



**HAL**  
open science

# Modélisation du transfert de $^{137}\text{Cs}$ dans le continuum fleuve-mer Rhône-Méditerranée

Adrien Delaval

► **To cite this version:**

Adrien Delaval. Modélisation du transfert de  $^{137}\text{Cs}$  dans le continuum fleuve-mer Rhône-Méditerranée. Sciences de l'environnement. Aix-Marseille Université, 2021. Français. NNT : 2021AIXM0389 . tel-04341801

**HAL Id: tel-04341801**

**<https://irsn.hal.science/tel-04341801>**

Submitted on 13 Dec 2023

**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.

# THÈSE DE DOCTORAT

Soutenance prévue à Aix-Marseille Université  
le 22 Octobre 2021 par

## Adrien Delaval

### Modélisation du transfert de $^{137}\text{Cs}$ dans le continuum fleuve-mer Rhône-Méditerranée

**Discipline**

Sciences de l'Environnement

**Spécialité**

Géosciences

**École doctorale**

251-Sciences de l'Environnement

**Laboratoire/Partenaires de recherche**

Laboratoire de Recherche sur les Transferts de  
radionucléides au sein des écosystèmes Aquatiques

**Composition du jury**

Xavier DURRIEU DE MADRON Rapporteur  
Dir recherche CNRS-Cefrem

Pieter Van Beek Rapporteur  
Professeur Legos-Université de Toulouse

Claude Estournel Examinatrice  
Dir recherche CNRS-LA Toulouse

Christian GRENZ Examineur  
Dir recherche CNRS-MIO

Christophe Rabouille Examineur  
Dir recherche CEA LSCE

Olivier RADA KOVITCH Dir Thèse  
IRSN

Céline DUFFA Co-dir Thèse  
IRSN



# Affidavit

Je soussigné, Adrien Delaval, déclare par la présente que le travail présenté dans ce manuscrit est mon propre travail, réalisé sous la direction scientifique de Olivier Radakovitch et Céline Duffa, dans le respect des principes d'honnêteté, d'intégrité et de responsabilité inhérents à la mission de recherche. Les travaux de recherche et la rédaction de ce manuscrit ont été réalisés dans le respect à la fois de la charte nationale de déontologie des métiers de la recherche et de la charte d'Aix-Marseille Université relative à la lutte contre le plagiat.

Ce travail n'a pas été précédemment soumis en France ou à l'étranger dans une version identique ou similaire à un organisme examinateur.

Fait à Aix-en-Provence, le 27 juillet 2021



Cette œuvre est mise à disposition selon les termes de la [Licence Creative Commons Attribution - Pas d'Utilisation Commerciale - Pas de Modification 4.0 International](https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/).

# Liste de publications et participations aux conférences

## Publication revues Internationales

Delaval, A., Duffa, C., Pairaud, I. and Radakovitch, O. (2021). A fuzzy classification of the hydrodynamic forcings of the Rhone River plume: An application in case of accidental release of radionuclides. *Environmental Modelling and Software*, 140(February), 105005. <https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2021.105005>

Delaval, A., Duffa, C. and Radakovitch, O. (2020). A review on cesium desorption at the freshwater-seawater interface. *Journal of Environmental Radioactivity*, 218, 106255. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2020.106255>

## Rapports techniques

Radakovitch O., Eyrolle F., Delaval A., Ambrosi J.P. , Geneviève Dur, Jérôme Labille, Patrick Raimbault, Yoann Copard, Mathieu Masson, Alexandra Gruat, Loïc Richard (2021) Réactivité des contaminants avec la matière organique. Rapport OSR

Radakovitch O., Delaval A., Boyer P. , Duffa C., Giner F., Mourier D. (2021). Transfert particulaire-dissous des radioisotopes à l'embouchure. Rapport OSR

## Conférences

Delaval, A., Duffa, C., Louis, L., Pairaud, I., Coppin, F., Charmasson, S., Boyer, B., Radakovitch, O., (2021). Modelling the transfer of <sup>137</sup>Cs along a river-sea continuum and application to accidental release scenarios. *ERPW Conference Vienna*.

Delaval, A., Duffa, C., Pairaud, I. and Radakovitch, O. (2021). DRACAR : An estuarine transfer function do predict dissolved pollutants fluxes to the sea. Application for radionuclides *SimHydro 2021 Models for complex and global water issues-Practices and expectations*-Sophia Antipolis-Nice-France Abstract étendu.

Delaval, A., Duffa, C. and Radakovitch, O. (2020). Cesium desorption intensity at the river-sea interface. *Goldschmidt 2020*.

Delaval, A., Duffa, C. and Radakovitch, O. (2019). Modélisation du transfert des radionucléides dans un continuum fleuve-mer. *Séminaire doctorants Zone Atelier Basin du Rhône Flux Polluants, Ecotoxicologie, Ecosystèmes 2019*.

*« Ce qui nous inquiétait le plus, c'était que cette masse [de magma radiatif] s'enfonce et rentre en contact avec les eaux des nappes phréatiques souterraines ce qui aurait ensuite pollué la rivière Pripiat puis le Dniepr, Kiev, la Mer Noire... »*

**Mikhaïl Gorbatchev**

*La bataille de Tchernobyl (2006)*

# Résumé

Les estuaires sont des systèmes dynamiques qui assurent le transfert d'eau et de contaminants du fleuve vers la mer, y compris pour des radionucléides rejetés par les installations nucléaires en situations normale ou accidentelle.

Le césium 137 est récurrent en situation accidentelle et persistant dans l'environnement. Il a une forte affinité avec les particules en milieu fluvial mais se désorbe dans le gradient de salinité, ce qui favorise sa dispersion en mer et son transfert vers les organismes marins.

Un des objectifs de l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN) est de prédire et quantifier la radioactivité transitant sur le continuum fleuve-mer en recourant à la modélisation. Cette modélisation pour des radionucléides dissous est déjà assurée par deux modèles indépendants pour les parties fluviale et marine (CASTEAUR et STERNE), mais leur couplage n'existe pas. Or, il est nécessaire pour améliorer les capacités de prédiction et anticiper des mesures de mitigation. La fonction de transfert de l'estuaire, différente d'un continuum à l'autre, doit y être définie et intégrée pour simuler le mélange des eaux et la désorption, en particulier pour le  $^{137}\text{Cs}$ .

Cette thèse présente un nouveau modèle boîte (DRACAR) décrivant les processus estuariens hydrodynamiques et géochimiques qui affectent le devenir du  $^{137}\text{Cs}$  dans un estuaire. Cette approche est généralisable à d'autres radionucléides, et permettra d'augmenter la cohérence des entrées-sorties des deux modèles et de les interfacer. Le site d'étude est le continuum Rhône-Méditerranée qui présente 4 centrales nucléaires sur le Rhône et un estuaire stratifié comme la plupart des estuaires nucléarisés dans le monde.

DRACAR réalise la jonction des flux du Rhône vers la mer et prend en compte les phénomènes de désorption. Il a été alimenté et validé par des données de terrain pour représenter les processus hydrodynamiques comme la diffusion et l'advection.

L'augmentation de salinité favorise la désorption du  $^{137}\text{Cs}$  mais ce processus général est mal contraint. Cette désorption a été caractérisée grâce à une synthèse bibliographique exhaustive et des expérimentations de laboratoire sur des particules du Rhône, qui ont permis de préciser le rôle, l'intensité et les cinétiques de ce processus utilisables dans DRACAR. La désorption du césium commence au seuil de 3 à 4 de salinité, et elle est d'autant plus forte que la durée de contamination des particules (phase d'adsorption) a été courte (quelques heures). Un modèle d'échange dynamique impliquant 2 sites de différentes affinités sur les particules est le plus apte à prédire la distribution du césium sur le gradient de salinité.

Dans la majorité des conditions le panache fluvial n'existe qu'à l'extérieur du fleuve, et dans ce cas la désorption est simulée à la sortie en mer. Mais d'après DRACAR un coin salé remonte dans le lit du Rhône pour un débit inférieur à 1700 m<sup>3</sup>/s et va apporter du sel à la couche de surface. En dessous de 700 m<sup>3</sup>/s ces apports sont suffisants pour que la salinité du panache interne dépasse 3. Des simulations dans cette zone estuarienne interne montrent qu'une désorption de 40 à 50 % du césium des particules pourrait y avoir lieu avant la sortie en mer.

Pour anticiper les conséquences d'une dispersion en mer de césium, la dernière partie de la thèse s'attache à catégoriser les états hydroclimatiques (conditions de vents et débits) les plus fréquents à l'embouchure grâce à un algorithme de *fuzzy clustering*. 6 scénarios récurrents avec des variabilités saisonnières ont été identifiés. Une simulation de rejet dans le Rhône a été faite avec les modèles couplés et elle a été testée sur ces 6 scénarii pour évaluer les schémas de dispersion. Cette approche a permis d'identifier des conditions pénalisantes où le  $^{137}\text{Cs}$  est totalement exporté sous phase dissoute et où le panache radioactif est bloqué à l'embouchure ou exporté vers le Golfe de Fos

# Abstract

Estuaries are dynamic systems that ensure the transition of water and contaminants from the river to the sea, including radionuclides released by nuclear installations in normal or accident situations.

$^{137}\text{Cs}$  is a recurrent radionuclide in accidental situations and persistent in the environment. It has a strong affinity with particles in a fluvial environment but may be desorbed in the salinity gradient, a mechanism promoting its dispersion at sea and its transfer to marine organisms.

The Institute for Radiation Protection and Nuclear Safety (IRSN) must be able to predict and quantify the radioactivity transferred on a river-sea continuum using modeling. Such modeling for dissolved radionuclides is already provided by two independent models for the fluvial and marine environments (CASTEAUR and STERNE), but the coupling of these models does not exist. However, it is necessary for improving prediction capacities and anticipating mitigation measures. The transfer function of the estuary, which differs from each continuum, must be also defined and integrated in order to simulate the water mixing and desorption, in particular for  $^{137}\text{Cs}$ .

This thesis presents a box-model (DRACAR) describing the hydrodynamic and geochemical estuarine processes affecting the  $^{137}\text{Cs}$  in an estuary. This approach that can be generalized to other reactive radionuclides will increase the consistency of the inputs-outputs of the river and sea models and will help to interface them. The study site is the Rhone-Mediterranean continuum, a major river bordered by 4 nuclear power and with a stratified estuary, like for most nuclear estuaries in the world.

The DRACAR estuarine box model connects the flows from the Rhone to the sea and takes into account desorption processes. Field data were used to represent hydrodynamic processes and for validation. It shows that a salt wedge appears in the bottom of the Rhone River for flow below  $1700\text{ m}^3/\text{s}$ , bringing salt to the surface freshwater layer (internal plume) by diffusion and entrainment. This gain in salinity is likely to promote the desorption, a general but poorly constrained process which has been characterized here by an exhaustive bibliographical synthesis, and laboratory experiments performed in order to specify the role and key parameters of this process (intensity, kinetics). These experiments carried out with particles from the Rhone allowed to define kinetic constants that can be used in DRACAR.  $^{137}\text{Cs}$  desorption begins at low salinities of 3 to 4, and it increased inversely with the duration of the adsorption phase. A dynamic exchange model involving 2 sites of different affinities onto the particles is the best to predict the distribution of cesium on the salinity gradient.

The surface plume created by the Rhone freshwater occurs under most conditions only outside of the river. In this case desorption is simulated once water arrive at the river mouth. But for very low river flows below  $700\text{ m}^3/\text{s}$ , DRACAR simulate a salt wedge into the estuary which brings enough salt water to create a two-layer stratification where the surface layer may reach a salinity of 3. DRACAR is able to simulate the desorption in this estuarine zone, and shows that desorption of 40 to 50% of  $^{137}\text{Cs}$  from the particles could take place there before the sea.



To anticipate the consequences of a  $^{137}\text{Cs}$  dispersion in the sea, we attempt to categorize the most frequent hydroclimatic states (wind and flow conditions) at the mouth of this land-sea continuum thanks to a fuzzy clustering algorithm. 6 recurring scenarios with seasonal variability have been identified. A discharge of radionuclide was simulated into the Rhone River with the coupled models, and it was tested on these 6 scenarios to assess the dispersion patterns. This approach made it possible to identify the worst conditions where  $^{137}\text{Cs}$  is totally exported in the dissolved phase, and where the radioactive plume is blocked at the mouth or exported to the Gulf of Fos.

# Remerciements

A l'issue de ces trois ans, je souhaite remercier les personnes qui ont contribué de près ou de loin à la réussite de ce projet.

Merci à la région Sud pour avoir cofinancé ma thèse avec l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN). Je souhaite aussi remercier l'Observatoire des Sédiments du Rhône (OSR) pour avoir financé une partie des analyses.

Je remercie François Paquet et Rodolphe Gilbin pour m'avoir accueilli au sein du Service de Recherche sur les Transferts et les effets des radionucléides sur les Ecosystèmes (IRSN-PSE-ENV/SRTE).

Merci à Rodolfo Gurriaran, Chef du Laboratoire de Recherche sur les Transferts des Radionucléides au sein des écosystèmes Aquatiques (LRTA) pour son soutien, la confiance et l'enthousiasme qu'il a manifesté pour mes recherches

Merci à mon directeur de thèse, Olivier Radakovitch et à mon encadrante Céline Duffa pour m'avoir sélectionné parmi les autres candidats. Leurs conseils, leur soutien et leur disponibilité m'ont été extrêmement profitables. Je les remercie aussi pour les connaissances et méthodologies qu'ils m'ont transmises. Merci Olivier pour ses relectures patientes, de m'avoir accordé sa confiance sur des aspects que je souhaitais développer parfois assez éloignés de son champ de compétences. Merci Céline pour l'enthousiasme manifesté tout au long de ma thèse, sa confiance et ses suggestions décisives.

Je souhaite remercier mon comité de thèse constitué de Claude Estournel, Jérôme Le Coz et de Christian Grenz pour leurs conseils qui ont participé au bon déroulement de ces trois années de thèse.

De manière générale, je remercie les membres du laboratoire pour leur sympathie et bienveillance dont ils ont fait preuve sans exception. Au LRTA, je souhaitais remercier Patrick pour sa disponibilité et ses compléments sur la modélisation. Sabine pour la biblio conséquente qu'elle m'a fourni et a servi de base pour la review ainsi que ses conseils. Frederique pour nos échanges et discussions enrichissants. Valérie pour ses aides ponctuelles mais indispensables sur mes codes R me faisant gagner un temps précieux. Hugo pour ses données, et ses suggestions. Merci à David pour son efficacité, nos échanges en mission et son humour. Merci à Franck pour son professionnalisme avant, pendant et après les missions, son humour et ses grandes qualités humaines. Merci à Véronique pour son aide à la navigation dans les différents formulaires et procédures de l'IRSN, son humour et son aide sur l'impression et reliure du manuscrit de thèse. Merci à Catherine Lecomte et Jean-François pour leur bonne humeur. Merci à Amandine et Wirginia pour leur bonne humeur et avoir guidé mes premiers pas à l'IRSN. Merci à Nathan pour son enthousiasme communicatif.

En dehors du laboratoire, je souhaitais remercier au sein du LR2T Frédéric Coppin du pour son aide et sa rigueur sur les expérimentations de laboratoire : de la fiche d'expérimentation à l'interprétation de celle-ci. Arnaud Martin-Garin chef du LR2T pour son accueil dans le laboratoire malgré les difficultés posées par le confinement. Sylvie Pierrisnard pour son aide dans les expérimentations. Daniel Orjollet pour l'analyse de mes

échantillons. Hamza Chaif et Loïc Carrasco qui se sont assurés en continu du placement adéquat de mes échantillons sur le banc d'analyse. Enfin, je remercie Pascal Paulat du LEREN pour m'avoir transmis les données de conductivités à SORA.

Je remercie l'ensemble des doctorants du SRTE pour les moments passés ensemble à l'institut ou en dehors. Je souhaite à tous le bon déroulement de leur projet de thèse, souvent bien mis à mal par le covid et que cette bonne ambiance perdure.

En dehors de l'institut je souhaite remercier Ivane Pairaud pour son accueil au sein de l'IFREMER à Brest et sa disponibilité tout au long de cette semaine mais aussi en dehors notamment pour ses apports conséquents sur la modélisation en milieu marin. Durant ce séjour au sein de l'IFREMER je remercie Pierre Garreau et Romaric Verney pour leurs conseils et suggestions sur la partie marine de la thèse. Laura Troudet et Jean-Baptiste Faure pour les données fournies, les échanges sur la modélisation et la formation accélérée sur MAGE-ADIS TS.

# Table des matières

Affidavit .....	0
Liste de publications et participations aux conférences .....	0
Résumé.....	1
Abstract.....	0
Remerciements.....	0
Liste des tableaux.....	3
Liste des figures.....	4
I. Introduction générale .....	9
I.1. Enjeux .....	9
I.2. L'estuaire, acteur quasi incontournable du transfert des radionucléides en milieu aquatique.....	10
I.3. Une diversité de fonctionnement hydrodynamique des estuaires.....	11
I.3.1. Les estuaires stratifiés (A,B,C) .....	15
I.3.2. Les estuaires semi-stratifiés (ou partiellement mélangés) (D).....	17
I.3.3. Les estuaires mélangés et baies (E) .....	17
I.3.4. Les estuaires à stratifications périodiques .....	18
I.4. De la complexité de la dynamique des MES .....	19
I.5. Une diversité de dynamiques de transferts de radionucléides à l'interface.....	21
I.6. Points clefs d'un couplage bassin versant-mer pour les radionucléides dissous.....	25
I.6.1. Conditions hydrologiques en amont et terme source.....	25
I.6.2. Hydrodynamique à l'interface et milieu marin.....	25
I.6.3. Géochimie à l'interface .....	27
I.7. Synthèse des approches proposées dans la littérature et verrous scientifiques .....	29
I.8. Annonce du plan .....	34
II. Le continuum Rhône Méditerranée .....	36
II.1. Le Rhône .....	36
II.1.1. Aménagements sur le Rhône.....	37
II.1.2. Hydrologie du Rhône .....	39
II.2. Le delta du Rhône.....	41
II.3. Golfe du Lion et panache du Rhône .....	44
II.3.1. Golfe du Lion (GoL) .....	44
II.3.2. Dynamique du panache d'eau douce du Rhône.....	45
II.4. Les radionucléides dans le continuum Rhône Méditerranée.....	47
II.4.1. Les installations nucléaires sur le Rhône .....	47
II.4.2. Devenir du césium dans le continuum Rhône Méditerranée.....	49

III.	Modélisation du corridor Rhodanien .....	52
III.1.	Présentation du modèle Casteaur.....	52
III.2.	Biefs.....	53
III.3.	Sélection des affluents .....	54
III.3.1.	Rhône « amont » .....	54
III.3.2.	Affluents.....	54
III.3.3.	Stations de validation .....	55
III.3.4.	Propagation des débits.....	56
III.4.	Validation pour les éléments dissous .....	60
III.4.1.	Tritium originaire des CNPE.....	60
III.4.2.	Utilisation de l'hétérogénéité hydrologique et géologique du bassin versant du Rhône 61	
III.4.3.	Synthèse et perspectives.....	67
III.4.4.	Temps de transfert (Arles à l'embouchure dans la thèse).....	68
IV.	Interfaçage physique.....	70
IV.1.	Estuaire et échanges .....	70
IV.1.1.	Définition d'un estuaire .....	70
IV.1.2.	Quels sont les processus physiques à l'embouchure ?.....	71
IV.2.	Modélisation physique .....	72
IV.2.1.	Les bases du box-model hydrodynamique dans un estuaire stratifié et approches actuelles.....	73
IV.2.2.	Prise en compte de la variabilité de la taille et de la structure de la boîte estuaire 76	
IV.2.3.	Représentation de la distribution de la densité .....	81
IV.2.4.	Proposition d'un box-model adapté dans DRACAR.....	83
IV.3.	Description des paramètres et calibration pour le Rhône.....	86
IV.3.1.	Termes d'échange du box-model .....	86
IV.3.2.	Structure du box-model DRACAR .....	90
IV.4.	Résultats du box-model.....	97
IV.4.1.	Résolution.....	97
IV.4.2.	Validation.....	97
IV.4.3.	Synthèse sur l'interface.....	104
V.	Etude de la désorption à l'interface .....	106
V.1.	Article de review sur l'intensité du phénomène de désorption du césium sur un gradient de salinité .....	106
V.1.1.	Synthèse de l'article.....	118
V.2.	Déroulement de l'expérimentation de laboratoire .....	118
V.2.1.	Phase de Sorption .....	120
V.2.2.	Phase de désorption.....	120

V.3.	Résultats et discussion .....	121
V.3.1.	Sorption.....	121
V.3.2.	Désorption.....	121
V.4.	Modélisation.....	126
V.4.3.	Modèle.....	126
V.4.4.	Discussion et conclusion.....	131
VI.	Essai de couplage hydrodynamique et géochimique .....	133
VI.1.	Méthodologie .....	133
VI.1.1.	Distribution du césium en eau douce.....	133
VI.1.2.	Prise en compte de la géochimie dans DRACAR.....	136
VI.1.3.	Panache proximal.....	139
VI.2.	Résultats et discussion.....	141
VI.2.1.	Distribution en Arles.....	141
VI.2.2.	Distribution et désorption dans l'estuaire.....	141
VI.2.3.	Distribution et désorption dans le panache proximal .....	143
VI.2.4.	Panache en mer.....	144
VI.2.5.	Diagramme d'évolution du <sup>137</sup> Cs dans le gradient salé .....	146
VI.2.6.	Synthèse .....	149
VII.	Classification « floue » des forçages du panache du Rhône : Application pour un rejet accidentel de radionucléides .....	150
VIII.	Conclusion et perspectives .....	162
VIII.1.	Conclusion.....	162
VIII.1.1.	Transfert des radionucléides en milieu fluvial.....	162
VIII.1.1.	Hydrodynamique estuarienne .....	163
VIII.1.2.	Désorption du césium dans un gradient de salinité.....	164
VIII.1.3.	Transfert des radionucléides dans le continuum Rhône Méditerranée..	164
VIII.1.4.	Vulnérabilité du continuum en été dans un contexte de changement climatique	165
VIII.1.5.	De l'intérêt de coupler des modèles .....	165
VIII.2.	Perspectives : application à d'autres systèmes estuariens et d'autres contaminants réactifs.....	166
VIII.2.6.	Applicabilité à d'autres contaminants.....	168
	Références .....	171

