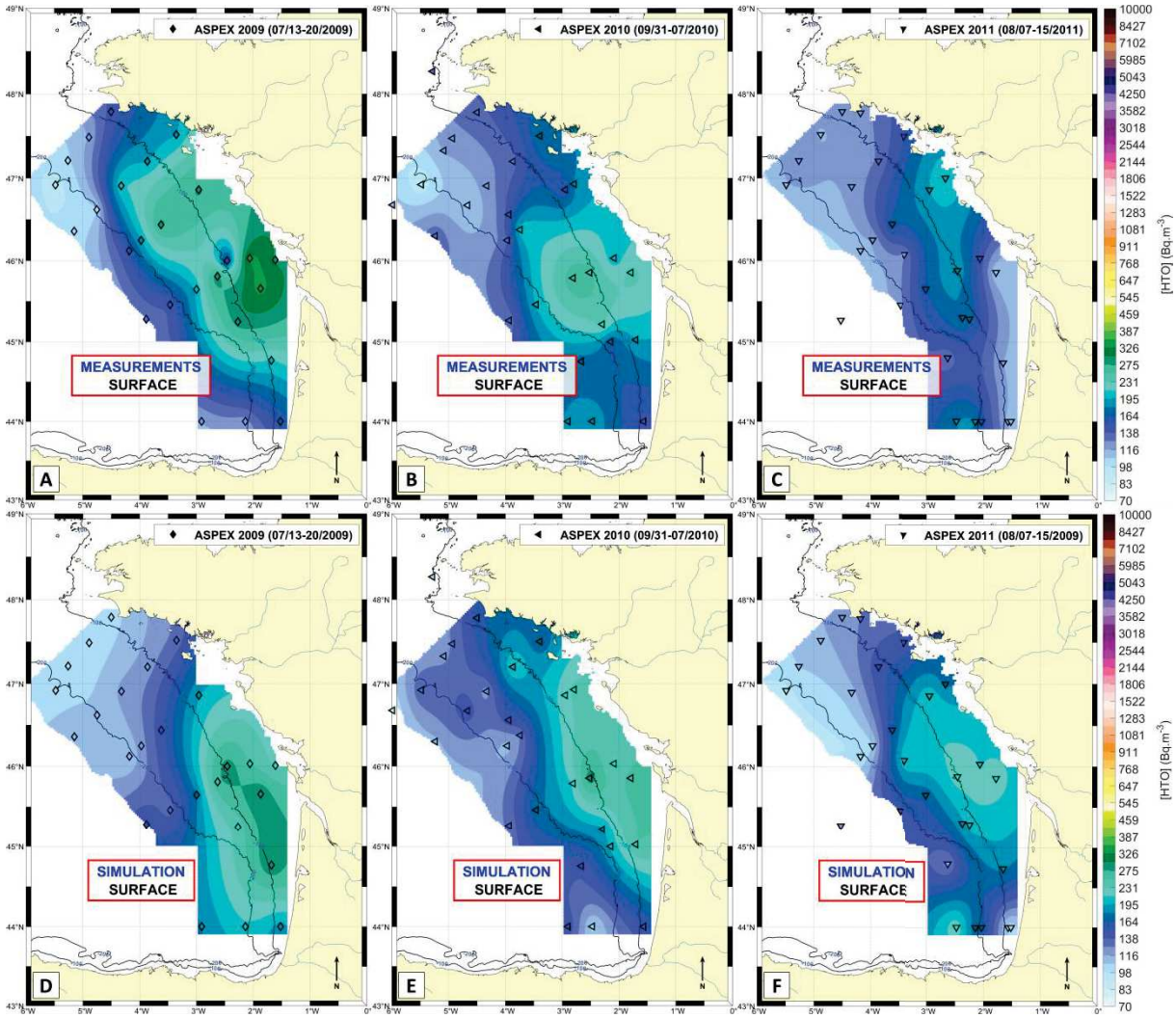


Figure 4.8 – Mean tritium concentrations between 0 and 15 m measured (A, B, C) and simulated (D, E, F) during the ASPEX 2009, 2010 and 2011 campaigns.

Figure 4.9A and C shows the measured tritium and salinity distribution at the surface of the BoB. It is worth noting that these maps do not represent a synoptic view of the BoB concentrations but results from measurements from mid-March to the end of June 2016, and thus are an analysis at this time scale. It can be noted the close relationship between these two tracers. Loire and Gironde plumes are clearly distinguishable and the tritium and salinity distributions are similar in shape and in location. At the surface, the Loire and Gironde plumes spread offshore and southward, which is the result of the predominant upwelling-favourable (NW) winds that occurred from the end of February 2016 (Annexe 7A), associated with intermediate Loire and Gironde freshwater discharges (~1000 $m^3.s^{-1}$) (Annexe 7B). The southern extension of the Loire and Gironde plumes reached the Plateau de Rochebonne and the Arcachon Bay respectively. Both plumes were constrained between the 100 m isobaths and the coast. The northern extension of the plumes reached the south of Brittany for the Loire River and the

Ile de Ré for the Gironde River. Near the bottom (Figure 4.9B) the plumes were both located in the north of each estuary, and confined along the coast.

The simulated surface tritium and salinity distributions (Figure 4.9D, E and F) show similar dispersion pathways, plume shapes and order of magnitude of concentrations compared to the measured distributions. Significant discrepancies between the measured and simulated concentration fields are:

(i) Lower tritium concentrations were simulated at the surface of the mouth estuaries in comparison to the measured concentrations. This could be due to the monthly averaged tritium releases from the NPPs taken into account in the simulated dispersion which can induce smoother cross-shore gradients than a realistic short term release;

(ii) Higher tritium concentrations at both the surface and bottom in the simulated Gironde plume than in the measured plume.

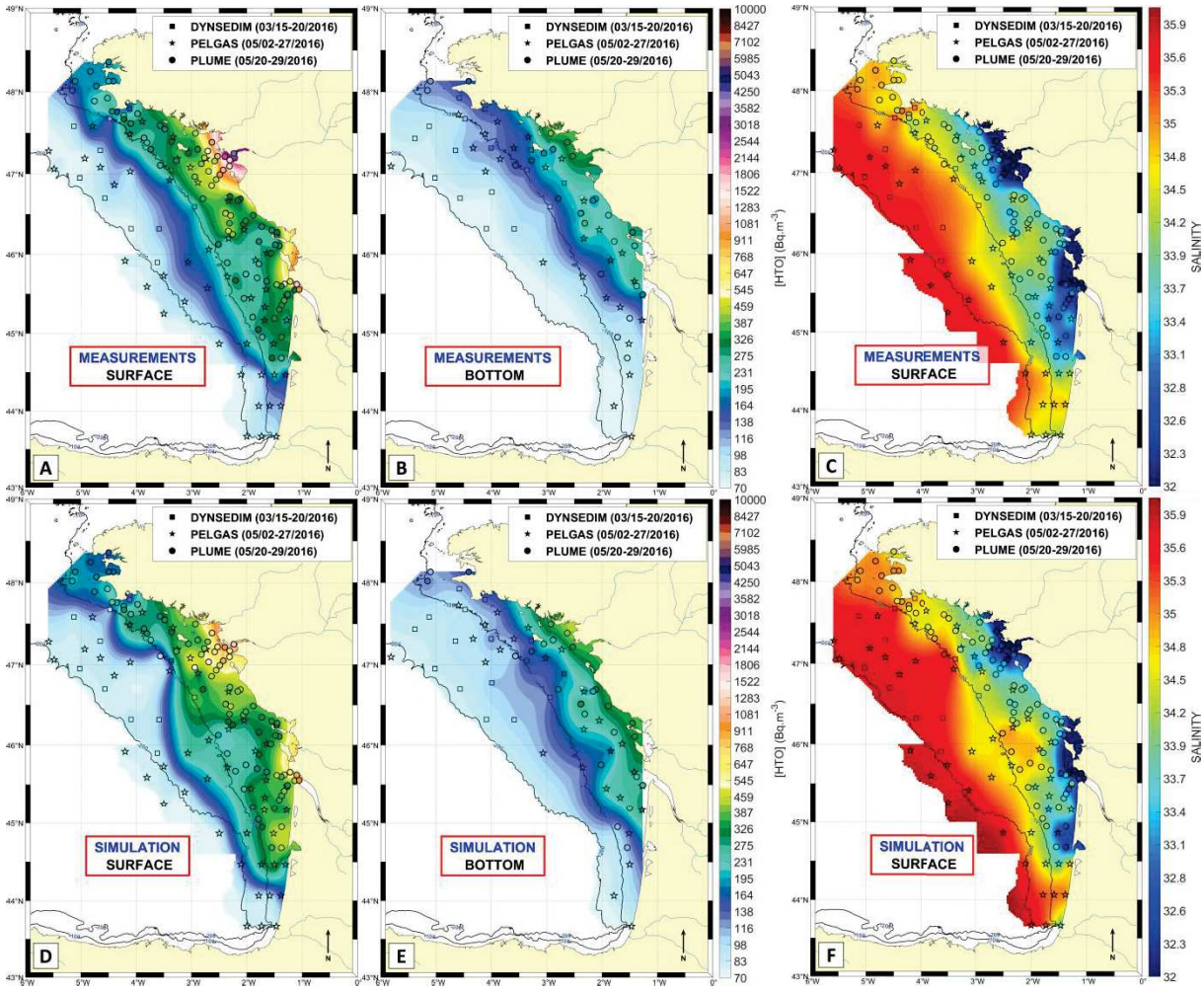


Figure 4.9 – Tritium and salinity concentrations measured and simulated during the spring 2016 campaigns. (A) Mean tritium concentration measured between 0 and 15 m depth; (B) Mean tritium concentration measured between 15 m and the bottom depth; (C) Mean salinity concentration measured between 0 and 15 m depth; (D) Mean tritium concentration simulated at the same locations that the measured ones between 0 and 15 m depth; (E) Mean tritium concentration simulated at the same locations that the measured ones between 15 m and the bottom depth; (F) Mean tritium concentration simulated at the same locations that the measured ones between 0 and 15 m depth.

3.2.2 Statistical comparisons

In order to compare the measured concentrations to those simulated, statistical indicators were computed. The square of the correlation coefficient (R, (4.24)), has been estimated, it measures the tendency of the simulated and measured values to vary together and should be close to one. The statistical index (d_r, (4.25)) of Willmott *et al.*, 2012 has been complementary used, it enables the model performance to be evaluated. d_r ranges between -1 and 1, with 1 representing the perfect model. The relative absolute percentage error (APE, (4.26)), and the mean relative absolute percentage error (MAPE, (4.27)) have been also calculated, their values allows to quantify the percentage of discrepancy between the simulated and measured concentrations.

The samples with measurement uncertainty greater than 70 Bq.m^{-3} have been discarded for these statistical comparisons. It concerns six measurements (n° 201669062; 201669063; 201669064; 201669065; 201669066; 201669155, *cf.* Annexe 4); sampled in the Loire and Gironde estuary where the discrepancy between the tritium concentration measured and simulated is due to the smoothed inputs of tritium in the hydrodynamic 3D model and not due to the model performance. In the estuary the tritium concentrations were highly variable with time, depending on hourly batches releases that cannot be reproduced by the model with monthly integrated tritium inputs.

$$\mathrm{R} = \frac{\sum_{n=1}^{N}(Meas._n - \overline{Meas.})(Sim._n - \overline{Sim.})}{\sqrt{\sum_{n=1}^{N}(Meas._n - \overline{Meas.})^2}\sqrt{\sum_{n=1}^{N}(Sim._n - \overline{Sim.})^2}} \tag{4.24}$$

$$d_r = 1 - \frac{\sum_{n=1}^{N}|(Sim._n - Meas._n)|}{2\sum_{n=1}^{N}|(Meas._n - \overline{Meas.})|} \tag{4.25}$$

$$\mathrm{APE} = 100\% \frac{|(Meas._n - Sim._n)|}{Meas._n} \tag{4.26}$$

$$\mathrm{MAPE} = \frac{100\%}{N}\sum_{n=1}^{N}\frac{|(Meas._n - Sim._n)|}{Meas._n} \tag{4.27}$$

With:

$Meas._n$: Measured tritium concentration of the n sample (Bq.m^{-3});

$\overline{Meas.}$: Mean measured tritium concentration (Bq.m^{-3});

$Sim._n$: Simulated tritium concentration of the n sample (Bq.m^{-3});

$\overline{Sim.}$: Mean simulated tritium concentration (Bq.m^{-3});

N: Total number of samples.

Statistical comparisons were performed (Figure 4.10) in order to quantify the differences between the measured and the simulated tritium and salinity dispersions. The square of the correlation coefficient between the measured and simulated tritium concentrations was 0.75 and the Wilmott index was 0.79, indicating that the model gives a good statistical representation of the tritium concentration. The same indicators were computed for the salinity (Table 4.5). They show a better representability for salinity, which can be explained by lower measurement background and source-term uncertainties.

Table 4.5 – Statistic indicator values for salinity and tritium comparisons.

	R^2	d_r	MAPE (%)
Salinity	0.89	0.82	1
Tritium	0.75	0.79	21

Figure 4.10A shows the concentrations simulated against the measured concentration with representation of the depth sampling after adding the tritium background concentration to simulations. A decrease of the tritium concentrations with depth is noticeable, it is associated with a decrease of the errors. That is to say the background level applied in the BoB makes that simulated concentrations well corresponds to the observations in the bottom depth, in areas where the tritium releases from the NPPs have a weak impact.

Overall, 91% of the simulated tritium concentrations differ less than 50% compared to the measured concentrations, with an average absolute percentage error of 21% (Figure 4.10B).

Figure 4.10C maps the surface relative percentage error, with the orange and red areas indicating an overestimation of the simulated concentrations and the green and blue areas indicating an underestimation. The same differences were found, as highlighted previously:

(i) An underestimation of the tritium concentration in the Loire plume near the coast and in the northern part of the Gironde plume (~ 40%);

(ii) An overestimation of the tritium concentrations at the south of the Gironde estuary (by 20% to 80 %).

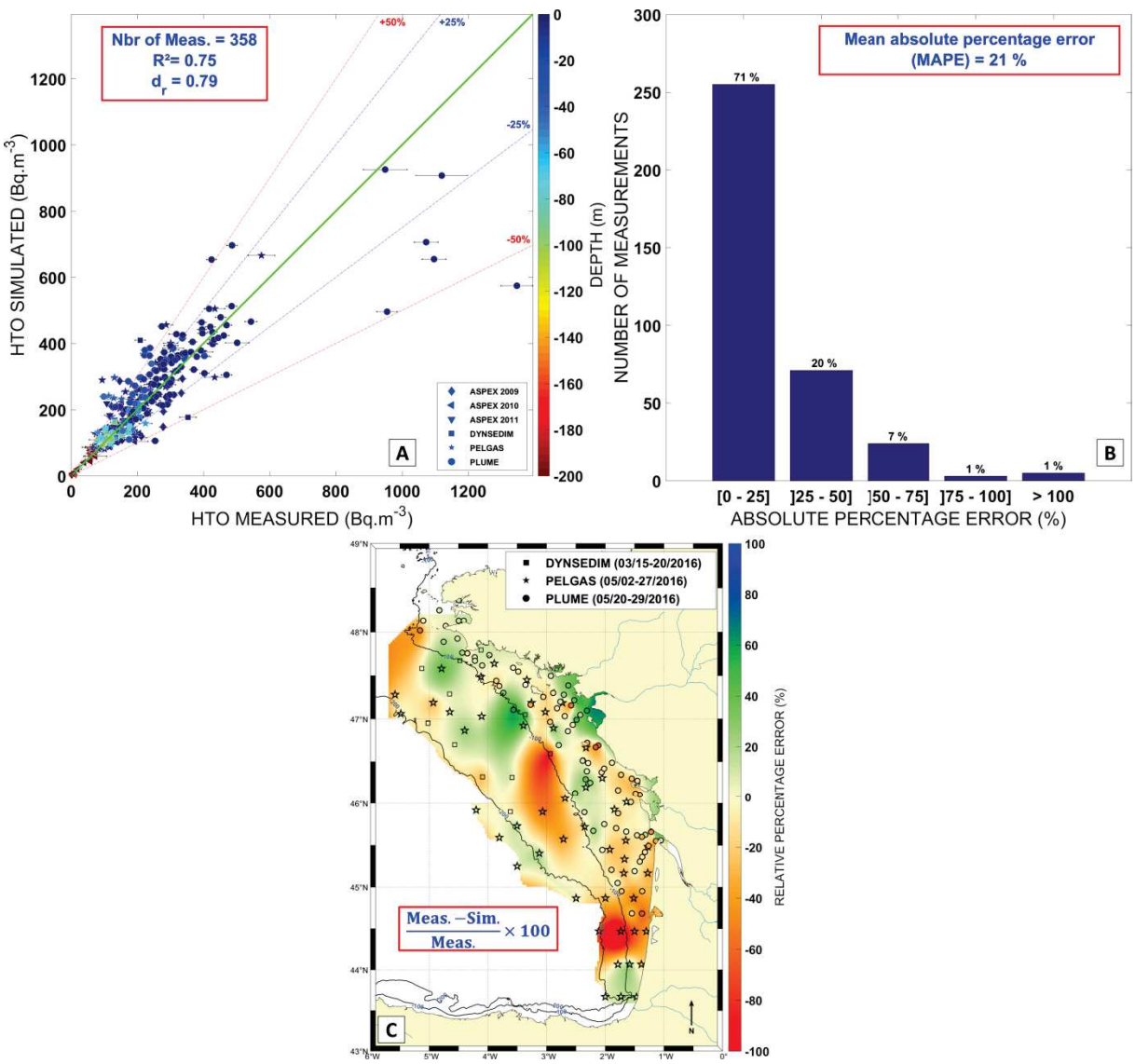


Figure 4.10 – (A) Simulated tritium concentrations according to the measured concentrations. The colours depend on the sampling depth. The 1:1 straight line is represented in green. The simulated concentrations with relative percentage error of less than 25% are included inside the blue lines and those lower than 50% are included inside the red lines. R^2 is the squared of the correlation coefficient (4.24); $\boldsymbol{d_r}$ is the Willmott, 2012 index of model performance (4.25) (B) Histogram of the absolute percentage errors (4.26). (C) Mapping of relative percentage errors of the simulated concentrations between 0 and 15 m. The orange-red colours indicate an overestimation of the simulated concentration and the green-blue colours indicate an underestimation. Measurements uncertainties higher than 70 $Bq.m^{-3}$ were discarded from the both comparisons, which included the six samples, n° 201669062; 201669063; 201669064; 201669065; 201669066; 201669155 (Annexe 4).

3.2 Relative contribution of Loire and Gironde inputs in the BoB shelf.

Salinity and tritium are two conservative tracers of continental freshwater that can be used in a complementary way to track the fates of the Loire and Gironde plumes. Twelve nuclear reactors are positioned along the Loire River and six nuclear reactors are positioned along the Gironde River.

Thus, the tritium flux coming from the Loire is, on average, almost twice that coming from the Gironde. The monthly tritium flux between January 2007 and June 2016 from the Loire and Gironde NPPs are represented in Annexe 7. The average monthly tritium flux released into the Loire and Gironde for this period is 18.6 TBq and 8.63 TBq, respectively. The tritium flux difference between Loire and Gironde associated with a similar freshwater flux (~750 $m^3.s^{-1}$, Table 4.2) generates a specific tritium-salinity ratio for the Loire and Gironde plumes. These signatures can be highlighted by determining the tritium-salinity relationship according to their origin. The Loire and Gironde tritium–salinity relationship can be deduced by the linear regression of the tritium concentration according to the salinity of stations preliminary identified as "Loire" and "Gironde" stations. Knowledge of the tritium-salinity relationship according to the river source makes it possible to estimate the contribution of the Loire continental water relative to the Gironde continental water in the BoB.

Tritium measurements obtained during the 2016 spring campaigns were used. Samples with a tritium concentration lower than 25% above the BoB background level (~98 $Bq.m^{-3}$), and a tritium concentration uncertainty greater than 50% of the measurement value were eliminated. All stations located sufficiently close to the Loire and Gironde rivers with salinity in the range 24 to 34.6 (Annexe 8) was taken into account in computing the tritium-salinity relationships (Figure 4.11). This lower salinity limit prevents hot-spots of high tritium concentrations measured during low tide in the estuary from biasing the tritium-salinity relationship. We assumed that tritium measured under the upper limit had not yet mixed with each other. A tritium-salinity measurement in the appropriate range of salinity was discarded because of the possible influence of the nearby Vilaine estuary. This sample is called ''Vilaine station'' in Figure 4.11.

From the selected Loire and Gironde stations the Loire and Gironde tritium-salinity relationships were determined by resolving a set of two equations with two unknowns. For both the Loire and Gironde systems, the first equation is linked to a North-Atlantic surface tritium concentration ($BL_{N.A.}$) of 71 $Bq.m^{-3}$, and with a North-Atlantic surface salinity ($S_{N.A.}$) set to 35.5 $g.kg^{-1}$. The steering coefficient (A_{river}) was isolated, and is a function of the ordinate at origin (B_{river}). The system was then resolved by iterations of a wide range of values of the ordinate at origin (from 0 to 10^5 $Bq.m^{-3}$). The value of the ordinate at origin (when S=0) gave an estimation of the mean tritium concentration in the river in question at the time scale of the mean residence time of tritium in the BoB. The parameter pair (A_{river} and B_{river}) that minimized the sum of the square of the errors was chosen (Least squares method).

$$\begin{cases} BL_{N.A.} = A_{River}\, S_{N.A.} + B_{River} \\ HTO_{RegRiver} = A_{River}\, S_{River} + B_{River} \end{cases} \tag{4.28}$$

With:

$BL_{N.A.}$: North-Atlantic surface tritium concentration, ~71 Bq.m^{-3};

A_{river}: Steering coefficient of the Loire or Gironde tritium-salinity relationships;

$S_{N.A.}$: Salinity of the North-Atlantic surface water, ~35.5 g.kg^{-1};

S_{River}: Salinity measured for each of the selected samples;

B_{river}: Ordinate at origin of the Loire or Gironde tritium-salinity relationships, its value corresponds to the mean tritium concentration of the freshwater river (Bq.m^{-3});

$HTO_{RegRiver}$: Tritium concentration calculated according to the river linear regression (Bq.m^{-3}).

The contribution of the Loire continental waters relative to the Gironde waters was estimated by solving equation (4.28), then (4.29).

$$C_{Loire} = \frac{\left|HTO_{Meas.} - HTO_{RegGiron.}\right|}{HTO_{RegLoire} - HTO_{RegGiron.}} \times 100 \tag{4.29}$$

With:

C_{Loire}: Contribution of Loire waters relatively to the Gironde waters in the BoB (%);

$HTO_{Meas.}$: Measured tritium concentration (Bq.m^{-3});

$HTO_{RegRiver}$: Tritium concentration calculated according to the river linear regression (Bq m^{-3}) (4.28).

The measured relative contributions of the Loire continental waters were then spatially interpolated and could be compared to the model results.

For this purpose three different tagged tritium tracers were computed by the model: the “Loire”, “Gironde” and “Channel” tritium tracers Annexe 4). The “Loire” and “Gironde” tracers correspond to the tritium coming from the Loire and the Gironde nuclear power plants respectively. The “Channel” tracer corresponded to the tritium released from La Hague and Sellafield reprocessing plants and the Channel nuclear power plants. For the same annual mean freshwater discharge (~750 m^3.s^{-1}) the amount of tritium released by the Loire River (215 ± 20 TBq) was twice that of the Gironde (103 ± 9 TBq). To represent the Loire and Gironde rivers in terms of comparable freshwater contributions, the simulated concentration of the Loire tritium tracer was divided by two, following (4.30).

$$C_{Loire_sim.} = \frac{HTO_{Sim.Loire}/2}{HTO_{Sim.Loire}/2 + HTO_{Sim.Gir.}} \times 100 \tag{4.30}$$

With:

$C_{Loire_sim.}$: Simulated contribution of the Loire waters relative to the Gironde waters (%);

$HTO_{Sim.Loire}$: Simulated tritium concentration from the "Loire" tracer;

$HTO_{Sim.Gir.}$: Simulated tritium concentration from the "Gironde" tracer.

The Loire and Gironde tritium-salinity relationships are shown Figure 4.11 associated with the relative contribution of tritium/freshwater inputs from the Loire to those from the Gironde. The Loire tritium-salinity relationship (blue line) corresponds to an input contribution of the Loire to the BoB of 100% and the Gironde tritium-salinity relationship (red line) corresponds to an input contribution of the Loire inputs of 0%. Between these two relationships the tritium and the salinity measured are considered as a mixture of the Loire and Gironde inputs.

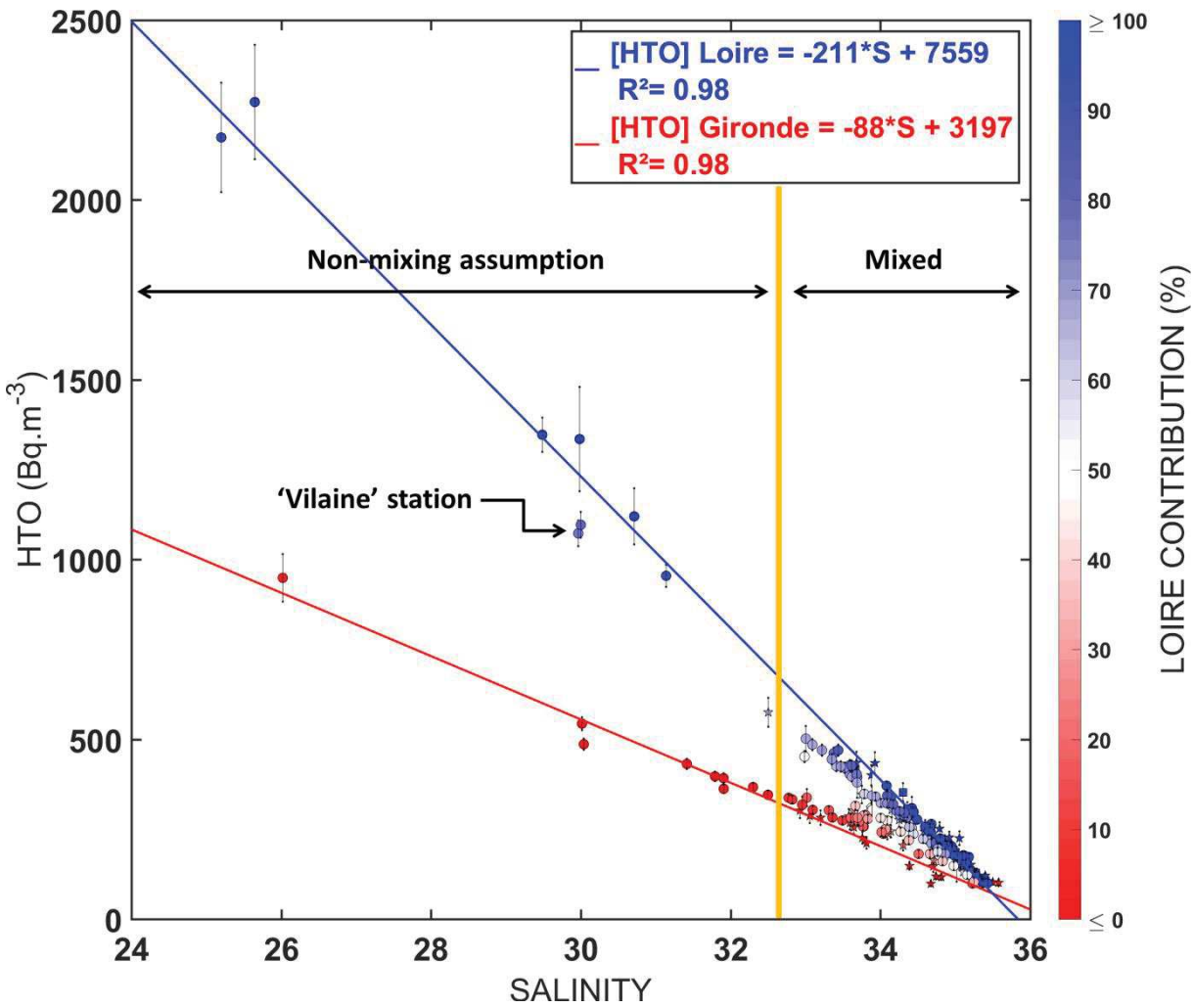


Figure 4.11 – Tritium and salinity relationships according to their original river sources. The percentage of the Loire contribution calculated from (4.29) is represented. Measurements in black are considered as a mixture between Loire and Gironde plumes. The orange line delimits the salinity border between the measurements considered as non-mixed and taken into account in the river regression and between the measurements considered as a mixture between Loire and Gironde freshwater discharges. The Vilaine station may have been significantly influenced by the freshwater discharge of the Vilaine River and was thus discarded from the regression.

In order to put the values of the freshwater contribution of the Loire River into perspective relative to the Gironde River, the total measured freshwater contribution in the BoB is shown Figure 4.12A at the surface and Figure 4.12D at the bottom. Near the estuary the total freshwater contribution ranges between 10% and 20% and decreases until ~4% until the 100 m isobath. Off the 100 m isobath the freshwater contribution ranges mostly between 0 and 3%. If the freshwater contribution of the Loire River relative to the Gironde River is around 100% off the 100 m isobath, we must keep in mind that it represents 100% of a maximum 3% of freshwater in this area.

The relative contribution of the Loire inputs at the surface and the bottom of the BoB according to (4.29) is mapped in Figure 4.12B and E. A clear gradient is seen between the area of the BoB predominantly impacted by the Loire inputs (above 46°N offshore and 46.5°N along coast) and the

area predominantly impacted by the Gironde inputs (under 46°N offshore and 46.5°N along coast). This gradient vanishes at the bottom where the Loire inputs are predominant on almost the entire continental shelf, even close to the mouth of the Gironde estuary.

The simulated relative contribution of the Loire inputs at the surface and the bottom of the BoB calculated from the ratio between the "Loire" and "Gironde" tritium tracers (4.30) is mapped in Figure 4.12C and F. It represents the mean of the daily contribution of the Loire inputs computed in May 2016. Similar to the measured Loire contribution, the simulated relative contribution of the Loire inputs is highly predominant north of 46°N (70%-100%). The surface gradient between Loire and Gironde waters is still present in the simulation but with a higher dilution of the Loire contribution south of 46°N. The contribution of the Gironde inputs remains predominant in the estuary, along the coast northward up to 46°N and in the entire southern part of the BoB.