# Liste des tableaux

Tableau I-1 : références utilisées pour la cartographie de la réactivité des radionucléides vis à vis des estuaires .....	23
Tableau I-2 : Problématiques de la modélisation du continuum fleuve-mer abordées par différentes études.....	30
Tableau II-1 : Seuils de crue du Rhône à Beaucaire (code station : V7200010, coordonnées géographiques : 43°48'16.5"N 4°38'56.9"E) sur la période 1920-2020, ajustement de la loi de Galton ( <a href="http://www.hydro.eaufrance.fr/">http://www.hydro.eaufrance.fr/</a> ). Extraits de (Amandine Morereau, 2020) ....	41
Tableau III-1: Affluents utilisés sur l'emprise complète du domaine Casteaur Points d'entrée et sources des des données de débits .....	55
Tableau III-2 : Stations de mesure du débit utilisées pour la validation des débits du Rhône .....	55
Tableau III-3 : Performances de Casteaur pour calculer les débits horaires de 2015 en Arles .....	59
Tableau III-4 : Résumé des traceurs dissous potentiellement utilisables pour .....	68
Tableau IV-1: Paramètres de l'interface DRACAR complète (Structure coin salé + box-model).....	74
Tableau IV-2 : Comparaison des performances de modélisation de la salinité à Barcarin entre le box-model et une régression puissance en fonction du débit. Cf packgae R « hydroGof » pour la description des formules utilisées. ....	104
Tableau V-1 : Constantes cinétiques pour la distribution du césium entre la phase particulaire et la phase dissoute pour une cinétique en deux étapes en eau douce. Calibration issue de l'expérimentation de laboratoire sur des particules.....	127
Tableau V-2 : Constantes cinétiques pour la distribution du césium entre la phase particulaire et la phase dissoute pour une cinétique en deux étapes pour une salinité de 4. Calibration issue de l'expérimentation de laboratoire sur des particules .....	128
Tableau V-3 : Constantes cinétiques pour la distribution du césium entre la phase particulaire et la phase dissoute pour une cinétique en deux étapes pour une salinité de 37. Calibration issue de l'expérimentation de laboratoire sur des particules.....	128
Tableau VIII-1 : Equations utilisées pour définir la structure du box-model estuarien (Longueur L et profondeur de la stratification (adimensionnée) dans le cas des estuaires avec une stratification) (1-7) et flushing time (A-B) .....	168
Tableau VIII-2 : Valeurs expérimentales d'intensité de désorption des particules (%) pour différents radionucléides et continnuums .....	169

# Liste des Figures

Figure I-1 : Terminologie du transfert des éléments traces des particules et de l'eau aux organismes d'après (Gil-Diaz, 2019).....	11
Figure I-2 : Plan de classification des estuaires basé sur le nombre de Froude fluvial et le nombre de mélange. La diagonale rouge pleine indique la valeur pour laquelle la couche limite de mélange intègre toute la profondeur de l'estuaire. D'après Geyer (2014). La position théorique du Rhône pour les harmoniques M2 est représentée .....	13
Figure I-3 : Classification des estuaires sur la base de leur structure verticale de salinité adapté de (Valle-Levinson, 2010) .....	14
Figure I-4 : Distribution des "flushing times" de différents systèmes estuariens d'après (Dürr et al., 2011) .....	18
Figure I-5 :Résumé des principaux processus estuariens d'après (Wolanski et Andutta, 2012).....	20
Figure I-6 : Diagramme de mélange théorique pour un estuaire idéal d'après (Swarzenski et al., 2003).....	22
Figure I-7 : Cartographie de la réactivité de différents radionucléides pour différents systèmes estuariens.....	23
Figure I-8 :Cartographie de la typologie des estuaires des fleuves nucléarisés de par le monde. Un carreau correspond à un réacteur nucléaire sur le fleuve.....	24
Figure I-9 :Approche conceptuelle d'un couplage explicite entre modèles hydrodynamiques 1D et 3D d'après (Twigt et al., 2009).....	27
Figure I-10 : Box-model assurant l'apport net (débit, salinité) du fleuve à la mer pour le couplage de modèles 1D fluviaux et marin à méso-échelle d'après Verri et al., (2021) ....	27
Figure I-11 :. Modèle conceptuel des sites d'adsorption d'une particule d'illite d'après (Okumura et al., 2018).....	28
Figure I-12 : Compartiments et leurs interactions pour la spéciation des radionucléides représentés par le modèle de Simonsen (2019). Les sources externes peuvent varier dans l'espace et le temps. L'advection et la diffusion déterminent le transport horizontal et vertical des radionucléides dans la colonne d'eau.....	31
Figure I-13 : Représentation de la « mixed approach » pour la représentation des interfaces côtières dans la modélisation du continuum. A gauche, la résolution est grossière et les estuaires/côtes sont traités comme des unités fonctionnelles. A droite, la résolution est accrue sur ces zones d'interface par le biais des mailles de Voronoi. ....	33
Figure II-1 : Bassin versant du Rhône et ses entités hydrographiques. ( Morereau, 2020) .....	37
Figure II-2 :Schéma d'aménagement du Rhône d'après (CNR, 2005) .....	38
Figure II-3 : Débits historiques du Rhône à Beaucaire, de 1920 à 2013. Chaque point correspond à un débit journalier. De bas en haut, les lignes noires représentent pour chaque jour qui constitue une année les débits journaliers minimaux, moyens et maximaux enregistrés sur la période observée. Extrait de (Laurie Boudet, 2017).....	39
Figure II-4 :Profil en long du Grand Rhône (d'après les données CNR compilées dans Antonelli 2002).....	42
Figure II-5 :Positionnement de l'avancée dans le Rhône du coin salé (en km par rapport à l'embouchure) en fonction du débit moyenné sur 5 jours à Beaucaire. Données de position issues de Savey 1971; Levasseur et Doutriaux 1991, Ibanez et al 1997 .....	43



Figure II-6 : Caractéristiques principales de la circulation sur le plateau du GoL (D'après Millot, 1990). Les isobathes 160,500,1000 et 2000 m sont tracées.....	44
Figure II-7 : Centres géométriques (cercles) et squelettes ( droites) du panache turbide du Grand Rhône pour les vents offshore et les vents onshore. Plus l'aire du panache est grande, plus le cercle représentant son centre géométrique est grand. En (a), l'échelle de couleur représente le débit du Grand Rhône (m <sup>3</sup> /s), et en (b), la direction des vents offshore en degrés. Pour chaque illustration, une rose des vents est associée pour rappeler le secteur concerné par le représentation graphique. En (b), les conditions sèches (Q <sub>w</sub> <1500 m <sup>3</sup> /s) sont séparées des conditions de débit plus élevées (Q <sub>w</sub> >1500 m <sup>3</sup> /s) pour plus de visibilité. Les point les plus petits ( aires <100 km <sup>2</sup> sont de couleur bleue à bleue foncée). Issu de (Aurelien Gangloff, 2018) .....	46
Figure II-8 : Composition moyenne des activités des principaux radionucléides émetteurs bêta/gamma hors tritium (gauche) et alpha (droite), composante les effluents liquides rejetés par le centre de Marcoule entre 1961 et 2018. D'après (Amandine Morereau, 2020) .....	48
Figure II-9 : Evolution des Kd des isotopes radioactifs du césium sur le gradient de salinité du Rhône données issues de (Martin and Thomas, 1990).....	50
Figure II-10 : Activités de <sup>137</sup> Cs dissous mesurées durant les campagnes DRIM de Juin et Septembre 2019. Le point gris correspond à la moyenne de 3 échantillons mesurés au large de Toulon et Marseille en Avril 2019. Issu de Radakovitch et al (2021). .....	50
Figure III-1: Configuration des apports et des géométries dans Casteaur .....	53
Figure III-2: Configuration de Casteaur retenue pour cette étude. Les traits rouges délimitent les biefs. Les affluents aux apports significatifs sont représentés en bleus. L'épaisseur des affluents est proportionnelle au débit moyen. Les stations de mesures pour représenter les apports des affluents ou servir à la validation sont représentées respectivement en noir et vert.....	56
Figure III-3 : Comparaisons entre les débits simulés par Casteaur et les débits observés (journaliers). De haut en bas : Stations de Perrache, Ternay, Valence, Viviers .....	57
Figure III-4 : Comparaisons entre les débits simulés par Casteaur et les débits observés (horaires). De haut en bas : Stations de Beaucaire et de Arles .....	58
Figure III-5 :Modélisation en Arles de la chronique d'un rejet concerté de tritium par la CNPE de Saint-Alban .....	60
Figure III-6 : Formations granitiques sur le bassin versant du Rhône (croix). Adapté de Ollivier, (2006) .....	62
Figure III-7 : Boxplot des conductivités des principaux affluents du Rhône ( configuration « Cast1.0 »). Données issues de <a href="http://www.naiades.eaufrance.fr/">http://www.naiades.eaufrance.fr/</a> sur la période 2000-2020. ....	63
Figure III-8 : Débits (bleu) et conductivité (rouge) observés à Arles pendant une crue cévenole. Données acquises à la station SORA. ....	63
Figure III-9 : Comparaison des crues biannuelles des principaux affluents cévenols (haut) et conductivité des affluents cévenols en fonction du débit ( x=[0;Q <sub>2ans</sub> ]). Intervalles de prédiction α=5% .....	64
Figure III-10: Comparaison entre chroniques de conductivité en Arles modélisées par Casteaur (bleu) et observées (rouge) pour la crue du 24/11/2019.....	65
Figure III-11 : Boxplot concentrations en uranium naturel des principaux affluents du Rhône (configuration « Cast1.0 »). Données issues de <a href="http://www.naiades.eaufrance.fr/">http://www.naiades.eaufrance.fr/</a> sur la période 2000-2020.....	66
Figure III-12: Variation annuelle de la concentration d'uranium dissous dans le Rhône aval.....	67
Figure III-13 Vitesse moyenne du courant dans la colonne d'eau observée au bac de Barcarin en fonction du débit mesuré en Arles.....	69

Figure IV-1 : Théorème de Knudsen dans le cas d'un estuaire stratifié sans autre apport que l'entraînement (flèche courbée rouge) .....	75
Figure IV-2: Illustration de l'approximation de la ligne rigide d'après Duchêne (2014) ...	77
Figure IV-3: Section longitudinale caractéristique d'un estuaire à coin salé, adapté de Kravvavica et al. 2020 .....	78
Figure IV-4: Structure de salinité (Salinité moyenne/Salinité de l'océan) de l'amont de l'estuaire à l'embouchure L'axe des abscisses représente une distance hypothétique en amont de l'embouchure (0). L'axe des ordonnées représente $\Sigma$ la salinité moyennée sur la vertical adimensionnée par la salinité de la mer dans le cas de la courbe noire ou la fraction d'échange diffusif dans le cas de la courbe bleue. A gauche solution pour un estuaire purement diffusif. A droite solution pour un estuaire avec pur entraînement. D'après (MacCready and Geyer, 2009). .....	81
Figure IV-5 : Distributions de densité théoriques adimensionnées (dans l'exemple $\rho_M=1/4 \rho_{LS}$ et $\rho_T=1/2 \rho_{LS}$ ) pour deux box model estuariens différents et dans leurs deux compartiments respectifs. Les traits pleins correspondent aux distributions dans les biseaux salés, les traits pointillés correspondent aux distributions dans les panaches internes. Le point d'abscisse zero correspond à l'embouchure.....	82
Figure IV-6: Gestion de la modélisation du continuum fleuve-mer centré sur l'estuaire « box-model » défini sur l'espace (x,y,z) par une longueur L, largeur W, et profondeurs $h_1$ et $h_2$ variables selon les conditions hydrologiques. Voir texte pour description des échanges .....	84
Figure IV-7: Variations de la hauteur d'eau à Barcarin et traitement des harmoniques de marée.....	87
Figure IV-8 : Variations de la hauteur d'eau à Grand Boisviel et traitement des harmoniques de marée.....	88
Figure IV-9: Gamme théorique des nombres de Froude selon la formule (IV-19) sur le linéaire du Rhône entre 300 et 1500 m <sup>3</sup> /s (points rouges et barres d'erreur) et interpolation polynomiale pour le même intervalle .....	91
Figure IV-10: Erreur quadratique moyenne sur la longueur du coin salé en fonction des paramètres de friction et de pente.....	93
Figure IV-11 : Erreur quadratique moyenne sur la profondeur du coin salé à 7 km de l'embouchure en fonction des paramètres de friction et de pente .....	93
Figure IV-12 : Comparaison entre les résultats du modèle du coin salé issu de la "two layer flow theory" sur le Rhône et comparaisons avec les observations (Ibanez et al, (1997) ;Levasseur & Doutriaux, (1992)). Résultats sur la longueur du coin salé à gauche, résultats sur la profondeur de l'interface à 7 km de l'embouchure à droite.....	95
Figure IV-13 : Progression du coin salé en fonction du débit du Rhône des 48 dernières heures.....	96
Figure IV-14 : Localisation des principales sources de données sur l'estuaire du Grand Rhône et leurs points kilométriques (pK) ( points de référence le long du linéaire du Rhône allant de 0 (Pont Pasteur, Lyon) à 330 (Embouchure du Grand Rhône).....	97
Figure IV-15 : Profils de salinité pour différents transects de l'estuaire du Rhône obtenus à l'aide d'une sonde CTD pour la campagne du 09/07/2020 pour un débit en Arles des 48 dernières heures de 1022 m <sup>3</sup> /s.....	101
Figure IV-16: Comparaison des chroniques de salinité prédites à Barcarin (PK 315) avec la salinité moyenne observée sur les 48 dernières heures (Validation) .....	102
Figure IV-17: Goodness of fit entre les salinités prédites à Barcarin (PK 315) par le box-model avec la salinité moyenne observée sur les 48 dernières heures (Validation) .....	103
Figure V-1 : Planning de l'expérimentation de sorption désorption. Les sigles « p » indiquent un prélèvement de la suspension pour une analyse de l'activité dissoute en solution. Les sigles « C » indiquent la création d'un batch par ajout de la source radioactive	

dans le cas de la sorption, ou par une extraction de la suspension du batch de sorption introduit en solution saumâtre pour la désorption. Le sigle « F » indique la fin de la manip. Les sigles « A ou B » sur les échantillons correspondent à des doublons expérimentaux. ....	119
Figure V-2 : Pourcentage d'activité de césium sorbée sur les particules du Rhône en fonction du temps (Concentration en MES =2 g/L) .....	121
Figure V-3 : Pourcentage d'activité désorbée de césium en fonction du temps et de la salinité sans et avec incertitudes pour plus de lisibilité.....	122
Figure V-4 : Coefficients de distribution solide-liquide du césium (moyenné sur 1 mois) sur les 20 dernières années observés en Arles et comparaison avec les expérimentations de laboratoire.....	124
Figure V-5 : Evolutions des Kd de désorption pour le Rhône (salinité maximale :37) et la Loire (salinité maximale :22) (Ciffroy et al, 2003).Les deux échantillons traités de la Loire sont en noir tandis que celui du Rhône est en rouge (trait plein pour sorption de 1h, pointillés pour sorption de 30 j).....	125
Figure V-6 : Schéma représentant un modèle cinétique d'adsorption/désorption des contaminants en deux étapes. Les sites 1 et 2 correspondent à des sites réversibles ou faiblement réversibles, soit à faible ou forte affinité pour le césium.....	126
Figure V-7: Comparaison des activités dissoutes observées et modélisées à 0 de salinité. ....	129
Figure V-8 :Comparaison des activités dissoutes observées et modélisées à 4 de salinité. ....	130
Figure V-9 : Comparaison des activités dissoutes observées et modélisées à 37 de salinité. ....	130
Figure VI-1 : Fraction de l'activité en césium en phase dissoute dans le Rhône en fonction de la concentration de MES (5 mg à 4000 mg/L) et le temps de sorption en zone fluviale. Des cas réalistes issus du Chapitre III sont placés pour information. Les lignes rouges délimitent les zones ou la fraction de l'activité totale en phase dissoute est supérieure à 0.8, 0.6, 0.4, 0.2 et 0. ....	134
Figure VI-2 : Fraction de l'activité en césium en phase dissoute dans le Rhône en fonction de la concentration de MES (5mg à 200 mg/L) et le temps de sorption en zone fluviale. . Les lignes rouges délimitent les zones ou la fraction de l'activité totale en phase dissoute est supérieure à 0.8, 0.6, 0.4 et inférieures à 0.4 .....	134
Figure VI-3 : Fraction de césium présente sur les sites 2 (forte affinité pour le césium) en fonction de la concentration de MES (5mg à 4000 mg/L) et le temps de sorption en zone fluviale. Les lignes rouges délimitent les zones ou la fraction d'activité totale sur les sites 2 est supérieure à 0, 0.2, 0.4, 0.6 et 0.8. ....	135
Figure VI-4 : Pourcentage de particules sédimentant dans le panache interne de l'estuaire du Rhône en fonction du débit moyen des 48 dernières heures.....	137
Figure VI-5 : Flushing time (ou temps de résidence dans le panache interne) en fonction du débit moyen du Rhône des 48 dernières heures.....	138
Figure VI-6 : Fraction de l'activité en césium en phase dissoute dans le Rhône en Arles en fonction du débit et du temps de sorption en zone fluviale. Les lignes rouges délimitent les zones où la fraction de l'activité totale en phase dissoute est supérieure à 0.8, 0.6, 0.4, 0.2 et 0.....	141
Figure VI-7 : Intensité de désorption dans le panache proximal (activité solide en césium finale/ activité solide en césium en zone fluviale) en fonction du débit et du temps de sorption en zone fluviale. Les zones blanches correspondent à une désorption nulle dans cette zone.....	142
Figure VI-8 : Fraction de l'activité en césium en phase dissoute dans l'estuaire du Rhône entre Arles et l'embouchure en fonction du débit et du temps de sorption en zone fluviale.	

Les lignes rouges délimitent les zones où la fraction de l'activité totale en phase dissoute est supérieure à 0.8, 0.6, 0.4, 0.2 et 0. ....	143
Figure VI-9 : Intensité de désorption (activité solide en césium finale/ activité solide en césium en zone fluviale) en fonction du débit et du temps de sorption en zone fluviale. Cette désorption est simulée après le passage des particules dans l'estuaire puis dans le panache proximal.....	144
Figure VI-10 : Fraction de l'activité en césium en phase dissoute dans le panache proximal du Rhône (1.44 km <sup>3</sup> à l'embouchure) en fonction du débit et du temps de sorption en zone fluviale. Les lignes rouges délimitent les zones ou la fraction de l'activité totale en phase dissoute est supérieure à 0.8, 0.6, 0.4, 0.2 et 0.....	144
Figure VI-11 : Fraction de l'activité en césium en phase dissoute dans le panache du Rhône dilué au 1/100 après 6 jours fonction en du débit et du temps de sorption en zone fluviale .....	145
Figure VI-12 : Diagramme d'évolution théorique du césium dissous sur le gradient de salinité Rhône-Méditerranée. Un écart à la droite de mélange (trait noir pointillé) indique une réactivité de l'élément considéré. Les activités en eau douce et en mer sont fixées théoriquement pour simuler une contamination depuis le fleuve.....	147
Figure VI-13 : Activités de <sup>137</sup> Cs dissous mesurées durant les campagnes DRIM de Juin (1100 m <sup>3</sup> /s) et Septembre 2019 (450 m <sup>3</sup> /s). Le point gris correspond à la moyenne de 3 échantillons mesurés au large de Toulon et Marseille en Avril 2019. Issu de Radakovitch et al (2021). ....	148
Figure VIII-1 : Arbre décisionnel pour calculer les principaux paramètres régissant la réactivité d'un estuaire pour les éléments dissous. Les numéros d'équations entre parenthèses font référence aux équations du Tableau V-1.....	167

# I. Introduction générale

## I.1. Enjeux

Une importante partie des contaminants d'origine anthropique arrivent en mer par les fleuves (Seitzinger et al., 2010). Les progrès dans le domaine de la modélisation et du monitoring des grands fleuves ont permis d'avoir une bonne estimation des polluants qui y transitent. Toutefois, de nombreux processus estuariens modifient dans l'espace et le temps ces apports de polluants d'origine fluviale avant leur arrivée en mer.

Il résulte de ces processus une grande incertitude sur les flux arrivant réellement en mer, inférieurs ou supérieurs à ceux du fleuve selon les polluants et les systèmes estuariens considérés. Il est impossible d'établir des règles générales allant au-delà d'une simple approche qualitative sur la fonction de transfert d'un estuaire. Cette fonction de transfert est une combinaison de forçages continentaux et marins, qui sont très variables géographiquement et dans le temps. Le nombre quasi infini de combinaisons possibles de forçages génère une quasi infinité de fonctions de transfert estuariennes.

Cette fonction de transfert doit donc être modélisée à minima pour obtenir une estimation correcte du flux de polluants arrivant en mer. Pourtant, d'importants verrous scientifiques demeurent sur les capacités de transferts des contaminants en estuaires.

Le premier est la modification pure et simple du flux d'eau, vecteur des contaminants par des effets de stratification et mélanges. Ces processus étaient jusqu'à récemment difficilement hiérarchisables sans un nombre important de paramètres. Dans un deuxième temps, l'estuaire avec ses différents gradients de paramètres physico-chimiques (salinité, turbidité...) favorise différentes réactions (désorption, complexation, réduction, bio-oxydation ou photo-oxydation...). La réactivité de certains polluants y est donc parfois plus favorable dans ces zones plutôt que dans des milieux purement fluviaux ou marins.

Dans un contexte d'évaluation du risque, une des missions de l'IRSN est d'étudier l'évolution de la radioactivité dans les différents compartiments de l'environnement pour un calcul d'exposition. Les éléments du continuum que sont le fleuve et la mer sont déjà modélisés par l'IRSN. Coupler ces modèles augmenterait considérablement les capacités de prédiction de l'IRSN et l'efficacité des réponses en cas de rejet accidentel. Néanmoins, les flux de RN fluviaux sont aussi sujets à une modification estuarienne exposée plus haut. Le rôle de « hotspot géochimique » de l'estuaire vis-à-vis des polluants est particulièrement important pour les RN. Ces éléments couvrent une grande partie du tableau périodique, avec des propriétés très différentes et sont donc soumis à de nombreuses réactions chimiques. Une partie ont un comportement d'éléments traces métalliques, d'autres peuvent changer de phase ou encore s'intégrer à la matière organique ou aux molécules d'eau. Ces processus génèrent aussi des incertitudes pour les RN ou l'on observe parfois des concentrations en phase dissoute supérieures d'un facteur 10 à celles attendues. Ces incertitudes sur les concentrations sont importantes comparées aux incertitudes sur les autres éléments du continuum (fleuve et mer) beaucoup moins réactifs. Tant que des

incertitudes aussi importantes existent, le projet de couplage des modèles est caduc sans une modélisation minimale de la réactivité et des capacités de transfert de la zone estuarienne.

Dans la suite de l'introduction nous décrivons la variabilité de fonctionnements hydrauliques des estuaires. Dans un deuxième temps, nous observons les conséquences des fonctions de transfert estuariennes qui en résultent sur le comportement des radionucléides au travers de différents exemples dans le monde. Enfin nous détaillons l'hypothèse que modéliser les transferts de RN (en particulier le césium) dans l'estuaire pour assurer le continuum nécessite à minima une fonction de transfert estuarienne. Cette fonction de transfert doit reposer sur une modélisation du gradient estuarien d'intérêt (dans notre cas la salinité) et la réactivité du RN sur celui-ci.

## 1.2. L'estuaire, acteur quasi incontournable du transfert des radionucléides en milieu aquatique

Selon Perillo, (1995) il existe 40 définitions pour un estuaire. La plus communément utilisée est celle de Cameron et Pritchard (1963) le définissant comme une masse d'eau côtière semi fermée dans laquelle de l'eau de mer est diluée avec de l'eau douce d'origine continentale. Cette définition ne prend pas en compte l'influence des vagues ou de la marée et Dionne (1963) affine la définition en l'étendant au-delà de la salinité en divisant l'estuaire en trois secteurs :

- l'estuaire « inférieur » ou « marin » en connexion libre avec la mer.
- l'estuaire « intermédiaire » où a lieu le mélange entre eau douce et eau de mer
- l'estuaire « supérieur » ou « fluvial » constitué uniquement d'eau douce mais sujet à l'action de la marée.

Les estuaires représentent une surface minime rapportée à l'ensemble du continuum (Dürr et al., 2011), mais ils assurent la transition d'un milieu fluvial en eau douce à un milieu marin salé, avec un gradient de conditions physiques et chimiques (salinité, oxygène et carbone dissous) susceptibles de changer drastiquement sur de faibles échelles de temps et d'espace. De tels changements sur des échelles spatiales et temporelles fines donnent un rôle clef aux estuaires dans les dynamiques de transferts de flux d'eau, d'éléments solides et dissous à la mer. Les estuaires sont donc souvent considérés en géochimie comme de véritables « hotspots réactionnels »(Needoba et al., 2015).

Morris (1985) décrit les estuaires comme « des exemples classiques de systèmes thermodynamiques ouverts et complexes, sujets à des flux sortants et entrants variables et des réactions chimiques continues en interne. » On peut faire une analogie entre le fonctionnement d'un estuaire et le traitement du signal par un filtre électronique: l'estuaire permet de changer la phase et l'amplitude d'un signal d'entrée (apports continentaux d'eau, de matériel solide ou dissous) résultant en un signal d'entrée différé dans son intensité et son arrivée. Cette notion de « filtre » estuarien a déjà été abordée pour différentes problématiques (Kennedy, 1984). Pouvoir prédire les capacités de transfert de l'estuaire est primordial dans le domaine de la radioprotection ou de la

protection de l'environnement contre les rejets accidentels en général. En situation de crise par exemple, le déphasage induit par l'estuaire sur le flux de polluants entrant à la mer pourrait être de plusieurs heures ou jours. C'est une première source d'incertitudes, qu'il est important d'avoir en-tête si des mesures de mitigation peuvent être proposées pour les zones côtières mais dimensionnées sur le temps d'arrivée du panache de polluants, ce qui inclut le passage par l'estuaire.

Il est aussi nécessaire de bien évaluer la variabilité des concentrations des polluants en phase dissoute induite par l'estuaire. Lorsque l'on prend une vision simple des transferts vers la chaîne trophique (Figure I-1), on constate que les concentrations dissoutes ont un rôle clé pour le transfert vers les organismes, et elles dépendent des apports directs du fleuve et des processus d'échanges avec la phase particulaire dans l'estuaire même. Cette phase dissoute peut être enrichie en contaminants (filtre actif), inchangée ou appauvrie (filtre passif) selon différents processus estuariens qui seront présentés en I.3 et I.4. Les conséquences pour le transfert dissous des radionucléides sont présentées en I.5.

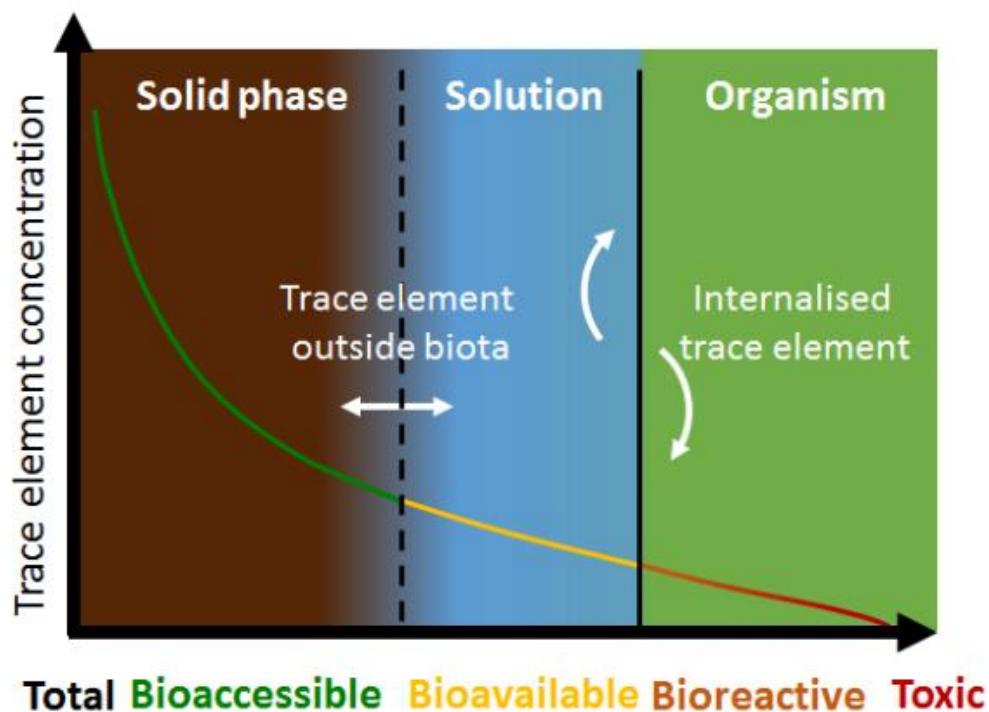


Figure I-1 : Terminologie du transfert des éléments traces des particules et de l'eau aux organismes d'après (Gil-Diaz, 2019).

### 1.3. Une diversité de fonctionnement hydrodynamique des estuaires

Les estuaires peuvent être classés de différentes façons selon leurs topographies, leurs morphologies, la force des marées ou encore leur structure de salinité et d'écoulement. Certains de ces critères sont reliés entre eux comme la morphologie et les marées qui influencent la structure de salinité.

La classification par la structure de salinité et des courants est la plus intéressante. Résoudre la structure de salinité et de courants c'est connaître la circulation de l'eau dans l'estuaire (Dyer, 1997), et dans une moindre mesure la circulation des solutés et matières

en suspensions. En plus, certaines réactions chimiques comme la floculation ou la désorption, notamment pour les éléments traces métalliques, sont dépendantes de la salinité.

La classification la plus connue basée sur la stratification et la circulation est sans doute celle de Hansen & Rattray (1966). Néanmoins, les récents développements sur les propriétés transitoires des écoulements s'intègrent mieux dans la classification proposée par Geyer & MacCready, (2014) en Figure I-2. Cette classification confronte la nature de l'écoulement du fleuve par l'intermédiaire du nombre de Froude  $F_0$  avec la nature des mélanges générés par la marée décrits par un « mixing number »  $M$ .

Le nombre de Froude,  $F_0$  est défini en (I-1) par :

$$F_0 = \frac{Q_r}{H_0 w} \frac{1}{\sqrt{\frac{g H_0 (\rho_0 - \rho_{LS})}{\rho_0}}} \quad (\text{I-1})$$

$Q_r$  est le débit du fleuve en  $\text{m}^3/\text{s}$ ,  $H_0$  sa profondeur et  $w$  sa largeur en mètres.  $g$  est la constante universelle de gravité,  $\rho_0$  la densité de l'eau du fleuve et  $\rho_{LS}$  la densité de la mer proche à l'embouchure de l'estuaire.

$M$  est similaire au paramètre de stratification de Hansen & Rattray. Ce nombre est défini comme étant le rapport des échelles de temps des effets de marée sur les effets de mélange verticaux.  $M$  est défini en (I-2) comme :

$$M = \sqrt{\frac{C_D U_T^2}{\omega N_0 H_0^2}} \quad (\text{I-2})$$



ou  $C_D$  est le « drag coefficient » nombre sans dimension pour indiquer la résistance du lit de l'estuaire à l'écoulement,  $U_T$  les courants générés par la marée dans l'estuaire en  $m^3/s$ ,  $\omega$  la fréquence de la marée en  $s^{-1}$  et  $N_0$  la fréquence maximale de Brunt-Väisälä (buoyancy frequency) observable dans l'estuaire en  $s^{-1}$ . Ainsi, en suivant cette classification on retrouve sur la partie gauche de la figure des estuaires avec peu de marées tels que l'Ebre qui est en mer Méditerranée. Tandis qu'on retrouve dans la partie basse des estuaires ou l'eau douce arrive dans de grands volumes d'eau saumâtres comme c'est le cas des fjords ou des baies ce qui a pour effet de réduire la vitesse de l'écoulement et donc  $F_0$ . Les estuaires chenalisés comme l'Ebre ou le Fraser présentent généralement une vitesse d'écoulement plus importante et donc un plus grand  $F_0$  et sont donc placés sur la partie amont du diagramme. Les conditions les plus favorables pour qu'un estuaire présente une stratification sont la présence d'un  $F_0$  important et/ou d'un  $M$  faible.

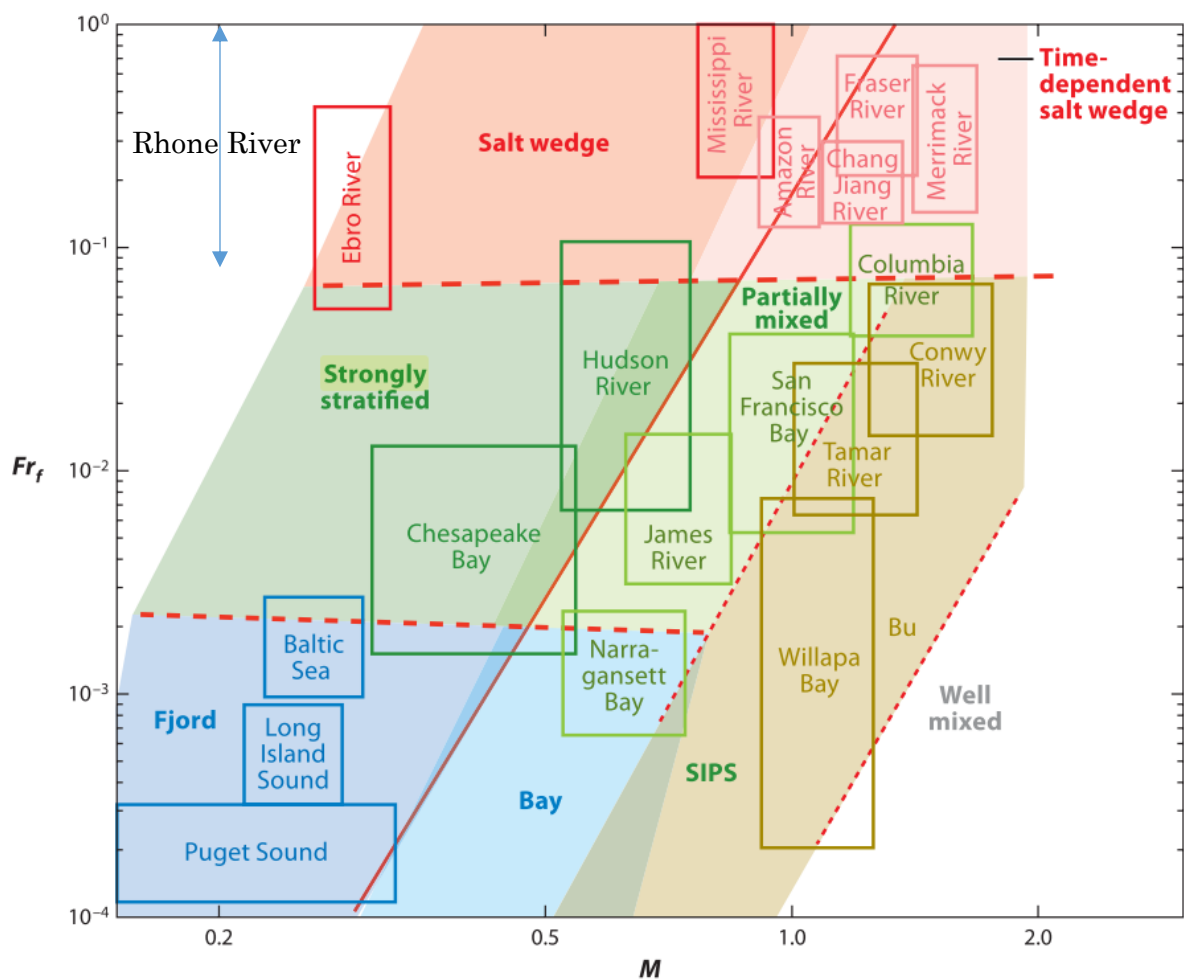


Figure I-2 : Plan de classification des estuaires basé sur le nombre de Froude fluvial et le nombre de mélange. La diagonale rouge pleine indique la valeur pour laquelle la couche limite de mélange intègre toute la profondeur de l'estuaire. D'après Geyer (2014). La position théorique du Rhône pour les harmoniques M2 est représentée

Selon Geyer & Ralston (2012) la stratification est l'une des caractéristiques les plus importantes d'un estuaire au sens où elle exerce un contrôle sur le mélange vertical. Ce mélange vertical affecte profondément la physique et la distribution des espèces chimiques et biologiques dans les estuaires. Dans les estuaires, la stratification naît d'une différence

de densité entre l'eau douce apportée par le fleuve et l'eau de mer de l'océan, plus dense. La gravité entraîne le déplacement de la strate d'eau douce au-dessus de celle d'eau salée, plus dense qu'on appelle « intrusion salée ». Ces deux strates sont séparées par un halocline marqué. Une partie de l'eau salée de l'intrusion va se mélanger avec l'eau douce du fleuve en surface (dénommé par la suite « panache interne »). Cette eau salée est ensuite expulsée par le panache interne à l'embouchure. La stratification est maintenue par un renouvellement permanent en eau de mer dans l'intrusion. Ce mouvement des masses d'eau est parfois appelé « circulation résiduelle ».

Un simple apport d'eau douce est une condition nécessaire mais non suffisante pour générer cette stratification. Le débit d'eau de mer doit excéder le taux de mélange, généralement fonction des forçages des marées. Par conséquent, les stratifications importantes proviennent d'un fort débit d'eau douce ou d'un mélange dû à la marée faible.

Les 5 grands types d'estuaires en termes de structure verticale de salinité sont présentés en Figure I-3.

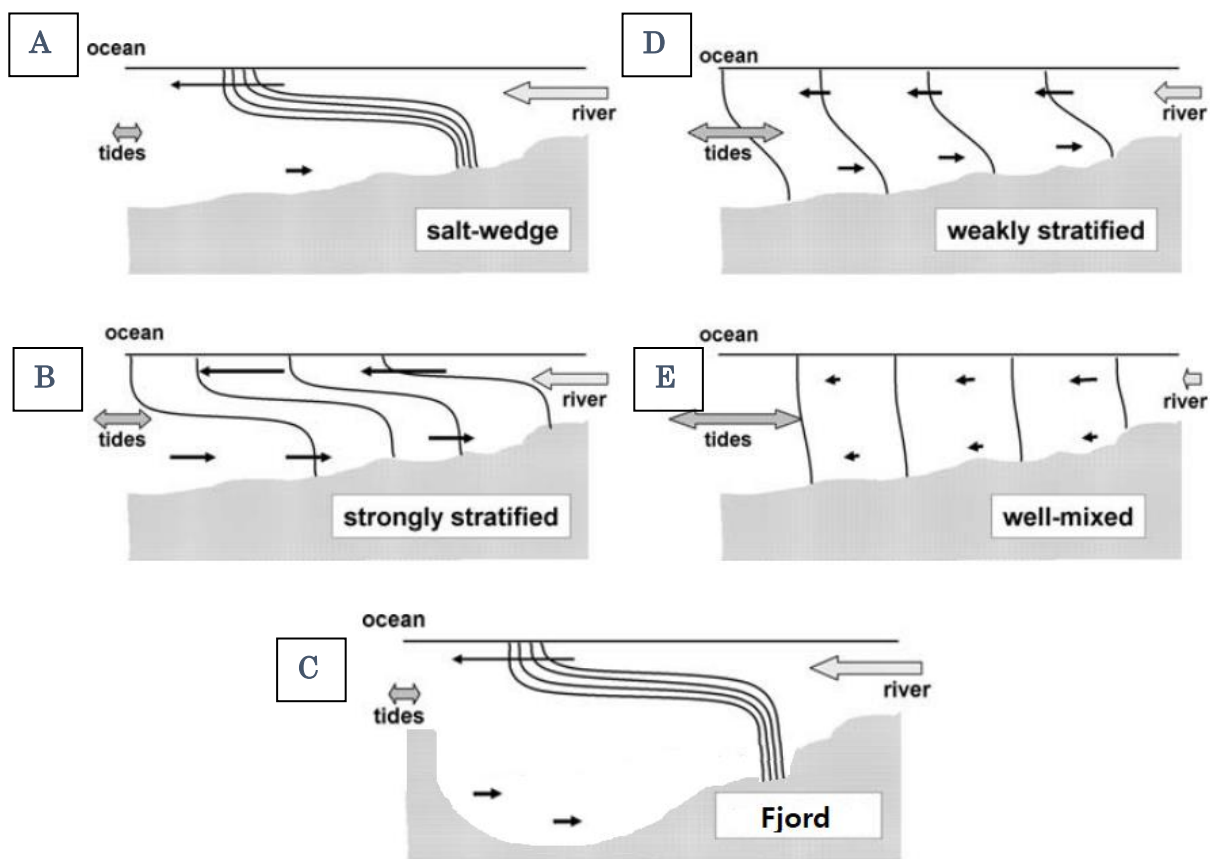


Figure I-3 : Classification des estuaires sur la base de leur structure verticale de salinité adapté de (Valle-Levinson, 2010)

### 1.3.1. Les estuaires stratifiés (A,B,C)

#### 1.3.1.a. L'estuaire à coin salé (A)

C'est la forme la plus extrême d'estuaire stratifié. Le volume d'eau apporté par la rivière est bien supérieur au volume d'eau apporté par la marée et la vitesse de l'écoulement du fleuve y est la plus importante (Froude de l'ordre de  $10^{-1}$ ). Ces vitesses génèrent un cisaillement important et minimisent la diffusion. Le mélange généré est cantonné à l'interface (transition layer) qui est fine, facilement identifiable et souvent semblable à un biseau en observant sa structure longitudinale dans l'estuaire. La remontée verticale d'eau salée pour maintenir cette stratification est très faible et par conséquent, le débit rentrant d'eau salée à l'embouchure pour compenser aussi. Les vitesses de remontée de l'eau dans l'intrusion salée vers l'amont sont quasiment nulles. Des estuaires à coin salé caractéristiques sont l'Ebre (Espagne), le Mississippi, le Rhône ou des systèmes plus modestes comme l'Ofanto (Italie).

#### 1.3.1.b. L'estuaire fortement stratifié (B)

Pour ces estuaires, le volume d'eau apporté par le fleuve est du même ordre de grandeur que celui apporté par la marée. L'écoulement du fleuve est modéré (nombres de Froude de l'ordre de  $10^{-3}$  à  $10^{-2}$ ) et le cisaillement moins important que dans l'exemple précédents. Les flux d'eau de mer apportés pour maintenir la stratification sont importants, et le volume de la strate salée est suffisant pour alimenter le panache interne en surface qui gagne une quantité significative d'eau et de sel. Des fleuves peu profonds peuvent présenter cette caractéristique à bas débits quand la vitesse d'écoulement du fleuve est plus faible en surface et la strate salée plus épaisse. D'après Geyer & MacCready, (2014) l'Ebre à bas débit et l'Hudson sont dans cette catégorie.

#### 1.3.1.c. Les fjords (C)

Les Fjords sont similaires aux estuaires à coin salé au sens où le volume d'eau apporté par la rivière (voire la fonte) est supérieur à celui apporté par la marée. Toutefois, leur grande profondeur réduit encore la vitesse de l'écoulement (nombres de Froude de  $10^{-4}$  à  $10^{-3}$ ). La présence de certains seuils peu profonds génère localement des « burst » ou le mélange entre eau douce et eau salée est prononcé tandis que la présence de mouilles (creux) crée des zones sans mélanges ou l'eau se renouvelle très lentement, parfois de l'ordre de l'année (Dyer, 1997). Des exemples d'estuaires type fjord sont l'Alberni inlet, le Puget Sund ou la Silver Bay.

Le point commun à ces 3 estuaires à stratification importante est que l'apport d'eau salée au panache interne se fait majoritairement par entrainement (one way process), impliquant les transferts d'eau et de soluté majoritairement de l'intrusion salée au panache interne. Le débit d'eau salée arrivant par entrainement est généralement de l'ordre de 3 à 15% du débit du fleuve pour les estuaires à coin salé (Krvavica et al., 2016) mais parfois jusqu'à 50% pour les estuaires fortement stratifiés (Tolmazin, 1985).

Cet apport peut se faire sur plusieurs dizaines de kilomètres, et le transfert uniquement vers le haut explique les temps de résidence (le temps restant qu'une « particule » va passer dans une région définie à partir de son point de départ) de l'eau et des solutés dans le biseau de ces estuaires. Du temps le plus long au plus court on retrouve :

- 1) Les fjords qui ont une profondeur importante et donc un renouvellement plus lent.
- 2) les estuaires à coins salés avec des profondeurs moindres mais avec un entrainement faible.
- 3) les estuaires fortement stratifiés caractérisés par un entrainement plus important et donc un renouvellement plus rapide.

#### *1.3.1.d. Réactivité des estuaires stratifiés*

Les temps de résidence étant importants dans les fjords et coins salés permanents entraînent des zones d'anoxies au fond et des réactions de réduction comme la dénitrification (Roberts et al., 2014) ainsi que des modifications de la spéciation des éléments trace métalliques. Ces biseaux peuvent donc avoir un rôle de réacteurs chimique, dégradant la matière organique et réinjectant les ions issus de cette minéralisation (phosphate, ammonium) dans le panache interne ou à l'interface avec celui-ci (Sierra et al., 2002 ;Watanabe et al., 2014).