Even more unexpected is that, at the bottom, both the measurements and simulation show a predominant contribution by the Loire inputs even in the vicinity of the mouth of the Gironde estuary (Figure 4.12, E and F). The southward spreading of the simulated Loire freshwater in the bottom layer coincide with the shift of the prevailing winds in the W-NW directions from the end of February 2016 (Annexe 7) to the end of March 2016. The W-NW upwelling favourable winds lead to a net water transport southward in the Ekman layer associated with an input of Loire discharges at the bottom until the Gironde estuary.

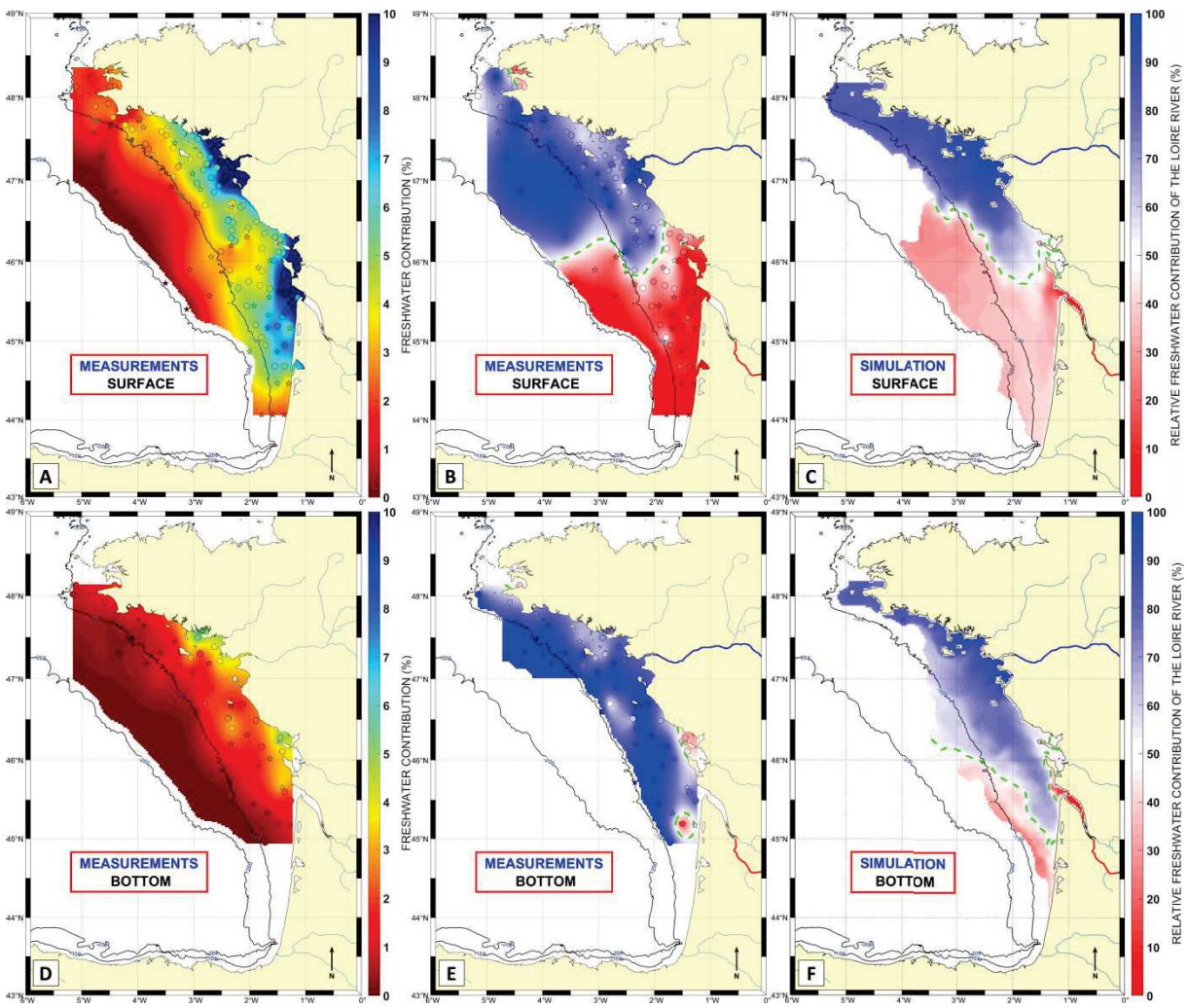


Figure 4.12 – (A) Surface and (D) bottom percentages of freshwater in the BoB. (B, E) Measured and (C, F) simulated freshwater contribution of the Loire River relative to the Gironde River. (A, B, C) are the surface representations and (D, E, F) are the bottom representations. The simulated freshwater contributions of the Loire River (surface and bottom) are the mean of the daily contributions in May 2016.

In order to investigate whether the southward spreading of the Loire River was an exceptional event or a seasonal trend, the simulated contribution of the Loire River was averaged seasonally, with the results shown Figure 4.13.

It seems that the Loire extension varies seasonally. The maximum southward extension is visible up to the mouth of the Gironde estuary in summer and autumn while the minimum southward extension occurs in spring and winter. The variations of the southward extension of the Loire River can be linked to the prevailing wind regimes coupled with the freshwater flowrates that occur in these seasons as previously simulated by Lazure et Jégou, 1998 and observed by Puillat *et al.*, 2004. In winter the South-West downwelling favourable winds generate the northernmost plume extensions that seem to occur during the spring when the winds shift from South-West to West and river runoffs stay high (Figure 4.3 and Figure 4.4). In summer the West North-West upwelling favourable winds

generate the southernmost plume extensions that seem to be occur during the autumn when the winds shift to the South-West and river runoffs stay low.

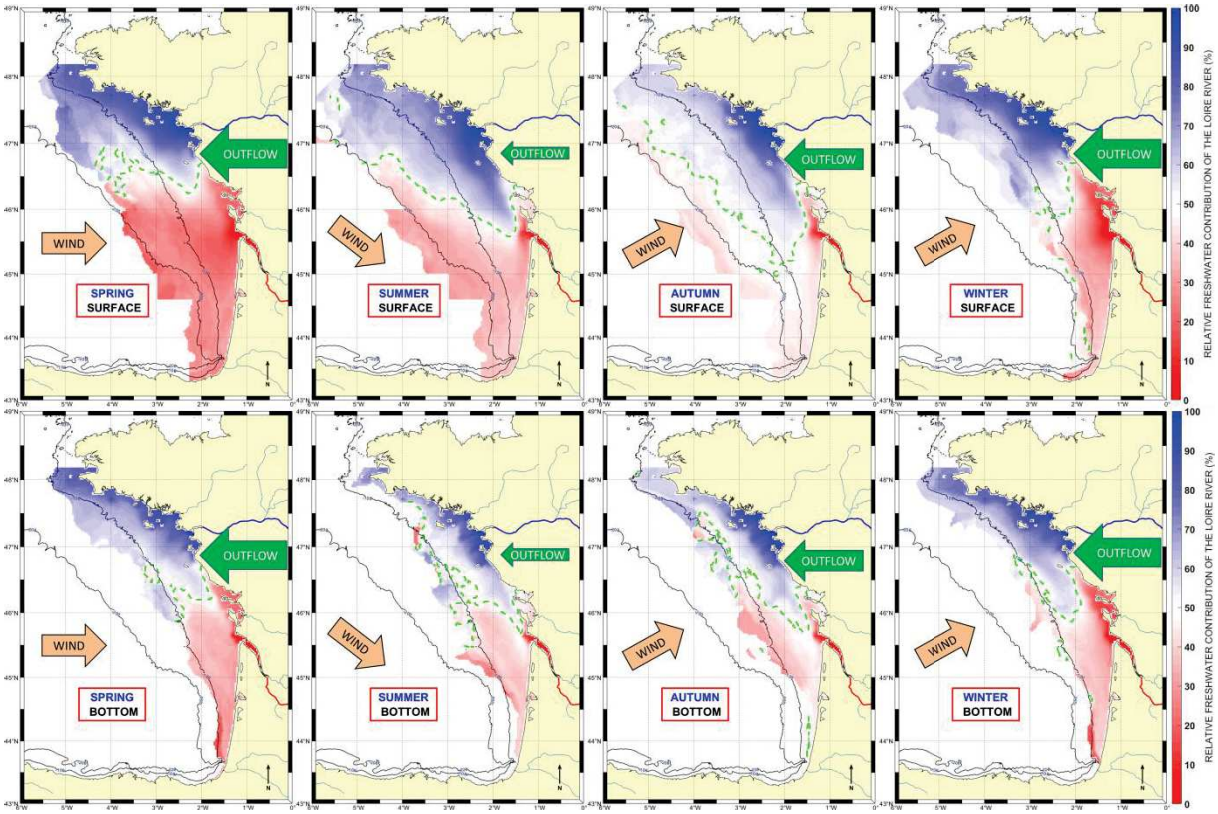


Figure 4.13 – Seasonal averages from daily output (2008-2015) of the simulated freshwater contribution of the Loire River relative to the Gironde River at the surface (top) and at the bottom (bottom) of the BoB. The 50% limit is highlighted with a green dashed line. The seasonal prevailing wind direction is indicated with an orange arrow. The freshwater outflow is indicated with a green arrow, with the size of the arrow dependent on the seasonal freshwater discharge in the BoB.

It appears that the 2016 bottom and surface southward of the Loire continental waters is more marked than in the spring situation shown Figure 4.13, and would better correspond to a summer situation.

3.3 Estimated residence time of tritium from continental waters on the BoB shelf

An understanding of the tritium distribution through the BoB makes it possible to establish a quantitative tritium budget. The total quantity of tritium measured and computed in the BoB can be compared to the time required by the Loire and Gironde nuclear power plants to discharge an equivalent amount of tritium in the BoB (before the spring campaigns period 05/15/2016). This equivalent discharge time is used as a proxy for the residence time of the tritium. The inventory of tritium measured in the BoB is estimated using (4.31).

$$Q_{Meas.} = \sum_{i,j=1}^{m,n} (HTOs_{i,j} SLD_{i,j}) + HTOb_{i,j}(H_{i,j} - SLD_{i,j}) \tag{4.31}$$

With:

$Q_{Meas.}$: The quantity of measured tritium in the BoB (Bq);

i,j: Horizontal mesh index;

m: Number of meshes along the x axis;

n: Number of meshes along the y axis;

$HTOs$: Mean tritium concentration measured between the surface and 15 m depth (Bq.m^{-3});

SLD: Surface layer depth (m);

$HTOb$: Mean tritium concentration measured between 15 m and the bottom depth (Bq.m^{-3});

H: Bathymetry (m).

The product of the map of the surface tritium distribution (Figure 4.9A) multiplied by the surface layer depth (SLD) is added to the product of the map of the bottom tritium distribution (Figure 4.9B) multiplied by the depth of the bottom layer. The surface and bottom layer depth are each considered as nearly homogenous in tritium concentration with respect to the vertical. The depth delineating the limit between the surface and the bottom layer was determined by the computation of the tritiocline depth.

The tritiocline is defined in this work as the depth at which the simulated tritium concentration is more than A % lower than the average simulated tritium concentration above. The tritiocline is restricted to a maximum depth of B m. In order to define the best representative tritiocline, we tried to define, using only model results, the best parameters of A and B that minimize the discrepancy between the quantity of tritium sampled in the model at the measured locations and interpolated over the study area, with the total quantity of tritium simulated ($Q_{Sim.}$). The simulated tritium ($Q_{Sim.}$) is calculated from the hourly mean of the tritium concentration on the days of the campaigns (05/02/2016 to 05/30/2016). We obtained the values of A=35% and B=25 m. The tritiocline depth obtained is shown in Annexe 9.

$$Q_{Sim.} = \sum_{i,j=1}^{m,n} \sum_{k=1}^{l} (HTO_{i,j,k} Z_{i,j,k} S_{i,j,k}) \tag{4.32}$$

With:

$Q_{Sim.}$: The quantity of simulated tritium in the BoB (Bq);

k: Vertical mesh index;

l: Number of sigma levels;

HTO: Average tritium concentration of hourly output of the model from 05/02/2016 00:00:00 to 05/30/2016 00:00:00 (Bq.m^{-3});

Z: Mesh height (m);

S: Mesh surface area (m²).

In order to estimate the uncertainty of the measured inventory, 3000 random re-samplings with replacement (bootstrap method, (Efron, 1992)) were performed in the surface and bottom set of measurements. The random drawing of measurement stations associated with their tritium concentration simulates a random coarser *in-situ* sampling. For each of the re-samplings, spatial interpolations were performed and the tritium inventory was computed. The standard deviation of the re-sampling inventories was used to estimate the uncertainty of the measured inventory.

The total amount of tritium as calculated from measurement maps is equal to 365 ± 15 TBq (Figure 4.14A), which corresponds to tritium releases from the NPPs of 380 ± 13 days. This inventory value is in agreement with the annual mean release of the Loire plus the Gironde nuclear power plants (318 ± 29 Bq between 2006 and 2015).

The total amount of tritium calculated from the mean of the simulated concentrations for the month of May 2016 was 440 TBq (Figure 4.14B), which corresponds to tritium releases from the NPPs of 441 days. The model overestimated the inventory measured by ~20%, which is also within the uncertainty range of ~20% obtained for the simulated tritium flux. The inventory of tritium in the BoB, measured and simulated per m², is shown Figure 4.14. The figure shows the overestimation of tritium in the southern part of the BoB and the underestimation at the mouth of the rivers discussed previously. The one year equivalent release time can be considered as an estimation of the apparent residence time of tritium in the BoB.

The inventory of the “Loire” and “Gironde” simulated tritium tracer was equal to 308 TBq and 132 TBq respectively, which corresponds to similar equivalent discharge times of 436 days and 458 days. This means that no significant kinetic discrepancies exist between the residence time of the Loire and Gironde tracers. The simulated inventory of tritium coming from the Channel nuclear facilities was ~0.005 TBq which indicates that water masses from the Irish Sea and the English Channel do not impact significantly the BoB. The uncertainty associated with the simulated inventory is set equal to the mean average percentage error of the model (~21%, (4.27)) and corresponds to 78 days.

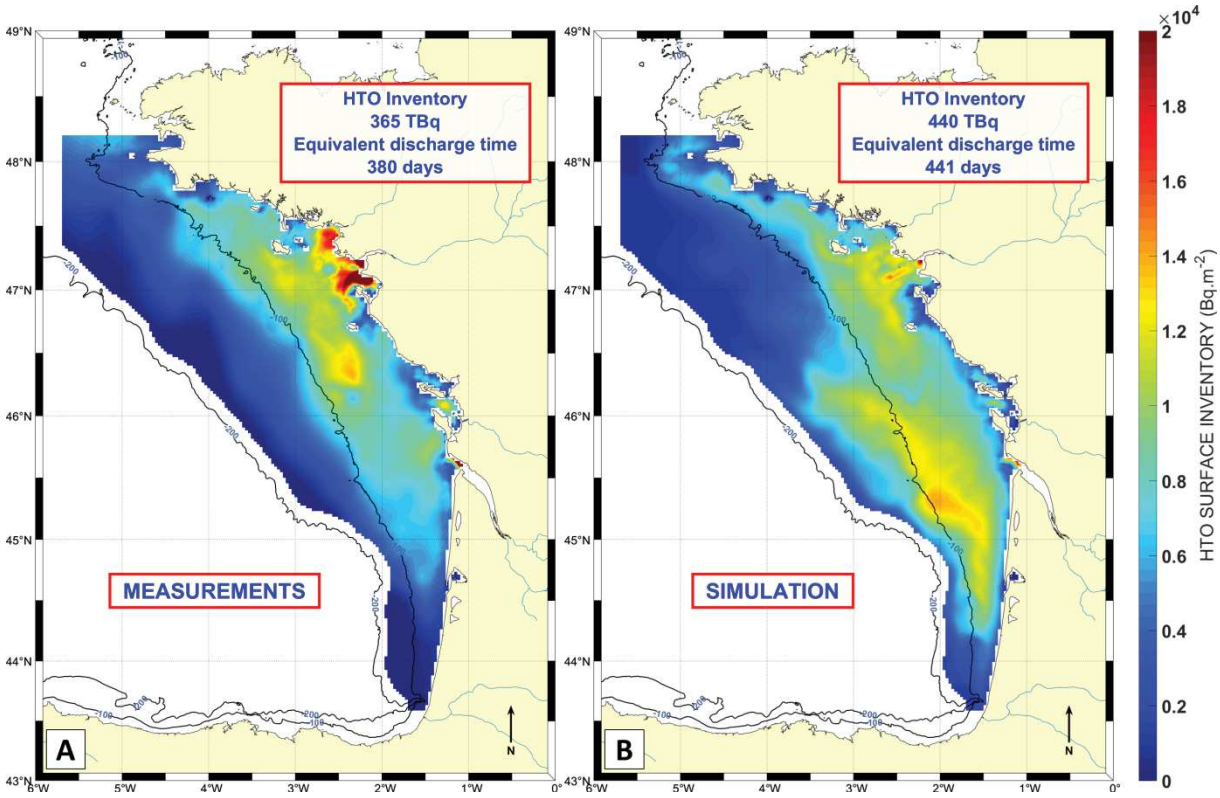


Figure 4.14 – Inventory per m² of tritium coming from the Loire and Gironde NPPs measured (A) and simulated (mean hourly output in May 2016) (B) in the BoB. The HTO inventory is the total amount of tritium measured or simulated in the BoB. The equivalent discharge time is the time required by the Loire and Gironde NPPs to discharge an equivalent amount of tritium.

4 Conclusion

We investigated the dispersion of the continental waters in the Bay of Biscay using both tracer measurements and modelling. The ability to measure low-level concentrations demonstrates the effectiveness of using this continental tracer in tracking freshwater discharges in coastal areas. The salinity, traditionally used to study river plumes, provides a spatial distribution closely correlated with that of tritium. These two tracers used together make it possible to identify the contributions of the Loire discharge relative to the Gironde on the continental shelf of the BoB. Moreover, a synoptic view of the tritium distribution and an understanding of the tritium sources enables a preliminary estimation of the tritium residence time in the continental shelf of the BoB to be computed. This tritium inventory induced a residence time of tritium of about one year (380 ± 13 days with measurements and 441 ± 78 days with simulation).

In a complementary way, the MARS3D hydrodynamic model can be used to refine the observations. Statistical comparisons demonstrate the ability of the model to reproduce the dispersion over a long time scale. More than 90% of simulated concentrations showed a relative error of less than 50%,

given that the source tritium terms from the Loire and Gironde rivers have a mean relative error of more than 20%.

The Loire and Gironde river plumes were tracked using tritium measurements and simulation, and their respective freshwater contributions were mapped and quantified using the salinity as a complementary parameter to the tritium concentration. Under prevailing West and North-West upwelling favourable winds and moderate river runoffs, the Loire and Gironde rivers plumes spread offshore and southward as previously simulated by (Lazure et Jégou, 1998) and observed by (Puillat *et al.*, 2004). However, at the bottom of the BoB, the freshwater discharges from the Loire River were identified as being greater than those of the Gironde up to the southern part of the Gironde estuary. This pattern was also reproduced in the simulation by season, where the Loire contribution at the bottom was greater up to the Gironde estuary in summer and autumn.

Acknowledgments

We are grateful to the crew of the six oceanographic expeditions (ASPEX 2009, 2010, 2011, DYNSEDIM, PELGAS and PLUME) during which tritium samples were collected, particularly Louis Marié, Ifremer and the SHOM teams. We would like to thank all the people and laboratories that assisted with measurement of the tritium dataset used in the present work, particularly Arnaud Dapoigny (LSCE), Donovan Maire and Romain Vidal (LMN) and also Sandra Desplats who built the LRC degassing bench.

The authors also received very generous assistance and support from the city of Royan, particularly Marie Bouet as well as Valérie Penlou of the Angers Loire Métropole water production plant and who took care of our automatic sampling systems installed in Royan and Les Ponts-de-Cé.

The assistance provided by Mathieu Caillaud for configuration of the MARS3D model is gratefully acknowledged as well as that provided by Patrick Boyer and Aurélie Taormina for the CASTEAUR model set up. We thank Pierre-Yves Hemidy (EDF), and the companies EDF and Orano for providing their artificial liquid tritium releases. This work was supported by the Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire and the Institut Français de Recherche pour l'Exploitation de la Mer.

4.3 Comparaison du modèle aux mesures hydrologiques haute résolution

Dans l'article précédent, la capacité du modèle à représenter sur le long terme la dispersion des panaches continentaux a été évaluée cela principalement à l'aide de mesures ponctuelles de concentrations en tritium et de salinité. En complément, des comparaisons avec des mesures de température et de salinité à haute résolution verticale et horizontale ont été réalisées. Il s'agit de données obtenues durant la campagne PLUME à l'aide d'un véhicule remorquée Scanfish™ présenté ci-après et de données de capteurs embarqués sur satellite, extraites pendant la campagne (Mai 2016).

4.3.1 Comparaisons aux données de salinité et température Scanfish™

Durant la campagne de prélèvement PLUME (20 au 29 Mai 2016), un poisson tracté ondulant (Scanfish™), embarquant une bathysonde a permis la mesure à haute résolution (16 Hz) des paramètres hydrologiques (température, salinité et pression) (Photo 4.1). Le Scanfish™ est tracté par un câble électroporteur. Il réalise des profils ascendants et descendants à l'aide de volets commandés depuis le navire.

Photo 4.1 – Appareil de mesure multicapteurs Scanfish™ sur le pont du navire océanographique Côtes de la Manche durant la campagne PLUME.

Les mesures de salinité et de température réalisées à l'aide du Scanfish sont présentées pour 4 différents transects côte-large et comparés aux résultats du modèle à la maille la plus proche des points de mesures (Figure 4.16 et Figure 4.17). La bathysonde est tractée à une vitesse constante d'environ 8 nœuds (~15 km.h^{-1}). Les transects ont été réalisés sur plusieurs dizaines de kilomètres durant plusieurs heures. D'autre part, les sorties du modèle sont enregistrées à un pas de temps horaire

mais seules les données correspondantes à l'heure du départ du transect ont été utilisées pour les comparaisons.

Les valeurs de température et de salinité simulées sont représentées en fonction des valeurs mesurées (Figure 4.15). Les paramètres statistiques suivants sont évalués et présentés Table 4.6 :

- le carré du coefficient de corrélation (R, Equation (4.24)),
- l'indice de Willmott (Equation (4.25)),
- le pourcentage d'erreur relatif moyen (MAPE, (4.27)),
- l'erreur quadratique moyenne (RMSE, (4.33)).

$$RMSE = \sqrt{\frac{\sum_{n=1}^{N}(Mes._n - Sim._n)^2}{N}} \tag{4.33}$$

Table 4.6 – Paramètres statistiques de validation du modèle pour les valeurs de température et de salinité mesurées par le SCANFISH™.

	R^2	MAPE	d_r	RMSE
Salinité	0,56	1,5 %	0,65	0,69
Température	0,76	3,2 %	0,76	0,60

Les résultats statistiques montrent la capacité du modèle à représenter les champs de salinité et de température associés aux panaches. Cependant le coefficient de corrélation de la salinité est faible (R^2=0,56), inférieur à celui de la température. Cela s'explique par une sous-estimation des faibles salinités pour le transect de la Loire (marqueurs rouge, Figure 4.15A). Une sur-estimation de 3 unités de salinité est visible pour les salinités simulées, dans les faibles valeurs de salinité mesurées (S<32).

Les coupes verticales de température et de salinité effectuées près des embouchures de la Loire (A), de la Charente (B) et de la Gironde Nord et Sud (C et D) reproduisent bien les gradients verticaux de température et de salinité. L'épaisseur des panaches ainsi que leur extension vers le large sont également comparables (Figure 4.16A et D).

Cependant des différences sont évidentes ; on observe notamment que les cœurs dessalés au Sud des panaches de la Loire (Figure 4.16A) et de la Gironde (Figure 4.16B) sont plus étendus sur les mesures que simulés par le modèle. Ces différences apparaissent à proximité des estuaires où la représentation à haute fréquence des panaches est sensible aux forçages atmosphériques, aux débits, et à la marée. Ces différences dans l'extension du panache de la Loire se traduisent par une plus faible corrélation des salinités simulées.

Ces différences peuvent être dues au bais temporel entre les mesures et le modèle, estimé entre 30 min et 3 heures au maximum en fonction de la distance parcourue depuis le départ du transect. A cette échelle temporelle la marée peut induire un déplacement des panaches entre 300 m et 2160 m (en considérant une vitesse maximale des courants de marée de 0,20 cm.s^{-1} (Figure 1.6C)). La prise en compte de la force de tension du vent par le modèle ou des incertitudes sur les débits peuvent également être responsables de ces différences de panaches au sud des estuaires.

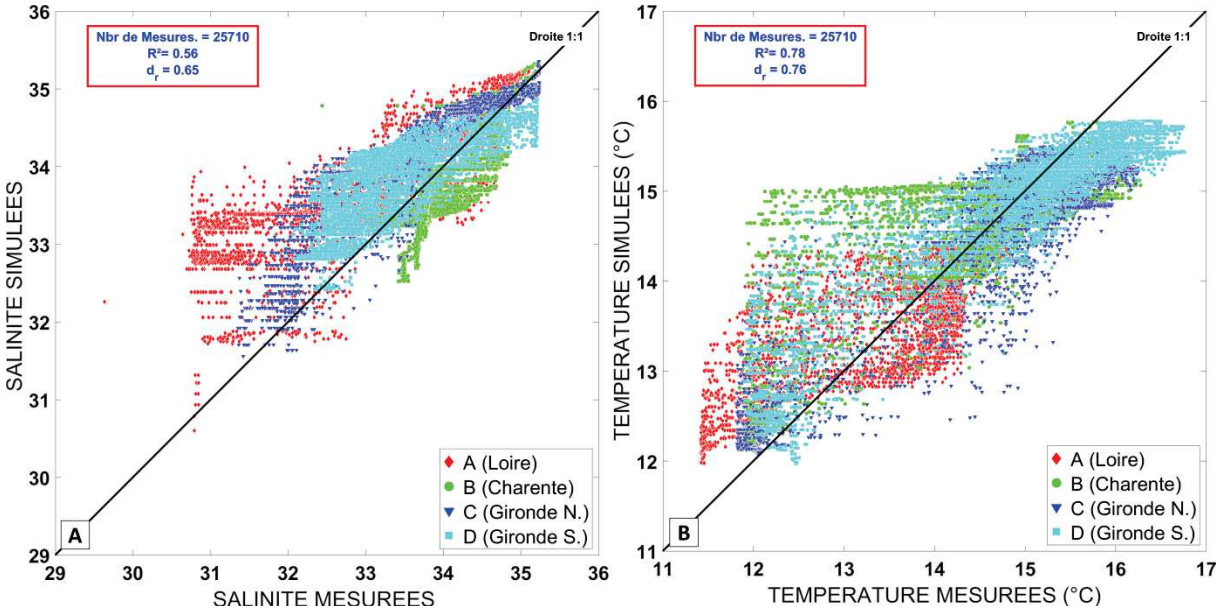


Figure 4.15 – (A) Comparaisons des salinités mesurées par le scanfish le long des 4 transects (A, B, C et D) aux salinités modélisées, présentées Figure 4.16. (B) Comparaisons des températures mesurées par le scanfish le long des 4 transects (A, B, C et D) aux salinités modélisées, présentées Figure 4.17. R est le coefficient de corrélation (Equation ((4.24)) et d_r l'indicateur de Wilmott (Equation (4.25)).

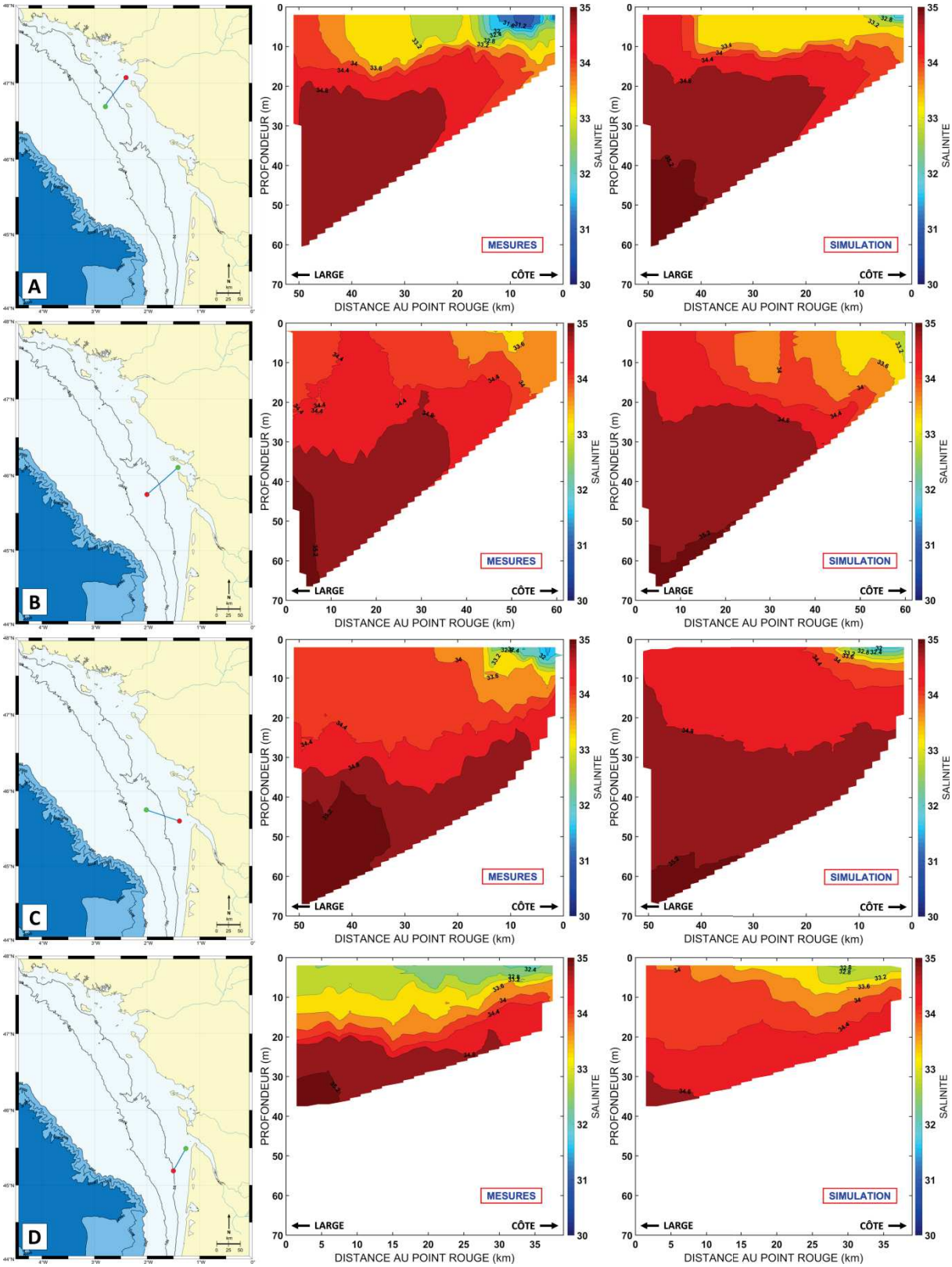


Figure 4.16 – Mesures de salinité réalisées par le Scanfish et comparées aux résultats de simulation. Les trajectoires sont présentées pour chaque transect (A), (B), (C) et (D) sur la vignette de gauche. Le point rouge représente le point de départ du transect par rapport auquel la distance est calculée en abscisse des profils de température. Le point vert correspond au point d'arrivée du transect.