Des réactions chimiques peuvent aussi se produire dans le panache interne, même pour des temps de transit (flushing time) plus courts. D'après Balls (1994), la conservativité des éléments chimiques dans le panache est inversement proportionnelle à son flushing time. Il existe différentes façons de calculer ce temps de transit, l'une d'entre elle sera exposée au Chapitre VI. En première approche, on peut considérer d'après l'équation (I-3) que ces temps  $\tau_m$  sont inversement proportionnels au nombre de Froude au carré en combinant avec l'équation 53 de Officer (1980) .

$$\tau_m = \alpha \times \frac{1}{F_0^2} \quad (I-3)$$

$$\text{Avec } \alpha = \left(1 - \frac{S_0}{S_{LS}}\right) \frac{Q_r}{H_0 w g \beta S_{LS}}$$

En se basant sur la Figure I-2, les flushing time les plus importants sont d'abord ceux des fjords, puis des estuaires fortement stratifiés et enfin des biseaux salés.

Ce panache interne reçoit un apport d'ions chlorure, sodium et potassium du biseau salé, favorisant les réactions de désorption (Garnier and Guieu, 2003), de flocculation, complexations de manière plus ou moins poussée selon les cinétiques des réactions, le temps de résidence dans le panache et la nature des particules. Les apports de nutriments au panache par le biseau peuvent aussi favoriser le développement du phytoplancton (Viličić et al., 1989 ;Chen et al., 2004), facilité en plus par une meilleure pénétration de la lumière en surface dans l'estuaire (Dagg et al., 2004) ( dilution du panache fluvial par de l'eau de mer moins chargée en MES).Ce phytoplancton est à son tour un support pour la sorption d'éléments traces métalliques (Sunda, 1988).

### 1.3.2. Les estuaires semi-stratifiés (ou partiellement mélangés) (D)

Pour ces estuaires le volume d'eau apporté par le fleuve est équivalent à celui apporté par la marée. L'alternance des courants de marée génère de la friction, notamment sur le lit du fleuve qui sera dissipée en turbulence. Contrairement aux estuaires stratifiés décrit précédemment, la couche limite de mélange n'est plus cantonnée à l'interface et arrive théoriquement jusqu'en surface de l'estuaire (ligne rouge pleine Figure I-2). La différence de salinité entre les deux couches est moins aigue et la structure caractéristique de biseau moins évidente.

Une différence majeure entre les estuaires semi stratifiés et stratifiés est la présence plus importante de diffusion turbulente, ce qui implique :

- Des débits d'eau salée transitant par le biseau plus importants.
- Des transferts d'eau et solutés non négligeables du panache au biseau.

En somme, là où un estuaire stratifié « traitait » l'eau de mer côtière et la réinjectait dans le panache interne, l'estuaire semi stratifié transfère une partie de l'eau du panache dans le biseau. Aussi, la différence de fonctionnement géochimique entre les deux strates est a priori moins marquée pour les estuaires semi-stratifiés.

### 1.3.3. Les estuaires mélangés et baies (E)

Le volume d'eau apporté par la marée est plus important que le volume apporté par le fleuve. Lorsque l'amplitude de marée est forte (conditions macro tidales  $>4\text{m}$ ) par rapport à la profondeur ( $M > 1$ ), le gradient de vitesse du fond est suffisamment important pour mélanger la colonne d'eau et rendre l'estuaire homogène verticalement en salinité. Si l'estuaire n'est pas très large (Forces centrifuges et de Coriolis négligeables), le gradient de salinité, progressif d'amont à l'aval, peut aussi être homogène sur la largeur de l'estuaire. L'influence de la marée diminuant d'aval en amont de l'estuaire on peut parfois observer une stratification sur la partie amont.

Les baies rentrent aussi dans la catégorie des estuaires mélangés. Dans leur définition première, les baies ne sont pas des estuaires mais plutôt une côte en partie enfermée par le continent. Toutefois, une baie captant de l'eau douce comme la baie de Narragansett s'apparente à un estuaire marin au sens où elle est en libre connexion avec la mer.

En conséquence, les écoulements d'eau douce sont faibles, comme pour les fjords mais l'absence de seuils autorise plus facilement le déplacement des ondes de marée et donc un mélange homogène sur la colonne d'eau. Les baies, ainsi que la plupart des estuaires mélangés ont des dimensions importantes et nécessitent souvent d'être décrits par des modèles hydrodynamiques marins 2D et 3D pour peu que ceux-ci aient une résolution suffisante.

Dans les estuaires mélangés, les éléments dissous non réactifs suivent le gradient de salinité amont-aval qui est homogène sur la profondeur, voire la section. Toutefois, ce

gradient de salinité évolue fortement avec les phases de marée. Les distributions spatiales des éléments dissous sont donc généralement plus variables au cours du temps que pour les estuaires très stratifiés. La réactivité dans ces estuaires est souvent un intermédiaire entre celle des deux strates des estuaires stratifiés. Par exemple, on peut retrouver des zones d'anoxies dans des estuaires mélangés mais généralement moins marquées que sous l'halocline des estuaires à coin salé (Lajaunie-Salla, 2016).

En résumé, les valeurs moyennes des flushing time pour différents systèmes estuariens sont présentées en

Figure I-4 d'après (Dürr et al., 2011). Cet auteur utilisait une classification différente de la nôtre, plus orientée sur la morphologie. Selon sa définition et les estuaires retenus dans sa review, nous assimilons les « deltas » à des estuaires à coin salés ou fortement stratifiés.

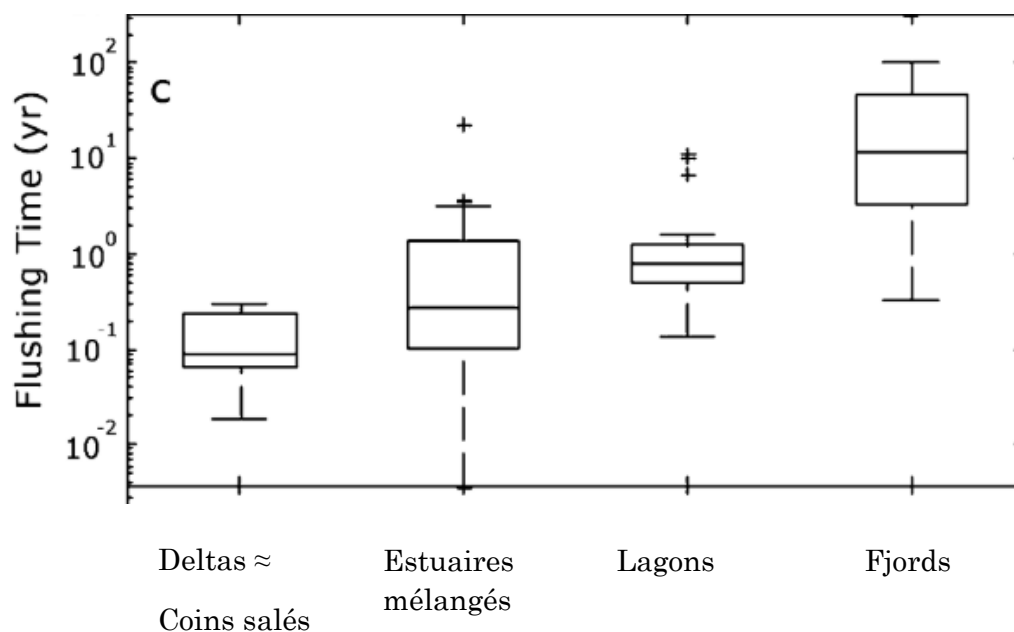


Figure I-4 : Distribution des "flushing times" de différents systèmes estuariens d'après (Dürr et al., 2011)

#### 1.3.4. Les estuaires à stratifications périodiques

Une faible amplitude des marées seule ne suffit pas à présager de la stratification d'un estuaire. Les avancées récentes dans les circulations estuariennes ont mis en lumière deux types d'estuaires aux fonctionnements et aux stratifications transitoires très influencés par le régime du fleuve ou des marées. Par simplification, ils sont parfois classés parmi les estuaires semi-stratifiés.

Un premier cas est les estuaires où le volume d'eau apporté par le fleuve est du même ordre de grandeur que le volume d'eau apporté par les marées. Pour les gammes modérées à élevées du débit du fleuve, la marée montante permet à l'eau salée de franchir l'embouchure (souvent protégée par une barre) et de s'introduire dans le lit du fleuve, peu profond, et de créer une stratification. Cette eau salée est chassée à chaque phase de marée descendante (Ralston et al., 2010). Cet équilibre entre des écoulements fluviaux forts et des effets de marée importants explique la position de ces estuaires à coin salé

intermittent (« time-dependent salt wedge ») dans le coin supérieur droit de la classification (Figure I-2).

Un autre type d'estuaire, plus sensible à la marée et susceptible de présenter une stratification périodique est l'estuaire à « strain periodic stratification » (SIPS). En opposition aux autres estuaires mélangés décrits au paragraphe précédent où la stratification est favorisée à marée montante, la stratification est améliorée par le « tidal straining » (Simpson et al., 1990) à marée descendante. Ce phénomène se retrouve dans les fleuves où l'écoulement de l'eau douce est modéré, la marée descendante plus prononcée en surface est susceptible d'accélérer sensiblement l'écoulement des eaux douces par rapport aux eaux denses. Ce gradient de vitesse génère de la stratification. Le phénomène inverse se produit à marée montante (tidal stirring).

Les estuaires à stratification périodique oscillent entre ces 3 principaux comportements et sur des échelles de temps très variables (Figure I-2). Cette alternance de phases stratifiées et non stratifiées induit un transfert des flux d'eau et d'éléments dissous difficiles à généraliser selon l'échelle de temps dans laquelle on se place. La notion d'intermittence, est assez récente (Dyer & New, 1986; Simpson et al., 1990). Par conséquent, les mécanismes de transferts d'eau dans ces estuaires, notamment les SIPS, sont loin d'être entièrement compris. S'il est encore trop tôt pour énoncer des principes généraux sur les transferts d'éléments dissous, le temps de résidence, ou la réactivité de ce type d'estuaire, des études mettent en évidence une alternance de phases d'hypoxie et d'aération sur les estuaires SIPS (O'Donnell et al., 2008) ainsi qu'une variation de l'efficacité du processus de floculation selon les phases de marée (Figuerola et al., 2019).

D'autres processus propres à ces estuaires très transitoires et leurs conséquences sur leur réactivité et leur écosystème sont amenés à être mis en évidence à l'avenir.

#### 1.4. De la complexité de la dynamique des MES

La circulation de l'eau et des solutés dans les estuaires est une représentation incomplète de la dynamique des polluants. En effet, les sédiments et matières en suspension contrôlent beaucoup de processus estuariens.

Dans l'estuaire la concentration de matières en suspensions (MES) est élevée, les particules sont fines, cohésives et susceptibles de flocculer. Elles peuvent être également enrichies en matière organique (Dyer, 1995).

Ces caractéristiques favorisent l'adsorption en surface de polluants, y compris les radionucléides. Par conséquent, le transport et la dispersion des contaminants ne peuvent être pleinement compris que lorsque la dynamique de ces MES sont connues. Cette dynamique est cependant complexe, et plus difficile à généraliser que les dynamiques du dissous.

Un mécanisme classique de cette dynamique des MES, commun à beaucoup d'estuaires mais avec une intensité variable est la création d'un « maximum de turbidité », ou « Estuary Turbidity Maximum » (ETM). Ce phénomène est particulièrement important dans les estuaires méso à macrotidaux. Les effets de marées sont capables de maintenir

une concentration en MES plus haute que celles en rivières ou plus en aval dans l'estuaire. Cette zone est généralement localisée vers l'extrémité amont de l'intrusion salée ou la salinité est de 1 à 5g/L. Ce maximum de turbidité regroupe des concentrations en particules variant de 1 à 10 g/L en opposition aux estuaires avec de faibles marées présentant des maximums de 0.1 à 0.2 g/L. Il avance vers la mer lorsque le débit du fleuve augmente. Sa masse évolue positivement avec le débit d'après Dyer, (1995). Un exemple dans la littérature scientifique qui est considéré comme un cas d'école est l'estuaire de la Gironde (Garonne) (Doxaran et al., 2009).

Les dynamiques de marées jouent également sur cet ETM, avec l'alternance des phases de marées qui module la vitesse des courants de fond. Des courants faibles (à marée montante) déplacent ce maximum de turbidité en amont et favorisent le dépôt des particules. En revanche, à marée descendante, le maximum se déplace vers l'aval et les courants plus forts qu'à marée montante favorisent la remise en suspension du lit. Cette remise en suspension augmente la concentration du maximum de turbidité.

Enfin, toutes les classes de particules ne peuvent être traitées comme un traceur passif répondant instantanément au courant. En conséquence, la dynamique sédimentaire est déphasée par rapport au courant. Ce déphasage produit un flux résiduel de sédiment même en l'absence de mouvements résiduels des masses d'eau lorsque les courants sont asymétriques. Le cas de l'estuaire de la Gironde illustre la différence des dynamiques de l'eau et des MES. Selon Jouanneau & Latouche (1981) le temps de résidence de l'eau dans l'estuaire y est de 20 à 90 jours tandis qu'il est de 1 à 2 ans pour les particules.

Les déphasages peuvent être produits par une variété de facteurs décrits dans Dyer (1995). Ce maximum de turbidité peut être un vecteur de polluants très important (Samanta and Dalai, 2018).

Lorsque l'on aborde la dynamique des polluants l'estuaire se présente donc comme une superposition de filtres, un premier filtre étant la circulation, un second la dynamique des matières en suspension/sédiments.

Cette notion de superpositions de filtres est illustrée en Figure I-5.

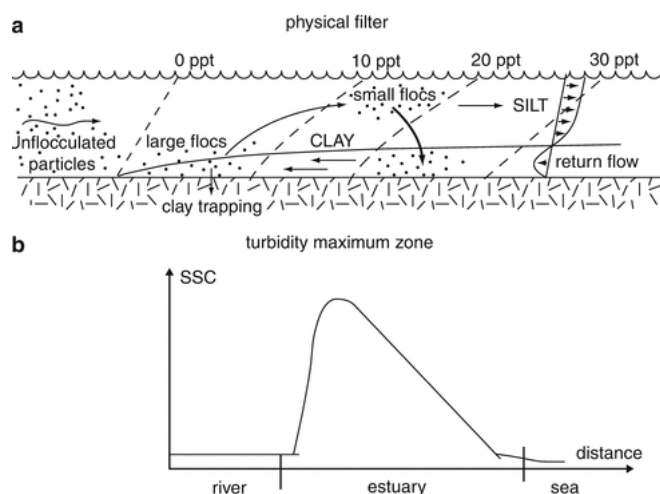


Figure I-5 :Résumé des principaux processus estuariens d'après (Wolanski et Andutta, 2012)



Pour maîtriser la dynamique des éléments dissous, il faut en premier lieu résoudre la circulation et la stratification dans l'estuaire puis la dynamique des MES. Il faut noter que ce travail n'abordera pas cette deuxième dynamique pour deux raisons. Tout d'abord l'hydrodynamique sédimentaire n'est pas encore maîtrisée correctement dans les modèles dont l'IRSN dispose. Deuxièmement, le Rhône qui est notre site d'étude ne présente pas de maximum de turbidité notable. Il est évident que la diversité d'estuaires existant implique une diversité de fonctions de transfert des flux d'eau, d'éléments solides et dissous à la mer.

## 1.5. Une diversité de dynamiques de transferts de radionucléides à l'interface

Les radionucléides couvrent une grande partie du tableau périodique et leurs propriétés chimiques vont gouverner toute une série de réactions de spéciation, soit sous forme dissoute, soit vis-à-vis des particules, notamment par compétition cationique avec les ions sodium et potassium. Les conditions oxydantes ou réductrices des estuaires gouvernent aussi la mobilité des métaux. Ici nous aborderons de manière non exhaustive le comportement de quelques RN aux propriétés chimiques distinctes et relevant de problématiques de radioprotection. Des exemples de leur comportement dans les différents systèmes estuariens cités dans le chapitre précédent sont donnés.

La réactivité de ces RN dans les estuaires peut être abordée par la compréhension des courbes de mélange. La salinité est conservative dans les estuaires et est un bon indicateur du mélange. Lorsque les espèces dissoutes (métaux, radionucléides et autres contaminants inorganiques) sont rejetés en tête de l'estuaire, ils peuvent se comporter de manière conservative ou non lors du mélange avec l'eau salée. Lors d'un mélange conservatif, il n'y a ni perte nette ni gain d'un élément en fonction de la salinité, de sorte que la variation de sa concentration n'est due qu'à la proportion de mélange entre l'eau du fleuve et celle de l'océan. Cependant, certains éléments montrent un comportement non conservatif, c'est-à-dire qu'ils sont enlevés ou ajoutés du système dissous pendant le mélange. Lorsque la concentration d'une espèce chimique est tracée en fonction de la salinité, le mélange entre deux composants tombe sur une ligne droite si l'espèce est conservative (Figure I-6). Si les points de données se situent au-dessus de la ligne théorique, il y a un apport à la phase dissoute, tandis qu'il y a un enlèvement (perte) s'ils se situent en dessous (Figure I-6).

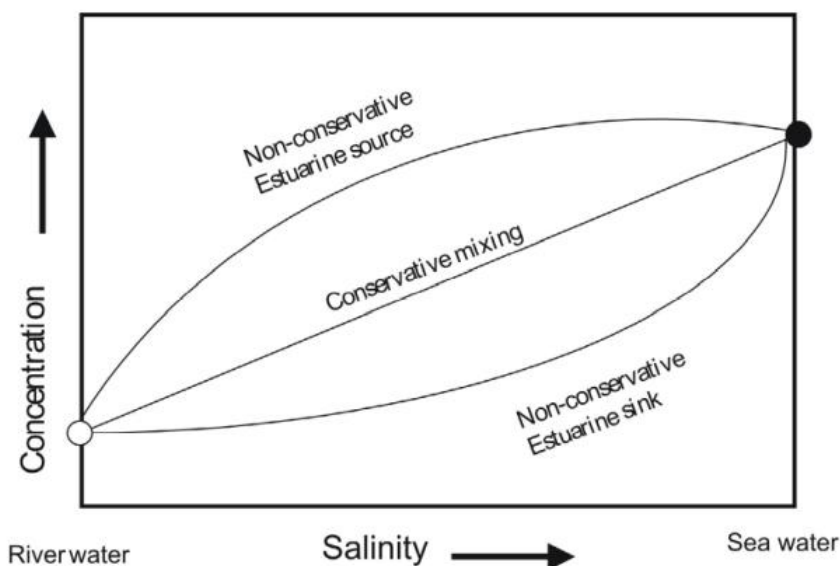


Figure I-6 : Diagramme de mélange théorique pour un estuaire idéal d'après (Swarzenski et al., 2003)

Ces gains-pertes sont généralement associés à des réactions chimiques (échanges entre phases solides et dissoutes), mais des apports supplémentaires dans l'estuaire (anthropiques, aquifères côtiers) peuvent induire une courbure de la ligne sans influence de réactions chimiques. De plus, si les variations du terme source fluvial (débits et concentrations) sont importantes et se produisent dans un court laps de temps, elles peuvent produire artificiellement un caractère non conservatif (Shiller, 1996; Swarzenski et al., 2003).

Le Tableau I-1 recense des études sur le devenir de radionucléides dans les estuaires: Cs, Mg, Co, Ag, U, et Sb. Les quatre premiers sont les principaux émetteurs gamma présents dans les rejets des centrales nucléaires françaises. L'uranium est un exemple de radionucléide naturel dont les concentrations augmentent drastiquement dans les cours d'eau notamment avec les effluents des mines (Hierro et al., 2013). Enfin, l'antimoine est présenté grâce à un travail de review de son comportement estuarien effectué par (Gil-Diaz, 2019). Le comportement de ces RN en estuaire que l'on peut déduire de ces travaux est synthétisé dans la Figure I-7. L'abscisse oppose les estuaires mélangés aux estuaires stratifiés tandis que l'ordonnée oppose les estuaires réactifs ou conservatifs par rapport aux métaux inscrits dans les cases. Lorsque cela était possible, nous avons vérifié que le comportement non conservatif du RN était dû à la géochimie de l'estuaire et non à des apports supplémentaires.

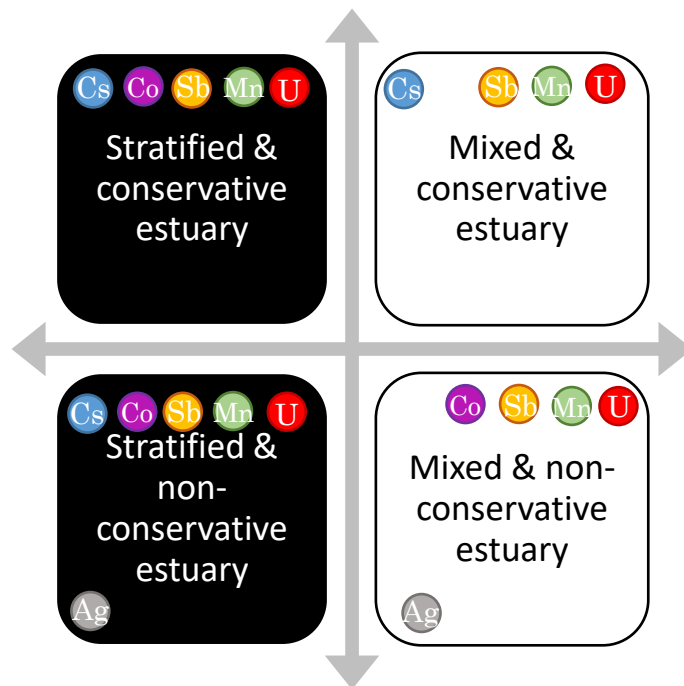


Figure I-7 : Cartographie de la réactivité de différents radionucléides pour différents systèmes estuariens

Tableau I-1 : références utilisées pour la cartographie de la réactivité des radionucléides vis à vis des estuaires

Elément	Stratifié & conservatif	Stratifié & non conservatif	Mixte & conservatif	Mixte & non conservatif
Cs	(Olivier Radakovitch et al., 2021)	(Lujanienė and Šilobritienė, 2004)	Loire (Siclet et al., 2002)	
U	(Djogić et al., 2001)	(Sarin and Church, 1994)	(Rahaman et al., 2010)	(Rahaman et al., 2010)
Mn	(Yang and Sañudo-Wilhelmy, 1998)	(Klinkhammer and McManus, 2001)	(Holliday and Liss, 1976)	Seine (Boughriet et al., 1992)
Ag			(Wen et al., 1997)	(Lanceleur et al., 2013)
Co	(Cindrić et al., 2015)	(W. Wang and Zhang, 2007)		(Chiffoleau et al., 1994)
Sb	Ocklokonee	Savannah	Medway	Tamar

Ce diagramme en Figure I-7 illustre la conséquence de la superposition de filtres évoquée plus haut. L'Uranium, Sb et Mn par exemple peuvent être conservatifs ou non, que l'estuaire présente une stratification ou pas. Certaines études montrent que pour un même estuaire le caractère conservatif varie avec les conditions amont, les débits solides et liquides et fleuve (Gil-Diaz, 2019). D'autres études montrent un caractère conservatif variable avec les conditions aval telles que la marée (Hierro et al., 2013).

Cette diversité d'estuaires et donc de fonctions de transfert des RN se traduit aussi au niveau des estuaires de fleuves nucléarisés. La Figure I-8 recense la plupart des estuaires nucléarisés. Les couleurs se réfèrent au type d'estuaire avec le même code couleur que pour la Figure I-2. L'aire occupée est proportionnelle au nombre de réacteurs nucléaires sur le linéaire du fleuve considéré.

Un tiers des réacteurs sont situés sur des fleuves dont les estuaires sont très stratifiés (biseaux salés, fortement stratifiés, fjords). Un autre tiers concerne des stratifications intermittentes ou moins marquées (estuaires partiellement stratifiés). Enfin le dernier tiers concerne des estuaires mélangés ou des baies.

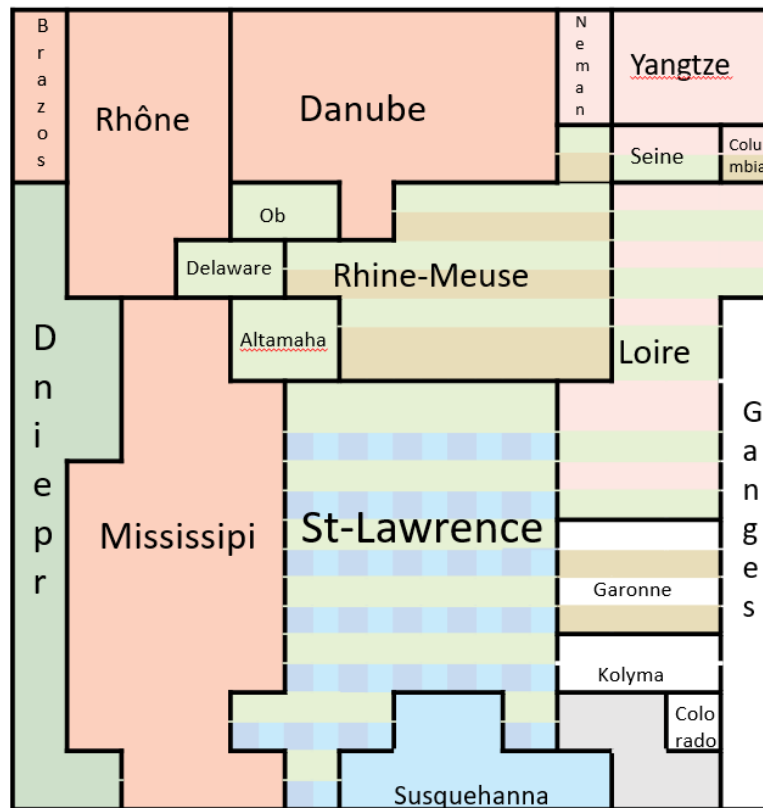


Figure I-8 :Cartographie de la typologie des estuaires des fleuves nucléarisés de par le monde. Un carreau correspond à un réacteur nucléaire sur le fleuve. Le code couleur est le même que pour la classification des estuaires de (Geyer and MacCready, 2014) présentée en Figure I-3.

Les estuaires présentent donc une grande diversité de morphologies et de conditions physico-chimiques dépendantes des systèmes qu'ils interfacent. Ces multiples combinaisons et des conditions aux limites créent une grande diversité de fonctions de transferts pour les radionucléides dissous ou particulaire. Ainsi, pour la majorité des radionucléides étudiés, la Figure I-8 montre qu'il est très difficile *a priori* de définir, même qualitativement, si l'estuaire est un filtre passif ou actif pour les éléments dissous. Il apparaît donc très utile de modéliser, même simplement (Shiller, 1996) cette interface pour pouvoir anticiper des comportements sur la base de paramètres physico-chimiques. Cette modélisation *a minima* devra notamment inclure les paramètres orchestrant la spéciation et la morphologie de l'estuaire, elle-même changeante avec les conditions amont-aval.

## 1.6. Points clefs d'un couplage bassin versant-mer pour les radionucléides dissous

Les paragraphes suivants décrivent les points clefs pour assurer la modélisation du continuum basés sur la variabilité décrite dans les chapitres précédents et les réponses apportées par la littérature.

### 1.6.1. Conditions hydrologiques en amont et terme source

Le débit et la concentration de MES d'un fleuve sont susceptibles de changer les dynamique de transfert des RN à l'interface et en mer comme exposé en I.3 et I.5. La distribution des concentrations entre phases solides et liquides en eau douce semblent aussi jouer un rôle dans le transfert des radionucléides en mer, notamment le césium (Simonsen, 2019; Delaval et al., 2020).

Le terme source amont désigne l'activité des radionucléides qui arrive en mer. La connaissance des conditions hydrologiques et de ce terme source est généralement obtenue par le monitoring à une station proche de l'embouchure du fleuve. Néanmoins, en situation de rejet accidentel sur le fleuve, le terme source ainsi que les conditions physico-chimiques doivent être anticipés avant l'arrivée des radionucléides en aval du fleuve. La solution classique choisie pour les problématiques de qualité de l'eau est le calcul du terme source par un modèle hydrodynamique 1D (Siclet et al., 2002; Zhou et al., 2011).

Les codes de simulations 1D d'écoulement en rivière en régime transitoire résolvent les équations de Barré de Saint-venant unidimensionnelles avec la formule de perte de charge de Manning-Strickler. Par la suite on résout l'équation 1D d'advection dispersion.

A l'IRSN, c'est le modèle CASTEAUR qui est utilisé. Les sorties de ces modèles 1D qui peuvent ensuite être couplées à un modèle hydrodynamique marin modélisant la dispersion des radionucléides.

### 1.6.2. Hydrodynamique à l'interface et milieu marin

Dans le contexte de cette étude nous définirons les modèles hydrodynamiques comme des représentations numériques discrétisées de l'état de l'océan. Ce sont des programmes numériques qui résolvent des équations décrivant l'hydrodynamique sur un domaine défini par une grille constituée de mailles. Ainsi, pour une période donnée ces modèles sont capables de prédire l'état de l'océan sur un intervalle de temps. Les modèles de transport bénéficient de ces estimations pour prédire le transport d'éléments tels que les radionucléides, éléments traces ou particules en utilisant l'équation d'advection-diffusion (Periáñez, 2005).

A l'IRSN c'est le modèle STERNE (Simulation du Transport et du transfert d'Eléments Radioactifs dans l'environNement marin) (Duffa et al., 2016) qui prédit la dispersion des radionucléides en milieu marin basé sur les champs de courants du modèle mars3D

(Nicolle et al., 2009). A partir de 2021 les champs de courants seront fournis par le modèle HYCOM du SHOM.

Ce type de modèles est utilisé pour radioécologie marine depuis 1982 avec les travaux de (Onishi and Trent, 1982) sur l'estuaire de l'Hudson avec le modèle FLESCOT (Flow, Energy, Salinity, Sediment and Contaminant Transport Model). Le modèle simule et couple un écoulement tridimensionnel (dépendant du temps, de la température, de la salinité) avec le transport des sédiments et des radionucléides (dissous et particulaires). Les processus d'adsorption-désorption sont modélisés en utilisant un coefficient de distribution liquide/solide  $K_d$ , (décrit paragraphe suivant) différent pour les particules en suspension et les sédiments.

Les équations régissant ces transports ou échanges n'ont pas changé (Bahadur et al., 2013), mais la définition de leurs composantes et de leur résolution a été améliorée. On a notamment enregistré des avancées notables et non exhaustives sur :

- L'expression de la turbulence
- L'effet de la houle, notamment sur la resuspension des sédiments
- Les méthodes de résolutions numériques
- La puissance de calcul des ordinateurs

Ces améliorations issues des mathématiques appliquées, d'hydraulique environnementale ou de l'océanographie sont incluses dans les modèles hydrodynamiques marins et donc bénéficient indirectement à la modélisation de la dispersion des radionucléides dans ces milieux. Malgré tout, les études utilisant ces modèles sont centrées sur un élément du continuum tel que l'estuaire (Onishi and Trent, 1982; Margvelashvily et al., 1999) et/ou sur les côtes (Periáñez, 2005) et ne décrivent pas le continuum dans son intégralité. Pour ce faire, il faudrait lui coupler les sorties et termes sources obtenus par le modèle 1D de transfert en milieu fluvial. -C'est toutefois incomplet-car les modèles marins avec une faible résolution (c'est le cas de la version MARS3D fournissant les courants pour STERNE actuellement) traduisent l'apport des rivières à l'océan comme de l'eau douce, négligeant les processus estuariens décrits en I (Sun et al., 2017).

Des avancées ont été faites sur la compréhension de la circulation estuarienne grâce à la publication de (MacCready, 2007) qui a permis des simplifications et généralisations. La conséquence est l'émergence d'approche de couplages entre des observations ou modélisations de débits issues d'un modèle 1D avec un modèle hydrodynamique marin généralement en 3D (Zhou et al., 2011; Sun et al., 2017; Verri et al., 2020).

Ces différents couplages ont eu pour effet d'augmenter la cohérence des entrées-sorties des modèles respectifs. Certains sont faits « explicitement » avec un « feedback » entre les modèles, c'est-à-dire que les grandeurs calculées par le modèle 3D sont stockées dans le membre de droite des équations 1D et vice versa. A chaque pas de temps, le modèle 1D envoie les débits calculés au modèles 3D qui par la suite fournit des hauteurs d'eau, qui serviront au modèle 1D à son tour. Ceci est illustré conceptuellement en Figure I-9.

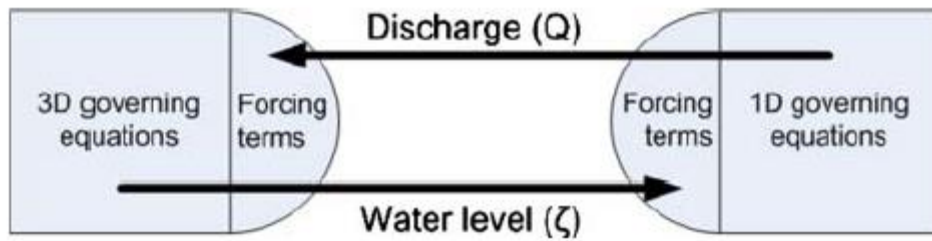


Figure I-9 : Approche conceptuelle d'un couplage explicite entre modèles hydrodynamiques 1D et 3D d'après (Twigt et al., 2009)

Un couplage peut aussi se faire par un simple box-model (Figure I-10) si l'estuaire n'est pas explicitement décrit par le modèle marin (Sun et al., 2017 ; Verri et al., 2020). Ce qui est généralement le cas des estuaires aux dimensions modestes. Concrètement le box-model consiste à intégrer les équations fondamentales (continuité, salinité, énergie) pour une géométrie simple en régime permanent. L'approche box-model est décrite plus en détails dans le corps du manuscrit en chapitre IV.

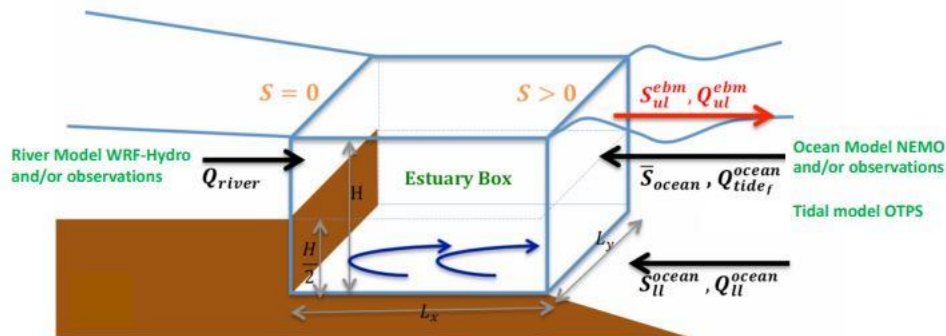


Figure I-10 : Box-model assurant l'apport net (débit, salinité) du fleuve à la mer pour le couplage de modèles 1D fluviaux et marin à méso-échelle d'après Verri et al., (2021)

Le point commun de ces études repose sur la conservation des masses d'eau et de sel. De fait, elles répondent à la problématique exposée en I.3 qui est de résoudre la circulation générale des estuaires. (Zhou et al., 2011) sont allés plus loin en assurant la conservation de la masse pour les polluants dissous. Cette approche n'a pour l'instant pas été utilisée pour les radionucléides.

### 1.6.3. Géochimie à l'interface

Un objectif pour améliorer et de réduire les incertitudes est une meilleure description des processus géochimiques. Par exemple, Simonsen, (2019) a montré que la prise en compte des interactions solides/liquides pour le césium augmente d'un rapport 100 l'activité totale en mer dans les simulations par rapport à une simulation ignorant ces effets.

La modélisation de ces processus géochimiques à l'interface entre fleuve et mer en radioécologie est une problématique ancienne. Dès 1964, Reynolds et Gloyna démarrent

des expérimentations pour observer la désorption du césium des particules lors du passage de l'eau douce à l'eau salée. Des expérimentations aux design expérimentaux très similaires se sont poursuivies jusqu'à maintenant avec un regain d'intérêt après Fukushima. Elles sont résumées dans (Delaval et al., 2020). Les études de spéciation à cette interface sont néanmoins limitées au concept du coefficient de distribution entre eau et sédiments,  $K_d$ . Ce coefficient est défini en (I-4) comme le rapport entre l'activité d'un radionucléide dans les matières en suspension (ou les sédiments) en Bq/kg et l'activité en phase dissoute en Bq/L, à l'équilibre.

$$K_d = \frac{C_p}{C_w} \quad (I-4)$$

Cette relation considère que l'équilibre des concentrations est immédiat. Toutefois, on sait maintenant que les particules possèdent différents sites avec des affinités variables pour les radionucléides. Ces sites possèdent des constantes cinétiques d'adsorption et de désorption qui leur sont propres et sont différentes pour chaque RN (Nyffeler et al., 1984). Les argiles présentent une grande diversité de sites comme l'atteste la Figure I-11.

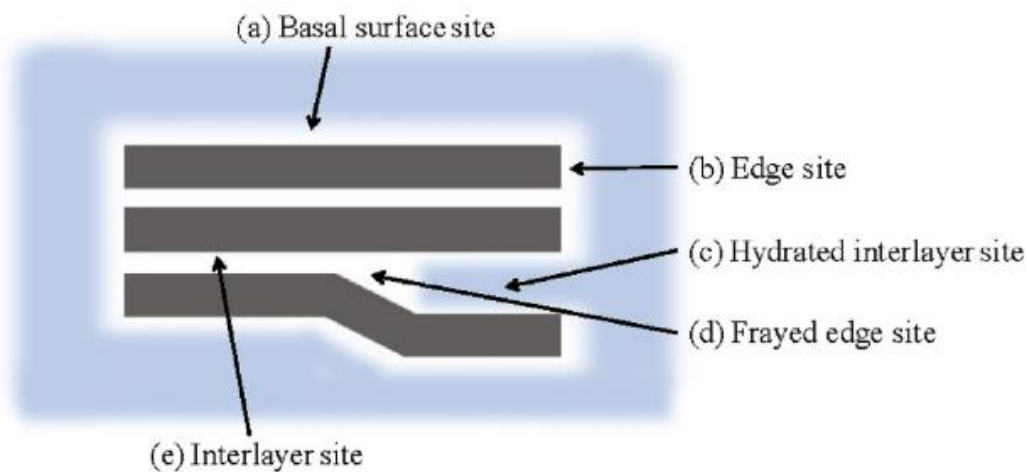


Figure I-11 : Modèle conceptuel des sites d'adsorption d'une particule d'illite d'après (Okumura et al., 2018)

Pour le césium il a été mis en évidence qu'une partie était parfois libérée sur des échelles de temps très courtes de l'ordre de l'heure tandis que d'autres fractions étaient fixées sur des échelles de temps de la semaine voire irréversiblement fixées (à des échelles de temps supérieures à la demi-vie du  $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$ ) aux particules et n'était pas relarguée (Oughton et al., 1997).

L'intensité de la réaction de désorption du césium, principalement la fraction désorbée de manière quasi immédiate est encore discutée aujourd'hui et est une majeure source d'incertitudes (Delaval et al., 2020).

Le modèle  $K_d$ , de par ses hypothèses ne prend pas en compte ces nuances. Pour prendre en compte ces aspects, des modèles géochimiques plus précis avec double cinétique (Ciffroy, Garnier, and Khanh, 2001) ou considérant un équilibre immédiat et une cinétique plus lente existent (Chaif et al., 2021).



## 1.7. Synthèse des approches proposées dans la littérature et verrous scientifiques

Si les modélisations hydrodynamiques en milieux marins et estuariens ont progressé ainsi que les connaissances en géochimie des radionucléides, ces deux disciplines ne se sont rejointes qu'à partir des années 2000 pour commencer à modéliser le continuum, et ce de manière incomplète.

Différentes approches cherchant à décrire la modélisation du transfert radionucléides sur une partie du continuum ou son intégralité sont présentées en Tableau I-2, avec les points clefs abordés plus haut qu'elles ont commencé à traiter, à savoir :

- Une modélisation du terme source et la prise en compte de la variabilité amont du continuum (débits, concentrations en MES) de préférence par un modèle 1D
- Les échanges estuariens influençant la distribution de la salinité, des particules (et donc des activités dissoutes et particulaires) ainsi que les temps de résidence.
- La prise en compte des processus géochimiques à l'interface. Dans le cas du césium, ceux si sont transitoires et dépendants de la salinité. Ces processus devraient être idéalement décrits avec des cinétiques obtenues par des expérimentations sur le site.
- Le terme source calculé est dispersé en milieu marin

Dans le tableau, les cases laissées blanches indiquent les aspects qui n'ont pas été abordés. Deux carreaux signifient que le point clef y est traité complètement (expérimentations propres au site/modélisations numériques) tandis qu'un carreau signifie que l'aspect est traité mais d'une manière simplifiée (Bahadur et al., 2013)(modélisations empiriques ou utilisation de coefficients dans la littérature par exemple). La prise en compte du transport sédimentaire est indiquée pour information.

Tableau I-2 : Problématiques de la modélisation du continuum fleuve-mer abordées par différentes études

	(Siclet et al., 2002)	(Periáñez, 2004) (Periáñez, 2005)	(Vives Batlle et al., 2008)	(Simonsen, 2019)
<b>Présence d'un modèle 1D amont</b>	♦♦	♦♦		♦♦
<b>Hydrodynamique estuarienne</b>	♦♦			♦♦
<b>Présence d'un modèle 3D</b>		♦♦		♦♦
<b>Fractionnement eau salée dépendante du temps</b>	♦♦	♦♦	♦♦	♦♦
<b>Fractionnement eau salée dépendante de la salinité</b>	♦♦	♦♦		
<b>Expé in situ</b>	♦♦		♦	
<b>Validation</b>	oui	oui	oui	non
<b>Transport sédimentaire</b>	♦	♦♦	♦	♦♦

Toutes ces approches apportent des éléments intéressants pour la modélisation du transfert des radionucléides dans le continuum et s'attachent à modéliser la spéciation des radionucléides en fonction du temps.

Nous partirons pour la discussion de Simonsen (2019) puisque sa problématique est la plus proche de la nôtre, c'est-à-dire qu'il se place dans un cas accidentel alors que les autres études se plaçaient en rejets de routine. Suite à un hypothétique accident, Simonsen décrit le transfert du  $^{137}\text{Cs}$  dans le Boknafjorden avec un modèle de dispersion Lagrangienne avec une haute résolution spatiale (160m x 160 m) et temporelle (1 heure). La spéciation du césium est dynamique, c'est-à-dire qu'elle prend en compte les deux cinétiques de sorption/désorption du césium évoquées en I.6.3.

Sa configuration des échanges de radionucléides dans les différents compartiments est exhaustive telle qu'avait proposé de le faire (Vives i Batlle et al., 2018). Les processus représentés dans Simonsen sont présentés en Figure I-12.

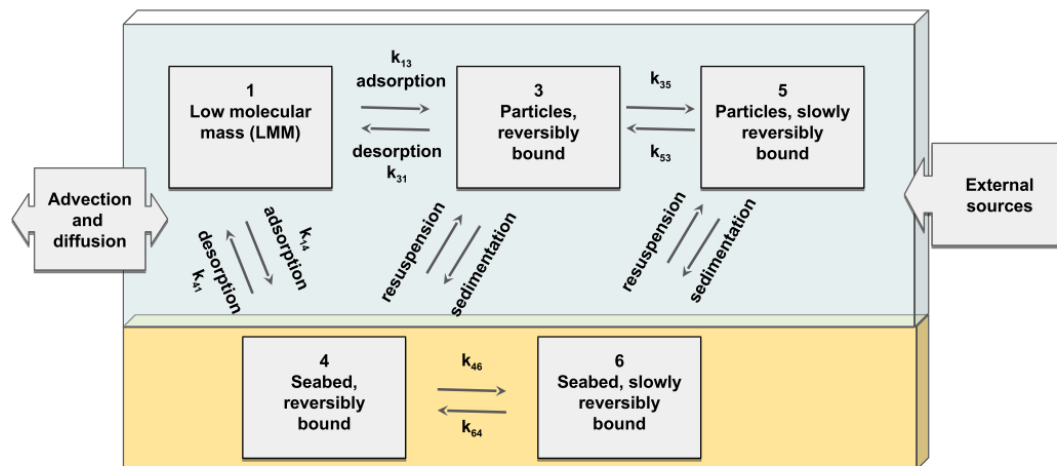


Figure I-12 : Compartiments et leurs interactions pour la spéciation des radionucléides représentés par le modèle de Simonsen (2019). Les sources externes peuvent varier dans l'espace et le temps. L'advection et la diffusion déterminent le transport horizontal et vertical des radionucléides dans la colonne d'eau.