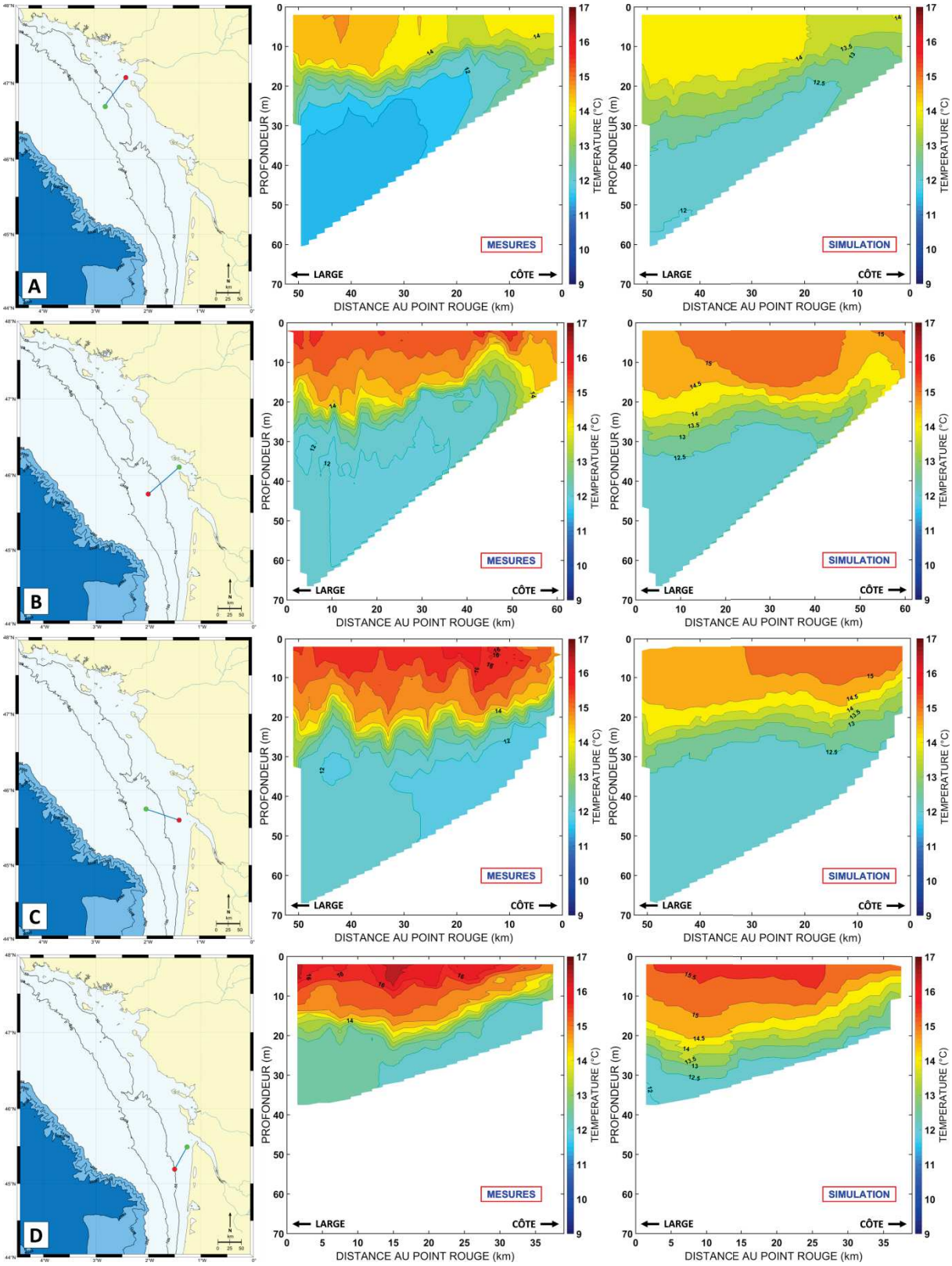


Figure 4.17 – Mesures de température réalisées par le Scanfish et comparées aux résultats de simulation. Les trajectoires sont présentées pour chaque transect (A), (B), (C) et (D) sur la vignette de gauche. Le point rouge représente le point de départ du transect par rapport auquel la distance est calculée en abscisse des profils de température. Le point vert correspond au point d'arrivée du transect.

4.3.2 Comparaisons aux données de température MODIS

Les données de température mesurées par le spectroradiomètre MODIS à bord du satellite Aqua ont été extraites et moyennées entre le 10 et le 29 Mai 2016 durant les campagnes PLUME et PELGAS. Ces données satellites d'environ 4 km de résolution sont comparées aux résultats du modèle et moyennées durant la même période (Figure 4.18). Le biais est représenté Figure 4.18C et calculé selon :

$$BIAIS_{i,j} = Mes._{i,j} - Sim._{i,j} \tag{4.34}$$

Avec :

i, j : Indices horizontaux des mailles du modèle ;

$Mes.$: Moyenne des températures mesurées quotidiennement entre le 10/05/2019 et 29/05/2019 par le spectroradiomètre MODIS ;

$Sim.$: Moyenne des températures simulées toutes les heures entre le 10/05/2019 et le 29/05/2019.

Cette comparaison caractérise la capacité du modèle à reproduire la dynamique de température de la masse d'eau en surface sur l'ensemble du golfe de Gascogne. Le gradient Nord-Sud de température qui s'installe durant cette période est bien représenté par le modèle. Un très faible pourcentage de mailles (11%) a un biais absolu supérieur à 1°C, elles sont représentées en rouge Figure 4.18D.

On observe que la grande majorité de ces mailles se situent au niveau du talus continental Armoricain (46,0 – 47,5 °N) qui est une zone privilégiée de génération d'ondes internes (*cf.* 1.4.1). Le mélange vertical induit par la propagation de ces ondes internes au niveau de la thermocline peut entraîner une diminution des températures de surface par rapport aux eaux avoisinantes de 1 à 2 °C comme on l'observe avec les données satellites (Figure 4.18A). La mauvaise représentation de ces processus peut être liée à la résolution du modèle et à la proximité des conditions aux frontières du large qui ne les prennent pas en compte et ont donc tendance à les amortir.

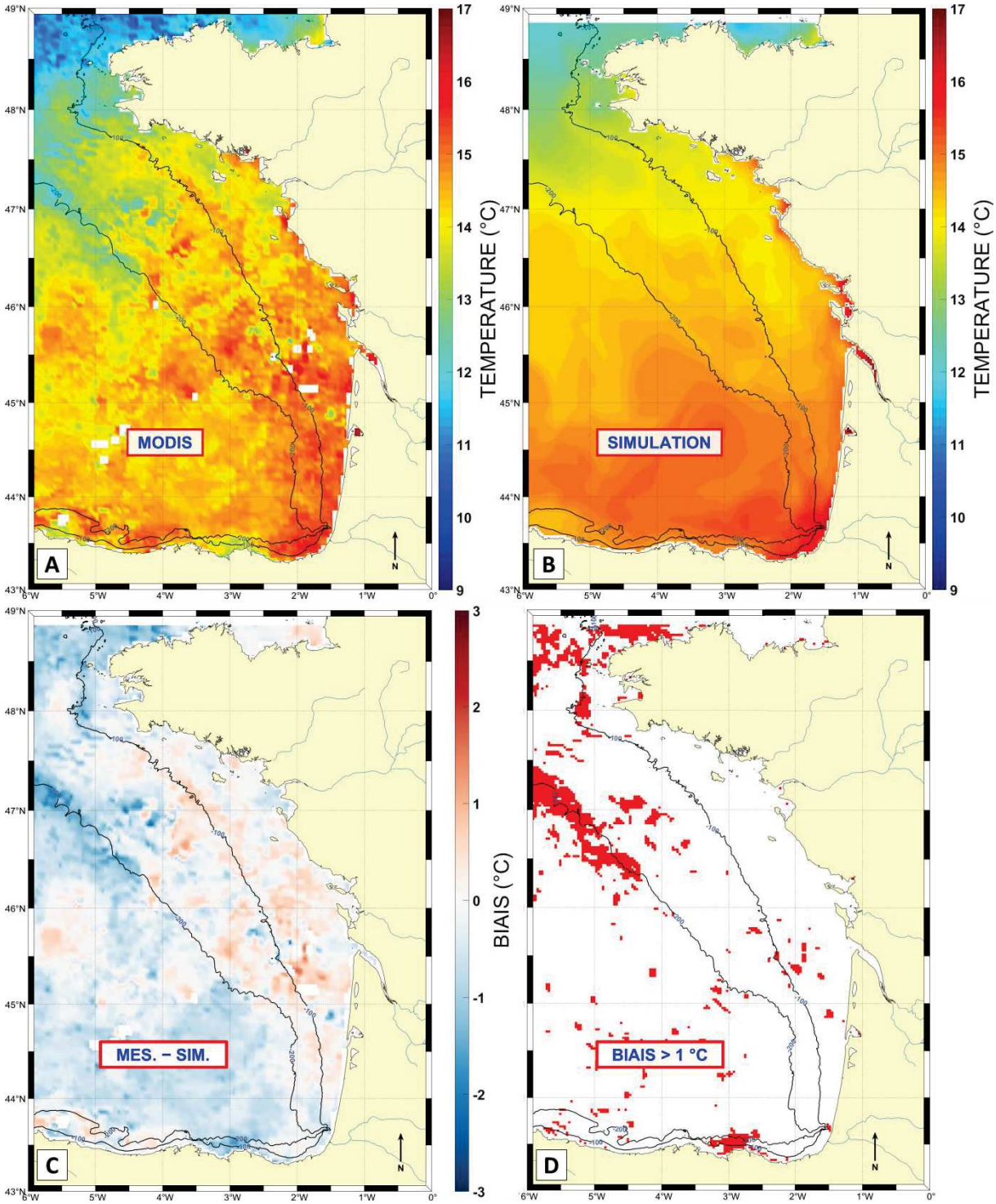


Figure 4.18 – (A) Température de surface (°C) mesurée par le spectroradiomètre MODIS à bord du satellite Aqua et moyennée entre le 10 et 29 Mai 2016. (B) Température de surface (°C) simulée et moyennée toutes les heures entre le 10 et 29 Mai 2016. (C) Biais déterminé selon l'équation (4.26) et représentée dans l'encadré. (D) Mailles dont la valeur absolue du biais est supérieure à 1°C.

4.4 Etude de sensibilité à la formulation de la tension du vent et au modèle météorologique

Le forçage du vent est un paramètre sensible en ce qui concerne la dispersion des panaches en mer. Nous avons vu paragraphe 4.2 que le modèle MARS3D avec une formulation de la tension de vent de Charnock, 1955 et les données météorologiques du modèle Arpège (sorties 0,1°, 1h), représentait avec une bonne précision la distribution du tritium dans le golfe de Gascogne au cours du temps. On cherche maintenant à estimer la sensibilité du modèle vis-à-vis des différentes formulations de tension de vents ou de données météorologiques afin d'évaluer la robustesse des résultats précédemment obtenus.

Dans ce but deux simulations ont été effectuées :

- La première avec une prise en compte de la tension du vent selon la formulation selon Geernaert *et al.*, 1986 et les données météorologiques Arpège.
- La seconde avec des données météorologiques issues du modèle CEP-v2 du Centre Européen pour les Prévisions météorologique (CEP) et la formulation de tension de vent selon Charnock, 1955.

Les différentes simulations ont été comparées entre elles et aux mesures effectuées durant le mois de Mai 2016.

Dans la suite de cette étude, la simulation de référence à laquelle tous les précédents résultats ont été obtenus et validés est appelée «simulation de référence », les autres simulations sont appelées « Geernaert » et « CEP-v2 ».

Les simulations « Geernaert » et « CEP-v2 » ont débuté en 2014 à partir des données de la simulation de référence (début en 2007) afin de réduire les temps de calculs et l'espace de stockage des données. Le temps de résidence du tritium sur le plateau continental du golfe de Gascogne étant estimé précédemment à un an environ, ces deux années de spin up sont suffisantes pour qu'au mois de Mai 2016 la dispersion du tritium due au forçage par les vents soit imputable uniquement aux changements de paramètre de la formulation de la tension du vent ou du jeu de données météorologiques.

4.4.1 Formulation de la tension du vent selon Charnock, 1955 et Geernaert *et al.*, 1986

L'équation de la tension de vent à la surface de l'eau présentée (4.17), paragraphe (4.1.7), fait apparaître un coefficient de traînée (C_d). Selon la formulation de Charnock, 1955, le coefficient de traîné du vent est dépendant de la rugosité de la surface de l'eau :

$$C_d = k^2 log\left(\frac{z}{z_0}\right)^{-2} \tag{4.35}$$

Avec :

k : Constante de von Karman ;

z : Hauteur du vent considéré ;

z_0 : Longueur de rugosité du profil du vent, définie :

$$z_0 = \frac{a_{Ch} U_*^2}{g} \tag{4.36}$$

Avec :

a_{Ch} : Coefficient de Charnock sans dimension égale à 0.014 ;

U_* :Vitesse de friction ;

g : Accélération de la pesanteur.

Selon la formulation de Geernaert *et al.*, 1986, le coefficient de traîné du vent est dépendant de la vitesse du vent, tel que :

$$C_d = 10^{-3}(0{,}43 + 0{,}097W) \tag{4.37}$$

Avec :

C_d : Coefficient de traînée ;

W : Norme de la vitesse du vent à 10 m.

La Figure 4.19 présente les différentes valeurs de (C_d) en fonction de la vitesse du vent d'après les formulations de Charnock, 1955 et Geernaert *et al.*, 1986. Dans la gamme 0 et 10 m.s^{-1} de vitesse du vent les différences entre les deux formulations sont faibles ; une plus grande divergence est visible pour les vitesses supérieures, mais de telles vitesses de vents ne sont atteintes que peu fréquemment (Figure 1.9) et principalement en hiver. La mesure de l'impact de ces faibles différences permettra une première évaluation de la robustesse des résultats présentés précédemment.

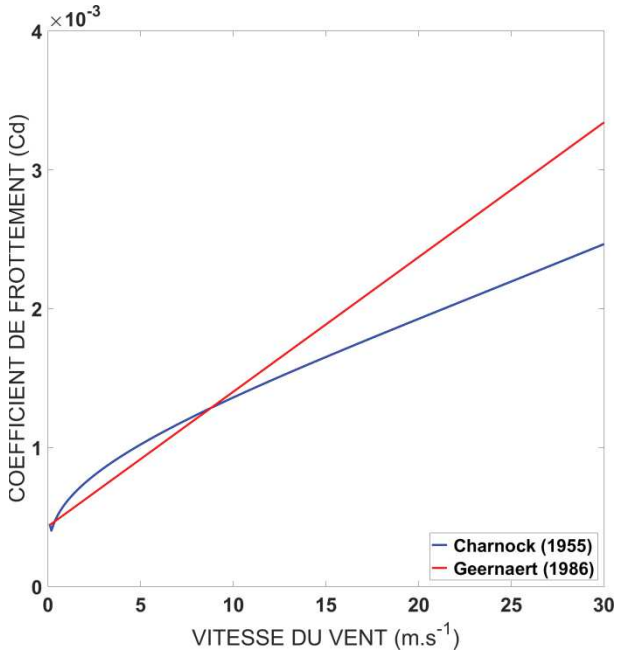


Figure 4.19 – Valeurs du coefficient de frottement du vent en fonction de la vitesse du vent selon les formulations de Charnock, 1955 et Geernaert *et al.*, 1986.

Pour la simulation CEP-v2, seule le modèle météorologique est changé. Ce modèle a une résolution spatiale et temporelle moindre que le modèle Arpège utilisé dans la simulation de référence, (Table 4.7).

Table 4.7 – Résolution spatiale et temporelle des modèles Arpège et CEPv2.

	Résolution spatiale	**Résolution temporelle**
Arpège	0,1°	1h
CEP-v2	0,125°	3h

4.4.2 Comparaisons des simulations

La Figure 4.20, présente les concentrations de tritium modélisées à la surface et au fond du golfe de Gascogne, à la date du 30/05/2016, en fonction des différentes formulations de la tension de vent et données météorologiques. Les écarts relatifs des simulations « Geernaert » et « CEP-v2 » par rapport à la simulation de référence sont présentés pour la surface et le fond Figure 4.21.

De faibles différences sont visibles entre les différentes simulations en profondeur. On remarque que la simulation « Geernaert », présente en profondeur et sur presque tout le plateau, plus de tritium que la simulation de référence (~ 15% en moyenne).

En surface, on peut noter une advection des panaches vers le Nord plus marquée pour la simulation « Geernaert » par rapport à la simulation de référence à l'inverse de la simulation « CEP-v2 » dont les concentrations sont moins élevées en mer d'Iroise. Entre l'isobathe -100 m et -200 m, la simulation de référence présente de plus fortes concentrations à la surface et au fond, les simulations « Geernaert » et « CEP-v2 » présentent une capacité de transport des panaches vers le large plus faible. Au niveau du talus continental aquitain, un transport en surface de tritium vers le Nord est visible dans la simulation de référence. Ce transport n'est pas reproduit dans les autres simulations, les panaches n'ayant pas tout à fait atteint le talus (entre 45,5°N et 46,5°N) à cette date.

La distribution des concentrations et l'ordre de grandeur des concentrations sont malgré ces différences très semblables.

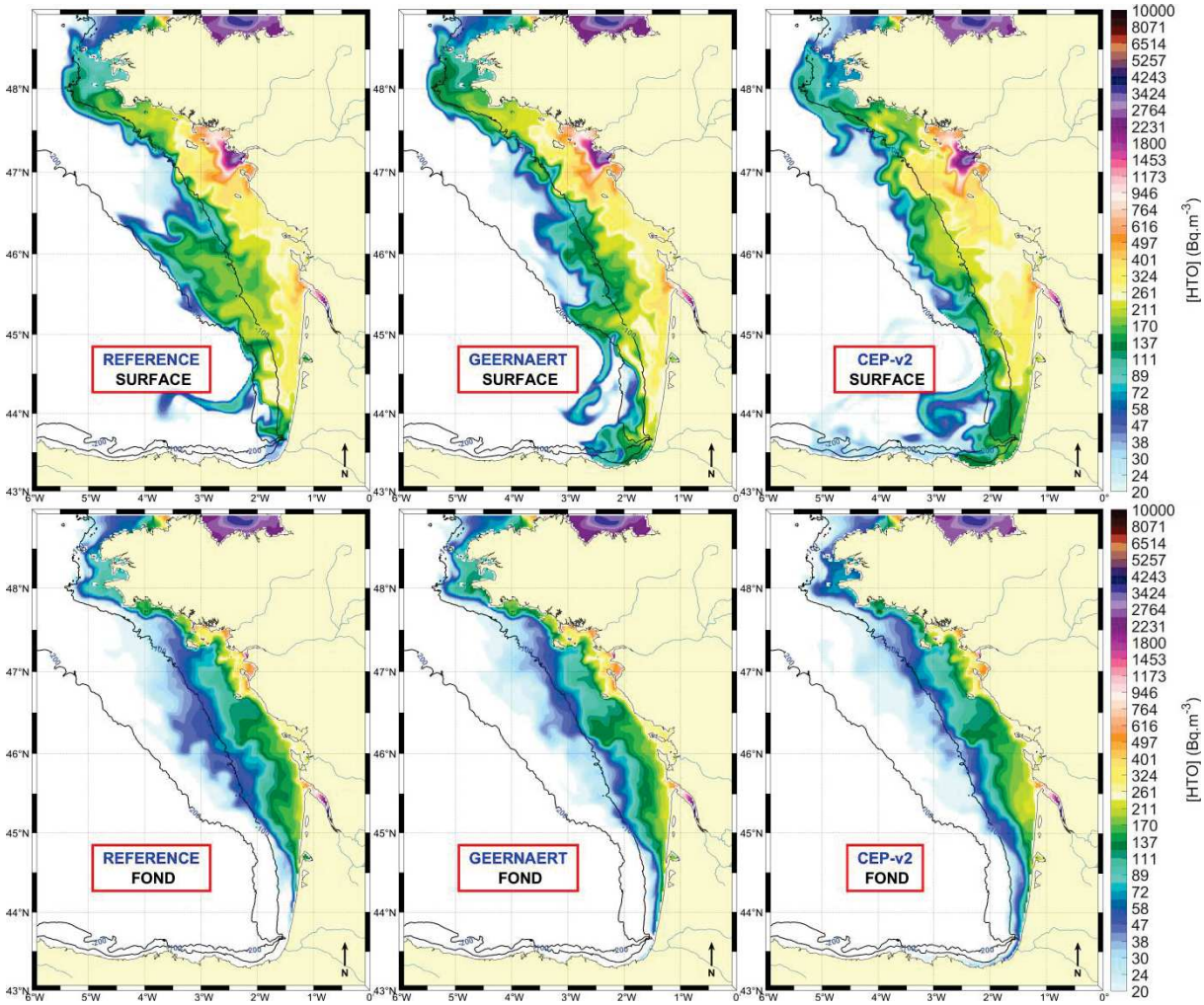


Figure 4.20 – Concentrations en tritium modélisées en surface et au fond, pour la simulation de référence, la simulation prenant en compte la formulation de la tension de vent de Geernaert *et al.*, 1986 et la simulation dont les forçages météorologiques proviennent du modèle CEP v2, à la date du 30/05/2016.

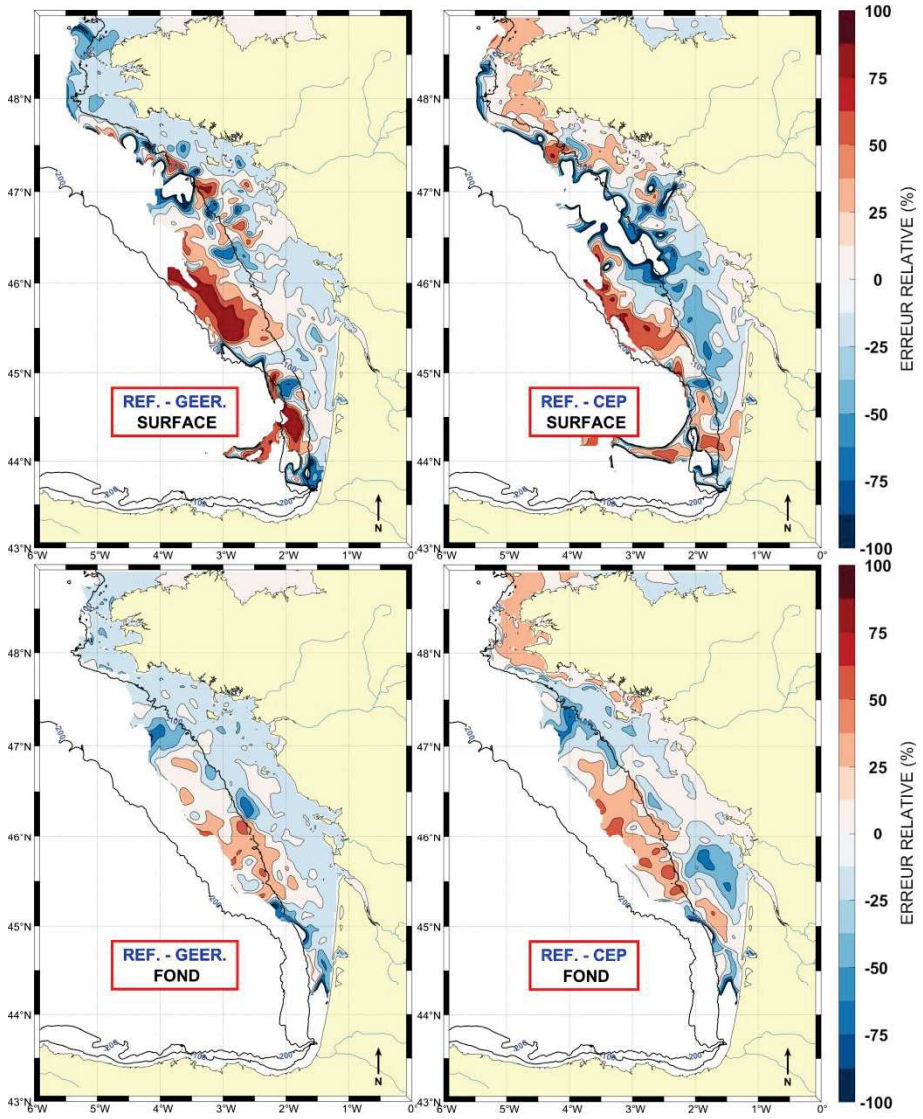


Figure 4.21 – Pourcentage d'écart relatif (Equation (4.26)) des simulations « Geernaert » (GEER.) et « CEP-v2 » (CEP.) par rapport à la simulation de référence (REF.), à la surface et au fond.

Les simulations ont été confrontées aux mesures réalisées durant le printemps 2016. Les indicateurs statistiques suivant ont été calculés pour chacune des simulations (Table 4.8) :

- Le carré du coefficient de corrélation, R^2 (Equation (4.24)) ;
- L'indicateur de performance de Willmott *et al.*, 2012, d_r (Equation (4.25)) ;
- La moyenne des erreurs relatives absolues, MAPE (Equation (4.27)).

Les distributions simulées ont été interpolées à chaque point de mesures à la date des prélèvements, elles sont représentées sur la Figure 4.22.

Table 4.8 – Indicateurs statistiques des comparaisons entre les simulations et les mesures de tritium

	Nbre de mesures	**R²**	d_r	**MAPE (%)**
Référence	230	0,72	0,77	22
Geernaert	230	0,71	0,75	25
CEP-v2	230	0,72	0,76	24

Les comparaisons statistiques entre les mesures et les simulations sont similaires, les performances du modèle restent bonnes pour toutes les simulations et pour chaque indicateur. Les comparaisons des distributions interpolées à partir des simulations sont également très ressemblantes aux mesures, aussi bien en surface qu'en profondeur.

Les changements apportés à la formulation de la tension de vent et la dégradation de la résolution spatiale et temporelle des données météorologiques n'ont pas fortement modifié les performances du modèle à reproduire la dispersion à long terme (113 mois) du tritium dans le golfe de Gascogne.

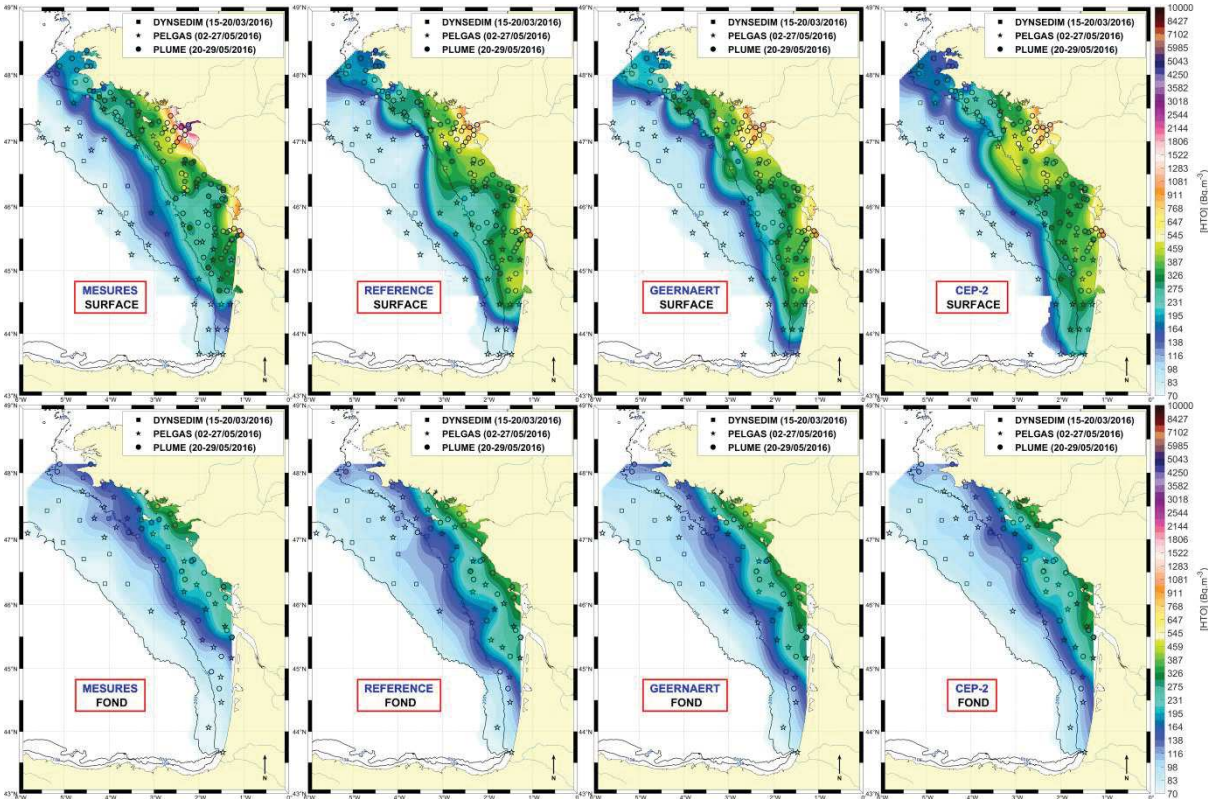


Figure 4.22 – Concentrations moyennes en tritium mesurées et modélisées pour chacune des simulations, en surface (0 -5 m) et au fond (15 m - fond) du golfe de Gascogne durant les campagnes DYNSEDIM, PELGAS et PLUME au printemps 2016. Le bruit de fond en tritium a été ajouté aux résultats de simulation afin que les simulations soient à un niveau comparable aux mesures.

4.5 Dynamique haute fréquence des stocks de tritium modélisés sur le plateau continental du golfe de Gascogne

Une première évaluation du temps résidence du tritium sur le plateau continental du golfe de Gascogne est définie comme étant la durée de rejets nécessaire pour atteindre le stock de tritium mesuré sur le plateau du golfe de Gascogne (*cf*. paragraphe 4.2, pour la méthode). Ce temps de rejet est estimé en Mai 2016 à un peu plus d'un an à la fois par les mesures et par le modèle : 380 ± 13 et 441 ± 78 jours respectivement. Cette approche peut être appliquée à toute la durée de la simulation afin de visualiser l'évolution du stock de tritium sur le plateau golfe de Gascogne.