Simonsen interroge la sensibilité du modèle à différents paramètres ou configurations et identifie ainsi plusieurs sources majeures d'incertitudes à prendre en compte. La première concerne la taille des particules qui va influencer la sédimentation et donc plutôt favoriser le stockage de la radioactivité dans l'estuaire. Ces aspects sont importants et déjà évoqués en I.4. Toutefois, beaucoup d'études ont permis de réduire l'incertitude de ce facteur, notamment sur le Rhône (Thill, 2006 ; Dufois, 2008 ; Boudet, 2017 ; Gangloff, 2018).

La deuxième source d'incertitudes concerne l'affinité des radionucléides avec les différents sites des particules. Pour l'illustrer, Simonsen effectue une première simulation où le césium est présent sur les sites de faible affinité des particules avec une cinétique de désorption rapide. Les résultats divergent de moins de 10% de la simulation où l'apport est 100% en phase dissoute. Dans une seconde simulation, le césium est présent sur les sites de forte affinité avec une cinétique de désorption plus lente. Ici en revanche, l'activité des MES augmente d'un facteur 100 tandis que l'activité dissoute diminue d'un facteur 10. La conséquence est donc un terme source (activités solides+dissous) en mer diminué d'un facteur 10 et une activité stockée dans le Fjord augmentée de 100%.

Comme expliqué en I.6.3, les  $K_d$  ne fournissent pas d'information quantitative concernant la répartition des radionucléides sur les différents sites des particules. Cette répartition

varie avec la nature des particules et la concentration en MES durant la sorption (Onodera et al., 2017). Un autre paramètre influençant cette répartition est le temps de contact durant la sorption (Benes et al., 1992°; Ciffroy, Garnier, and Khanh Pham, 2001). Ceci est difficilement observable in-situ toutefois (Eyrolle, 2016) observe sur le Rhône que les  $K_d$  sont plus haut en amont du point de rejet principal (centre de Marcoule) qu'en aval suggérant une mise à l'équilibre qui n'est pas atteinte et une activité en phase dissoute plus élevée (le rejet s'effectuant sous forme dissoute). Ces travaux impliquent que les  $K_d$  mesurés dans les fleuves en situations non accidentelles peuvent être différents de ceux en situations accidentelles. De toute manière, le  $K_d$  ne fournit pas de manière quantitative la répartition des radionucléides sur les différents sites des particules, ce qui reste une importante source d'incertitude.

Enfin, une dernière source d'incertitude est liée à la variabilité de la valeur du  $K_d$  en domaine marin. Le  $K_d$  du césium en milieu salé est plus stable qu'en eau douce (Onishi et al., 1981) mais varie quand même entre  $3 \times 10^2$  et  $2 \times 10^4$  L/kg (IAEA, 2004). Toutefois, l'incertitude demeure sur la transition des  $K_d$  fluviaux aux  $K_d$  marins. Il est clair que le gradient de salinité joue un rôle, toutefois il n'y a pas consensus si la variation est linéaire ou à seuils (Delaval et al., 2020). Une dernière source de variabilité est que l'estuaire et la mer sont des systèmes ouverts affectés par des perturbations externes. En conséquence, l'équilibre entre concentrations en phase solide et dissoute n'est que rarement achevé dans ces zones, notamment près de l'embouchure. (IAEA, 2004 ; Perriñez et al., 2018)

Une manière de limiter ces deux dernières incertitudes (répartition du césium sur les particules en eau douce puis intensité de désorption du césium des particules à l'eau salée) est d'intégrer dans la modélisation plusieurs sites de sorption avec leurs propres cinétiques (cf I.6.3). Ces cinétiques peuvent être obtenues par des expérimentations de laboratoire propres au site considéré (Perriñez et al., 2018). Finalement, l'approche de Simonsen ne semble manquer que d'expérimentations pour réduire les incertitudes sur les nombreux paramètres du modèle. Siclet et al., (2002) ont effectué des expérimentations propres au site et les ont intégrées dans leur modèle.

Comme exposé en I.3 et I.5, les processus affectant la distribution des métaux traces dépendent des conditions environnementales qui changent rapidement dans le temps et l'espace. Aussi, Simonsen, (2019) suggère que la solution à cette problématique est l'utilisation de modèles à très grande résolution car ces processus ne sont pas encore suffisamment connus pour être décrits par des paramétrages génériques.

Ward et al., (2020) dans leur review portant sur la modélisation du continuum fleuve-mer pour différents processus (cycles de nutriments et du carbone) opposent aussi ces deux approches dans un premier temps.

- Une approche complexe où les côtes et estuaires sont gérés avec une résolution similaire aux systèmes qu'ils interfacent ((Simonsen, 2019) voire supérieure (Voronoi mesh, zoom AGRIF) (Dufois, 2008).
- Une approche « simplifiée » où les interfaces côtières sont gérées comme des fonctions de transfert (Sun et al., 2017).

La première approche déjà évoquée plus haut se heurte aux contraintes computationnelles (longs temps de calcul) et techniques puisque pour l'heure l'IRSN est bénéficiaire de champs de courants sur des mailles de taille régulière (1,2 km de côté).

Ward et al., (2020) soulignent que l'approche la plus robuste serait finalement un mélange des deux approches précédentes, fonction des besoins de modélisation et de la disponibilité des données. Cette approche est résumée en Figure I-13.

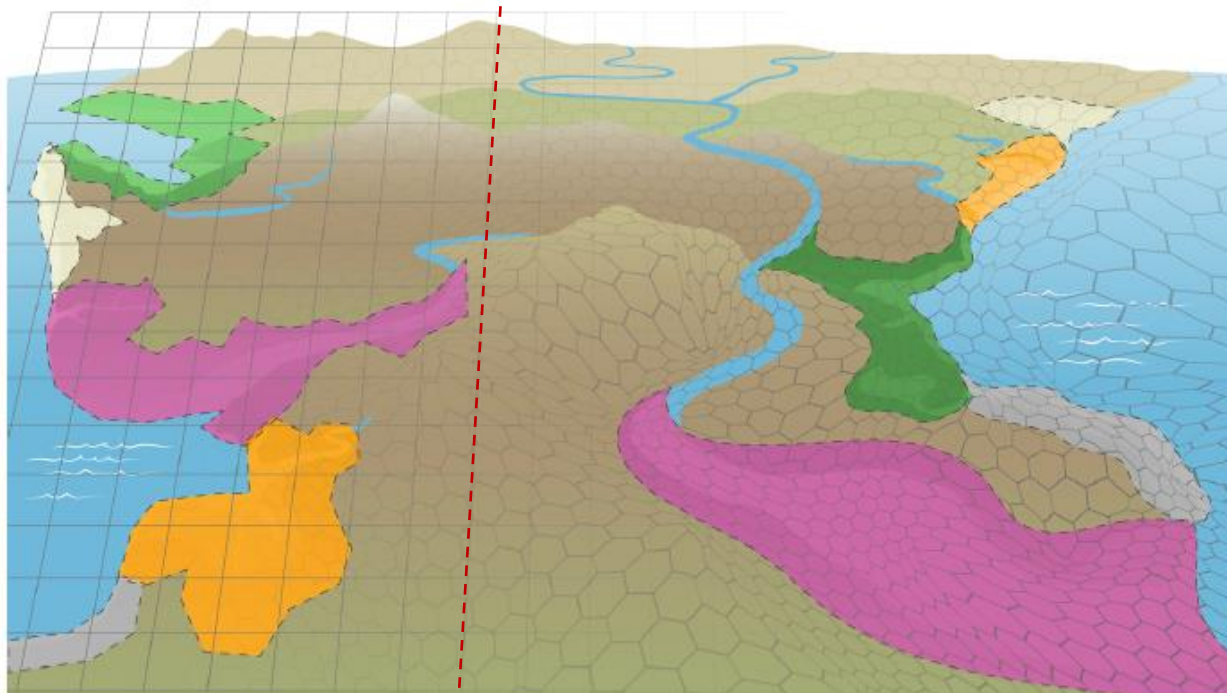


Figure I-13 : Représentation de la « mixed approach » pour la représentation des interfaces côtières dans la modélisation du continuum. À gauche, la résolution est grossière et les estuaires/côtes sont traités comme des unités fonctionnelles. À droite, la résolution est accrue sur ces zones d'interface par le biais des mailles de Voronoï. Tirée de (Ward et al., 2020).

Dès lors, il apparaît que l'approche de droite sur la Figure I-13 se justifie lorsque l'on doit traiter des systèmes estuariens dits « complexes » ou les gradients de salinité, de courants présentent des grandes disparités localement. Aussi l'utilisation d'un modèle à haute résolution sur le Boknafjorden par Simonsen est pleinement justifiée.

En revanche, si l'on souhaite connaître uniquement les capacités de transfert d'un estuaire du fleuve à la mer, sans chercher à décrire cette interface en un point précis on pourra utiliser une approche plus simplifiée. Selon Machado et al., (2016), la réactivité d'un estuaire pour les éléments traces doit se discuter en termes d'échelles spatiales et temporelles. Lucas and Deleersnijder, (2020) dans leur synthèse préconisent d'utiliser les échelles de temps en priorité pour appréhender le fonctionnement des estuaires. D'après I.3 et la

Figure I-4 ces échelles de temps varient sur plusieurs ordres de grandeurs et permettraient déjà de réduire les incertitudes.

Les systèmes estuariens se prêtant à cette approche sont ceux avec une géométrie « simple » (largeur uniforme ou convergente) et caractérisés par un gradient de salinité continu et croissant de l'amont à l'aval (MacCready, 2007). Ces deux caractéristiques autorisent une simplification significative des équations générales et mènent aux modèles boîtes décrits en I.6.2. utilisés pour assurer le couplage des flux d'eau et de sel entre modèles hydrodynamiques 1D et 3D. Ces modèles simplifiés, restent mécanistes et sont une première base pour identifier la sensibilité du système aux différents paramètres et motiver, au besoin, l'utilisation d'un modèle numérique. Des études plus orientées en géochimie utilisent une géométrie simplifiée pour décrire l'évolution géochimique d'un système (Vives i Batlle et al., 2008). Idéalement, on pourrait unifier ces deux utilisations du modèle boîte pour assurer aussi la cohérence des flux d'éléments dissous à condition de

préciser leur réactivité en zone estuarienne qui souffre encore de beaucoup d'inconnues pour être généralisable en particulier pour le césium.

Les raisons développées plus haut me motivent à opter dans ma thèse pour cette solution afin d'assurer une première modélisation du continuum fleuve-mer. Nous nous attacherons à traiter en priorité le transfert du radiocésium dissous dans ce continuum puisque ce radionucléide est récurrent en cas d'accident, rémanent (demie-vie de 30 ans pour le  $^{137}\text{Cs}$ ) et avec un rayonnement important. Beaucoup d'incertitudes demeurent sur son intensité de désorption sur le gradient de salinité (cf I.6.3).

Pour mener à bien le développement de cette solution je vais répondre à deux problématiques principales.

- Quels paramètres physico-chimiques influencent le transfert du césium en phase dissoute à l'interface ?
- Est-il possible de délimiter simplement cette interface fleuve-mer vis-à-vis de ces paramètres?

## 1.8. Annonce du plan

Dans ce contexte, mon travail vise à améliorer la connaissance du transport des radionucléides dissous dans le continuum Rhône-Méditerranée. Ce continuum est stratégique pour au moins deux aspects : nous disposons d'un grand jeu de données utilisables et c'est l'unique fleuve nucléarisé se jetant dans la Méditerranée.

Même si beaucoup de travaux de modélisation hydrodynamique ont été publiés sur les éléments du continuum (Fleuve-Estuaire-Panache-Mer: (Launay, 2014 ; Boudet, 2017; Aurelien Gangloff, 2018 ; Pairaud et al., 2011)) aucun ne les englobe et ne modélise le transfert des éléments traces dans son intégralité. Cela est en partie dû au fait que les processus estuariens dans le delta du Rhône et ses conséquences pour le transfert des radionucléides n'ont pas été étudiés jusqu'ici. Les forçages, les installations nucléaires et le transfert des radionucléides sur le continuum Rhône-Méditerranée sont proposés en Chapitre II. Le Chapitre III décrit le modèle Casteaur et son adaptation au Rhône. Ses performances pour la propagation des débits et le transfert des éléments dissous seront testées avec des approches complémentaires. Le Chapitre IV présente le développement et l'utilisation d'un modèle d'interfaçage simple, DRACAR, développé et appliqué à l'estuaire du Rhône. Le but de cette interface est de représenter les échanges d'eau, de sel et de RN dissous induits par l'estuaire. Le Chapitre V étudie plus en détail le phénomène de désorption du césium sur un gradient de salinité dans une optique d'incorporer ce processus au modèle de dispersion. La première partie du chapitre est une review bibliographique des expérimentations de désorption du césium qui a été faite en début de thèse pour trouver des généralités à ce phénomène. La deuxième partie présente des expérimentations de laboratoire spécifiques réalisées pour confirmer ou infirmer les hypothèses de la review et obtenir des constantes cinétiques spécifiques au site et utilisables dans DRACAR. Le Chapitre VI synthétise les 3 Chapitres précédents et présente l'impact de la zone d'interface sur le transfert des radionucléides dissous en mer en cas de rejet accidentel dans le Rhône. Enfin, le Chapitre VII étudie à l'aide d'un algorithme de clustering flou et de STERNE, la variabilité de dispersion du panache du

Rhône suite à un accident et ses fréquences d'occurrence avec des applications en cas de rejet accidentel.

## II. Le continuum Rhône Méditerranée

Le Rhône est le fleuve le plus nucléarisé de France avec plusieurs installations nucléaires dédiées à la production d'électricité mais aussi à la recherche et au cycle du combustible. Après la construction du barrage d'Assouan sur le Nil dans les années 60 c'est le plus grand fleuve se jetant en mer Méditerranée jouant un rôle important dans sa circulation (Ludwig et al., 2009).

### II.1. Le Rhône

Le bassin versant du Rhône s'étend sur 98 000 km<sup>2</sup> et son linéaire parcourt 835 km de sa source, au col de la Furka à 2 209 m d'altitude dans les Alpes suisses, jusqu'à son exutoire la Mer Méditerranée. Les territoires traversés par le Rhône sont variés en termes de reliefs et de climats (Bravard and Clémens, 2008) et se distinguent classiquement en 5 entités hydrographiques présentées Figure II-1.

- Le Rhône alpestre, torrentiel, qui s'écoule sur le territoire suisse et draine 5000 km<sup>2</sup>. Le Rhône est amplifié par l'Arve en aval de Genève.
- Le Haut Rhône français qui traverse le Jura, les Préalpes et la plaine de l'Ain sur plus de 200 km et couvre un bassin versant de 12300km<sup>2</sup>. Le Rhône est alimenté par de nombreux affluents sur cette portion notamment la Bourbre (rive gauche), l'Ain (rive droite) et la Saône (rive droite).
- Le Rhône Moyen : Le fleuve circule de Lyon à Valence (110 km) et draine un territoire de 46150 km<sup>2</sup>. Le Rhône n'est pas alimenté pas des affluents significatifs à part le Doux (rive droite), l'Eyrieux (rive droite) et l'Isère (rive gauche).
- Le Rhône aval, de Valence à Arles (160 km) drainant un bassin de 29150 km<sup>2</sup>. Sur cette portion les principaux affluents drainés sont la Drôme (rive gauche), l'Ardèche (rive droite), la Durance (rive gauche) et le Gardon (rive droite). A partir de Fourques, le fleuve se répartit entre le petit Rhône à l'ouest ( 8-12% du débit total) et le Grand Rhône à l'est (90% du total) (Laurie Boudet, 2017).
- Le delta, à partir de Arles jusqu'à la mer ou la variation du niveau de la mer se fait sentir sur les hauteurs d'eaux du fleuve(Savey et al., 1967).



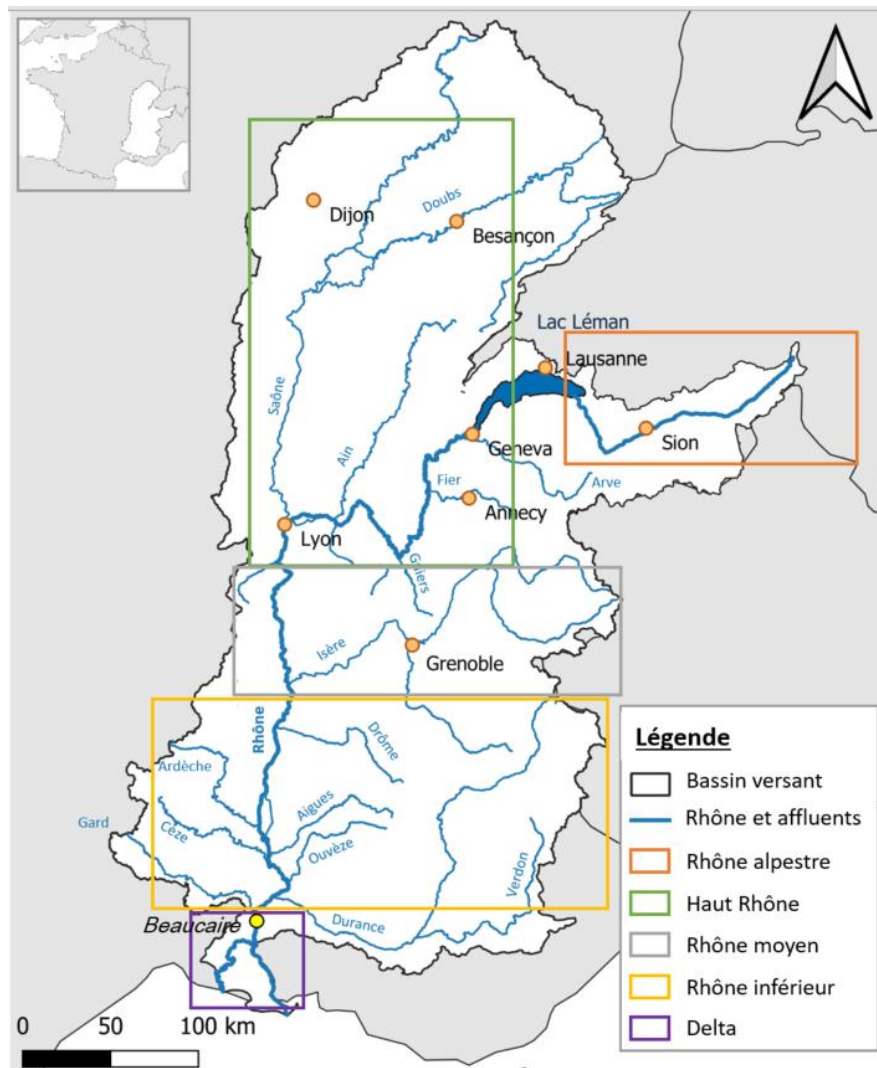


Figure II-1 : Bassin versant du Rhône et ses entités hydrographiques issu de (Morereau, 2020).

### II.1.1. Aménagements sur le Rhône

Les aménagements sur le Rhône poursuivent le but de faciliter la navigation et la production d'électricité. L'exploitation du Rhône a débuté en 1898 avec la mise en service du barrage de Cusset à l'amont de Lyon par Electricité de France (EDF) pour l'exploitation hydroélectrique. Il y a au total 22 aménagements construits sur le Rhône entre le Léman et la mer dont 18 appartiennent à la Compagnie Nationale du Rhône-CNR (Marina Launay, 2014). A l'exception des barrages de Génissiat, de Seyssel et de Vaugris, les barrages du Rhône sont constitués de 3 structures principales présentées en Figure II-2.

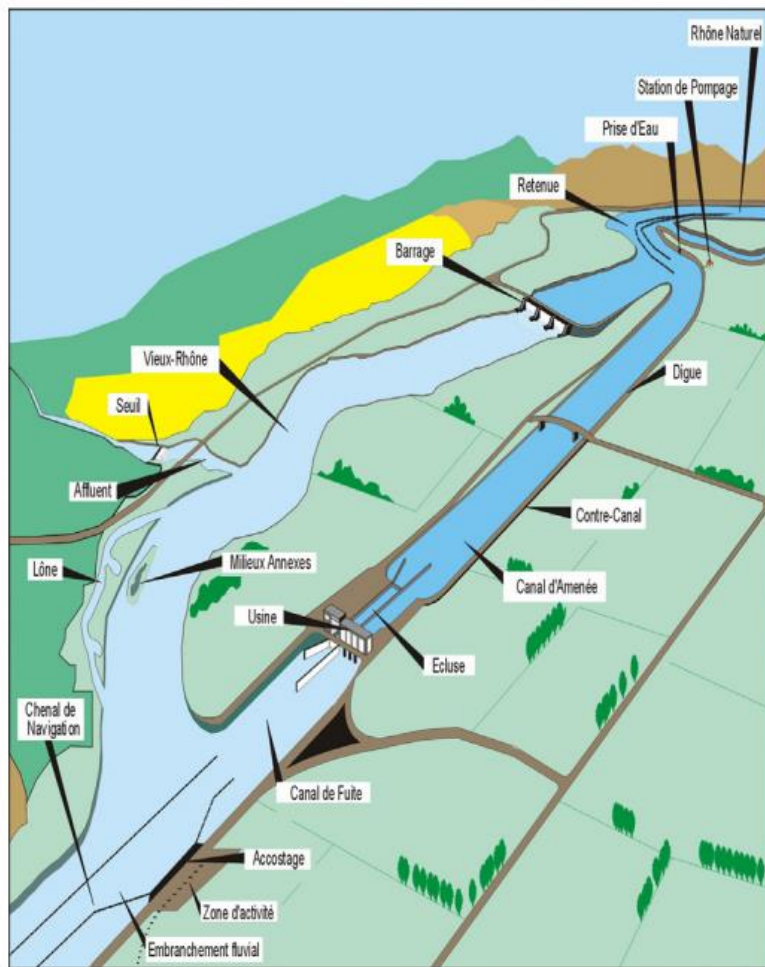


Figure II-2 :Schéma d'aménagement du Rhône d'après (CNR, 2005)

- Un barrage ajustable bâti sur le cours naturel du fleuve (Vieux-Rhône).
- Un canal de dérivation latéral (canal d'amené) sur lequel la centrale hydroélectrique et l'écluse sont implantées.
- Un contre-canal perpendiculaire à l'écoulement des nappes qui draine les terres agricoles et permet de maintenir l'équilibre piézométrique des nappes.

## II.1.2. Hydrologie du Rhône

L'hétérogénéité climatique et topographique des sous-bassins versants du Rhône induit des régimes hydrologiques différents. Le Haut Rhône et l'Isère ont un régime nivoglacière (induit par la fonte des neiges/glaces) qui entraîne des hautes eaux en été. La Saône et l'Ain présentent un régime océanique (ou pluvial) caractérisé par des hautes eaux en hiver et de basses eaux en été. Enfin, les affluents cévenols et méditerranéens sont soumis à des étiages estivaux très marqués en été et à des crues intenses plus ou moins brèves (quelques heures à quelques jours) selon les affluents impliqués. Ces tendances se retrouvent dans la variation annuelle des débits présentée en Figure II-3.

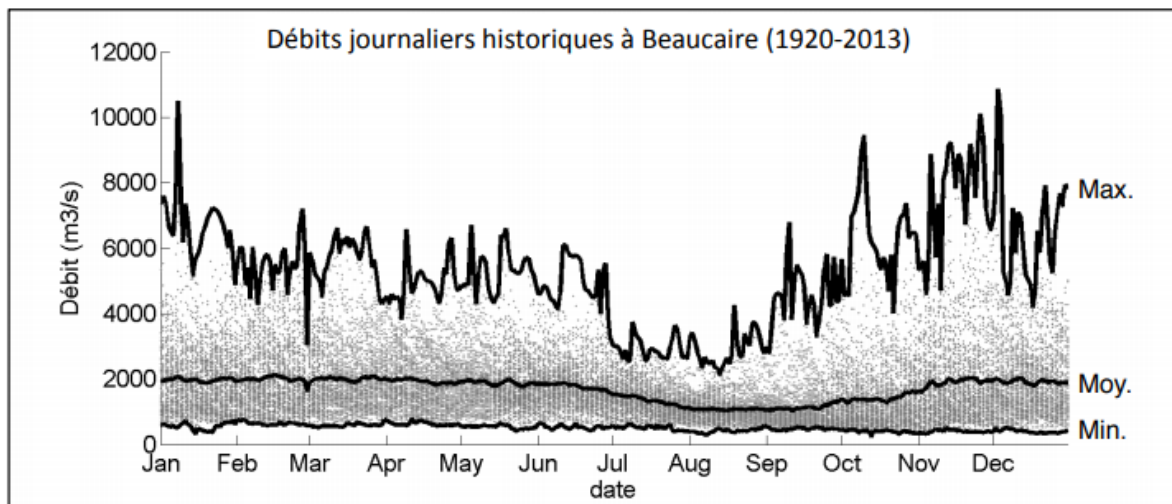


Figure II-3 : Débits historiques du Rhône à Beaucaire, de 1920 à 2013. Chaque point correspond à un débit journalier. De bas en haut, les lignes noires représentent pour chaque jour qui constitue une année les débits journaliers minimaux, moyens et maximaux enregistrés sur la période observée. Extrait de (Laurie Boudet, 2017)

Le débit du Rhône à l'aval est enregistré depuis 1920 à Beaucaire et depuis 1998 par la CNR en Arles. Ces données ont été compilées par (Boudet, 2017). Le Rhône s'écoule avec un débit moyen de 1700 m<sup>3</sup>/s à Beaucaire puis diffuse à Fourques où 10% du débit s'écoule dans le Petit Rhône. En conséquences, le débit moyen est de 1500 m<sup>3</sup>/s en Arles (extrapolation à partir des données de Beaucaire (Boudet et al., 2017)). Les minima en Arles sont compris entre 300 et 400 m<sup>3</sup>/s et les maxima présentent des valeurs supérieures à 10000 m<sup>3</sup>/s. Le maximum enregistré est la crue du 3 décembre 2003 avec 11500 m<sup>3</sup>/s (Launay, 2014).

Les étiages du Rhône aval sont sévères mais rarement extrêmes. Toutefois ceux-ci peuvent survenir suite à une sécheresse de longue durée (1921). Le régime nivoglacière du Haut-Rhône et de l'Isère empêchent les étiages extrêmes d'apparaître suite aux effets d'un automne sec, d'un hiver froid et enneigé. La diminution de la contribution d'un sous-bassin est donc généralement compensée par la contribution d'un autre (Antonelli 2002). Cette installation de la période de basses eaux sur le Rhône se fait donc progressivement de l'été au début de l'automne. La fin de l'étiage est généralement interrompue brutalement par les premiers événements de crues.

Les seuils de crue à Beaucaire calculé par Morereau (2020) avec les données les plus récentes sont présentées en Tableau II-1. Il faut compter de manière globale 10% de moins en Arles.

Tableau II-1 : Seuils de crue du Rhône à Beaucaire (code station : V7200010, coordonnées géographiques : 43°48'16.5"N 4°38'56.9"E) sur la période 1920-2020, ajustement de la loi de Galton (<http://www.hydro.eaufrance.fr/>). Extraits de (Amandine Morereau, 2020).

Temps de retour (ans)	Débit journalier (m <sup>3</sup> /s)
1000	14150
100	11300
50	10100
10	8260
5	7370
2	5920
1	4280

Depuis Pardé (1925), on définit 4 types de crues observables dans le Rhône aval : océaniques, cévenols, méditerranéennes extensives et générales. Cette typologie a été reprise dans la plupart des travaux.

- Les crues océaniques affectent les affluents septentrionaux du bassin versant (Saône, Isère, Ain, Fier) et se produisent entre octobre et mars. Elles sont caractérisées par un temps de montée faible (Temps qui s'écoule entre l'arrivée à l'exutoire de l'écoulement rapide et le maximum de l'hydrogramme dû à l'écoulement de surface). Le débit associé est généralement compris entre 4000 et 5000 m<sup>3</sup>/s à Beaucaire (Maillet 2005).
- Les crues cévenoles sont générées par les affluents cévenols (Ardèche, Gard, Cèze, Eyrieux, Doux). Elles sont liées à de fortes précipitations et se produisent le plus fréquemment au début de l'automne et parfois au printemps. Ces crues éclairs, aux temps de montée très courts (14h à Arles pour crues cévenoles, voir chapitre III sur le code Casteaur) se distinguent par des débits liquides très importants (environ 9000 m<sup>3</sup>/s de débit de pointe à Beaucaire d'après (Maillet, 2005).
- Les crues méditerranéennes extensives découlent des pluies affectant l'ensemble des affluents méridionaux (cévenols+Durance et Drôme). Elles génèrent la aussi des crues éclairs, bien que plus lentes, avec des débits de pointe compris entre 9000 et 9500 m<sup>3</sup>/s à Beaucaire. Ces crues se produisent entre la mi-octobre et mi-novembre et parfois en début du printemps.
- Les crues généralisées sont liées à des précipitations sur l'ensemble des sous-bassins versants. Elles correspondent à la concomitance ou à la succession rapide de différents types de crues dont une au moins est d'origine méditerranéenne, et elles s'étalent sur une longue période.

## II.2. Le delta du Rhône

La dernière entité hydrographique identifiée en II.1, le delta, constitue l'interface fleuve-mer dans le continuum Rhône Méditerranée. Après Beaucaire, l'influence de la marée se fait sentir (Savey et al., 1967). Ainsi, selon la définition de Perillo, l'estuaire fluvial du Rhône commence après Beaucaire bien que l'on soit encore à 60 km de l'embouchure. L'amplitude de la marée est de 25 cm au niveau du Bac de Barcarin avec un cycle semi-diurne. Des amplitudes de 20-30 cm sont aussi évoquées par (Savey et al., 1967; Ibañez et

al., 1997) mais la zone d'observation n'est pas précisée. L'estuaire du Rhône demeure bien canalisé par les digues de protection avec une largeur moyenne de 400 m pour finalement s'élargir avec quelques discontinuités à partir du bac de Barcarin (15 km en aval de l'embouchure) jusqu'à 1 km de large proche de l'embouchure.

On distingue deux affleurements rocheux après Arles : le seuil de Terrin de Pk 294.5 à 296 et le seuil de Thibert (pk 299). Ils sont reportés en Figure II-4, qui reproduit l'évolution du fond du fleuve sur les derniers 60km. La pente moyenne est d'environ 0.004%

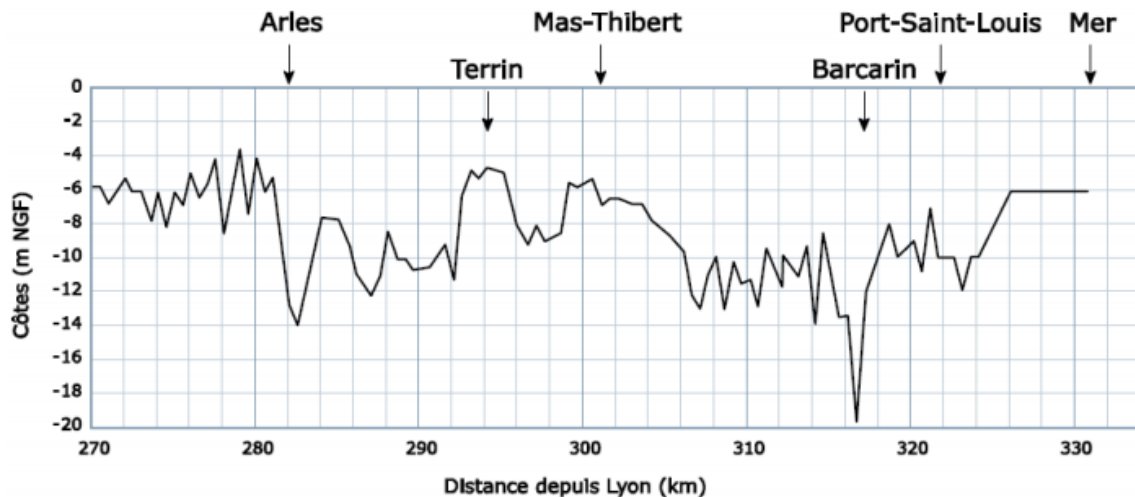


Figure II-4 : Profil en long du Grand Rhône (d'après les données CNR compilées dans Antonelli 2002).

Ces marées et la pente faible combinées aux débits du Rhône sont propices à la remontée d'un coin salé. L'estuaire du Rhône est un cas typique d'estuaire à coin salé décrit en I.3.1.a avec des différences de 30 en salinité entre les deux strates (Levasseur and Doutriaux, 1992 ; Thill et al., 2006).

Ce phénomène de coin salé a fait l'objet de plusieurs études notamment à cause du risque de salinisation de l'eau du Rhône et des nappes d'accompagnement. Dans un deuxième temps, le déroctage du seuil de Terrin dans les années 1990 a entraîné une augmentation de la section mouillée de 40 m<sup>2</sup> à ce niveau et donc accru le risque de dépassement de ce seuil par le coin salé motivant de nouvelles études (Levasseur and Doutriaux, 1992).

Différentes études ont recensé la progression du coin salé en fonction du débit du Rhône, et leurs résultats ont été compilés pour réaliser la Figure II-5, qui représente l'évolution de l'avancée du coin (position la plus amont au fond du fleuve) en fonction du débit moyenné sur 5 jours. La moyenne du débit des 5 derniers jours est celle qui restitue le mieux la longueur du coin salé dans une régression linéaire selon (Ibañez et al., 1997).

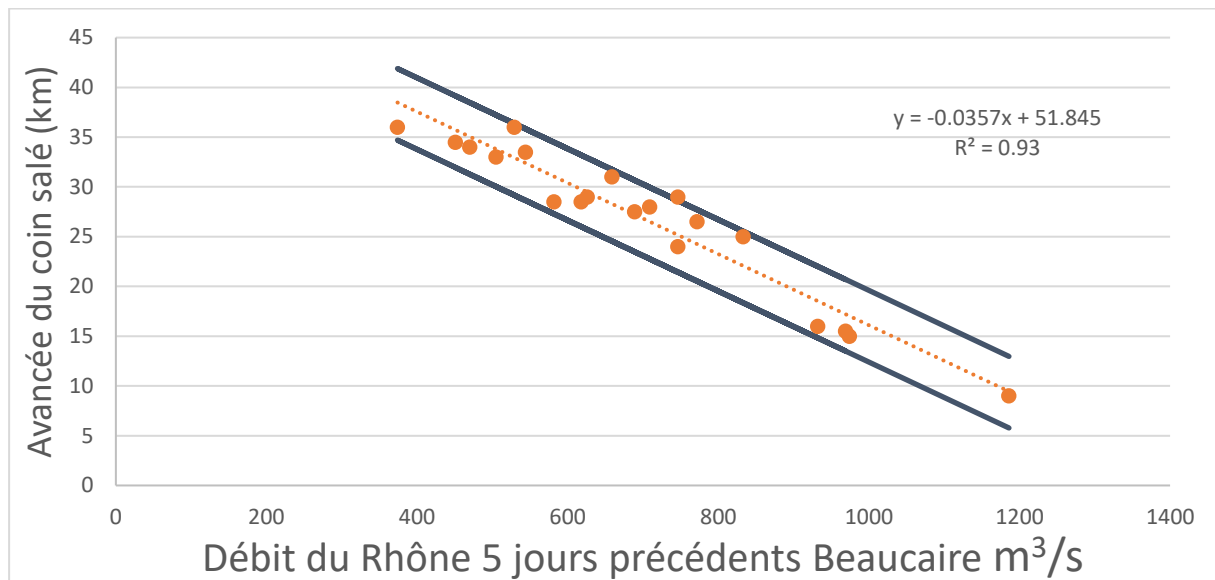


Figure II-5 :Positionnement de l'avancée dans le Rhône du coin salé (en km par rapport à l'embouchure) en fonction du débit moyenné sur 5 jours à Beaucaire. Données de position issues de Savey 1971; Levasseur et Doutriaux 1991, Ibanez et al 1997.

Pour Ibañez et al. (1997) le coin salé du Rhône commencerait sa remontée pour de débits inférieurs à 1514 m<sup>3</sup>/s à Beaucaire tandis qu'il remonterait seulement à partir de 1300 m<sup>3</sup>/s selon (Chazot et al., 2014). L'interception en y=0 de la droite de la Figure II-5 fournit un débit d'apparition du coin salé à partir de 1452 m<sup>3</sup>/s (±58 m<sup>3</sup>/s).

Celui-ci continue sa progression avec la baisse du débit jusqu'à rencontrer un seuil significatif. Ainsi, la progression du coin salé est stoppée en premier lieu par le seuil de Thibert qui peut être franchi pour des débits journaliers inférieurs à 600 m<sup>3</sup>/s. Le seuil de Terrin empêche lui des intrusions du coin salé plus hautes que 36 km en amont de l'embouchure, mais il a été dépassé une fois depuis 1992 ( date d'installation de sondes de mesures en amont), le 15 août 2005 pour un débit journalier de 406 m<sup>3</sup>/s (Chazot et al., 2014).

D'autres facteurs influençant la remontée des coins salés tels que le vent ou le niveau de la mer semblent aussi jouer sur le Rhône. Le Mistral stabiliserait le coin salé ( Radakovitch et al., 2014). Le Mistral souffle dans le même sens que l'écoulement du panache interne, augmente sa vitesse ce qui amplifie le cisaillement et stabilise le coin salé favorisant sa remontée. Toutefois, aucune étude quantitative n'a été faite sur ces paramètres et au vu de la Figure II-5 c'est bien le débit qui est le principal facteur forçant.

L'augmentation de vitesse due à la réduction de section dans le panache va croissante jusqu'à l'embouchure du Rhône ou le panache du Rhône est expulsé à une vitesse de 1,2 m/s pour tout débit inférieur à 1269 m<sup>3</sup>/s à Beaucaire d'après (Ibañez et al., 1997). Selon les données de ces mêmes auteurs, le rapport de vitesses d'écoulement entre l'amont de l'estuaire et l'embouchure va croissant avec la baisse des débits et atteint un facteur 10 pour des débits de 500 m<sup>3</sup>/s.

La vitesse du panache du Rhône à l'embouchure est très importante et contrebalance les effets de mélanges induits par les courants de marée et le vent. De ce fait, la stratification demeure sur plusieurs kilomètres après l'embouchure sous la forme d'un panache en 3 dimensions qui évolue dans le Golfe du Lion.

## II.3. Golfe du Lion et panache du Rhône

### II.3.1. Golfe du Lion (GoL)

Le Golfe du Lion est situé dans le bassin Nord-Occidental de la mer Méditerranée et se caractérise par sa forme en croissant, délimité par les Préalpes au nord-est, et les Pyrénées au sud-ouest (Figure II-6). Le plateau s'étend de Marseille au Cap de Creus (frontière espagnole) et sa largeur atteint un maximum de 70 km pour une profondeur moyenne de 90 m. Sa limite sud en mer est associée au talus continental de forte pente le connectant à une plaine abyssale d'une profondeur moyenne d'environ 2500 m. Ce talus est incisé par un enchevêtrement de canyons sous-marins qui assurent une transition la mer côtière et hauturière, notamment lors des écoulements d'eaux denses (Dufois, 2008).

La Méditerranée a des marées de faible amplitude, de 30 cm au niveau du GoL. La circulation dans le GoL résumée en Figure II-6 est fortement influencée par la circulation générale, les conditions atmosphériques (vent et flux de chaleur), et les apports fluviaux.

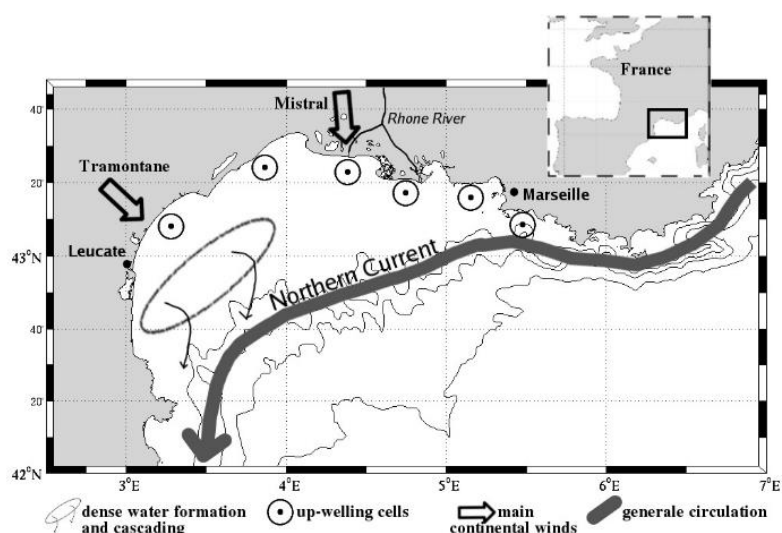


Figure II-6 : Caractéristiques principales de la circulation sur le plateau du GoL (D'après Millot, 1990). Les isobathes 160,500,1000 et 2000 m sont tracées

Un acteur principal de la circulation générale est le Courant Nord Méditerranéen (CNM), branche nord de la circulation cyclonique générée par les eaux de surface d'origine Atlantique et les eaux levantines intermédiaires (partie orientale de la Méditerranée). Le CNM est un courant de densité dont la dynamique est soumise à l'équilibre géostrophique (équilibre entre les forces de pression et la force de Coriolis). Ce courant prend place de la mer Ligure aux côtes Catalanes. Le CNM est associé à une veine d'eau chaude et peu salée et ses vitesses, supérieures en surface, peuvent atteindre 0.5 m/s (Conan and Millot, 1995). A l'entrée du Golfe du Lion, la largeur du courant est comprise entre 30 et 50 km.

Les vents dominants dans le GoL sont offshore (Mistral et Tramontane) ou onshore (Marin). Mistral et Tramontane sont des vents continentaux, froids et secs canalisés par les couloirs formés par les Alpes, le Massif Central et les Pyrénées. A l'embouchure du Rhône les vents du Nord sont généralement associés à du Mistral amplifié par la vallée du Rhône plutôt que de la Tramontane propre au Languedoc-Roussillon (Jacq et al., 2005).



A l'embouchure du Rhône, le Mistral arrive à 320° avec une vitesse moyenne de 44 km/h (Delaval et al., 2021) et son intensité croît en s'éloignant des côtes (Reiter, 1975). Ces vents sont plus violents en hiver qu'en été et s'étalent sur des échelles de temps longues parfois de l'ordre de deux semaines. Ils déportent les eaux de surface des côtes et favorisent une remontée des eaux profondes (upwelling), dans des zones recensées par (Millot, 1990) en Figure II-6.

Les vents marins, généralement d'est ou de sud-est, sont moins fréquents que les continentaux mais peuvent être de forte intensité toute l'année hors période estivale. Ce vent chaud et humide est généralement associé à des tempêtes marines qui accumulent l'eau salée sur le plateau continental, causant des « downwelling » qui favorisent l'export des eaux du plateau continental vers les canyons (Ulses et al., 2008). Ce vent génère des houles importantes de secteur Sud-Est limitant la sortie du Rhône en mer (Boudet, 2017).

Enfin, l'eau douce d'origine fluviale, qui se déverse sur le plateau, induit des gradients de densité. Ces gradients de densité modifient localement la circulation des masses d'eau. 9 fleuves côtiers bordent le Golfe du Lion: le Rhône (grand et petit), le Vidourle, le Lez, l'Hérault, l'Orb, l'Aude, l'Agly, la Têt et le Tech (d'est en ouest). Toutefois, 95% des apports d'eau douce au Golfe du Lion proviennent du panache du Rhône (Sadaoui et al., 2016).

### II.3.2. Dynamique du panache d'eau douce du Rhône

Un second constituant de l'interface fleuve-mer est le panache du Rhône. Ce panache, formé selon les conditions exposées à la fin de II.2 diminue en épaisseur progressivement avec la distance à l'embouchure (Estournel et al., 1997) sous l'effet de la diffusion turbulente verticale. Cette zone de dilution du Rhône est nommée ROFI (Region Of Freshwater Influence) et du fait de ses gradients de densité la circulation est modifiée dans cette zone. La mer méditerranée étant oligotrophe, le ROFI du Rhône a une influence majeure sur la distribution des groupes de plancton (Diaz et al., 2019) et donc sur les populations pélagiques. Le panache peut couvrir une aire de 4 à 1000 km<sup>2</sup> (Gangloff et al., 2017) dont l'extension est très dépendante des vents et des débits (Gangloff, 2018). Il est généralement dévié vers l'ouest dans le sens horaire d'est en ouest (Reffray et al., 2004) à cause de la circulation générale induite par le courant liguro provençal. Le Mistral a aussi tendance à décoller le panache de la côte et à l'entraîner vers le sud/sud-ouest (angle de déviation d'environ 50° (Demarcq and Wald, 1984) alors que les vents de sud-est le plaquent sur la côte ouest. D'après (Demarcq and Wald, 1984) le temps de réponse du panache aux vent est d'environ 5h pour le débit moyen du Rhône puis augmenterait avec le débit (24 h pour un débit de 4350 m<sup>3</sup>/s à Beaucaire). L'aire du panache est aussi amplifiée avec l'augmentation du débit. D'autres processus plus épisodiques influencent les dynamiques du panaches comme les formations d'eau dense et « cascading » (Ulses, Estournel, Puig, et al., 2008), remontées d'eau (upwelling cells) et tempêtes marines (Millot, 1990; Millot, 1999).