4.5.1 Stocks de tritium modélisés entre 2007 et 2016

L'évolution des stocks de tritium entre le début et la fin de la simulation (01-2007 au 06-2016) représentée Figure 4.23 montre des phases chroniques de « chargement » et de « déchargement » du plateau continental. Les stocks de la Loire et de la Gironde évoluent de manières similaires et peuvent être assimilés à un stock total (courbe noire, Figure 4.23A et B). Afin de supprimer l'effet des variations des rejets sur l'évolution des stocks, ces derniers ont été normalisés par les rejets cumulés sur l'ensemble de l'année précédant la date de calcule (courbe rouge, Figure 4.23B).

On observe Figure 4.23B une phase de chargement du plateau continental de 2007 à 2012 puis un état d'équilibre jusqu'en 2016 où les stocks normalisés varient autour de 1 ± 0,2 an. La variation des stocks normalisés par le cumul sur un an des rejets additionnés de la Loire et de la Gironde, signifie qu'entre 2012 et 2016, le temps de résidence sur le plateau a varié autour de 1 an ± 20%.

Ce résultat confirme que le temps de résidence du tritium sur le plateau continental précédemment estimé à un an par la mesure et par la simulation numérique pour le mois de mai 2016, est représentatif du temps de résidence moyen sur le plateau entre 2012 et 2016.

Les phases de chargements intermédiaires aboutissent à des stocks de tritium maximums identifiés en orange (Figure 4.23) et les phases de déchargement à des stocks minimums identifiés en bleu (Figure 4.23B). Ces valeurs extrêmes ont été datées et sont retranscrites Table 4.9.

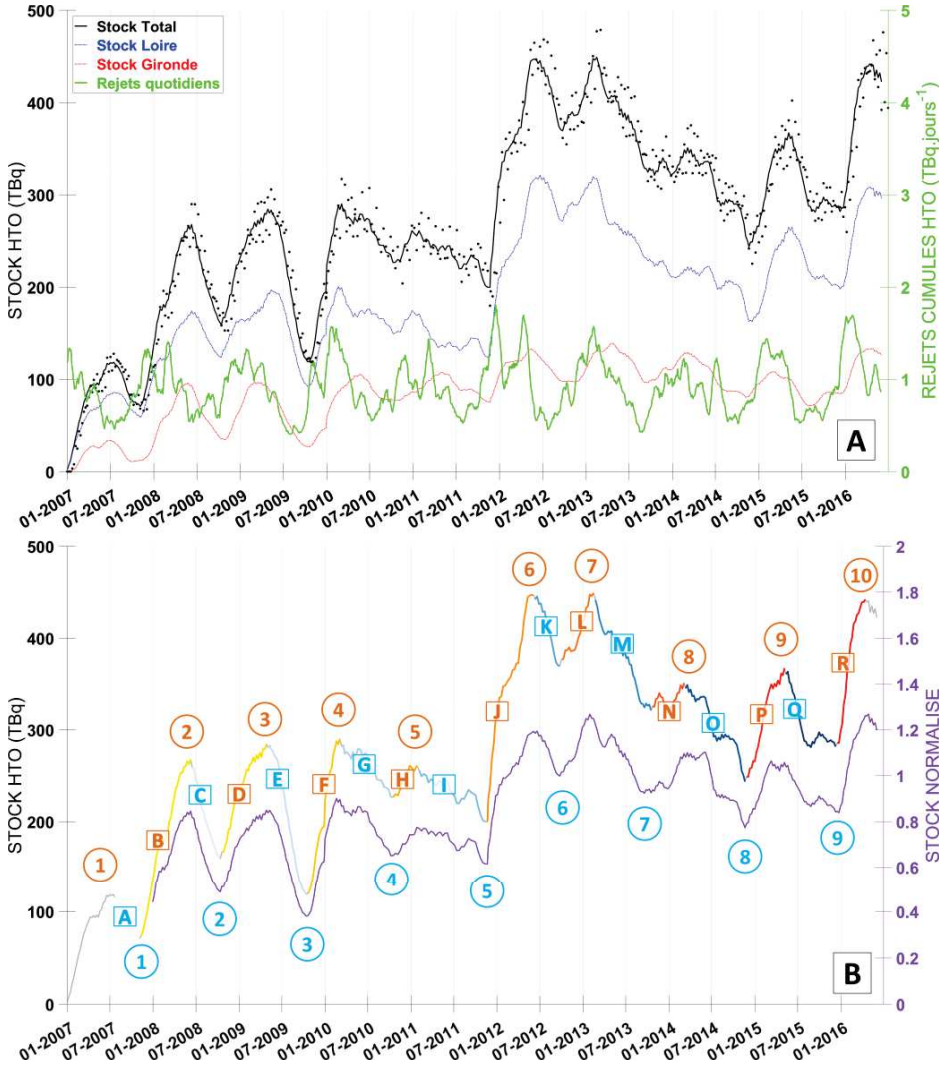


Figure 4.23 – (A) Evolution des stocks de tritium modélisés sur le plateau continental du golfe de Gascogne entre le 01-2007 et le 06-2016 (points noirs). Moyenne glissante sur un mois des stocks de tritium calculés (courbe noire). Moyennes glissantes sur un mois des stocks de tritium de la Loire (bleue) et de la Gironde (rouge). Cumul journalier des rejets de tritium de la Loire et de la Gironde (vert).
(B) Moyenne glissante sur un mois des stocks de tritium calculés. En violet est représenté le stock normalisé par les rejets cumulés sur un an (365 jours). En orange sont identifié les stocks maximums, en bleu les stocks minimums, retranscrits Table 4.9. Les phases de décharges et de recharges sont identifiées de A à R.

Table 4.9 – Etude des maximums et des minimums des stocks de tritium modélisés sur le plateau du golfe de Gascogne entre 2007 et 2016, identifiés sur la Figure 4.23.

Max (n°)	Stock (TBq)	Date	Nbre de jours depuis le 01/01	Δt entre deux Max.	Min (n°)	Stock (TBq)	Date	Nbre de jours depuis le 01/01	Δt entre deux Min	% de perte entre Max et Min
1	118	16/07/2007	196	/	1	71	05/11/2007	308	/	40
2	268	09/06/2008	160	329	2	159	13/10/2008	286	343	41
3	284	27/04/2009	116	322	3	119	12/10/2009	284	364	58
4	290	05/03/2010	63	312	4	226	08/10/2010	280	361	22
5	261	26/01/2011	25	327	5	200	12/11/2011	315	400	23
6	447	04/06/2012	155	495	6	369	24/09/2012	267	317	17
7	449	15/02/2013	45	256	7	321	17/10/2013	289	388	29
8	351	06/03/2014	64	384	8	244	20/11/2014	323	399	30
9	367	07/05/2015	126	427	9	282	10/12/2015	343	385	/
10	441	14/04/2016	104	343	/	/	/	/	/	/
Moyenne ± Ecart-Type			**95 ± 48**	**355 ± 71**				**298 ± 26**	**370 ± 29**	**30 ±13**
			06/04					**26/10**		

L'intervalle de temps entre deux maximums et deux minimums est en moyenne d'un an (355 ± 71 jours et 370 ± 29 jours respectivement). Les maximums sont atteints en moyenne 95 ± 48 jours après le premier jour de l'année, (début avril). Les minimums sont atteint de manière plus systématique, 298 ± 26 jours après le premier jour de l'année (fin octobre). Les phases de chargement et de déchargement ont été comparées aux hodographes des vents (Figure 4.24A et B) et aux débits additionnés de la Loire et de la Gironde (Figure 4.24C). Les hodographes représentent la trajectoire que suivrait une particule d'air au cours du temps. Les hodographes représentés (Figure 4.24A et B) ont des durées différentes qui correspondent au nombre de jours entre un maximum et un minimum (décharge) ou entre un minimum et un maximum (recharge), la durée moyenne est d'environ 6 mois ($^{\Delta t}/_{2}$).

On peut observer Figure 4.24, que lors des périodes de décharges, les vents ont une tendance Nord–Nord–Ouest associée à une diminution progressive des débits. A l'inverse lors des périodes de recharges, les vents ont une tendance Sud-Sud-Ouest associée à une augmentation des apports d'eau douce.

L'export de tritium du plateau continental est donc privilégié entre le début du printemps jusqu'en automne, par des vents de Nord–Ouest (upwelling favorables) associé à de faibles apports d'eau douces. Le tritium serait ainsi exporté du plateau à travers le talus continental vers le sud du golfe de Gascogne.

Un exemple de cet export est représenté pour chaque début de mois (Figure 4.25) durant la période de décharge O (Figure 4.23B), correspondant entre le maximum n°8 et le minimum n°8 (Table 4.9). On peut observer que, progressivement, l'export du tritium du plateau continental originellement vers le Nord le long des côtes bretonnes jusqu'en Manche, s'inverse vers le Sud et le large au niveau du talus continental. Le panache de tritium est ensuite transporté par le courant de pente dirigé vers le Nord, en automne sur le talus.

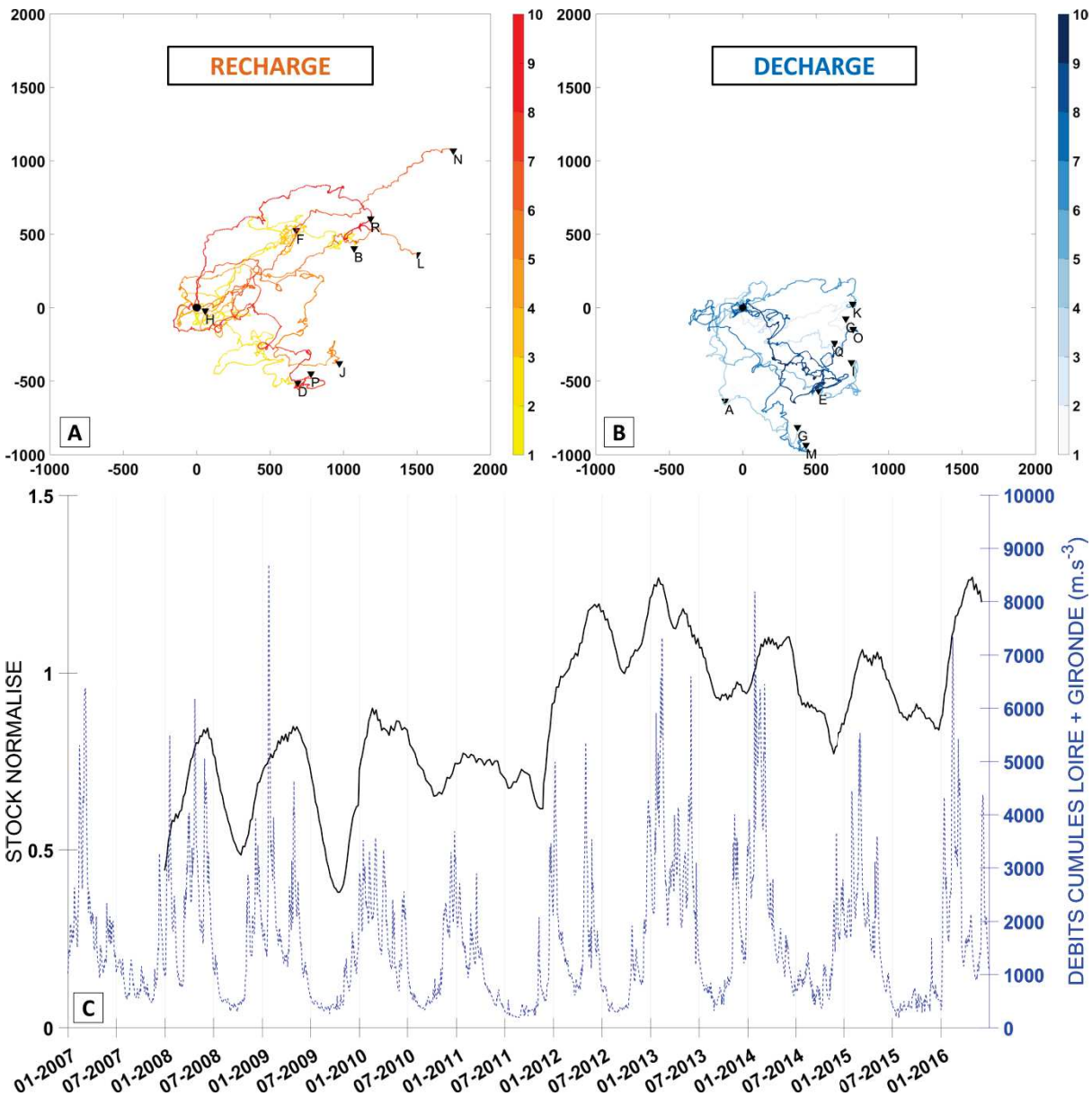


Figure 4.24 – (A) Hodographes des vents durant les différentes phases de recharges, identifiées Figure 4.23, (données de vents issues du modèle ARPEGE). (B) Hodographes des vents durant les différentes phases de décharges, identifiées (Figure 4.23), (données de vents issues du modèle ARPEGE). (C) Stocks de tritium normalisées par les rejets cumulés de la Loire et de la Gironde sur un an, représentés en noir. Débits quotidiens additionnés de la Loire et de la Gironde (bleu).

Afin de visualiser l'évolution des panaches de tritium en fonction des saisons, une climatologie des concentrations en tritium modélisées dans le golfe de Gascogne est présentée pour la surface et le fond (Figure 4.26). L'advection des panaches vers le large et le sud, du printemps à l'été est clairement apparente. Durant l'automne et l'hiver les panaches sont confinés à la côte et mélangés sur toute la colonne d'eau, ils présentent une extension privilégiée vers le Nord, visible jusqu'en Bretagne. Cette climatologie des panaches de tritium modélisés est comparable à la climatologie des panaches de salinité de Vandermeirsch *et al.*, 2010 (Figure 1.15), mais également aux résultats de simulation de Lazure et Jegou, 1998 et des observations de Puillat *et al.*, 2004.

Néanmoins, ces résultats sont sujets à interrogation : un export du tritium privilégié en période estivale n'est pas intuitif. A *priori* un export privilégié du tritium par le nord du plateau continental durant l'hiver était attendu, car compatible avec :

- Des vents dominants de Sud-Sud-Ouest ;
- Les courants barocline (vers le Nord) dûs à l'augmentation des apports d'eau douce pendant cette période.

Ces résultats n'indiquent cependant pas une absence d'export de tritium par le Nord en Hiver, mais plutôt des différences en termes de quantité de tritium exportée hors du plateau continental durant ces saisons. L'advection et le mélange au large du talus, des panaches de tritium de la Loire et de la Gironde en période estivale, semblent exporter du plateau de plus grandes quantités de tritium que durant l'hiver. Cette hypothèse pourrait être confortée par un calcul des flux de tritium entrants et sortants à travers les différentes frontières du plateau continental du golfe de Gascogne.

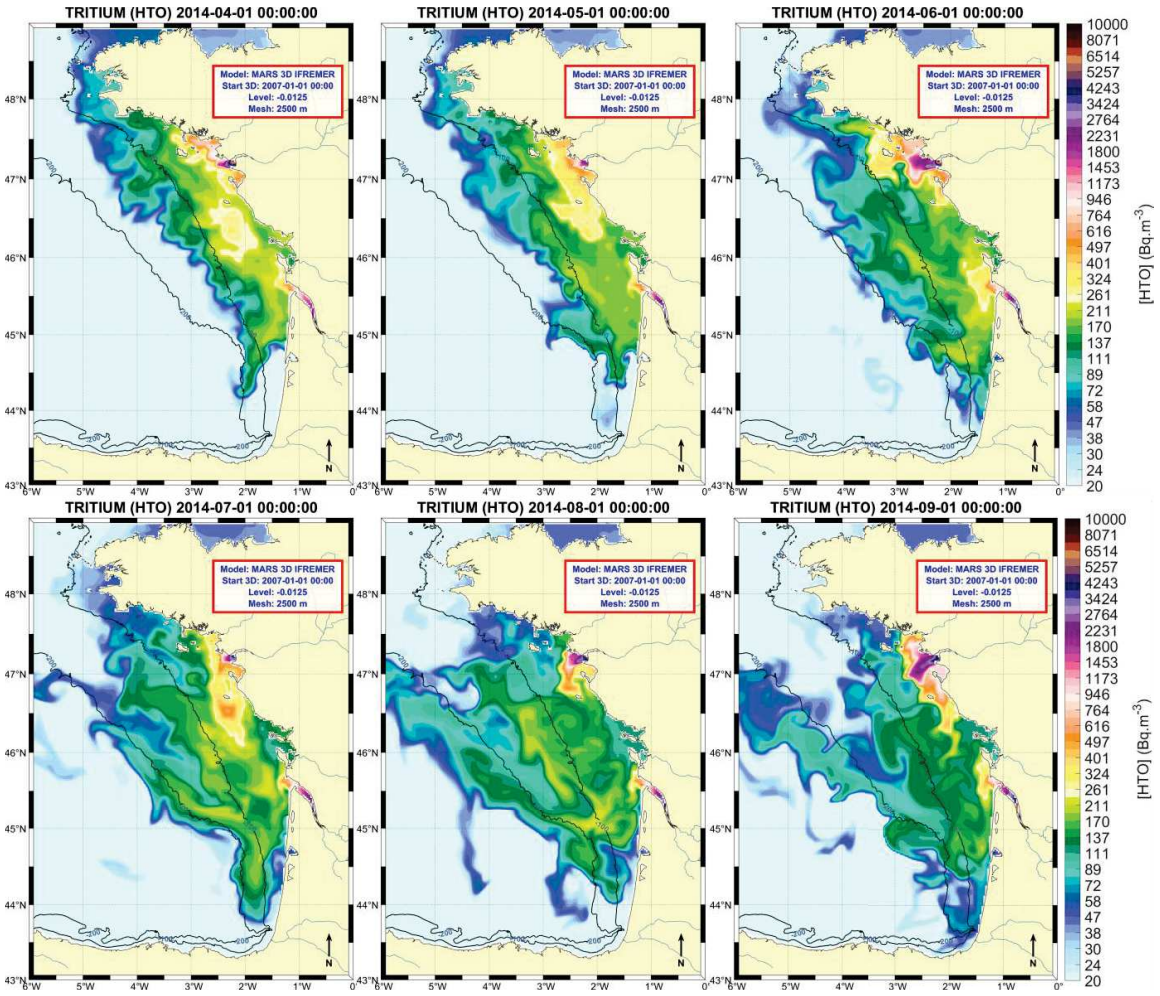


Figure 4.25 – Concentrations en tritium simulées en surface, entre Avril et Septembre lors la phase de décharge O (Figure 4.23).

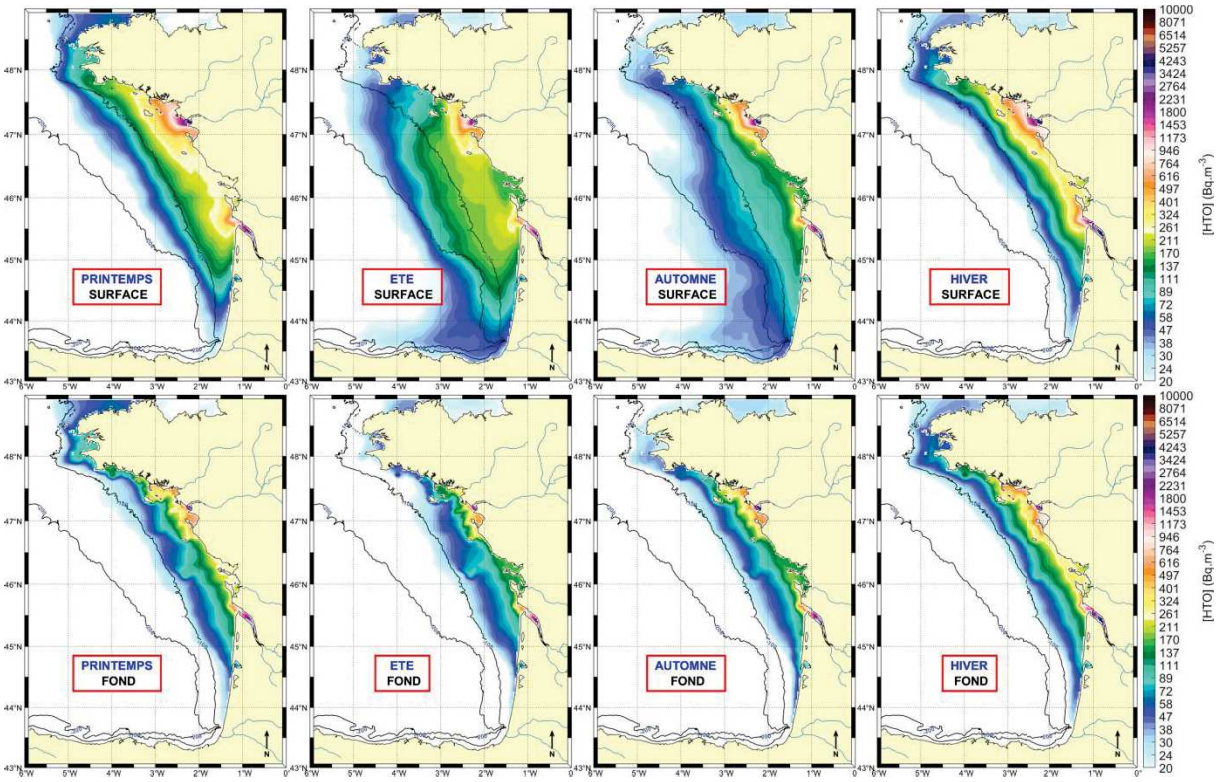


Figure 4.26 – Climatologie des panaches de tritium modélisés à la surface et au fond du golfe de Gascogne. Les concentrations obtenues sont issues des moyennes des distributions quotidiennes pour chaque saison entre 2008 et 2015. Printemps : Mars, Avril et Mai ; Eté : Juin, Juillet et Aout ; Automne : Septembre, Octobre et Novembre ; Hiver : Décembre, Janvier, Février.

4.5.2 Traceur âge-concentration

Le concept d'âge d'une masse d'eau selon la définition de Zimmerman, 1976 est le temps écoulé depuis qu'une masse d'eau considérée a quitté une zone dans laquelle son âge est mis à zéro. Dans cette étude, l'âge en un point et un temps donné est représentatif du temps de transport du traceur considéré depuis sa source. Les cinétiques d'advection mises en évidence par ces âges permettront de visualiser les zones de transport rapides des panaches et les zones de rétention au sein du plateau continental lors d'une phase de décharge.

Delhez *et al.*, 1999 ont introduit une théorie de l'âge basé sur l'advection-diffusion de «l'âge-concentration » d'un traceur et ont établi une méthode destinée à être d'implémentée dans les modèles numériques :

$$\frac{\partial Age}{\partial t} + \nabla(\vec{u}Age - K\nabla Age) = Tr(t) \tag{4.38}$$

Avec :

Age: Age-concentration ;

Tr: Concentration du traceur.

L'âge moyen Age_{moy} est ensuite défini comme le rapport entre l'âge concentration et la concentration du traceur.

$$Age_{moy} = \frac{Age}{Tr} \tag{4.39}$$

Les temps de transit de l'export du tritium vers le Sud et le large du plateau continental pendant la phase de décharge O (Figure 4.23) vu au paragraphe précédent peut être estimé par la distribution des âges sur le plateau vers la fin de période.

Pour cette étude deux traceurs d'âge ont été utilisés, l'un pour les eaux douces de la Loire et un autre pour les eaux de la Gironde. Les traceurs d'âge-concentrations ont été prescrits à zéro à l'endroit de leur injection dans le domaine de calcul : pour la Loire, le traceur de l'âge-concentration, est prescrit à zéro au niveau de la limite de la marée dynamique à Ancenis (~70 km de l'estuaire) ; pour la Gironde deux sources d'injection du traceur tritium sont nécessaire : une première au niveau de la limite de la marée dynamique de la Garonne, à Casseuil (~78 km de l'estuaire) afin de prendre en compte des rejets de la centrale de Golfech, et une autre au Blayais au début de l'estuaire de la Gironde pour la prise en compte des rejets de la centrale nucléaire du même nom. Les concentrations en tritium inférieures à 20 $Bq.m^{-3}$ ne sont pas prise ne compte dans le calcul de l'âge-concentration afin d'éviter les biais d'âge induit par les faibles concentrations dues à la diffusion numérique.

L'âge moyen des eaux de la Loire au début (01/03/2014) et à la fin (01/09/2014) de la période de décharge O est présenté pour la surface et le fond (Figure 4.27).

Au début de la période de décharge, les eaux les plus jeunes entre 50 et 100 jours sont situées au Nord de l'estuaire de la Loire jusqu'en Mer d'Iroise. Au Sud de l'île d'Yeu l'âge des eaux de la Loire est supérieur à 150 jours jusqu'à plus de 200 jours devant l'estuaire de la Gironde. Les distributions des âges des eaux de la Loire entre la surface et le fond sont relativement similaires même si le panache d'eau jeune (<50 jours) est moins développé vers le large en profondeur qu'en surface. Le mélange hivernal a homogénéisé les distributions des âges sur toute la colonne d'eau.

A la fin de la période de décharge, les panaches se sont inversés, les eaux de la Loire les plus récentes sont situées au Sud de l'estuaire. Des eaux relativement jeunes (~120 jours) sont retrouvées en surface jusqu'au plateau Ibérique. La distribution des âges en surface et au fond sont différentes, au fond la distribution des âges est restreinte entre la côte et l'isobath 100 m. La stratification saisonnière a découplée l'advection des panaches de surface des panaches de fond. Les vents upwellings favorables ont repoussés les eaux de surface vers le large et par compensation les eaux de fond près des côtes.

Les exports des eaux de la Loire vers le Nord par la mer d'Iroise ou vers le large à travers le talus continental présentent des cinétiques similaires ~100 jours. Ce sont les quantités exportées qui différent et induisent les variations des stocks observés.

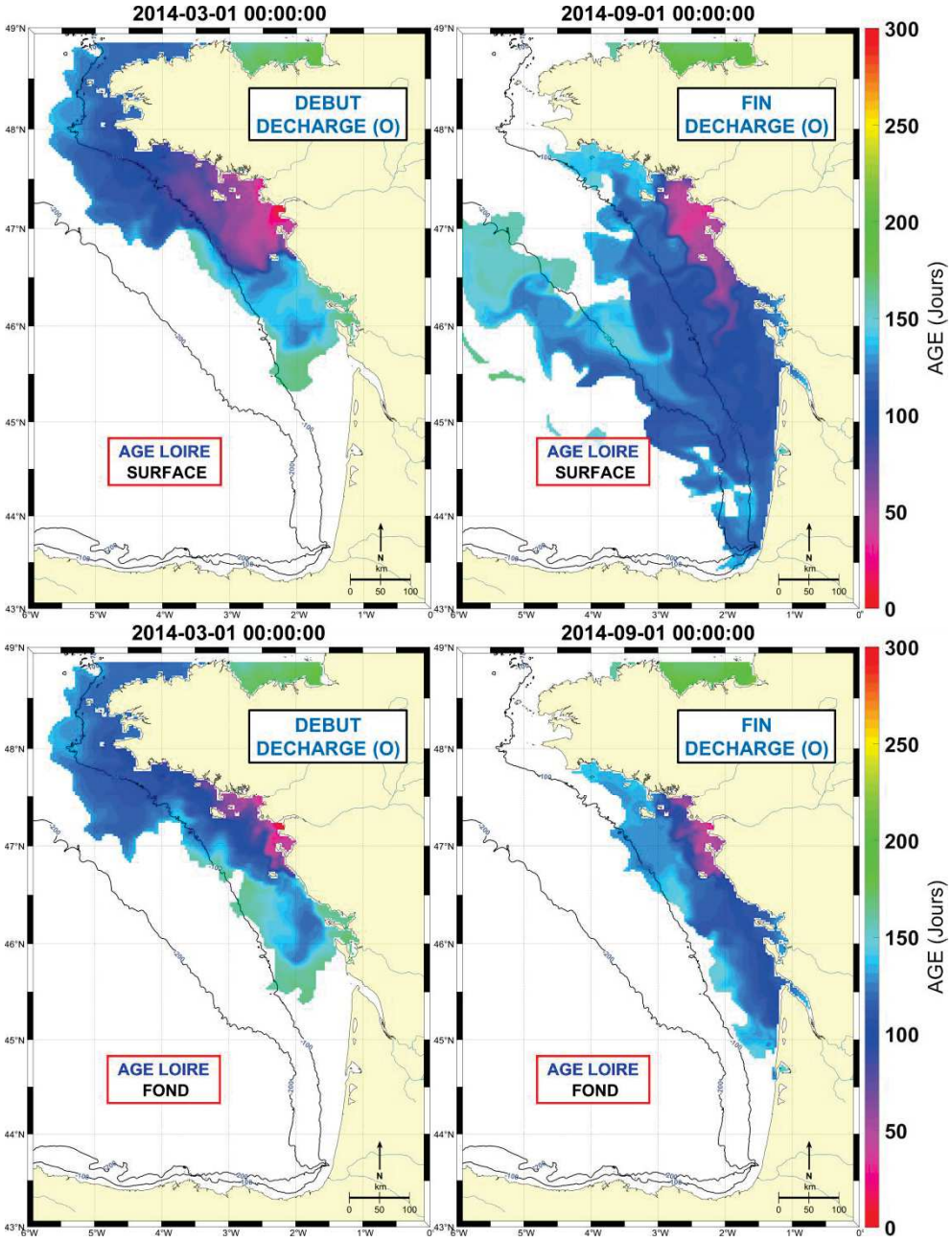


Figure 4.27 – Âge de la Loire, au début de la phase de décharge O (01/03/2014)) à la surface et au fond (vignettes de gauche). Âge de la Loire à la fin de la phase de recharge O (01/09/2014), à la surface et au fond (vignettes de droite).

4.6 Synthèse

Au cours de ce chapitre, les résultats des mesures du tritium dans le golfe de Gascogne entre 2009 et 2016 ont été présentés, les panaches de la Loire et de la Gironde sont clairement indentifiables par rapport au bruit de fond.

A partir du modèle hydrodynamique MARS3D, une simulation de 2007 à juin 2016, en conditions réalistes, a reproduit la dispersion du tritium dans le golfe de Gascogne. Les comparaisons avec les mesures montrent la bonne capacité du modèle à reproduire la distribution du tritium à l'échelle du plateau continental. 90% des concentrations simulées ont une erreur relative inférieure à 50% (n=358 échantillons). Des comparaisons complémentaires avec des mesures hydrologiques à haute fréquence ont également démontré les capacités du modèle à reproduire les gradients de température et de salinité à l'échelle du plateau. Des différences sont néanmoins observées, notamment la représentation des panaches près des estuaires où le terme source mensualisé induit un lissage des rejets de tritium.

L'utilisation conjointe de deux traceurs des eaux continentales (le tritium et la salinité) a permis de faire la distinction entre les apports de la Loire et ceux de la Gironde. Les mesures et les simulations montrent une même particularité : la présence majoritaire en profondeur des eaux de la Loire jusqu'à l'embouchure de l'estuaire de la Gironde. La climatologie des contributions relatives modélisées entre 2008 et 2015 lie la présence de ces eaux à un cycle saisonnier de l'advection des panaches vers le large et le Sud avec la bascule des vents dominants et l'évolution saisonnière des apports d'eau douce, en accord avec la bibliographie (Lazure et Jégou, 1998; Puillat *et al.*, 2004).

Une estimation du temps de résidence du tritium sur le plateau continental, défini comme le temps de rejets équivalent au stock présent au sein du plateau a été réalisé. Ce temps de résidence est estimé à environ un an à la fois par les mesures et le modèle (380 ± 13 jours et 437 ± 78 jours respectivement). L'étude haute fréquence des stocks modélisés confirme un temps de résidence de un an ± 20% entre 2012 et 2016.

L'évolution des stocks de tritium sur le plateau du golfe de Gascogne met en évidence des phases de chargement et de déchargement du plateau, en rapport avec le régime des vents dominants. Les phases de décharges ont lieu entre les mois d'avril et octobre et les phases de rechargement entre octobre et avril. La climatologie des panaches de tritium entre 2008 et 2015, montre que les décharges se font vers le large au Sud du plateau. Les cinétiques d'export étant du même ordre de grandeur, les quantités exportées seraient par hypothèse supérieures à celles exportées vers le Nord jusqu'en Mer d'Iroise et en Manche.

Conclusions et perspectives

Les questions auxquelles cette thèse souhaitait répondre étaient (i) d'estimer les temps de résidence des eaux continentales sur le plateau du golfe de Gascogne, (ii) d'identifier les contributions des apports de la Loire par rapport à ceux de la Gironde et (iii) d'identifier les mécanismes et les conditions d'export des panaches hors du plateau.

Dans cette perspective, la stratégie mise en place a été : d'exploiter les nouvelles capacités de mesure d'un traceur des eaux continentales le tritium (HTO) ; de réaliser des campagnes synoptiques de prélèvement et de mesure du tritium et de coupler ces résultats à une simulation numérique à long terme de la dispersion des panaches, dans des conditions réalistes.

1. Quantifier les flux de tritium entrants dans le golfe de Gascogne

Pour quantifier les flux de tritium entrants dans le golfe de Gascogne, le choix s'est porté sur la modélisation des flux de tritium par les rivières, couplée à des mesures réalisées à différentes échelles temporelles en Loire, dans la Gironde et un peu plus en amont sur la Garonne. La modélisation des flux de tritium dans les rivières n'a pas augmenté l'incertitude sur les quantités de tritium arrivant dans le golfe de Gascogne, par rapport aux mesures. La modélisation a permis de reproduire les cinétiques de transfert entre les points de rejets dans les rivières et le domaine de calcul du modèle hydrodynamique, et de calculer de manière continue les flux de tritium arrivant en mer. Les incertitudes sur les flux modélisés ont été évaluées à environ 10% pour la Loire et environ 30% pour les rejets de la centrale de Golfech dans la Garonne. Ces incertitudes peuvent être reliées à celles des débits (~10%) ou des rejets de tritium transmis par l'exploitant (incertitudes inconnues).

2. Déterminer l'évolution du bruit de fond en tritium des eaux océaniques

Pour apprécier les flux de tritium présent dans le golfe de Gascogne il est nécessaire de déterminer l'évolution au cours du temps, du bruit de fond en tritium de l'Atlantique Nord. Le marquage de l'océan de surface (0-500 m) par le tritium issu des retombées nucléaires dans les années 60' et des apports naturels considérés constants est visible en 2016 à la surface des océans. Ce bruit de fond doit être estimé de manière la plus précise possible afin de distinguer ce signal Atlantique, de celui des rejets des centrales dans le golfe de Gascogne. La méthode adoptée a été de modéliser le bruit de fond au cours du temps, à l'aide d'une régression non-linéaire, de l'ensemble des mesures de surface du tritium, compilé en Atlantique Nord. Ce bruit de fond variable a alors pu être pris en compte dans les simulations. La compilation des données de concentrations en tritium a été réalisée pour l'ensemble des océans et sur toute la colonne d'eau. Ainsi la quantité totale de tritium présente dans les océans en

2016 a pu être estimée à 26,8 ± 14 kg. A partir des flux de tritium naturels connus et de la surface des bassins versants, la quantité de tritium d'origine naturelle présente dans les océans a été calculée et les apports artificiels en ont été déduits. Un apport en excès de tritium artificiel (~15,5 PBq.an^{-1}) a été mis en évidence dans l'Atlantique Nord par rapport aux rejets naturels et anthropiques connus. L'origine de cet excès n'a pu être résolue dans cette étude. Ces résultats globaux sont auxiliaires aux questionnements principaux de la thèse, cités plus haut. Ils ont été publiés en novembre 2018 dans Science of the Total Environnement sous le titre « Inventory and distribution of tritium in the oceans in 2016 ». Cette publication comblait un manque de données de la littérature concernant les mesures de tritium réalisées depuis les années 1970. L'intérêt scientifique de cette étude est souligné par la publication en mars 2019, d'une nouvelle base de données, bien plus exhaustive, des mesures de tritium dans l'océan, par les pionniers mondiaux de l'utilisation du tritium comme traceur océanique (Jenkins *et al.*, 2019).

3. Cartographier les concentrations en tritium sur l'ensemble du plateau du golfe de Gascogne

Il s'agit d'échantillonner et de mesurer les concentrations en tritium sur l'ensemble du plateau du golfe de Gascogne. Des campagnes préliminaires de prélèvements réalisées entre 2009 et 2011 (campagnes ASPEX) ont permis d'acquérir de premières mesures pour valider le modèle hydrodynamique. Au printemps 2016, trois campagnes océanographiques ont permis un échantillonnage synoptique du plateau continental. 358 mesures à bas niveaux ont été réalisées au total entre 2009 et 2016. Les quantités de tritium rejetées par les centrales nucléaires dans le golfe de Gascogne *via* la Loire et la Gironde (~0,9 g.an^{-1}) induisent des concentrations très faibles (< 1 Bq.L^{-1}) après leur mélange avec les eaux marines. Les moyens de mesure doivent donc être adaptés et l'effort de mesure conséquent. En 2012, l'IRSN a mis en place des moyens pour mesurer le tritium à très bas niveau dans l'eau de mer (Limite de Détection (LD) ~10 Bq.m^{-3}). Les concentrations en tritium sont alors déterminées par la mesure des quantités d'hélum-3, issues de la décroissance radioactive du tritium. Les résultats de mesures mettent en évidence les panaches de tritium de la Loire et de la Gironde en étroite corrélation avec les panaches d'eau douce. Ces résultats confirment la capacité de ces mesures à bien détecter les rejets en mer des centres nucléaires de production d'électricité (CNPE) de la Loire et de la Gironde, malgré le bruit de fond de l'Atlantique Nord.

4. Simulation en conditions réalistes de la dispersion du tritium dans le golfe de Gascogne

Des simulations numériques ont été mises en œuvre avec le modèle hydrodynamique MARS3D pour calculer la dispersion du tritium dans le golfe de Gascogne en conditions réalistes, à partir des flux modélisés de la Loire et de la Garonne, entre 2007 et 2016. Une aussi longue simulation offre l'avantage de mettre en évidence le temps de mise à l'équilibre de la zone ainsi que les cycles saisonniers et annuels. Néanmoins, le temps de calcul et le stockage des données sont des facteurs limitants. Au cours des améliorations successives du calculateur (passage de Caparmor à Datarmor)

de l'Ifremer ou du nombre de cœurs de calculs optimisés au maximum de la taille de la grille de calcul, la simulation de la dispersion du tritium dans le domaine de calcul Manche–Gascogne pour la période 2007-2016 est passée de trois semaines en 2016 à une semaine en 2018. Les quantités de données générées (~30 Go/mois simulé) ; étaient très importantes. Elles incluent la différenciation dans le modèle des traceurs de tritium de la Loire, de la Gironde et de la Manche ainsi que des traceurs d'âge-concentrations de la Loire et la Gironde.

5. Comparaisons modèle / mesures

La dernière étape a permis de comparer les résultats du modèle hydrodynamique avec les mesures effectuées. Les comparaisons démontrent la bonne capacité du modèle pour reproduire la distribution du tritium à l'échelle du plateau continental. Sur un effectif de 358 mesures acquises de 2009 à 2016, 90% des concentrations simulées ont une erreur relative inférieure à 50% (70% ont moins de 25% d'erreur relative). Des comparaisons complémentaires avec des mesures hydrologiques à haute fréquence ont également démontré la capacité du modèle à reproduire les gradients de température et de salinité à l'échelle du plateau. Des différences ont été observées notamment sur la représentation des panaches près des estuaires où le terme source mensualisé lisse les concentrations modélisées. Différentes simulations ont été effectuées en changeant la formulation de la tension du vent ou en utilisant un modèle météorologique plus grossier. Les résultats ont montré peu de différences dans les distributions du tritium entre les différentes simulations. Il n'y a pas eu de dégradations ou d'améliorations significatives dans la reproduction des concentrations de tritium par rapport à la simulation initiale.

6. Réponses aux questions concernant la connaissance du devenir des apports continentaux dans le golfe de Gascogne

(i) Estimation des temps de résidence des eaux continentales sur le plateau du golfe de Gascogne.

Le temps de résidence des eaux continentales sur le plateau du golfe de Gascogne est défini dans cette étude comme la durée de rejets équivalente au stock de tritium présent au sein du plateau.

Les quantités de tritium ont été calculées à la fois par les mesures et par le modèle durant le mois de mai 2016. Les concentrations mesurées en surface (0-15 m) ont été intégrées sur une profondeur correspondant à la tritiocline simulée. Les concentrations mesurées plus en profondeur (>15 m) ont été intégrées de la tritiocline jusqu'au fond. A l'échelle du plateau continental la somme de tritium mesuré ; (bruit de fond du golfe de Gascogne déduit) ; correspond à 380 ± 13 jours. Elle est de 441 ± 78 jours pour la simulation. Globalement cela représente un an de rejets de tritium cumulés des CNPE de la Loire et de la Gironde.

L'évolution temporelle des stocks de tritium simulés entre 2007 et 2016 a été normalisée par le cumul sur un an des rejets additionnés de la Loire et de la Gironde. Les stocks normalisés présentent des variations autour de 1 ± 0,2 années entre 2012 et 2016. Ce résultat confirme que le temps de résidence de un an estimé par les mesures et le modèle au mois de mai 2016 est représentatif du temps de résidence moyen des eaux continentales sur le plateau du golfe de Gascogne depuis 2012.

(ii) *Identification des contributions des apports de la Loire par rapport à ceux de la Gironde.*

Pour un débit similaire, les quantités de tritium rejetées dans la Loire, sont en moyenne deux fois supérieures à celles rejetées dans la Gironde. Les rejets continentaux de la Loire et de la Gironde possèdent donc un signal tritium/salinité différent, qui a permis de les caractériser. Cette signature est précisée par les droites de dilution des concentrations en tritium de la Loire et de la Gironde. Il est alors possible de définir un système à deux équations qui permet de quantifier la contribution des apports de la Loire et de la Gironde respectivement. Les contributions respectives de la Loire et de la Gironde ont ainsi été cartographiées en surface et en profondeur à partir des résultats mesurés.

Un résultat surprenant a été de retrouver, en profondeur, des eaux de la Loire, jusqu'à l'embouchure de l'estuaire de la Gironde. Cette particularité a également été observée dans les simulations.

Cela reste un résultat à confirmer car si il existe bien des évidences de la dispersion des eaux de la Loire en surface (Puillat *et al.*, 2004), aucune n'a jamais été apportée sur celle des eaux de fond. Ce résultat mériterait d'être conforté.

Les contributions simulées de la Loire par rapport à celles de la Gironde ont été simulées de janvier 2008 à décembre 2015 pour établir une climatologie de ces contributions. La climatologie lie la présence des eaux de la Loire jusqu'à l'embouchure de la Gironde à un cycle saisonnier de l'advection des panaches vers le large et le Sud en rapport avec la bascule des vents dominants et l'évolution saisonnière des débits en accord avec la bibliographie (Lazure et Jégou, 1998; Puillat *et al.*, 2004).

(iii) *Identification des mécanismes et les conditions d'export des panaches hors du plateau.*

L'évolution des stocks de tritium sur le plateau du golfe de Gascogne a mis en évidence des phases de chargement et de déchargement du plateau, en rapport avec le régime des vents dominants. Les phases de décharge ont lieu entre les mois d'avril et octobre et les phases de rechargement entre octobre et avril. La climatologie des panaches de tritium entre 2008 et 2015 montre que les décharges se font préférentiellement vers le large au Sud du plateau. Dans les simulations, les temps de transit des exports vers le Nord ou le Sud sont du même ordre de grandeur. Les quantités exportées vers le large au Sud seraient supérieures à celles exportées vers le Nord, jusqu'en Mer d'Iroise et en Manche.

Une publication regroupant : les résultats de mesures et de simulations du tritium dans le golfe de Gascogne, les comparaisons modèle / mesures, l'estimation du temps de résidence des eaux continentales et l'identification des contributions relatives des apports continentaux a été soumise le 21/03/2019 à Continental Shelf Reaseach, intitulée « Characterisation of river plume dispersion through tritium measurements and modelling in the Bay of Biscay ».

Perspectives

1. Amélioration des connaissances dans le golfe de Gascogne

Afin de compléter les travaux déjà réalisés dans cette thèse, il serait important de quantifier à l'aide du modèle, les flux de tritium entrants et sortants au travers des différentes frontières du plateau continental du golfe de Gascogne. (Manche et mer Celtique Au Nord, talus continental au large et fermeture au Sud du plateau aquitain entre la côte et le talus). Un module de calcul des flux de substances à travers des frontières prédéfinies, est déjà implémenté dans le modèle MARS3D. Ces flux permettraient de mieux identifier les zones et les périodes d'export privilégiées des eaux douces hors du plateau continental.

Des mesures quotidiennes sur le long terme du flux de tritium en aval des CNPE de la Loire et de la Gironde permettraient une meilleure représentation des panaches de tritium près des estuaires.

La représentation des flux et de la distribution du tritium pourrait être améliorer en intégrant dans le modèle les processus d'échanges de tritium entre la vapeur d'eau de l'air et la surface de la mer ainsi que les apports de tritium par la pluie fournis par les modèles météorologiques.

2. Perspectives plus larges que son application dans le golfe de Gascogne :

Un des perspectives initiales à cette thèse est la prédiction de la distribution des concentrations en milieu marin en cas de rejets accidentels. Ce travail est complémentaire de l'outil STERNE (Simulation du Transport et des transferts d'Eléments Radioactifs eN Environnement marin), l'outil de crise de l'IRSN, qui calcule la dispersion des radionucléides en cas de rejets accidentels à partir des champs de courant pré-calculés. Les mesures et les simulations réalisées dans cette thèse peuvent ainsi être utilisées pour la validation de la dispersion déterminée par ce modèle de crise.

Une des perspectives des plus intéressantes de cette thèse est la possibilité d'appliquer la même stratégie multidisciplinaire d'examen des processus hydrodynamiques pour la Mer Celtique et la Méditerranée.

Pour la Mer Celtique, les apports en provenance de l'usine de Sellafield peuvent être mieux pris en compte, de même que ceux issus de ce présent travail. Ils constituent des termes sources suffisants pour appréhender le mélange des masses d'eaux dans la Mer Celtique.

Pour la Méditerranée les apports tritiés du Rhône à la Méditerranée représentent chaque année 273 TBq (Eyrolle-Boyer *et al.*, 2015). Ces apports sont comparables aux apports de la Loire au Golfe de Gascogne (215 $TBq.an^{-1}$). Les panaches de tritium du Rhône ont été mesurés tout le long des côtes françaises (Jean-Baptiste *et al.*, 2018), et sont parfaitement identifiables du bruit de fond de surface Méditerranéen (~85 ± 22 $Bq.m^{-3}$, (Oms *et al.*, 2018)). L'utilisation des mesures de tritium pourrait permettre d'améliorer un processus en particulier, qui est la formation d'eau intermédiaire et profonde en hiver dans le golfe du Lion, en mesurant le taux d'approfondissement de la tritiocline au cours d'un processus de convection.

Bibliographie

Andrié, C., Jean-baptiste, P. et Merlivat, L., 1988. Tritium and helium 3 in the northeastern Atlantic Ocean during the 1983 TOPOGULF cruise. Journal of Geophysical Research: Oceans, 93(C10): 12511-12524.

Andrié, C. et Merlivat, L., 1988. Tritium in the western Mediterranean Sea during 1981 Phycemed cruise. Deep Sea Research Part A. Oceanographic Research Papers, 35(2): 247-267.

Arakawa, A. et Lamb, V.R., 1977. Computational design of the basic dynamical processes of the UCLA general circulation model. Methods in Computational Physics, Academic press: Vol 17, 174-265.

ASN, 2010. Bilan annuel des rejets de tritium pour les installations de nucléaires de base, Autorité de Sûreté Nucléaire (ASN)

Ayache, M. *et al.*, 2015. Modelling of the anthropogenic tritium transient and its decay product helium-3 in the Mediterranean Sea using a high-resolution regional model. Ocean Sci., 11(3): 323-342.

Bacchetta, A., 2014. Analyse et spéciation du tritium dans des matrices environnementales, Université Pierre et Marie Curie-Paris VI.

Bailly du Bois, P., 1997. Quantitative assessment of dissolved radiotracers in the English Channel : sources, average impact of la Hague reprocessing plant and conservative behaviour (1983, 1986, 1988 and 1994), FLUXManche II Final Report - MAST II MAS2CT940089 "Hydrodynamics and biogeochemical processes and fluxes in the Channel" Section 5, Task R, "Identification of Sediment Processes and Measurements of Water Fluxes using Radiotracers" co-ordinator : P. Guéguéniat.

Bailly du Bois, P. et Dumas, F., 2005. Fast hydrodynamic model for medium- and long-term dispersion in seawater in the English Channel and southern North Sea, qualitative and quantitative validation by radionuclide tracers. Ocean Modelling, 9(2): 169-210.

Bailly du Bois, P., Dumas, F., Solier, L. et Voiseux, C., 2012. In-situ database toolbox for short-term dispersion model validation in macro-tidal seas, application for 2D-model. Continental Shelf Research, 26: 63-82.

Bailly du Bois, P., Germain, P., Rozet, M. et Solier, L., 2002. Water masses circulation and residence time in the Celtic Sea and English Channel approaches, characterisation based on radionuclides labelling from industrial releases, Proceedings from the International Conference on Radioactivity in Environment, Ed. by Peer Borretzen, Torun Jolle, Per Strand Monaco 1 - 5 September 2002, pp. pp. 395 - 399.

Bailly du Bois, P. et Guéguéniat, P., 1999. Quantitative assessment of dissolved radiotracers in the English Channel: sources, average impact of la Hague reprocessing plant and conservative behaviour (1983, 1986, 1988 and 1994). Continental Shelf Research ; FluxManche II dedicated volume, 19 1977-2002.

Bailly du Bois, P., Guéguéniat, P., Gandon, R., Léon, R. et Baron, Y., 1993. Percentage contribution of inputs from the Atlantic, Irish Sea, English Channel and Baltic into the North Sea during 1988: a tracer-based evaluation using artificial radionuclides. Netherlands Journal of Sea Research, 31(1): 1-17.

Bailly du Bois, P., Salomon, J.C., Gandon, R. et Guéguéniat, P., 1995. A quantitative estimate of English Channel water fluxes into the North Sea from 1987 to 1992 based on radiotracer distribution. Journal of Marine Systems, 6(5-6): 457-481.

Beaugelin-Seiller, K., Boyer, P., Garnier-Laplace, J. et Adam, C., 2002. CASTEAUR: a simple tool to assess the transfer of radionuclides in waterways. Health physics, 83(4): 539-542.

Belot, Y., Roy, M. et Métivier, H., 1996. Le tritium de l'Environnement à l'Homme, Le tritium de l'Environnement à l'Homme. Editions de Physique Paris, pp. 39-76.

Bennett, B.G., 2002. Worldwide dispersion and deposition of radionuclides produced in atmospheric tests. Health Physics, 82(5): 644-655.

Bergkvist, N.-O. et Ferm, R., 2000. Nuclear Explosions 1945-1998, Defence Research Establishment.

Blumberg, A.F. et Mellor, G.L., 1987. A description of a three-dimensional coastal ocean model, In: Heaps, N.S.% Editor, 1987. Three Dimensional Coastal Ocean Models, American Geophysical Union, Washington, DC, pp. 1-16.

Boyer, P., 2011. CASTEAUR v0.2 - Evolutions et méthodes de résolution des modèles abiotiques. Report IRSN/DEI/SECRE (2011-03).

Boyer, P. et Ternat, F., 2005. CASTEAUR v0. 1–Modèles abiotiques. Report IRSNSDEI/SECRE(2005-01).

Boyer, T.P. *et al.*, 2013. World Ocean Database 2013.

Breton, M. et Salomon, J.C., 1995. A 2D long-term advection-dispersion model for the Channel and southern North Sea. Part A: validation through comparison with artificial radionuclides. Journal of Marine Systems: 6(5-6):495-514.

Carrère, L., Lyard, F., Cancet, M., Guillot, A. et Roblou, L., 2013. FES 2012: a new global tidal model taking advantage of nearly 20 years of altimetry, 20 Years of Progress in Radar Altimatry.

Cassette, P., 2004. Mesures de radioactivité par scintillation liquide. Ed. Techniques Ingénieur.

Cassou, C., 2008. Intraseasonal interaction between the Madden–Julian oscillation and the North Atlantic Oscillation. Nature, 455(7212): 523.

Chao, S.-Y., 1988. Wind-driven motion of estuarine plumes. Journal of Physical Oceanography, 18(8): 1144-1166.

Chapman, D.C. et Lentz, S.J., 1994. Trapping of a coastal density front by the bottom boundary layer. Journal of Physical Oceanography, 24(7): 1464-1479.

Charnock, H., 1955. Wind stress on a water surface. Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society, 81(350): 639-640.

Charria, G. *et al.*, 2013. Surface layer circulation derived from Lagrangian drifters in the Bay of Biscay. Journal of Marine Systems, 109–110, Supplement(0): S60-S76.

Clarke, W., Jenkins, W.J. et Top, Z., 1976. Determination of tritium by mass spectrometric measurement of 3He. The International Journal of Applied Radiation and Isotopes: Volume 27, Issues 9, Pages 515-522.

Craig, H. et Lal, D., 1961. The production rate of natural tritium. Tellus, 13(1): 86-105.

Delhez, E.J.M., Campin, J.M., Hirst, A.C. et Deleersnijder, E., 1999. Toward a general theory of the age in ocean modelling. Ocean Modelling: 1:17-27.

Déqué, M., Dreveton, C., Braun, A. et Cariolle, D., 1994. The ARPEGE/IFS atmosphere model: a contribution to the French community climate modelling. Climate Dynamics, 10(4-5): 249-266.

Despax, A., 2016. Incertitude des mesures de débit des cours d'eau au courantomètre. Amélioration des méthodes analytiques et apports des essais interlaboratoires.

Desplats, S., 2012. Mise au point d'un système de dégazage pour le conditionnement d'échantillons d'eau de mer destinés à la mesure du tritium par émanation de l'hélium 3. 2012-012, IRSN.

Doney, S.C., Glover, D.M. et Jenkins, W.J., 1992. A model function of the global bomb tritium distribution in precipitation, 1960–1986. Journal of Geophysical Research: Oceans, 97(C4): 5481-5492.

Doney, S.C. et Jenkins, W.J., 1988. The effect of boundary conditions on tracer estimates of thermocline ventilation rates. Journal of Marine Research, 46(4): 947-965.

Doney, S.C. et Jenkins, W.J., 1994. Ventilation of the deep western boundary current and abyssal western North Atlantic: Estimates from tritium and 3He distributions. Journal of Physical Oceanography, 24(3): 638-659.

Doney, S.C., Jenkins, W.J. et Bullister, J.L., 1997. A comparison of ocean tracer dating techniques on a meridional section in the eastern North Atlantic. Deep Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers, 44(4): 603-626.

Doney, S.C., Jenkins, W.J. et Östlund, H.G., 1993. A tritium budget for the North Atlantic. Journal of Geophysical Research: Oceans, 98(C10): 18069-18081.

Dorman, C.E. et Bourke, R.H., 1981. Precipitation over the Atlantic Ocean, 30 S to 70 N. Monthly Weather Review, 109(3): 554-563.

Dorsey, H.G. et Peterson, W.H., 1976. Tritium in the Arctic Ocean and East Greenland Current. Earth and Planetary Science Letters, 32(2): 342-350.

Dreisigacker, E. et Roether, W., 1978. Tritium and90Sr in North Atlantic surface water. Earth and Planetary Science Letters, 38(2): 301-312.

Ducros, L. *et al.*, 2018. Tritium in river waters from French Mediterranean catchments: Background levels and variability. Science of The Total Environment, 612: 672-682.

Efron, B., 1992. Bootstrap methods: another look at the jackknife, Breakthroughs in statistics. Springer, pp. 569-593.

Ehhalt, D.H. et Rohrer, F., 2009. The tropospheric cycle of H2: a critical review. Tellus B: Chemical and Physical Meteorology, 61(3): 500-535.

Ehhalt, D.H., Rohrer, F., Schauffler, S. et Pollock, W., 2002. Tritiated water vapor in the stratosphere: Vertical profiles and residence time. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 107(D24).

Eyrolle-Boyer, F., Antonelli, C., Renaud, P. et Tournieux, D., 2015. Origins and trend of radionuclides within the lower Rhône River over the last decades. Radioprotection, 50(1): 27-34.

Ferrer, L. *et al.*, 2009. Low-salinity plumes in the oceanic region of the Basque Country. Continental Shelf Research, 29(8): 970-984.

Fireman, E.L., 1953. Measurement of the (n, H 3) Cross Section in Nitrogen and Its Relationship to the Tritium Production in the Atmosphere. Physical Review, 91(4): 922.

Fraile-Nuez, E., Plaza, F., Hernández-Guerra, A., Vargas-Yáñez, M. et Lavín, A., 2008. Mass transport in the Bay of Biscay from an inverse box model. Journal of Geophysical Research: Oceans, 113(C6).

Frouin, R., Fiúza, A.F.G., Ambar, I. et Boyd, T.J., 1990. Observations of a poleward surface current off the coasts of Portugal and Spain during winter. Journal of Geophysical Research: Oceans, 95(C1): 679-691.

Garvine, R.W., 1987. Estuary plumes and fronts in shelf waters: A layer model. Journal of Physical Oceanography, 17(11): 1877-1896.

Gazal, S. et Amiard, J.C., 2010. Le tritium–Actualité d'aujourd'hui et de demain. Lavoisier (165 pages).

Geernaert, G.L., Katsaros, K.B. et Richter, K., 1986. Variation of the drag coefficient, its dependence on sea state. Journal of Geophysical Research: 91:7667-7679.

Grosse, A.V., Johnston, W.M., Wolfgang, R.L. et Libby, W.F., 1951. Tritium in nature. Science, 113(2923): 1-2.

Guéguéniat, P., Kershaw, P., Herrmann, J. et Bailly du Bois, P., 1997. New estimation of La Hague contribution to the artificial radioactivity of Norwegian waters (1992-1995) and Barents Sea (1992-1997). Science of the Total Environment: 202, pp.249-266.

Guétat, P., Douche, C. et Hubinois, J.C., 2008. Le tritium et l'environnement : sources, mesures et transferts. Radioprotection, 43(4): 547-569.

Happell, J.D., Östlund, G. et Mason, A.S., 2004. A history of atmospheric tritium gas (HT) 1950–2002. Tellus B: Chemical and Physical Meteorology, 56(3): 183-193.

Hedström, K., 2000. Technical manual for a coupled sea-ice/ocean circulation model. OCMS study MMS: 97-0017.

Hill, A.E. *et al.*, 2008. Thermohaline circulation of shallow tidal seas. Geophysical Research Letters, 35(11).

Hill, A.E. et Simpson, J.H., 1989. On the interaction of thermal and haline fronts: the Islay front revisited. Estuarine, Coastal and Shelf Science, 28(5): 495-505.

Hill, R.L. et Johnson, J.R., 1993. Metabolism and dosimetry of tritium. Health physics, 65(6): 628-647.

Horner-Devine, A.R., Fong, D.A., Monismith, S.G. et Maxworthy, T., 2006. Laboratory experiments simulating a coastal river inflow. Journal of Fluid Mechanics, 555: 203-232.

Hurrell, J.W., 1995. Decadal trends in the North Atlantic Oscillation: regional temperatures and precipitation. Science, 269(5224): 676-679.

Huthnance, J.M., 1984. Slope currents and "JEBAR". Journal of Physical Oceanography, 14(4): 795-810.

Huthnance, J.M., 1995. Circulation, exchange and water masses at the ocean margin: the role of physical processes at the shelf edge. Progress in Oceanography, 35(4): 353-431.

IAEA, 1991. Inventory of Radioactive Material Entering the Marine Environment: Sea Disposal of Radioactive Waste.

IAEA/WMO, A., 2018. Global network of isotopes in precipitation. The GNIP database.

IRSN, 2012. Bilan de l'état radiologique de l'environnement français en 2010-2011, Institut de Radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN).

Jean-Baptiste, P., Andrié, C. et Lelu, M., 1988. Mesure du couple tritium/helium océanique par spectrométrie de masse. In: E.A. Sciences (Editor), Radionuclides: a tool for oceanography, pp. 45-54.

Jean-Baptiste, P. *et al.*, 2019. Organically bound tritium (OBT) and carbon-14 accumulation in the sediments off the mouth of the Rhône river. Environmental Earth Sciences, 78(3): 78.

Jean-Baptiste, P., Fourré, E., Metzl, N., Ternon, J.F. et Poisson, A., 2004. Red Sea deep water circulation and ventilation rate deduced from the 3He and 14C tracer fields. Journal of Marine Systems: Volume 48, Issues 1-4, Pages 37-50.

Jean-Baptiste, P., Mantisi, F., Dapoigny, A. et Stievenard, M., 1992. Design and performance of a mass spectrometric facility for measuring helium isotopes in natural waters and for low-level tritium determination by the 3He ingrowth method. International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part A. Applied Radiation and Isotopes: Volume 43, Issues 7, Pages 881-891.

Jenkins, W.J., 1981. Mass spectrometric measurement of tritium and 3 He, Proc. consult. group-Meeting on low-level tritium measurements, pp. 179-189.

Jenkins, W.J., 1987. 3H and 3He in the Beta Triangle: Observations of gyre ventilation and oxygen utilization rates. Journal of Physical Oceanography, 17(6): 763-783.

Jenkins, W.J., 1998. Studying subtropical thermocline ventilation and circulation using tritium and 3He. Journal of Geophysical Research: Oceans, 103(C8): 15817-15831.

Jenkins, W.J. et Clarke, W.B., 1976. The distribution of 3He in the western Atlantic Ocean, Deep Sea Research and Oceanographic Abstracts. Elsevier, pp. 481-494.

Jenkins, W.J. *et al.*, 2019. A comprehensive global oceanic dataset of helium isotope and tritium measurements.

Kalnay, E. *et al.*, 1996. The NCEP/NCAR 40-year reanalysis project. Bulletin of the American meteorological Society, 77(3): 437-472.

Karcher, M., Kauker, F., Gerdes, R., Hunke, E. et Zhang, J., 2007. On the dynamics of Atlantic Water circulation in the Arctic Ocean. Journal of Geophysical Research: Oceans, 112(C4).

Kaufman, S. et Libby, W.F., 1954. The natural distribution of tritium. Physical Review, 93(6): 1337.

Kersalé, M. *et al.*, 2015. Poleward along-shore current pulses on the inner shelf of the Bay of Biscay. Estuarine, Coastal and Shelf Science.

Kershaw, P. et Baxter, A., 1995. The transfer of reprocessing wastes from north-west Europe to the Arctic. Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography: Volume 42, Issues 6, Pages 1413-1448.

Khojasteh Pour Fard, I., 2015. Modelling of dissolved exchanges between the Loire estuary and the adjacent coastal bays, Université de Bordeaux.

Kim, S.B., Baglan, N. et Davis, P.A., 2013. Current understanding of organically bound tritium (OBT) in the environment. Journal of Environmental Radioactivity, 126(0): 83-91.

Koster, R.D. *et al.*, 1989. The global geochemistry of bomb-produced tritium: General circulation model compared to available observations and traditional interpretations. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 94(D15): 18305-18326.

Koutsikopoulos, C. et Le Cann, B., 1996. Physical processes and hydrological structures related to the Bay of Biscay anchovy. Scientia Marina, 60: 9-19.

Lazure, P. et Dumas, F., 2008. An external-internal mode coupling for a 3D hydrodynamical model for applications at regional scale (MARS). Advances in Water Resources: Volume 31, Issues 2, Pages 233-250.

Lazure, P., Dumas, F. et Vrignaud, C., 2008. Circulation on the Armorican shelf (Bay of Biscay) in autumn. Journal of Marine Systems, 72(1–4): 218-237.

Lazure, P., Garnier, V., Dumas, F., Herry, C. et Chifflet, M., 2009. Development of a hydrodynamic model of the Bay of Biscay. Validation of hydrology. Continental Shelf Research, 29(8): 985-997.

Lazure, P. et Jegou, A.-M., 1998. 3D modelling of seasonal evolution of Loire and Gironde plumes on Biscay Bay continental shelf. Oceanologica Acta, 21(2): 165-177.

Lazure, P. et Jégou, A.-M., 1998. 3D modelling of seasonal evolution of Loire and Gironde plumes on Biscay Bay continental shelf. Oceanologica acta, 21(2): 165-177.

Lazure, P. et Salomon, J.C., 1991. Coupled 2-D and 3-D modelling of coastal hydrodynamics. Oceanologica Acta: Vol 14 n°2, pp.173-180.

Le Boyer, A. *et al.*, 2009. Observations of the Ushant tidal front in September 2007. Continental Shelf Research, 29(8): 1026-1037.

Le Boyer, A., Charria, G., Le Cann, B., Lazure, P. et Marié, L., 2013. Circulation on the shelf and the upper slope of the Bay of Biscay. Continental Shelf Research, 55(0): 97-107.

Le Cann, B., 1990. Barotropic tidal dynamics of the Bay of Biscay shelf: observations, numerical modelling and physical interpretation. Continental Shelf Research, 10(8): 723-758.

Le Cann, B. et Serpette, A., 2009. Intense warm and saline upper ocean inflow in the southern Bay of Biscay in autumn–winter 2006–2007. Continental Shelf Research, 29(8): 1014-1025.

Leendertse, J.J. et Gritton, E.C., 1971. A water quality simulation model for well-mixed estuaries and coastal seas. The Rand Corporation. New York.

Leonard, B.P., 1979. A stable and accurate convective modelling procedure based on quadratic upstream interpolation. Computer methods in applied mechanics and engineering, 19(1): 59-98.

Leonard, B.P., 1991. The ULTIMATE conservative difference scheme applied to unsteady one-dimensional advection. Computer methods in applied mechanics and engineering, 88(1): 17-74.

Ludwig, W., Dumont, E., Meybeck, M. et Heussner, S., 2009. River discharges of water and nutrients to the Mediterranean and Black Sea: major drivers for ecosystem changes during past and future decades? Progress in Oceanography, 80(3): 199-217.

MacMahon, D., 2006. Half-life evaluations for 3H, 90Sr, and 90Y. Applied radiation and isotopes, 64(10-11): 1417-1419.

Marcotte, D., 1991. Cokriging with MATLAB. Computers & Geosciences, 17(9): 1265-1280.

Mariette, V. et Le Cann, B., 1985. Simulation of the formation of Ushant thermal front. Continental Shelf Research, 4(6): 637-660.

Masarik, J. et Beer, J., 2009. An updated simulation of particle fluxes and cosmogenic nuclide production in the Earth's atmosphere. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 114(D11).

Mellor, G.L., 1991. An equation of state for numerical models of oceans and estuaries. Journal of Atmospheric and Oceanic Technology, 8(4): 609-611.

Michel, R.L., 1976. Tritium inventories of the world oceans and their implications. Nature, 263(5573): 103.

Michel, S., Vandermeirsch, F. et Lorance, P., 2009. Evolution of upper layer temperature in the Bay of Biscay during the last 40 years. Aquatic living resources, 22(4): 447-461.

Milliman, J.D. et Farnsworth, K.L., 2013. River discharge to the coastal ocean: a global synthesis. Cambridge University Press.

Monetti, M.A., 1996. Worldwide deposition of strontium-90 through 1990, USDOE Environmental Measurements Lab., New York, NY (United States).

Münnich, K.O. et Roether, W., 1967. Transfer of bomb 14 C and tritium from the atmosphere to the ocean. Internal mixing of the ocean on the basis of tritium and 14 C profiles, Radioactive dating and methods of low-level counting. Proceedings of a symposium.

Neshyba, S., 1989. Poleward Flows Along Eastern Ocean Boundaries. Springer-Verlag.

Nies, H., Harms, I.H., Karcher, M.J., Dethleff, D. et Bahe, C., 1999. Anthropogenic radioactivity in the Arctic Ocean -- review of the results from the joint German project. Science of the Total Environment: Volume 237-238, Pages 1-191.

Novelli, P.C. *et al.*, 1999. Molecular hydrogen in the troposphere: Global distribution and budget. Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 104(D23): 30427-30444.

Okada, S. et Momoshima, N., 1993. Overview of tritium: characteristics, sources, and problems. Health physics, 65(6): 595-609.

Olsen, A. *et al.*, 2016. The Global Ocean Data Analysis Project version 2 (GLODAPv2)–an internally consistent data product for the world ocean. Earth System Science Data, 8(2): 297.

Oms, P.E. *et al.*, 2018. Inventory and distribution of tritium in the oceans in 2016. Science of The Total Environment.

Östlund, H.G., 1984. NAGS TRITIUM: North Atlantic Gyre Studies and Associated Projects. University of Miami, Rosenstiel School of Marine and Atmospheric Science.

Östlund, H.G., Dorsey, H.G. et Rooth, C.G., 1974. Geosecs North Atlantic radiocarbon and tritium results. Earth and Planetary Science Letters, 23(1): 69-86.

Östlund, H.G. et Grall, C., 1987. TTO NORTH AND TROPICAL ATLANTIC TRITIUM AND RADIOCARBON.

Ostlund, H.G. et Werner, E., 1962. The electrolytic enrichment of tritium and deuterium for natural tritium measurements, Tritium in the physical and biological sciences Vol. 1, IAEA, Vienna, 3-10 may 1961, pp. pp. 95-104.

Pairaud, I., 2005. Modélisation et analyse de la marée interne dans le golfe de Gascogne, Toulouse 3.

Pairaud, I., Lyard, F., Auclair, F., Letellier, T. et Marsaleix, P., 2008. Dynamics of the semi-diurnal and quarter-diurnal internal tides in the Bay of Biscay. Part 1: Barotropic tides. Continental Shelf Research: Volume 28, Issues 10â€“11, Pages 1294-1315.

Piepgras, D.J. et Wasserburg, G.J., 1983. Influence of the Mediterranean outflow on the isotopic composition of neodymium in waters of the North Atlantic. Journal of Geophysical Research: Oceans, 88(C10): 5997-6006.

Pingree, R.D., 1993. Flow of surface waters to the west of the British Isles and in the Bay of Biscay. Deep-Sea Research II: Vol. 40, N°1/2, pp. 369-388.

Pingree, R.D. et Le Cann, B., 1989. Celtic and Armorican slope and shelf residual currents. Progress In Oceanography: Volume 23, Issues 4, Pages 3-338.

Pingree, R.D. et Le Cann, B., 1990. Structure, strength and seasonality of the slope currents in the bay of Biscay region. J. Mar. Biol. Assoc. U.K.: Vol. 70 pp.857-885.

Pingree, R.D. et Le Cann, B., 1992. Three anticyclonic slope water oceanic eDDIES (SWODDIES) in the Southern Bay of Biscay in 1990. Deep Sea Research Part A. Oceanographic Research Papers: Volume 39, Issues 7-8, Pages 114-1175.

Pingree, R.D. et New, A.L., 1995. Structure, seasonal development and sunglint spatial coherence of the internal tide on the Celtic and Armorican shelves and in the Bay of Biscay. Deep Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers, 42(2): 245-284.

Planque, B., Lazure, P. et Jégou, A.-M., 2004. Detecting hydrological landscapes over the Bay of Biscay continental shelf in spring. Climate research, 28(1): 41-52.

Pollard, R.T. et Pu, S., 1985. Structure and circulation of the upper Atlantic Ocean northeast of the Azores. Progress in Oceanography, 14: 443-462.

Povinec, P.P. *et al.*, 2010. Tritium, radiocarbon, 90Sr and 129I in the Pacific and Indian Oceans. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 268(7–8): 1214-1218.

Puillat, I., Lazure, P., Jégou, A.M., Lampert, L. et Miller, P.I., 2004. Hydrographical variability on the French continental shelf in the Bay of Biscay, during the 1990s. Continental Shelf Research, 24(10): 1143-1163.

Repschläger, J., Garbe-Schönberg, D., Weinelt, M. et Schneider, R., 2017. Holocene evolution of the North Atlantic subsurface transport. Climate of the Past, 13(4): 333.

RIFE, 2008. RIFE - 13 Radioactivity in food and the environment, 2007.

RIFE, 2009. RIFE - 14 Radioactivity in food and the environment, 2008.

RIFE, 2010. RIFE - 15 Radioactivity in food and the environment, 2009.

RIFE, 2011. RIFE - 16 Radioactivity in food and the environment, 2010.

RIFE, 2012. RIFE - 17 Radioactivity in food and the environment, 2011.

RIFE, 2013. RIFE - 18 Radioactivity in food and the environment, 2012.

RIFE, 2014. RIFE - 19 Radioactivity in food and the environment, 2013.

RIFE, 2015. RIFE - 20 Radioactivity in food and the environment, 2014.

RIFE, 2016. RIFE - 21 Radioactivity in food and the environment, 2015.

RIFE, 2017. RIFE - 22 Radioactivity in food and the environment, 2016.

Roether, W., Jean-Baptiste, P., Fourré, E. et Sültenfuß, J., 2013. The transient distributions of nuclear weapon-generated tritium and its decay product 3 He in the Mediterranean Sea, 1952–2011, and their oceanographic potential. Ocean Science, 9(5): 837-854.

Salomon, J.C., Guéguéniat, P. et Breton, M., 1991. Mathematical model of 125Sb transport and dispersion in the Channel, In : Radionuclides in the study of marine processes. Norwich, UK, 10-13 september 1991, Ed. Kershaw J.P., Woodhead D.S. Elsevier Applied Science, pp. pp. 74-83.

Salomon, J.C., Guéguéniat, P., Orbi, A. et Baron, Y., 1988. A lagrangian model for long term tidally induced transport and mixing. Verification by artificial radionuclide concentrations, In : Radionucléides : A tool for oceanography. Cherbourg 1-5 juin 1987, Ed. Guary, J.C., Guéguéniat, P., Pentreath, R.J., Elsevier Applied Science Publishers, pp. pp. 384-394.

Schlitzer, R. *et al.*, 2018. The GEOTRACES Intermediate Data Product 2017. Chemical Geology.

Schmitt, R.W., Bogden, P.S. et Dorman, C.E., 1989. Evaporation minus precipitation and density fluxes for the North Atlantic. Journal of Physical Oceanography, 19(9): 1208-1221.

Simpson, J.H. et Hunter, J.R., 1974. Fronts in the Irish sea. Nature, 250(5465): 404.

Suess, H.E., 1969. Tritium geophysics as an international research project. Science, 163(3874): 1405-1410.

Taormina, A., 2015. Caractérisation des apports de tritium en provenance de la Loire et de la Gironde sur le plateau continental du golfe de Gascogne, IRSN.

Taylor, C.B., 1966. Tritium in southern hemisphere precipitation 1953–1964. Tellus, 18(1): 105-131.

TEOS-10, 2010. The International thermodynamic equation of seawater–2010: calculation and use of thermodynamic properties.[includes corrections up to 31st October 2015].

Thiele, G. et Sarmiento, J.L., 1990. Tracer dating and ocean ventilation. Journal of Geophysical Research: Oceans, 95(C6): 9377-9391.

Umlauf, L. et Burchard, H., 2005. Second-order turbulence closure models for geophysical boundary layers. A review of recent work. Continental Shelf Research, 25(7-8): 795-827.

UNSCEAR, U.N.S.C.o.t.E.o.A.R., 2000. Sources and effects of ionizing radiation: sources, 1. United Nations Publications.

UNSCEAR, U.N.S.C.o.t.E.o.A.R., 2016. Sources and effects of ionizing radiation: sources, 1. United Nations Publications.

van Aken, H.M., 2002. Surface currents in the Bay of Biscay as observed with drifters between 1995 and 1999. Deep Sea Research Part I: Oceanographic Research Papers: Volume 49, Issues 6, Pages 1071-1086.

Vandermeirsch, F. *et al.*, 2010. Bay of Biscay's temperature and salinity climatology : Bobyclim. (XII International Symposium on Oceanography of the Bay of Biscay, Plouzané, France).

Vincent, A. et Kurc, G., 1969. Hydrologie variations saisonnières de la situation thermique du Golfe de Gascogne en 1967. Revue des Travaux de l'Institut des Peches maritimes, 33(1): 79-96.

Weatherall, P. *et al.*, 2015. A new digital bathymetric model of the world's oceans. Earth and Space Science, 2(8): 331-345.

Weiss, W. et Roether, W., 1980. The rates of tritium input to the world oceans. Earth and Planetary Science Letters, 49(2): 435-446.

Weiss, W., Roether, W. et Dreisigacker, E., 1979. Tritium in the North Atlantic Ocean. Inventory, input and transfer into deep water, Behaviour of tritium in the environment.

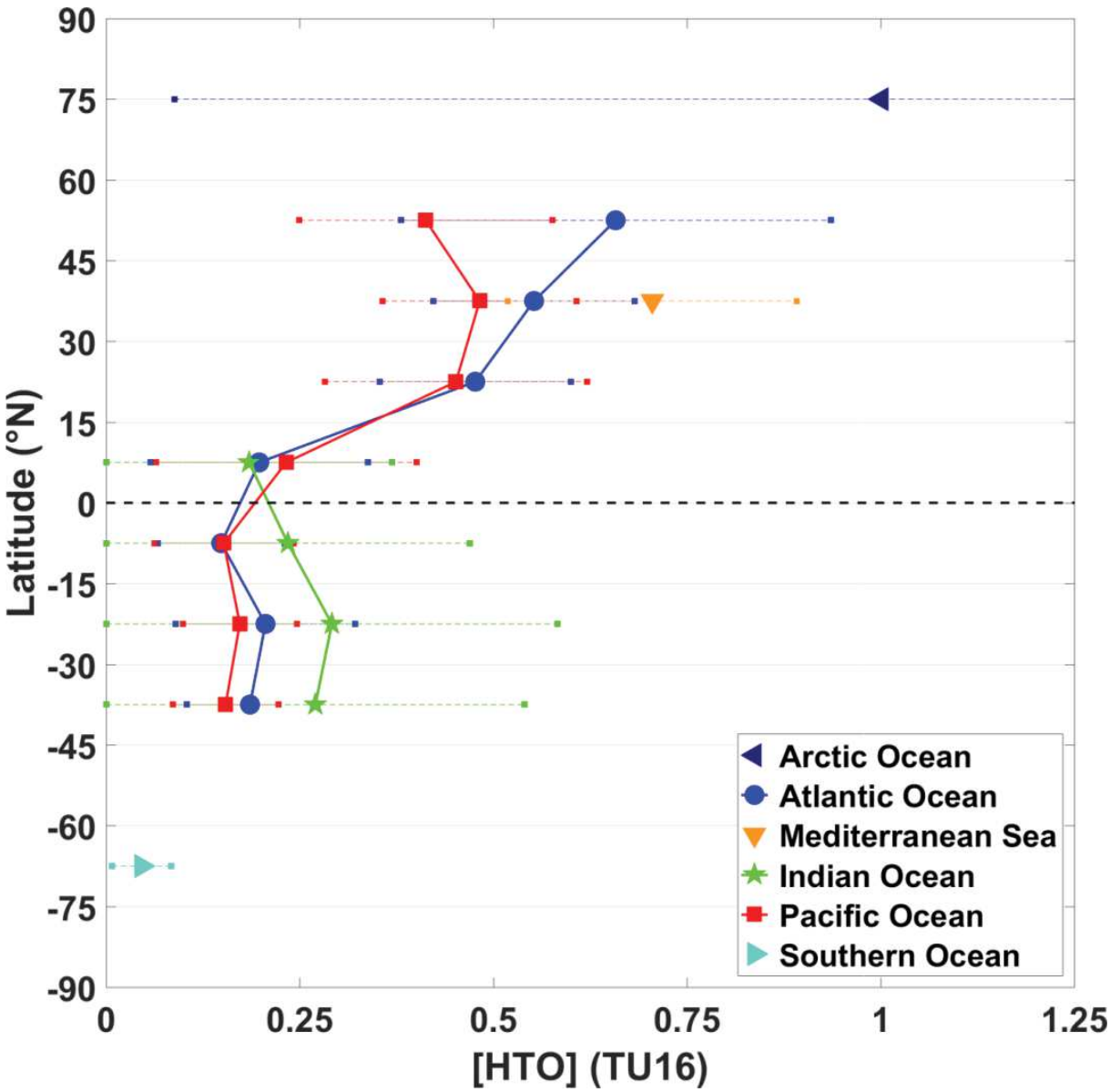
Willmott, C.J., Robeson, S.M. et Matsuura, K., 2012. A refined index of model performance. International Journal of Climatology, 32(13): 2088-2094.

Xu, W., Miller, P.I., Quartly, G.D. et Pingree, R.D., 2015. Seasonality and interannual variability of the European Slope Current from 20 years of altimeter data compared with in situ measurements. Remote Sensing of Environment, 162: 196-207.

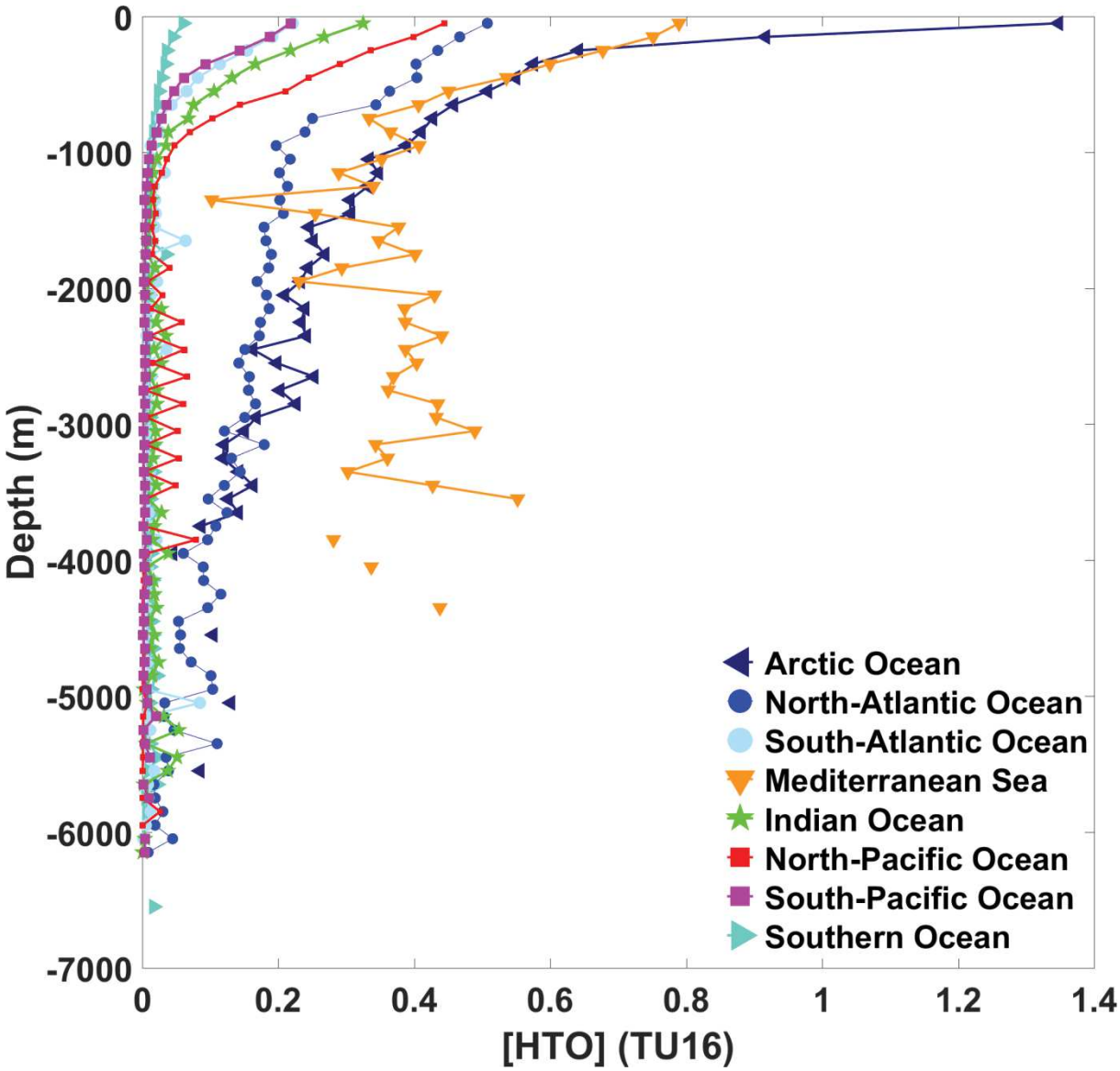
Yankovsky, A.E. et Chapman, D.C., 1997. A simple theory for the fate of buoyant coastal discharges. Journal of Physical oceanography, 27(7): 1386-1401.

Zimmerman, J.T.F., 1976. Mixing and flushing of tidal embayments in the western Dutch Wadden Sea part I: Distribution of salinity and calculation of mixing time scales. Netherlands Journal of Sea Research, 10(2): 149-191.

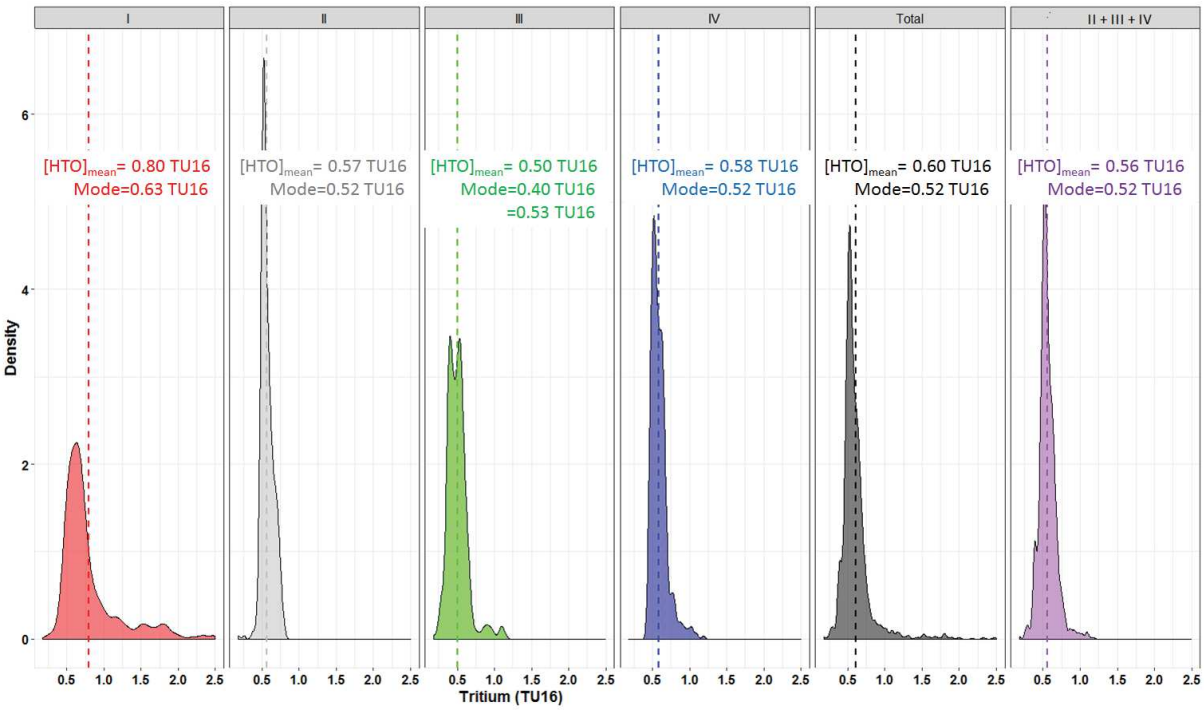
Annexes



Annexe 1 – Mean decay-corrected tritium concentration (TU16) from 0 to 500 m depth according to latitude between years 1967 and 2016. For the North Atlantic Ocean, the concentration between 45°N and 60°N is an average of tritium concentrations in box I and II, and the concentration between 30°N and 45°N is an average of tritium concentrations in box III and IV. The error bars represent the standard deviations of the averaged concentrations.



Annexe 2 – Mean decay-corrected tritium concentration for each 100 m layer between 0 and 7000 depth. In the North-Atlantic Ocean, the vertical distribution is an average of all tritium measurements in boxes I, II, III, IV, Vand VI; in the South-Atlantic Ocean it is an average of boxes VII, VIII and IX; in the Indian Ocean is is an average of boxes X, XI, XII and XIII; in the North-Pacific Ocean it is an average of boxes XIV, XV, XVI and XVII; and in the South-Pacific Ocean it is an average of boxes XVIII, XIX and XX.



Annexe 3 – Density distributions of tritium (HTO) concentrations in the different areas averaged between 0 and 500 m and between years 1967 and 2013. The vertical lines represent the mean tritium concentrations in each area. The tritium concentration at which density is maximal (mode) is indicated as well

Annexe 4: Tritium concentrations measured and simulated with the background concentration associated, measurement technique and laboratory. BC is the background concentration used; MEAS. is the abbreviation for measured and SIM. for simulated.

CAMPAIGN	SAMPLE ID	DATE (DD/MM/YYYY)	HOUR (HH:MM)	LONG. (°W)	LAT. (°N)	DEPTH (m)	SALINITY MEAS.	HTO MEAS. (Bq.m^{-3})	HTO ERROR (Bq.m^{-3})	SALINITY SIM.	HTO LOIRE SIM. (Bq.m^{-3})	HTO GIRONDE SIM. (Bq.m^{-3})	HTO CHANNEL SIM. (Bq.m^{-3})	BC (Bq.m^{-3})	HTO TOT SIM.+BC (Bq.m^{-3})	Measurements Technique	Laboratory
ASPEX 2009	200940001	13/07/2009	11:57	-4.500	47.790	70	35.42	119	16	35.47	0.4	0.1	0.9	99.3	101	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2009	200940002	13/07/2009	11:57	-4.500	47.790	5	35.25	143	11	35.44	3.2	0.3	1.0	99.3	104	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940003	13/07/2009	16:11	-4.890	47.490	1	NaN	118	11	35.48	0.1	0.0	0.8	99.3	100	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940004	13/07/2009	21:10	-5.260	47.210	153	35.62	101	13	35.51	0.1	0.1	0.5	99.3	100	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940005	13/07/2009	21:10	-5.260	47.210	5	35.54	106	5	35.54	0.2	0.2	0.2	99.3	100	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2009	200940006	14/07/2009	01:30	-5.480	46.920	400	35.62	83	14	35.68	0.2	0.1	0.0	94.5	95	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2009	200940007	14/07/2009	01:30	-5.480	46.920	5	35.54	95	2	35.69	1.4	1.1	0.0	99.3	102	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2009	200940008	14/07/2009	09:35	-6.010	46.670	4300	34.90	2	11	35.17	0.0	0.0	0.0	3.3	3	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940009	14/07/2009	09:35	-6.010	46.670	5	35.63	105	11	35.67	1.7	1.8	0.0	99.3	103	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940010	14/07/2009	16:50	-5.150	46.360	1	NaN	105	11	35.48	7.0	9.5	0.1	99.3	116	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940011	14/07/2009	19:30	-4.750	46.620	1	NaN	106	5	35.54	4.5	5.4	0.1	99.3	109	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2009	200940012	14/07/2009	22:54	-4.320	46.910	1	NaN	212	11	35.37	16.4	3.5	0.5	99.3	120	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940013	15/07/2009	04:15	-3.860	47.200	1	NaN	194	11	35.30	20.7	2.2	0.6	99.3	123	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940014	15/07/2009	05:43	-3.350	47.520	1	NaN	194	11	35.23	28.6	3.4	0.4	99.3	132	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940017	15/07/2009	17:30	-2.960	46.860	48	35.30	120	16	35.35	14.9	4.0	0.4	99.3	119	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2009	200940018	15/07/2009	17:37	-2.960	46.860	5	34.70	279	11	34.84	72.7	21.8	0.5	99.3	194	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940019	15/07/2009	22:18	-3.620	46.440	1	NaN	278	11	35.17	38.6	9.0	0.5	99.3	147	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940020	15/07/2009	04:47	-3.970	46.250	5	34.80	194	4	35.41	14.0	9.3	0.2	99.3	123	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2009	200940021	15/07/2009	04:47	-3.970	46.250	148	35.55	113	2	35.58	3.4	1.4	0.2	99.3	104	3He regrowth	LSCE

ASPEX 2009	200940022	16/07/2009	08:45	-4.180	46.120	1	NaN	154	6	35.58	4.0	5.0	0.1	99.3	108	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2009	200940023	16/07/2009	16:30	-3.880	45.280	1	NaN	130	11	35.05	24.8	29.4	0.2	99.3	154	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940024	16/07/2009	19:05	-3.460	45.460	1	NaN	142	6	35.29	14.9	19.4	0.1	99.3	134	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2009	200940025	17/07/2009	00:00	-3.000	45.650	5	34.50	198	6	34.90	41.7	34.9	0.3	99.3	176	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2009	200940026	17/07/2009	00:00	-3.000	45.650	120	35.60	103	11	35.45	7.4	3.2	0.4	99.3	110	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940027	17/07/2009	00:47	-2.630	45.810	5	34.45	290	11	34.39	129.7	39.9	0.5	99.3	269	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940028	17/07/2009	04:20	-2.060	46.030	5	34.50	333	11	34.44	104.3	45.7	0.6	99.3	250	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940029	17/07/2009	06:56	-1.610	46.010	1	NaN	296	11	34.41	102.2	24.1	0.6	99.3	226	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940030	17/07/2009	09:54	-1.870	45.660	1	NaN	336	11	34.32	150.3	43.0	0.6	99.3	293	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940031	17/07/2009	14:48	-2.270	45.250	1	NaN	286	13	34.49	97.0	41.6	0.5	99.3	238	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940032	18/07/2009	09:36	-2.460	46.000	1	NaN	147	11	34.35	144.5	41.5	0.6	99.3	286	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940033	18/07/2009	16:17	-2.910	44.000	5	35.00	118	11	34.69	40.4	39.4	0.3	99.3	179	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940034	18/07/2009	17:49	-2.910	43.980	1480	35.40	63	11	35.64	0.0	0.0	0.0	59.2	59	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940035	18/07/2009	17:49	-2.910	43.980	1480	35.40	60	18	35.64	0.0	0.0	0.0	59.2	59	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2009	200940036	18/07/2009	21:57	-2.140	44.000	5	35.00	122	2	34.44	63.5	47.0	0.4	99.3	210	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2009	200940037	19/07/2009	06:02	-1.520	44.000	5	34.80	156	11	34.73	54.5	33.1	0.5	99.3	187	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2009	200940038	20/07/2009	04:46	-1.680	44.770	1	NaN	211	5	34.31	162.7	31.0	0.6	99.3	294	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040001	31/08/2010	11:34	-4.500	47.783	70	35.53	103	11	35.39	21.1	8.1	0.3	95.5	125	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2010	201040002	31/08/2010	11:34	-4.500	47.783	1	35.32	135	10	35.20	44.7	17.6	0.3	95.5	158	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040003	31/08/2010	15:19	-4.933	47.476	1	NaN	123	4	35.37	24.3	8.7	0.3	95.5	129	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040004	01/09/2010	04:00	-5.986	46.678	4413	34.90	10	8	35.09	0.0	0.0	0.0	3.3	3	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040005	01/09/2010	04:00	-5.986	46.678	3002	34.94	19	12	35.10	0.0	0.0	0.0	20.0	20	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040006	01/09/2010	04:00	-5.986	46.678	2001	34.99	58	7	35.37	0.0	0.0	0.0	43.8	44	3He regrowth	LSCE

ASPEX 2010	201040007	01/09/2010	04:00	-5.986	46.678	1191	35.73	58	11	35.73	0.0	0.0	0.0	68.1	68	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040008	01/09/2010	04:00	-5.986	46.678	988	35.81	61	8	35.82	0.0	0.0	0.0	70.9	71	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040009	01/09/2010	04:00	-5.986	46.678	788	35.69	67	6	35.90	0.0	0.0	0.0	79.6	80	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040010	01/09/2010	04:00	-5.986	46.678	497	35.61	73	8	35.74	0.1	0.1	0.0	88.2	88	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040011	01/09/2010	04:00	-5.986	46.678	103	35.66	77	5	35.71	1.2	0.7	0.0	95.5	97	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040012	01/09/2010	04:00	-5.986	46.678	1	35.76	111	11	35.68	1.4	0.8	0.0	95.5	98	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2010	201040013	01/09/2010	08:10	-5.480	46.924	470	35.62	83	7	35.74	0.5	0.3	0.0	90.6	91	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040014	01/09/2010	08:10	-5.480	46.924	1	35.76	92	6	35.39	28.1	13.2	0.1	95.5	137	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040016	01/09/2010	17:26	-5.236	46.302	3735	34.91	6	5	35.10	0.0	0.0	0.0	6.9	7	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040017	01/09/2010	17:26	-5.236	46.302	3735	34.91	4	4	35.10	0.0	0.0	0.0	6.9	7	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040018	01/09/2010	17:26	-5.236	46.302	2000	35.02	39	1	35.28	0.0	0.0	0.0	40.0	40	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040019	01/09/2010	17:26	-5.236	46.302	1000	35.78	58	2	35.82	0.0	0.0	0.0	76.7	77	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040020	01/09/2010	17:26	-5.236	46.302	500	35.62	76	1	35.77	0.2	0.1	0.0	88.2	89	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040021	01/09/2010	17:26	-5.236	46.302	100	35.65	75	5	35.68	1.3	0.7	0.0	95.5	97	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040022	01/09/2010	17:26	-5.236	46.302	1	35.66	136	2	35.53	8.3	10.6	0.1	95.5	114	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040023	02/09/2010	00:04	-4.666	46.674	1	NaN	107	4	35.31	33.9	17.2	0.2	95.5	147	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040024	02/09/2010	04:06	-4.330	46.908	139	35.59	88	1	35.63	3.4	1.7	0.1	95.5	101	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040025	02/09/2010	04:06	-4.330	46.908	1	35.54	123	11	35.43	18.9	7.8	0.2	95.5	122	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2010	201040026	02/09/2010	08:30	-3.866	47.201	1	NaN	134	11	34.91	87.0	29.3	0.3	95.5	212	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2010	201040027	02/09/2010	11:45	-3.393	47.504	1	NaN	175	11	35.16	49.9	19.5	0.3	95.5	165	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2010	201040028	02/09/2010	16:54	-2.946	46.862	53	35.50	101	1	35.37	25.7	13.4	0.2	95.5	135	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040029	02/09/2010	16:57	-2.946	46.862	1	35.31	153	1	34.86	96.9	31.4	0.2	95.5	224	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040030	02/09/2010	19:03	-2.789	46.929	1	NaN	182	11	34.79	107.7	32.9	0.3	95.5	236	Electrolytic enrichment	RSMAS

ASPEX 2010	201040031	03/09/2010	01:03	-3.740	46.377	1	NaN	205	11	35.41	22.3	10.0	0.2	95.5	128	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2010	201040033	03/09/2010	12:45	-3.968	46.249	1	35.45	136	6	35.55	9.4	8.9	0.1	95.5	114	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040034	03/09/2010	18:16	-3.932	45.265	1	NaN	130	11	35.38	10.0	25.1	0.1	95.5	131	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2010	201040035	03/09/2010	21:08	-3.457	45.462	1	NaN	191	21	34.85	17.8	61.5	0.1	95.5	175	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040037	03/09/2010	21:08	-3.457	45.462	1	NaN	205	8	34.85	17.8	61.5	0.1	95.5	175	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040038	04/09/2010	04:02	-2.517	45.855	1	NaN	259	11	34.52	156.6	37.0	0.3	95.5	289	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2010	201040039	04/09/2010	06:38	-2.086	46.032	1	NaN	199	7	34.84	98.7	31.4	0.2	95.5	226	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040040	04/09/2010	08:39	-1.791	45.855	1	NaN	238	11	34.67	130.9	32.6	0.2	95.5	259	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2010	201040041	04/09/2010	14:01	-2.294	45.218	1	NaN	235	11	34.89	42.6	52.7	0.2	95.5	191	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2010	201040042	04/09/2010	17:56	-2.663	44.756	1	NaN	172	8	35.16	9.3	36.9	0.1	95.5	142	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040044	05/09/2010	02:27	-2.145	44.999	1	35.13	163	5	34.88	52.4	51.0	0.2	95.5	199	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040046	05/09/2010	04:20	-2.469	44.003	1	35.27	192	41	35.45	3.4	5.2	0.0	95.5	104	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040050	05/09/2010	10:27	-2.897	44.002	1400	35.46	73	35	35.54	0.0	0.0	0.0	59.2	59	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040051	05/09/2010	10:27	-2.897	44.002	1200	35.70	69	11	35.79	0.0	0.0	0.0	70.9	71	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040052	05/09/2010	10:27	-2.897	44.002	1000	35.81	66	7	35.85	0.0	0.0	0.0	73.8	74	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040053	05/09/2010	10:27	-2.897	44.002	800	35.73	76	14	35.87	0.1	0.0	0.0	79.6	80	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040054	05/09/2010	10:27	-2.897	44.002	600	35.62	82	10	35.83	0.1	0.1	0.0	85.3	86	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040055	05/09/2010	10:27	-2.897	44.002	400	35.63	87	7	35.73	0.5	0.3	0.0	90.6	91	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040056	05/09/2010	10:27	-2.897	44.002	1	35.27	182	13	35.13	9.9	42.5	0.1	95.5	148	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2010	201040057	06/09/2010	01:05	-1.567	44.000	70	35.60	95	8	35.64	3.0	2.6	0.0	95.5	101	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040058	06/09/2010	01:05	-1.567	44.000	1	35.08	147	11	35.16	23.3	30.3	0.1	95.5	149	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2010	201040059	06/09/2010	06:59	-1.703	45.025	1	NaN	195	7	34.62	110.6	45.5	0.2	95.5	252	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040060	06/09/2010	15:00	-2.807	45.788	1	NaN	266	11	34.84	73.2	46.1	0.2	95.5	215	Electrolytic enrichment	RSMAS

ASPEX 2010	201040061	06/09/2010	23:00	-3.941	46.562	1	NaN	144	4	35.31	32.8	18.4	0.1	95.5	147	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040062	07/09/2010	07:00	-5.084	47.330	1	NaN	118	8	35.39	20.9	7.6	0.3	95.5	124	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040063	07/09/2010	15:56	-6.406	48.204	1	NaN	97	10	35.53	0.3	0.1	0.7	95.5	97	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2010	201040064	07/09/2010	23:26	-5.282	48.267	1	NaN	136	11	35.48	4.3	0.5	1.4	95.5	102	Electrolytic enrichment	RSMAS
ASPEX 2011	201140002	07/08/2011	10:53	-4.503	47.792	1	35.50	122	13	35.48	21.5	8.2	0.1	91.9	122	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140003	07/08/2011	17:17	-4.880	47.519	1	NaN	116	14	35.50	16.4	6.5	0.2	91.9	115	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140004	08/08/2011	00:00	-6.001	46.666	1	35.60	93	5	35.77	1.6	2.5	0.0	91.9	96	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140014	08/08/2011	00:00	-6.001	46.666	500	35.60	82	1	35.82	0.2	0.1	0.0	84.7	85	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140015	08/08/2011	00:00	-6.001	46.666	100	35.70	87	1	35.85	0.3	0.3	0.0	91.9	93	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140016	08/08/2011	10:00	-5.487	46.920	320	35.65	95	1	35.75	0.5	0.4	0.0	89.5	90	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140017	08/08/2011	10:00	-5.487	46.920	1	35.52	116	1	35.65	2.2	1.6	0.9	91.9	97	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140018	08/08/2011	13:28	-5.265	47.210	155	35.67	97	2	35.71	3.0	1.9	0.1	91.9	97	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140019	08/08/2011	13:28	-5.265	47.210	1	35.45	125	4	35.52	11.0	4.3	0.6	91.9	108	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140020	09/08/2011	06:10	-3.391	46.077	1	NaN	126	6	35.06	79.7	36.6	0.1	91.9	208	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140021	09/08/2011	13:56	-2.368	45.300	1	NaN	179	2	35.14	53.8	45.7	0.0	91.9	191	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140022	09/08/2011	21:56	-1.651	44.739	1	NaN	117	16	35.18	44.3	46.6	0.0	91.9	183	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140023	10/08/2011	04:18	-2.142	44.001	475	35.88	88	2	35.86	0.2	0.1	0.0	87.1	87	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140024	10/08/2011	04:18	-2.142	44.001	1	33.60	182	2	35.30	39.7	36.8	0.0	91.9	168	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140026	10/08/2011	07:19	-2.032	44.002	1	35.38	157	10	35.31	38.2	37.3	0.0	91.9	167	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140028	10/08/2011	10:50	-1.564	44.001	1	35.10	114	13	35.46	2.8	7.6	0.0	91.9	102	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140030	10/08/2011	15:07	-1.516	44.003	1	35.20	111	5	35.46	2.8	7.5	0.0	91.9	102	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140035	11/08/2011	06:10	-2.473	44.006	1	35.30	180	4	34.94	76.8	57.5	0.0	91.9	226	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140043	11/08/2011	00:00	-2.626	44.801	1	NaN	131	6	35.61	15.1	16.0	0.0	91.9	123	3He regrowth	LSCE

ASPEX 2011	201140044	11/08/2011	00:00	-2.243	45.283	1	NaN	170	5	35.09	66.9	44.1	0.0	91.9	203	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140045	12/08/2011	06:09	-1.777	45.858	1	NaN	108	1	34.98	68.5	58.3	0.0	91.9	219	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140046	12/08/2011	08:35	-2.060	46.030	1	NaN	145	6	35.04	80.1	40.2	0.1	91.9	212	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140047	12/08/2011	11:00	-2.454	45.879	1	NaN	191	7	34.98	71.5	57.5	0.0	91.9	221	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140049	12/08/2011	14:45	-3.012	45.652	1	35.58	164	2	35.29	46.7	29.4	0.0	91.9	168	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140050	12/08/2011	18:17	-3.472	45.454	1	NaN	125	19	35.43	24.0	31.3	0.0	91.9	147	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140052	13/08/2011	05:09	-4.526	45.267	1	35.80	94	1	35.63	12.1	15.5	0.0	91.9	119	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140065	13/08/2011	10:40	-3.967	46.252	1	35.70	118	1	35.60	9.3	4.6	0.3	91.9	106	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140067	13/08/2011	13:07	-4.180	46.123	1	35.70	113	1	35.68	4.9	3.9	0.1	91.9	101	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140068	13/08/2011	00:00	-3.622	46.445	1	NaN	167	33	35.29	48.1	22.3	0.1	91.9	162	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140069	13/08/2011	05:45	-2.666	47.001	1	NaN	211	8	35.26	65.0	18.1	0.1	91.9	175	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140070	14/08/2011	07:31	-2.947	46.860	47	NaN	131	1	35.24	48.0	29.7	0.1	91.9	170	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140071	14/08/2011	07:31	-2.947	46.860	1	NaN	195	6	35.06	81.8	34.6	0.1	91.9	208	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140072	14/08/2011	12:40	-3.403	47.499	1	NaN	150	29	35.39	33.7	15.2	0.1	91.9	141	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140074	15/08/2011	16:03	-3.863	47.205	1	NaN	129	14	35.35	37.3	17.9	0.1	91.9	147	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140075	15/08/2011	18:10	-4.181	47.777	1	NaN	122	2	35.37	24.3	11.4	0.1	91.9	128	3He regrowth	LSCE
ASPEX 2011	201140077	15/08/2011	19:49	-4.336	46.898	1	35.47	120	2	35.54	14.0	7.2	0.3	91.9	113	3He regrowth	LSCE
DYNSEDIM	201650001	15/03/2016	11:28	-4.473	47.674	100	35.39	108	17	35.60	12.7	5.7	0.2	78.2	97	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650002	15/03/2016	11:33	-4.473	47.674	2	35.26	122	9	35.60	12.9	5.7	0.2	78.2	97	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650003	15/03/2016	15:47	-5.124	47.581	123	35.48	83	28	35.66	5.6	2.8	0.3	78.2	87	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650004	15/03/2016	15:55	-5.124	47.581	3	35.48	90	6	35.66	5.8	2.9	0.3	78.2	87	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650005	15/03/2016	19:22	-5.384	47.435	147	35.50	87	6	35.67	4.8	2.7	0.2	78.2	86	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650007	15/03/2016	22:41	-5.018	46.951	151	35.55	77	5	35.71	3.5	2.0	0.0	78.2	84	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650008	15/03/2016	22:46	-5.018	46.951	2	35.55	79	6	35.71	3.5	2.0	0.0	78.2	84	3He regrowth	LMRE

DYNSEDIM	201650009	16/03/2016	03:05	-4.564	46.701	145	35.51	78	13	35.71	4.1	2.5	0.0	78.2	85	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650010	16/03/2016	03:11	-4.564	46.701	3	35.50	92	7	35.71	4.1	2.5	0.0	78.2	85	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650011	16/03/2016	07:18	-4.093	46.322	151	35.59	64	20	35.67	6.4	3.9	0.0	78.2	89	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650012	16/03/2016	07:23	-4.093	46.322	3	35.58	70	12	35.66	7.1	4.3	0.0	78.2	90	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650014	16/03/2016	11:41	-3.615	45.898	2	35.57	81	6	35.71	3.6	2.8	0.0	78.2	85	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650015	16/03/2016	16:10	-3.589	46.316	128	35.44	97	7	35.52	18.3	9.2	0.0	78.2	106	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650016	16/03/2016	16:16	-3.589	46.316	3	35.26	118	19	35.51	19.1	9.5	0.0	78.2	107	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650017	16/03/2016	19:15	-2.940	46.594	101	35.33	113	8	35.39	38.3	12.7	0.0	78.2	129	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650018	16/03/2016	19:18	-2.940	46.594	2	34.69	209	15	34.27	313.2	18.2	0.1	78.2	410	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650019	16/03/2016	23:22	-3.361	47.047	94	35.24	132	13	35.25	69.5	13.5	0.1	78.2	161	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650020	16/03/2016	23:28	-3.361	47.047	3	34.30	353	25	35.19	84.3	14.0	0.1	78.2	177	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650021	17/03/2016	03:18	-4.004	47.314	102	35.27	129	9	35.40	33.8	12.4	0.1	78.2	124	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650023	18/03/2016	04:10	-3.281	47.292	48	35.00	187	13	35.26	49.6	11.1	0.1	78.2	139	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650025	18/03/2016	08:11	-2.683	46.888	49	34.91	207	17	35.16	87.3	12.5	0.1	78.2	178	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650029	18/03/2016	19:40	-3.988	46.774	128	35.46	80	25	35.50	20.9	10.0	0.1	78.2	109	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650031	18/03/2016	23:41	-4.652	47.288	129	35.36	102	15	35.59	12.1	6.5	0.0	78.2	97	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650032	18/03/2016	23:47	-4.652	47.288	3	35.38	101	12	35.60	11.6	6.3	0.0	78.2	96	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650033	19/03/2016	04:56	-4.115	47.794	51	35.07	149	10	34.88	46.8	10.3	0.1	78.2	135	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650034	19/03/2016	04:59	-4.115	47.794	3	35.07	154	11	34.83	46.7	10.3	0.1	78.2	135	3He regrowth	LMRE
DYNSEDIM	201650035	20/03/2016	00:23	-4.581	47.926	54	35.13	135	9	35.43	26.4	8.1	0.1	78.2	113	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668001	02/05/2016	19:47	-1.467	43.667	2	34.26	93	32	33.88	0.9	1.4	0.0	78.2	80	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668002	02/05/2016	19:47	-1.467	43.667	52	35.56	75	5	35.76	0.9	0.8	0.0	78.2	80	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668003	02/05/2016	21:45	-1.733	43.672	2	34.41	93	6	35.28	1.1	2.1	0.0	78.2	81	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668004	02/05/2016	23:56	-1.999	43.670	2	34.57	89	8	35.68	2.1	4.9	0.0	78.2	85	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668006	04/05/2016	01:42	-1.383	44.066	2	34.81	117	8	35.13	36.8	27.0	0.0	78.2	142	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668008	04/05/2016	00:26	-1.584	44.067	1	34.74	119	8	35.18	3.2	7.2	0.0	78.2	89	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668009	03/05/2016	22:55	-1.784	44.066	2	34.67	99	7	35.28	5.2	10.6	0.0	78.2	94	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668010	03/05/2016	22:55	-1.784	44.066	116	35.58	64	31	35.70	3.6	4.6	0.0	78.2	86	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668011	04/05/2016	20:10	-1.301	44.466	2	34.39	148	10	34.82	76.7	49.9	0.0	78.2	205	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668013	04/05/2016	21:42	-1.500	44.468	2	33.76	226	16	33.69	173.9	117.8	0.1	78.2	370	3He regrowth	LMRE

PELGAS	201668014	04/05/2016	21:42	-1.500	44.468	69	35.47	80	8	35.51	12.6	13.1	0.0	78.2	104	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668015	04/05/2016	23:00	-1.734	44.468	2	34.83	94	7	34.29	128.1	83.2	0.1	78.2	290	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668016	05/05/2016	01:22	-2.106	44.469	2	35.30	76	10	35.36	20.1	27.6	0.0	78.2	126	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668019	05/05/2016	23:56	-1.515	44.868	2	33.06	287	20	32.45	177.7	200.2	0.1	78.2	456	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668020	05/05/2016	23:56	-1.515	44.868	52	35.35	81	19	35.32	22.4	30.5	0.0	78.2	131	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668022	05/05/2016	21:11	-1.998	44.869	2	33.82	211	15	34.44	98.6	85.8	0.0	78.2	263	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668024	06/05/2016	22:17	-2.497	44.867	2	35.50	86	6	35.76	1.2	1.2	0.0	78.2	81	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668025	08/05/2016	00:35	-1.276	45.168	2	33.65	255	18	33.90	176.9	86.4	0.1	78.2	342	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668026	08/05/2016	00:35	-1.276	45.168	27	35.11	131	9	34.51	164.1	54.2	0.1	78.2	297	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668027	07/05/2016	22:41	-1.683	45.168	1	32.93	302	21	33.34	169.8	145.2	0.1	78.2	393	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668029	08/05/2016	05:06	-1.273	45.484	1	33.63	301	21	33.10	190.4	132.3	0.1	78.2	401	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668030	08/05/2016	05:06	-1.273	45.484	25	34.90	184	13	34.62	156.6	40.8	0.1	78.2	276	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668033	08/05/2016	02:59	-1.671	45.335	2	33.20	282	20	34.05	146.7	115.5	0.1	78.2	340	^{3}He regrowth	LMRE
PELGAS	201668034	08/05/2016	02:59	-1.671	45.335	42	35.27	114	8	34.89	116.5	46.9	0.1	78.2	242	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668037	09/05/2016	00:16	-1.416	45.660	22	34.25	276	19	34.35	165.3	51.8	0.1	78.2	295	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668038	08/05/2016	21:48	-1.650	45.558	2	33.58	286	20	33.81	175.0	101.4	0.1	78.2	355	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668040	08/05/2016	19:17	-1.922	45.450	2	33.59	268	19	33.99	143.4	113.0	0.1	78.2	335	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668041	08/05/2016	19:17	-1.922	45.450	42	35.24	129	9	34.86	81.5	75.2	0.1	78.2	235	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668044	11/05/2016	20:25	-1.637	46.015	3	33.88	309	22	34.26	164.1	71.1	0.1	78.2	313	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668045	11/05/2016	20:25	-1.637	46.015	33	34.59	243	17	34.68	157.7	31.8	0.1	78.2	268	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668046	11/05/2016	21:56	-1.843	45.926	2	34.14	244	17	34.83	123.9	47.1	0.1	78.2	249	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668047	11/05/2016	21:56	-1.843	45.926	53	34.96	184	13	35.20	82.3	18.4	0.1	78.2	179	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668050	12/05/2016	01:16	-2.350	45.720	2	34.09	239	17	34.44	102.8	94.5	0.1	78.2	276	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668051	12/05/2016	01:16	-2.350	45.720	97	35.39	104	7	35.41	31.8	19.4	0.0	78.2	129	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668052	10/05/2016	19:47	-2.712	45.574	2	34.71	147	16	34.87	60.9	64.0	0.0	78.2	203	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668053	10/05/2016	22:08	-3.123	45.405	2	35.58	101	10	35.76	1.2	1.2	0.0	78.2	81	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668054	11/05/2016	01:13	-3.500	45.251	2	35.57	84	6	35.75	1.4	2.7	0.0	78.2	82	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668057	12/05/2016	23:43	-2.050	46.307	2	34.39	291	20	34.53	172.2	39.7	0.1	78.2	290	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668058	12/05/2016	23:43	-2.050	46.307	38	34.81	214	15	34.83	143.1	22.7	0.1	78.2	244	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668059	12/05/2016	21:53	-2.329	46.198	2	34.61	228	16	34.95	94.8	46.0	0.1	78.2	219	3He regrowth	LMRE

PELGAS	201668060	12/05/2016	21:53	-2.329	46.198	51	34.82	207	14	35.01	114.0	25.1	0.1	78.2	217	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668061	12/05/2016	19:58	-2.685	46.059	2	34.30	205	14	34.63	86.9	94.1	0.0	78.2	259	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668063	14/05/2016	01:29	-3.066	45.899	2	34.71	164	11	34.64	84.5	91.3	0.0	78.2	254	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668064	14/05/2016	01:29	-3.066	45.899	65	35.49	90	6	35.51	20.2	14.4	0.0	78.2	113	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668065	13/05/2016	22:54	-3.502	45.730	2	35.50	103	7	35.69	4.9	6.4	0.0	78.2	89	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668066	13/05/2016	19:40	-3.804	45.592	2	35.62	78	5	35.76	1.1	1.6	0.0	78.2	81	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668067	15/05/2016	19:57	-2.327	46.666	2	34.15	304	21	34.05	268.1	34.6	0.1	78.2	381	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668068	15/05/2016	19:57	-2.327	46.666	30	34.92	227	16	35.07	106.2	15.7	0.1	78.2	200	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668076	15/05/2016	01:37	-4.199	45.918	2	35.62	81	12	35.75	1.6	1.4	0.0	78.2	81	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668081	16/05/2016	22:15	-2.881	46.894	2	33.93	434	30	34.55	194.0	25.2	0.1	78.2	298	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668089	17/05/2016	20:13	-2.728	47.187	2	32.50	575	40	31.82	572.9	14.5	0.1	78.2	666	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668090	17/05/2016	20:13	-2.728	47.187	36	34.79	251	18	34.89	136.2	13.3	0.1	78.2	228	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668091	17/05/2016	21:58	-3.020	47.081	2	33.68	435	30	33.32	408.1	18.5	0.1	78.2	505	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668092	17/05/2016	21:58	-3.020	47.081	56	35.06	225	19	35.25	66.7	13.3	0.1	78.2	158	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668093	18/05/2016	00:00	-3.394	46.923	2	34.93	193	13	35.42	34.0	11.7	0.0	78.2	124	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668095	18/05/2016	02:18	-3.255	47.188	2	33.88	400	28	34.13	276.5	19.5	0.1	78.2	374	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668097	18/05/2016	21:03	-3.334	47.452	3	33.75	346	24	34.16	273.9	16.1	0.1	78.2	368	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668098	18/05/2016	21:03	-3.334	47.452	39	35.02	153	49	34.88	139.2	14.5	0.1	78.2	232	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668100	18/05/2016	22:58	-3.594	47.317	92	35.21	151	11	35.43	32.7	10.3	0.1	78.2	121	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668102	19/05/2016	01:04	-3.839	47.183	62	35.29	122	18	35.54	17.5	7.9	0.1	78.2	104	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668103	19/05/2016	03:09	-4.106	47.030	2	35.36	95	21	35.61	11.4	6.0	0.0	78.2	96	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668104	19/05/2016	03:09	-4.106	47.030	120	35.39	98	7	35.62	10.6	5.5	0.0	78.2	94	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668105	25/05/2016	20:14	-4.395	46.866	2	35.32	116	11	35.69	4.9	3.4	0.0	78.2	86	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668109	20/05/2016	01:02	-3.890	47.639	2	34.35	285	20	34.57	177.8	13.0	0.1	78.2	269	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668110	20/05/2016	01:02	-3.890	47.639	42	35.27	129	9	35.46	33.8	8.2	0.1	78.2	120	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668111	19/05/2016	23:20	-4.117	47.486	2	34.36	291	20	34.56	199.5	15.9	0.1	78.2	294	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668112	19/05/2016	23:20	-4.117	47.486	100	35.40	113	8	35.57	15.1	6.6	0.1	78.2	100	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668114	19/05/2016	21:28	-4.332	47.317	73	35.40	121	8	35.60	12.4	5.7	0.1	78.2	96	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668115	19/05/2016	19:21	-4.648	47.081	2	35.52	94	8	35.66	7.7	4.1	0.0	78.2	90	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668116	22/05/2016	17:00	-4.929	47.190	2	35.54	65	23	35.70	4.1	2.4	0.1	78.2	85	3He regrowth	LMRE

PELGAS	201668122	20/05/2016	21:47	-4.595	47.726	94	35.45	95	7	35.63	8.7	4.0	0.2	78.2	91	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668123	20/05/2016	23:34	-4.789	47.582	2	34.83	194	34	35.51	31.3	5.4	0.1	78.2	115	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668125	27/05/2016	01:23	-5.483	47.060	2	35.56	82	6	35.72	2.0	1.4	0.0	78.2	82	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668128	21/05/2016	21:52	-5.581	47.281	2	35.55	68	20	35.71	2.6	1.7	0.0	78.2	82	3He regrowth	LMRE
PELGAS	201668130	21/05/2016	18:40	-5.815	47.094	503	35.57	69	10	35.79	0.1	0.1	0.0	71.0	71	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669001	20/05/2016	11:01	-4.495	48.361	3	34.51	181	11	34.44	71.6	8.4	0.1	78.2	158	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669004	20/05/2016	12:53	-4.826	48.247	3	34.98	182	11	35.11	82.6	8.4	0.2	78.2	169	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669008	20/05/2016	15:27	-5.155	48.019	6	34.98	148	11	34.96	119.4	10.8	0.1	78.2	209	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669009	20/05/2016	15:27	-5.155	48.019	10	35.19	134	11	34.97	118.8	10.8	0.1	78.2	208	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669010	20/05/2016	15:27	-5.155	48.019	73	35.27	124	11	35.39	45.7	5.8	0.2	78.2	130	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669013	20/05/2016	17:52	-4.754	47.889	3	34.60	230	11	35.03	100.5	9.4	0.1	78.2	188	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669016	20/05/2016	19:35	-4.350	47.756	3	35.11	178	11	34.97	110.3	10.0	0.1	78.2	199	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669017	20/05/2016	20:10	-4.223	47.712	3	34.86	218	15	34.93	115.9	10.2	0.1	78.2	204	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669018	21/05/2016	05:00	-3.974	47.736	3	34.68	265	11	34.74	155.4	12.6	0.1	78.2	246	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669023	21/05/2016	08:17	-3.856	47.441	3	34.60	257	18	34.50	200.1	14.7	0.1	78.2	293	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669024	21/05/2016	08:48	-3.804	47.381	3	34.66	243	11	34.63	183.9	15.7	0.1	78.2	278	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669025	21/05/2016	09:29	-3.736	47.303	3	34.40	291	11	34.96	123.2	14.3	0.1	78.2	216	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669027	21/05/2016	12:09	-3.565	47.105	3	34.67	254	11	35.52	18.3	9.1	0.1	78.2	106	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669028	21/05/2016	12:09	-3.565	47.105	27	35.02	175	11	35.49	21.8	9.8	0.1	78.2	110	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669029	21/05/2016	12:09	-3.565	47.105	104	35.26	120	11	35.48	24.3	9.9	0.1	78.2	113	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669032	21/05/2016	14:52	-3.273	47.164	3	34.35	281	11	34.12	279.1	15.7	0.1	78.2	373	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669033	21/05/2016	14:52	-3.273	47.164	26	34.90	182	11	35.16	85.4	14.2	0.1	78.2	178	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669034	21/05/2016	14:52	-3.273	47.164	81	35.18	173	11	35.37	41.6	12.0	0.1	78.2	132	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669036	21/05/2016	16:22	-3.054	47.255	3	34.01	323	11	34.14	269.5	15.8	0.1	78.2	364	Electrolytic enrichment	RSMAS

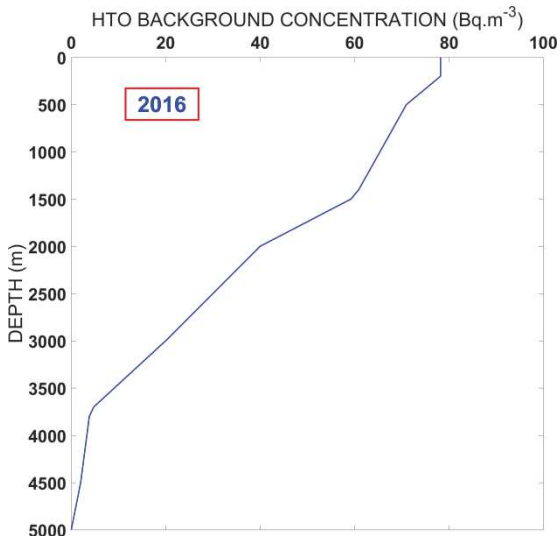
PLUME	201669037	21/05/2016	16:22	-3.054	47.255	17	34.42	253	11	34.36	227.0	14.4	0.1	78.2	320	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669038	21/05/2016	16:22	-3.054	47.255	21	34.85	173	11	34.55	193.2	14.1	0.1	78.2	286	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669039	21/05/2016	16:22	-3.054	47.255	46	35.14	156	11	35.35	45.0	12.2	0.1	78.2	136	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669040	21/05/2016	17:28	-2.886	47.301	3	33.93	341	11	34.10	276.4	14.9	0.1	78.2	370	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669041	21/05/2016	17:28	-2.886	47.301	32	34.81	186	11	34.76	154.9	13.3	0.1	78.2	246	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669043	22/05/2016	05:52	-2.926	47.497	3	33.41	426	14	33.88	308.4	13.6	0.1	78.2	400	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669045	22/05/2016	05:52	-2.926	47.497	19	33.59	403	13	34.14	270.4	13.6	0.1	78.2	362	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669048	22/05/2016	07:41	-2.629	47.387	2	29.97	1073	36	32.10	614.0	13.7	0.1	78.2	706	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669049	22/05/2016	07:41	-2.629	47.387	18	34.14	336	11	33.81	323.6	13.7	0.1	78.2	416	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669050	22/05/2016	08:39	-2.705	47.280	3	33.00	502	35	33.90	309.5	14.1	0.1	78.2	402	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669051	22/05/2016	09:20	-2.765	47.199	3	33.59	428	14	33.96	304.0	16.0	0.1	78.2	398	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669052	22/05/2016	09:58	-2.821	47.124	3	33.52	421	14	33.67	355.8	15.9	0.1	78.2	450	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669054	22/05/2016	11:21	-2.939	46.965	3	33.65	417	14	33.24	409.0	17.2	0.1	78.2	505	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669057	22/05/2016	13:21	-2.690	47.032	3	33.09	485	15	33.16	418.6	15.7	0.1	78.2	513	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669059	22/05/2016	14:27	-2.580	47.157	3	33.47	424	14	32.30	560.9	14.2	0.1	78.2	653	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669060	22/05/2016	15:27	-2.528	47.217	3	30.00	1097	36	32.30	562.2	14.2	0.1	78.2	655	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669061	22/05/2016	15:27	-2.528	47.217	20	34.09	343	12	34.19	260.5	14.1	0.1	78.2	353	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669062	22/05/2016	16:15	-2.397	47.212	3	25.65	2272	159	30.54	900.2	14.0	0.1	78.2	992	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669063	22/05/2016	17:03	-2.235	47.250	3	25.20	2174	152	28.66	1236.8	13.3	0.1	78.2	1328	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669064	22/05/2016	21:10	-2.236	47.250	3	14.82	5430	380	20.64	3180.2	9.6	0.1	78.2	3268	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669065	23/05/2016	04:54	-2.235	47.250	3	23.11	4090	290	29.15	1145.6	13.6	0.1	78.2	1237	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669066	23/05/2016	05:29	-2.308	47.170	3	29.98	1335	145	32.18	610.2	15.3	0.1	78.2	704	Mean of liquid scintillation (ALOKA) and 3He regrowth	STEME, LMRE
PLUME	201669067	23/05/2016	06:00	-2.311	47.096	3	29.49	1347	48	32.86	480.4	15.7	0.1	78.2	574	Electrolytic enrichment	RSMAS

PLUME	201669068	23/05/2016	06:42	-2.425	47.047	3	30.71	1120	78	31.07	814.9	14.1	0.1	78.2	907	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669069	23/05/2016	07:14	-2.489	46.990	3	31.14	955	31	33.28	402.4	15.2	0.1	78.2	496	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669070	23/05/2016	07:47	-2.552	46.931	3	32.99	452	15	33.39	385.6	15.2	0.1	78.2	479	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669071	23/05/2016	08:28	-2.635	46.857	3	33.22	470	15	33.54	352.8	24.3	0.1	78.2	455	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669078	23/05/2016	12:44	-2.379	46.515	3	33.38	461	15	33.77	322.8	22.8	0.1	78.2	424	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669079	23/05/2016	12:44	-2.379	46.515	17	34.42	309	31	34.01	280.8	26.2	0.1	78.2	385	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669080	23/05/2016	12:44	-2.379	46.515	53	34.95	203	11	35.11	102.6	16.0	0.1	78.2	197	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669084	23/05/2016	14:54	-2.116	46.692	3	33.69	395	13	33.57	365.1	20.3	0.1	78.2	464	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669085	23/05/2016	14:54	-2.116	46.692	11	34.68	238	11	34.01	286.5	21.4	0.1	78.2	386	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669086	23/05/2016	14:54	-2.116	46.692	21	34.86	207	11	34.55	196.2	22.4	0.1	78.2	297	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669090	24/05/2016	05:06	-2.307	46.722	3	34.22	300	11	33.93	295.8	19.0	0.1	78.2	393	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669092	24/05/2016	07:00	-2.163	46.670	3	33.62	396	13	33.64	343.5	20.5	0.1	78.2	442	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669093	24/05/2016	07:00	-2.163	46.670	14	34.62	222	11	34.10	265.1	21.1	0.1	78.2	364	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669094	24/05/2016	07:00	-2.163	46.670	24	34.94	193	11	35.07	106.6	15.3	0.1	78.2	200	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669097	24/05/2016	09:13	-1.884	46.488	2	33.79	348	12	33.95	246.2	45.5	0.1	78.2	370	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669098	24/05/2016	09:13	-1.884	46.488	15	34.44	237	11	34.03	241.4	43.4	0.1	78.2	363	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669099	24/05/2016	09:13	-1.884	46.488	23	34.68	211	11	34.41	181.1	38.0	0.1	78.2	297	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669101	24/05/2016	10:45	-2.061	46.375	3	34.09	322	11	34.13	240.0	38.0	0.1	78.2	356	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669103	24/05/2016	12:06	-2.255	46.251	3	33.68	403	13	34.25	179.6	52.0	0.1	78.2	310	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669105	24/05/2016	13:52	-2.333	46.293	3	33.44	470	15	34.34	181.2	45.6	0.1	78.2	305	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669106	24/05/2016	14:27	-2.313	46.388	4	33.69	380	42	34.05	242.4	39.3	0.1	78.2	360	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669107	24/05/2016	14:27	-2.313	46.388	19	34.36	304	21	34.53	173.4	35.7	0.1	78.2	287	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669108	24/05/2016	14:27	-2.313	46.388	50	34.89	203	14	35.05	110.5	17.0	0.1	78.2	206	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669109	24/05/2016	15:06	-2.292	46.485	3	33.62	427	14	33.74	334.7	21.2	0.1	78.2	434	Electrolytic enrichment	RSMAS

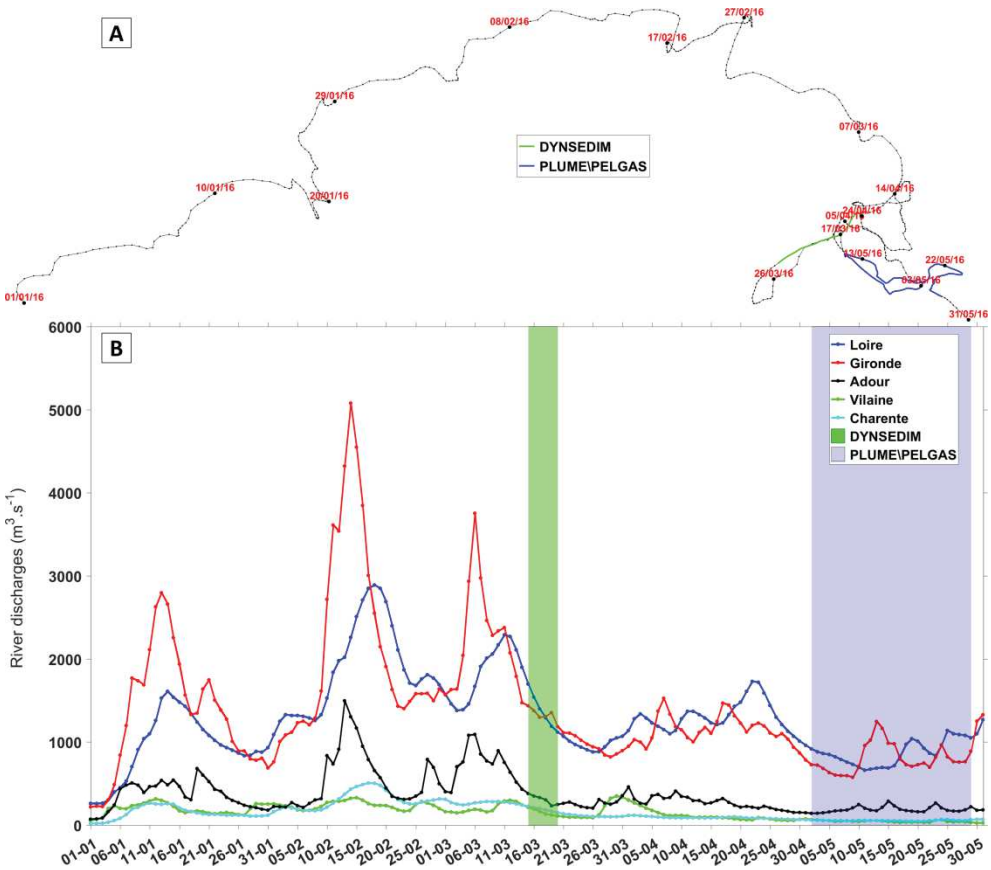
PLUME	201669112	25/05/2016	22:29	-2.513	46.126	3	34.49	277	11	34.96	80.4	54.1	0.1	78.2	213	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669115	26/05/2016	00:01	-2.355	45.894	3	34.39	256	11	34.78	102.9	58.0	0.1	78.2	239	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669118	26/05/2016	01:30	-2.203	45.672	3	33.88	310	11	34.76	93.8	73.0	0.1	78.2	245	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669121	26/05/2016	03:00	-2.049	45.445	3	33.75	266	11	34.41	105.0	88.2	0.1	78.2	271	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669124	26/05/2016	04:30	-1.893	45.207	3	33.78	257	11	34.34	117.1	97.2	0.1	78.2	293	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669126	26/05/2016	05:30	-1.790	45.049	3	33.89	304	21	34.27	119.6	93.3	0.1	78.2	291	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669127	26/05/2016	06:10	-1.721	44.952	3	33.77	257	11	34.00	134.1	104.6	0.1	78.2	317	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669128	26/05/2016	06:10	-1.721	44.952	84	35.43	100	11	35.50	10.0	21.7	0.0	78.2	110	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669132	26/05/2016	08:15	-1.545	44.685	3	33.31	303	11	33.59	154.1	127.2	0.1	78.2	360	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669133	26/05/2016	08:15	-1.545	44.685	73	35.44	89	11	35.45	13.1	22.7	0.0	78.2	114	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669134	26/05/2016	09:29	-1.373	44.683	3	33.49	274	11	32.39	165.0	208.3	0.1	78.2	452	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669138	26/05/2016	11:29	-1.370	44.951	3	32.78	337	11	32.76	164.7	182.3	0.1	78.2	425	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669143	26/05/2016	14:20	-1.500	45.192	3	32.82	333	11	34.13	151.5	99.5	0.1	78.2	329	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669144	26/05/2016	14:20	-1.500	45.192	46	35.23	99	11	34.88	122.3	39.0	0.1	78.2	240	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669146	26/05/2016	15:32	-1.410	45.306	3	33.02	338	24	33.52	158.8	132.4	0.1	78.2	369	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669147	26/05/2016	15:59	-1.369	45.361	3	32.50	346	12	33.46	157.8	136.1	0.1	78.2	372	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669148	26/05/2016	16:29	-1.323	45.419	3	32.30	367	12	32.85	161.2	165.1	0.1	78.2	405	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669149	26/05/2016	17:00	-1.273	45.480	3	31.91	392	13	33.22	161.3	139.2	0.1	78.2	379	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669150	26/05/2016	17:10	-1.261	45.494	3	31.91	362	12	33.28	160.7	135.0	0.1	78.2	374	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669151	26/05/2016	17:10	-1.261	45.494	8	34.38	219	11	34.39	157.3	56.8	0.1	78.2	292	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669152	26/05/2016	17:10	-1.261	45.494	21	34.86	193	11	34.65	153.7	40.3	0.1	78.2	272	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669153	26/05/2016	17:50	-1.135	45.551	3	32.96	318	22	32.47	156.7	193.1	0.1	78.2	428	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669154	26/05/2016	21:04	-1.053	45.558	3	26.02	949	66	24.66	126.4	720.7	0.1	78.2	925	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669155	27/05/2016	05:23	-1.096	45.623	3	23.61	1709	1379	25.00	127.9	699.6	0.1	78.2	906	Liquid scintillation	LRC

PLUME	201669156	27/05/2016	06:02	-1.217	45.659	3	30.04	486	15	28.36	141.9	476.2	0.1	78.2	696	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669157	27/05/2016	06:32	-1.317	45.625	3	30.02	544	18	31.88	155.3	232.2	0.1	78.2	466	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669158	27/05/2016	07:00	-1.374	45.600	3	31.42	432	14	32.71	159.1	173.5	0.1	78.2	411	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669159	27/05/2016	07:00	-1.374	45.600	9	34.04	237	11	34.17	160.3	67.4	0.1	78.2	306	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669160	27/05/2016	07:00	-1.374	45.600	22	34.74	213	11	34.91	132.3	26.8	0.1	78.2	237	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669161	27/05/2016	07:31	-1.458	45.619	3	31.79	397	13	32.46	158.3	194.2	0.1	78.2	431	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669163	27/05/2016	08:32	-1.642	45.662	3	33.80	290	11	34.41	140.7	71.9	0.1	78.2	291	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669165	27/05/2016	09:30	-1.814	45.704	3	34.07	250	22	34.61	139.9	57.7	0.1	78.2	276	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669167	27/05/2016	10:38	-2.016	45.752	3	34.02	242	11	34.78	108.1	58.7	0.1	78.2	245	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669168	27/05/2016	10:38	-2.016	45.752	36	34.96	193	11	34.99	101.0	39.4	0.1	78.2	219	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669169	27/05/2016	10:38	-2.016	45.752	74	35.25	104	11	35.35	47.2	18.2	0.0	78.2	144	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669172	27/05/2016	12:30	-1.781	45.881	3	34.09	274	11	33.97	166.8	79.3	0.1	78.2	324	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669175	27/05/2016	14:00	-1.563	46.014	3	33.10	304	11	33.45	175.4	87.1	0.1	78.2	341	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669177	27/05/2016	15:03	-1.410	46.107	3	33.36	283	11	33.00	174.1	99.2	0.1	78.2	352	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669178	27/05/2016	15:03	-1.410	46.107	43	34.27	243	11	33.54	167.4	93.0	0.1	78.2	339	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669179	27/05/2016	15:44	-1.483	46.120	3	33.60	281	11	33.47	168.9	90.2	0.1	78.2	337	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669182	27/05/2016	17:19	-1.781	46.161	3	34.00	281	11	34.08	185.8	58.1	0.1	78.2	322	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669183	27/05/2016	17:19	-1.781	46.161	22	34.80	222	11	34.72	151.3	29.5	0.1	78.2	259	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669184	27/05/2016	17:19	-1.781	46.161	37	34.80	224	11	34.89	136.4	21.9	0.1	78.2	237	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669188	27/05/2016	19:20	-1.459	46.252	3	33.71	271	11	33.59	192.8	81.6	0.1	78.2	353	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669189	28/05/2016	06:40	-1.451	46.275	7	33.67	315	11	33.59	190.8	80.6	0.1	78.2	350	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669190	28/05/2016	06:40	-1.451	46.275	27	33.78	288	11	33.59	190.7	80.3	0.1	78.2	349	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669191	28/05/2016	07:29	-1.547	46.301	3	33.70	282	20	33.60	185.9	79.4	0.1	78.2	344	3He regrowth	LMRE

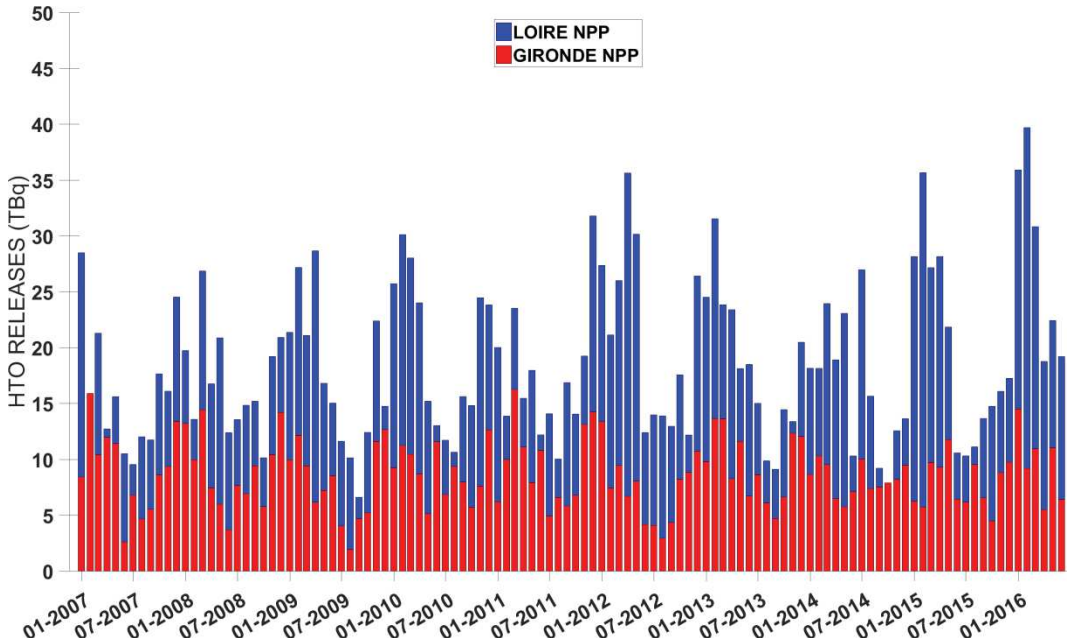
PLUME	201669193	28/05/2016	08:30	-1.730	46.346	3	33.83	279	11	33.74	186.6	72.4	0.1	78.2	337	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669196	28/05/2016	10:05	-2.019	46.419	3	33.89	344	24	34.05	259.7	32.5	0.1	78.2	371	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669201	28/05/2016	12:26	-2.384	46.511	4	33.35	445	14	33.83	315.4	23.1	0.1	78.2	417	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669202	28/05/2016	12:26	-2.384	46.511	17	34.57	223	11	34.06	276.3	25.1	0.1	78.2	380	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669203	28/05/2016	12:26	-2.384	46.511	52	34.99	176	11	35.11	101.8	15.8	0.1	78.2	196	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669208	28/05/2016	15:32	-2.792	46.695	3	34.08	371	12	34.36	213.2	29.4	0.1	78.2	321	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669209	28/05/2016	15:32	-2.792	46.695	17	34.79	178	11	34.91	100.7	42.4	0.1	78.2	221	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669210	28/05/2016	15:32	-2.792	46.695	74	35.09	175	11	35.29	59.7	13.3	0.1	78.2	151	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669220	28/05/2016	21:28	-3.359	47.395	3	34.17	319	11	34.40	224.1	15.3	0.1	78.2	318	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669222	28/05/2016	22:30	-3.482	47.547	3	34.29	284	11	34.51	204.1	16.1	0.1	78.2	299	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669223	28/05/2016	22:59	-3.569	47.592	3	34.26	290	11	34.56	195.0	15.3	0.1	78.2	289	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669227	29/05/2016	00:59	-4.097	47.617	3	34.32	295	21	34.58	183.0	13.6	0.1	78.2	275	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669228	29/05/2016	01:32	-4.220	47.671	3	34.26	300	11	34.57	189.2	13.4	0.1	78.2	281	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669230	29/05/2016	02:30	-4.435	47.764	3	34.44	298	11	34.66	154.5	12.4	0.1	78.2	245	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669232	29/05/2016	03:30	-4.518	47.925	3	34.65	244	11	34.85	135.1	11.8	0.1	78.2	225	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669235	29/05/2016	04:53	-4.717	48.070	3	34.87	182	13	35.06	96.7	9.4	0.1	78.2	184	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669238	29/05/2016	06:05	-4.411	48.128	7	34.66	181	11	35.08	80.1	9.1	0.1	78.2	168	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669239	29/05/2016	06:05	-4.411	48.128	30	34.83	161	11	35.10	73.2	9.0	0.1	78.2	161	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669240	29/05/2016	06:45	-4.496	48.128	3	34.77	196	14	35.07	83.8	9.1	0.1	78.2	171	3He regrowth	LMRE
PLUME	201669246	29/05/2016	09:57	-5.101	48.129	3	34.76	187	11	35.02	106.1	9.9	0.1	78.2	194	Electrolytic enrichment	RSMAS
PLUME	201669247	29/05/2016	09:57	-5.101	48.129	94	35.16	123	11	35.51	27.6	4.2	0.3	78.2	110	Electrolytic enrichment	RSMAS



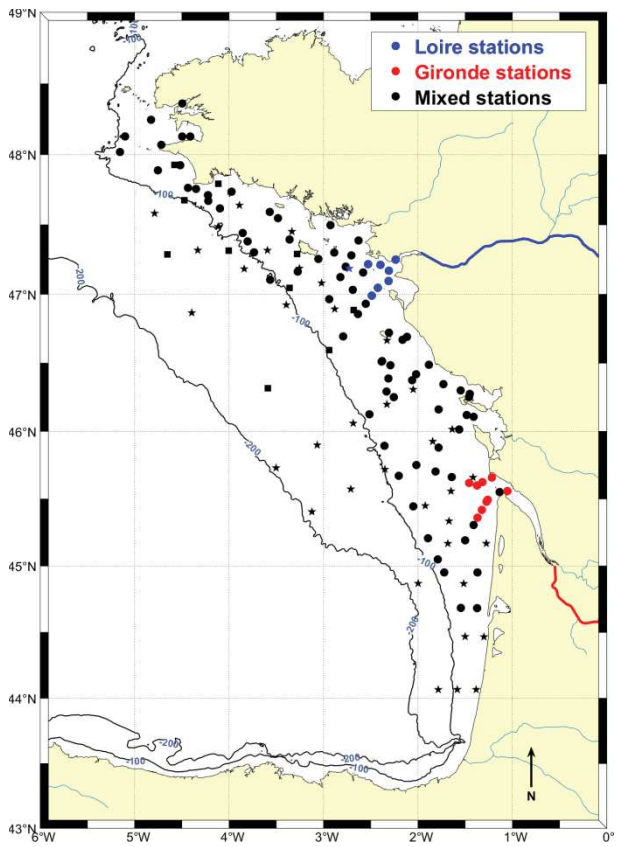
Annexe 5 – HTO background concentration added to the simulated concentrations, according to depth in 2016.



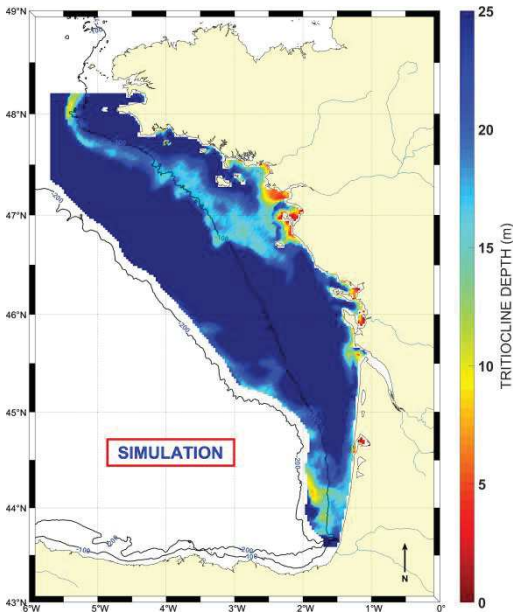
Annexe 6 – A) Progressive vector diagrams of the averaged wind stress in the BoB (between 49°N and 43°N and -6°W and 0°W) calculated from the meteorological model ARPEGE HR. (B) River outflows from the main rivers of the BoB. The DYNSEDIM and PLUME/PELGAS campaign are highlighted with a green and blue, line or patch respectively.



Annexe 7 – Monthly tritium releases by the Loire nuclear power plants (blue) and the Gironde nuclear power plants (red)..



Annexe 8 – Location of the designated Loire (blue) and Gironde (red) stations. The considered mixed station appears in black. The tritium and salinity measurements at these stations are shown in Figure 4.11.



Annexe 9 – Depth of the tritiocline computed by the mean of hourly outputs of the model between the 2016/05/02 00:00 and the 2016/05/30 00:00.

UNIVERSITE BRETAGNE LOIRE / SCIENCES DE LA MER ET DU LITTORAL

UBO Université de Bretagne Occidentale

Titre : Transferts multi-échelles des apports continentaux dans le golfe de Gascogne

Mots clés : Golfe de Gascogne, Traceurs, Panaches, Tritium, Modèle, Dispersion

Résumé : Lors de rejets chroniques ou accidentels de tritium des installations nucléaires dans l'eau de mer ou *via* les fleuves, la dispersion des radionucléides dans l'environnement marin est soumise à des processus de dispersion multiples. Ces processus dépendent de la zone considérée et des forçages tels que la marée, le vent, les flux de chaleurs et d'eau douce.
Prédire la dispersion du tritium dans le golfe de Gascogne nécessite la prise en compte de l'ensemble de ces processus et des différents apports que représentent les eaux de surface de l'Atlantique Nord, les rejets des installations nucléaires, les entrées d'eau douces et les échanges avec l'atmosphère.
L'objectif général de cette thèse est d'améliorer la connaissance sur l'hydrodynamisme du golfe de Gascogne, en couplant la mesure *in-situ* d'un traceur des masses d'eau : le tritium, avec un modèle hydrodynamique de dispersion (modèle MARS3D). Dans ce but, prélèvements ont été effectuées dans le golfe de Gascogne et dans les deux principaux contributeurs continentaux de tritium : la Loire et la Gironde.
L'utilisation conjointe de la salinité et du tritium en tant que traceurs des eaux continentales a permis de différencier de manière innovante les apports provenant de ces deux fleuves à l'échelle du golfe. Les stocks mesurés et simulés de tritium au sein du plateau ont permis une première estimation du temps de résidence des masses d'eau continentales.

Title : Multiscale transfers of continental inputs in the Bay of Biscay

Keywords : Bay of Biscay, Tracers, Plumes, Tritium, Simulation, Dispersion

Abstract :
During chronic or accidental releases of tritium from nuclear facilities to seawater or through river discharges, the dispersion of radionuclides in the marine environment is subject to multiple dispersion processes. These processes depend on the area under consideration and forcings such as tide, wind, heat and freshwater flows.
Predicting the dispersion of tritium in the Bay of Biscay requires taking into account all these processes and the various inputs: the North Atlantic surface waters, discharges from nuclear facilities, freshwater inputs and exchanges with the atmosphere.
The main objective of this thesis is to improve the knowledge on the hydrodynamics of the Bay of Biscay by coupling *in-situ* measurements of a water masses tracer: the tritium, with a hydrodynamic dispersion model (MARS3D).
To achieve this goal, samplings were carried out in the Bay of Biscay and the two main continental contributors of tritium: the Loire and Gironde rivers.
The combined use of salinity and tritium as tracers of continental waters makes it possible to differentiate into an innovative way the inputs from these two rivers at the scale of the continental shelf. The measured and simulated stocks of tritium within the shelf provided a first estimate of the residence time of continental water in the Bay of Biscay.