Par conséquent, le panache s'étend bien au-delà des zones côtières et peut atteindre différentes zones éloignées dans le GoL comme Cap de Creus (Sanchez-Cabeza et al., 1992) ou encore le Golfe de Fos (Charmasson et al., 1999) ou la baie de Marseille à l'est de l'embouchure. (Pairaud et al., 2011 ; Fraysse et al., 2014).

Les différentes emprises du panache turbide du Rhône selon ces principaux forçages décrits sont très bien résumés dans la Figure II-7, issue de la thèse de (Gangloff, 2018).

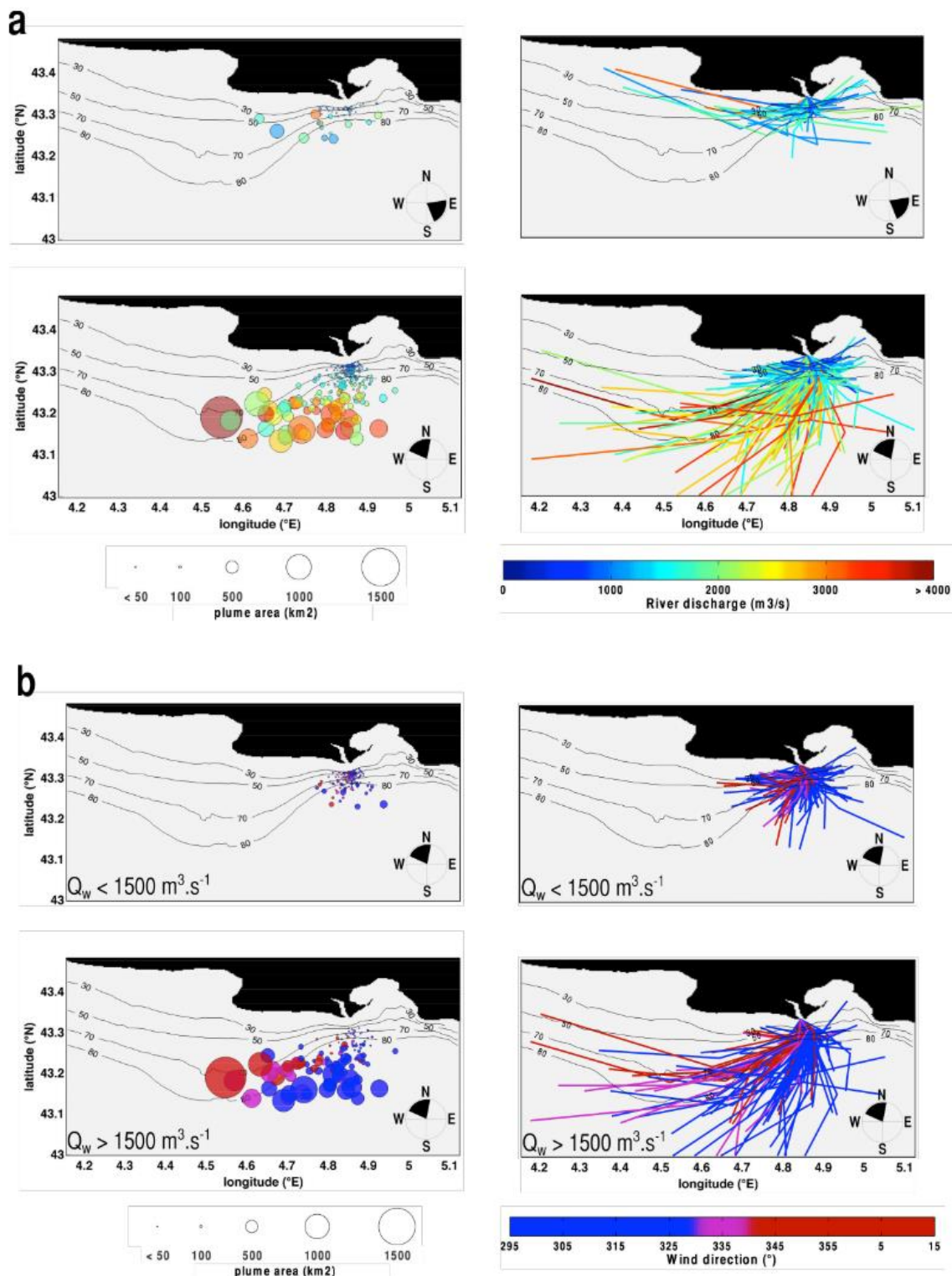


Figure II-7 : Centres géométriques (cercles) et squelettes (droites) du panache turbide du Grand Rhône pour les vents offshore et les vents onshore. Plus l'aire du panache est grande, plus le cercle représentant son centre géométrique est grand. En (a), l'échelle de couleur représente le débit du Grand Rhône (m<sup>3</sup>/s), et en (b), la direction des vents offshore en degrés. Pour chaque illustration, une rose des vents est associée pour rappeler le secteur concerné par la représentation graphique. En (b), les conditions sèches ( $Q_w < 1500 \text{ m}^3/\text{s}$ ) sont séparées des conditions de débit plus élevées ( $Q_w > 1500 \text{ m}^3/\text{s}$ ) pour plus de visibilité. Les points les plus petits (aires  $< 100 \text{ km}^2$ ) sont de couleur bleue à bleu foncée. Issu de (Aurelien Gangloff, 2018).

On constate que la combinaison de ces forçages météorologiques et hydrodynamiques induit une grande variabilité spatio-temporelle des apports d'eau douce et de polluants associés au GoL (Martin et al., 2019).

## II.4. Les radionucléides dans le continuum Rhône Méditerranée

Les radionucléides retrouvés dans ce continuum fleuve-mer ont deux origines : une origine naturelle due aux retombées atmosphériques et à leur présence dans les sols et roches du bassin versant, et une artificielle due aux apports liés à l'ensemble des activités en rapport avec l'énergie nucléaire ou l'utilisation de RN à des fins industrielles ou médicales. Le continuum Rhône Méditerranée est un parfait exemple des différentes sources de RN présentes dans l'environnement. Les RN anthropogéniques ont initialement été introduits dans le Rhône au début du siècle dernier par l'industrie horlogère (Morereau et al., 2020). Des sources supplémentaires arrivent au milieu du siècle avec l'utilisation militaire et civile de l'énergie nucléaire :

- Aux retombées globales issues des tests de l'armement nucléaire entre 1945 et 1980 viennent s'ajouter les retombées issues de l'accident de Tchernobyl. La plupart des RN de courtes et moyennes demi-vies ( $T_{1/2} < 5$  ans) provenant des retombées ont disparu de l'environnement. Toutefois,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  et des éléments transuraniens ( $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$ ) subsistent dans les sols du bassin du Rhône (IRSN 2013). Ces radionucléides sont progressivement transférés aux affluents du Rhône par lessivage du sol et érosion.
- Les rejets liquides des industries nucléaires, des Centres d'Etudes Nucléaires (CEN) (Grenoble, Cadarache, Valrho), ou des hôpitaux, les rejets de ces derniers concernent surtout des radionucléides de demi-vies courtes et les activités de ces rejets sont de plusieurs ordres de grandeur en dessous de celles des industries nucléaires (Marion, 2010).

### II.4.1. Les installations nucléaires sur le Rhône

Le Rhône comporte 20 réacteurs nucléaires en fonctionnement ou en démantèlement implantés sur ses rives ou affluents sur 6 sites nucléaires. Ces sites sont, de l'amont vers l'aval : Creys-Malville, Bugey, Saint Alban, Cruas, Tricastin et Marcoule. Ces installations (CNPE : Centres Nucléaires de Production d'Electricité) sont autorisées à rejeter des effluents liquides radioactifs, mais ne sont pas autorisés à rejeter des émetteurs  $\alpha$  tels que les transuraniens  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Am}$ .

Une description plus complète des CNPE et du centre de Marcoule est faite dans la thèse de (Morereau, 2020).

#### II.4.1.a. Centres Nucléaire des Production d'Electricité

Les principaux RN d'effluents liquides rejetés et par les CNPE rhodaniens en fonctionnement normal sont :

- Les produits de fission  $^{134}\text{Cs}$  (demi-vie de 2 ans),  $^{137}\text{Cs}$  (30,1 ans) et  $^{131}\text{I}$  (8journs).
- Les produits d'activation  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  (250 jours),  $^{58}\text{Co}$  (70 jours),  $^{60}\text{Co}$  (5,3 ans),  $^{54}\text{Mn}$  (31 jours),  $^{124}\text{Sb}$  (60 jours) et  $^3\text{H}$  (12,3 ans).

Parmi les RN cités, le tritium ( $^3\text{H}$ ) est majoritaire (99.856%) en terme d'activité rejetée et représente la quasi-totalité des activités des effluents liquides. A l'exception du  $^3\text{H}$ , les activités rejetées des autres RN ont significativement baissé depuis les années 1980 (Amandine Morereau, 2020) La plupart des RN rejetés par les CNPE ont une demi-vie courte et disparaissent rapidement après leur rejet Cependant, le  $^{137}\text{Cs}$  et le  $^3\text{H}$  ont des demies-vies plus importantes et persistent dans l'environnement.

#### II.4.1.b. Centre de Marcoule

Les rejets les plus importants de RN dans le Rhône sont émis par le site de Marcoule. En effet, les usines de retraitement avec leurs activités de cisailage, dégainage et dissolution du combustible irradié rejettent des effluents nettement plus radioactifs que les centrales nucléaires.

Situé à 120 km de l'embouchure (PK 210) et inauguré en 1955, l'établissement ORANO de Marcoule a trois missions principales :

- la production de plutonium et de tritium, -
- le retraitement des combustibles français et espagnols de la filière UNGG,
- le soutien aux installations du Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) de la vallée du Rhône.

L'usine a commencé son activité de retraitement du combustible des réacteurs de la filière à uranium naturel, modérés au graphite et refroidi au gaz (UNGG) par séparation chimique (UP1) en 1958, mais elle l'a cessé en 1997.

Le principal RN rejeté en termes de quantités est le tritium ( $^3\text{H}$ ) issu de plusieurs filières. Sur la période 1968-2018, le tritium représente 97% des activités rejetées. Les principaux émetteurs hors tritium sont présentés en Figure II-8.

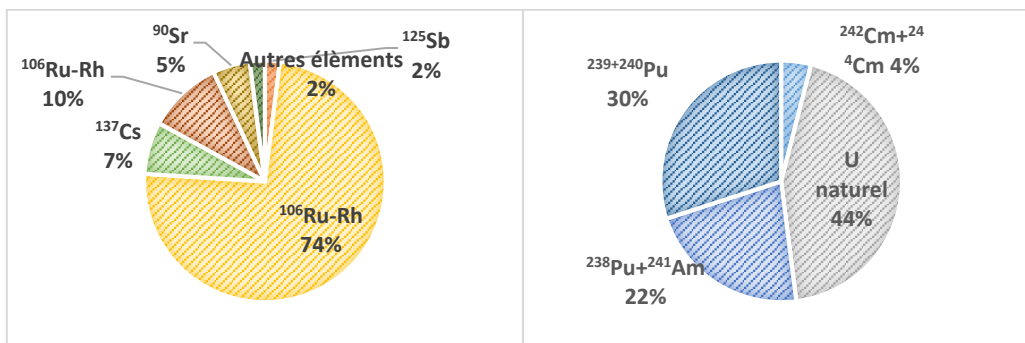


Figure II-8 : Composition moyenne des activités des principaux radionucléides émetteurs bêta/gamma hors tritium (gauche) et alpha (droite), composante les effluents liquides rejetés par le centre de Marcoule entre 1961 et 2018. D'après (Amandine Morereau, 2020)

Il faut toutefois garder à l'esprit que les proportions relatives des éléments présentés en Figure II-8 ont évolué au cours de la période 1961-2018. Les rejets ont fortement diminué à partir des années 1990 grâce à la mise en place d'une nouvelle station de traitement des effluents liquides puis avec l'arrêt de certaines activités comme l'extraction du plutonium des combustibles usagés.

#### II.4.2. Devenir du césium dans le continuum Rhône Méditerranée

Un des RN les plus étudiés sur le continuum Rhône Méditerranée est le césium, et ce paragraphe propose une synthèse rapide des connaissances sur son transfert.

Lorsqu'ils ne sont pas stockés, les sédiments transitent dans le Rhône jusqu'à l'embouchure, où une partie de ces sédiments marqués en  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{134}\text{Cs}$  se dépose sur le prodelta (2 km<sup>2</sup>). (Marion, 2010) a ainsi estimé à partir de campagnes de terrain que 54 % du césium particulaire rhodanien a été stocké sur le prodelta sur l'année 2006. Néanmoins, les crues et surtout les tempêtes remettent en suspension une fraction non négligeable de ce stock sédimentaire (Dufois, 2008).

La fraction dissoute du Cs (0 à 90% de l'activité totale, décroît avec la concentration en MES d'après Rolland, (2006)) du Rhône est exportée par les courants et suit les masses d'eau du Rhône selon les trajectoires établies en II.3. On a ainsi pu retrouver un marquage en Cs vers le Cap de Creus (Sanchez-Cabeza et al., 1992) ou dans le Golfe de Fos (Gontier et al., 1992), à des époques où l'activité relarguée par le fleuve était plus importante (Eyrolle et al., 2020).

La part de césium dissous exportée depuis l'embouchure du Rhône reste une inconnue assez importante car l'amplitude du phénomène de désorption, un apport de césium dissous supplémentaire, n'a pas été quantifié.

Martin and Thomas, (1990) observent sur un gradient de salinité en Septembre 1984 un écart au mélange (cf I.5) avec un enrichissement très important de la phase dissoute en  $^{134}\text{Cs}$  et  $^{137}\text{Cs}$  à 1,5 de salinité (rapports 60 et 8 respectivement par rapport à la concentration en phase dissoute). Les données semblent mettre en évidence le processus de désorption. Toutefois, les concentrations particulières augmentent aussi du fleuve vers la mer. Ces données sont compilées en calculant les  $K_d$  correspondants en fonction de la salinité (Figure II-9). On constate que le comportement du Cs est très variable sur ce gradient. A 2 km de l'embouchure les  $K_d$  baissent brusquement vers 1,5 de salinité pour remonter progressivement. Les auteurs suggèrent une désorption suivie d'une réadsorption sur le plancton. Toutefois, l'échantillonnage s'est déroulé sur 3 jours et il est possible qu'un rejet additionnel de l'installation de Marcoule dans ce laps de temps ait produit des interférences. Cela est appuyé par les augmentations d'autres RN dissous propres à Marcoule comme le  $^{106}\text{Ru}$  aussi à 1,5 de salinité. Cependant, cette augmentation est dans des proportions moindres que pour le césium. Ces limites dans l'interprétation du diagramme de mélange ont déjà été exposées en I.5.

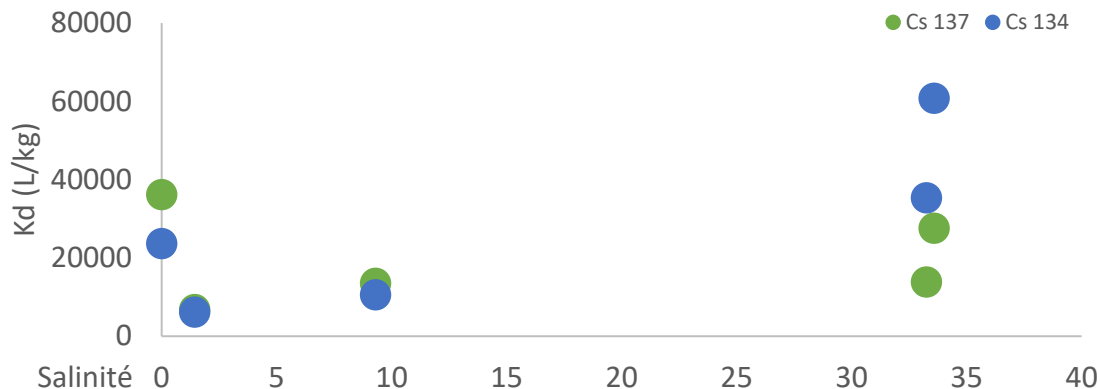


Figure II-9 : Evolution des Kd des isotopes radioactifs du césium sur le gradient de salinité du Rhône. Données issues de (Martin and Thomas, 1990).

Plus récemment, deux campagnes auxquelles j'ai participé sur le gradient de salinité du Rhône Radakovitch et al. (2021) montrent des résultats contrastés présentés en Figure II-10 (cf description en VI.2.5.a).

La campagne de Juin 2019 ne montre pas de tendance claire et le mélange semble conservatif entre le pôle d'eau douce et le pôle d'eau salée. La campagne de Septembre 2019, à débit plus faibles (450 m<sup>3</sup>/s) à nécessité de relever le gradient de salinité plus en amont, en partie dans l'estuaire du Rhône et semble mettre en évidence une légère désorption non imputable à la teneur en MES du milieu.

### Campagnes DRIM-OSR 5 Estuaire du Rhône

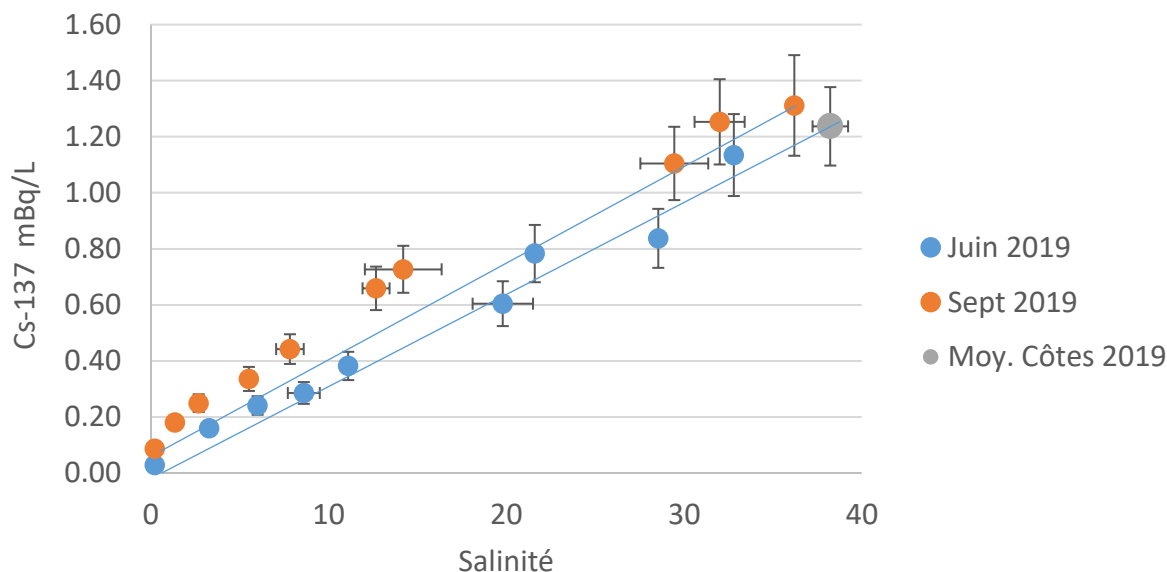


Figure II-10 : Activités de <sup>137</sup>Cs dissous mesurées durant les campagnes DRIM de Juin et Septembre 2019. Le point gris correspond à la moyenne de 3 échantillons mesurés au large de Toulon et Marseille en Avril 2019. Issu de Radakovitch et al (2021).

La réactivité du césium sur le gradient de salinité semble varier de façon saisonnière et/ou avec le débit. Le contexte a aussi changé au cours des années puisque les campagnes de Martin en 1984 se sont déroulées à la période où les rejets de Marcoule étaient l'apport de

Cs le plus important au Rhône là où les apports de césium au Rhône sont principalement hérités de l'érosion des sols pendant les campagnes de Radakovitch et al., (2021).

Une hypothèse pourrait être que le césium provenant de rejets est plus réactif sur le gradient de salinité que le césium provenant de retombées globales, en particulier si celles-ci sont anciennes.

Ces dynamiques vont être de plus en plus difficiles à interpréter puisque la baisse des activités rejetées par les installations nucléaires et l'antériorité croissante des retombées globales se traduisent par une baisse des activités solides et dissoutes des RN artificiels sur les dernières décennies dans le Rhône (Eyrolle et al., 2020). D'après Morereau, 2020), les concentrations de RN artificiels dans les sédiments du Rhône devraient atteindre le bruit de fond radiologique des fleuves non impactés par l'industrie nucléaire. Aussi, une ultime limite à l'interprétation des diagrammes de mélanges est de ne plus être capable de mesurer les très faibles activités.

Malgré les résultats mitigés sur le Rhône. Ces diagrammes ont montré la réactivité de cette zone d'interface sur d'autres fleuves en situation accidentelle/post-accidentelle. Par exemple, l'étude de Kakehi et al., (2016) présente des variations du césium dissous sur le gradient de salinité de l' Abukama. Les résultats contrastés entre différents diagrammes de mélange exigent une modélisation de cette zone d'interface, capable d'expliquer ces différences observées entre les études.

# III. Modélisation du corridor Rhodanien

## III.1. Présentation du modèle Casteaur

Le Code Casteaur est un outil de calcul opérationnel permettant d'estimer les transferts de rejets de RN dans les cours d'eau. Le code est basé sur les équations hydrauliques 1D de type amont-aval.

La géométrie du fleuve est décrite par une succession de biefs aux pentes, largeurs et géométries constantes. Les équations utilisées dans l'hydraulique de Casteaur sont les suivantes :

**Equation de continuité :**

$$\frac{dwc_i^j}{dt} = Q_{i-1}^j \cdot (1 - p_{i-1}) + q_i^j - Q_i^j \quad (\text{III-1})$$

- $wc_i^j$  (m<sup>3</sup>) : volume d'eau dans la maille I au pas de temps j
- $Q_i^j$  (m<sup>3</sup>.s<sup>-1</sup>) : débit dans la maille i au pas de temps j
- $q_i^j$  (m<sup>3</sup>.s<sup>-1</sup>) : débit d'apport dans la maille i au pas de temps j
- $p_i$  (m<sup>3</sup>.s<sup>-1</sup>) : pourcentage de débit de fuite dans la maille i

**Débits :**

$$Q_i^j = U_i^j \cdot SM_i^j \quad (\text{III-2})$$

**Vitesses :**

$$U_i^j = Ks_i \cdot Rh_i^{j^{2/3}} \cdot \sqrt{I_i} \quad (\text{III-3})$$

- $U_i^j$  (m.s<sup>-1</sup>) : vitesse moyenne dans la maille i au pas de temps j
- $SM_i^j$  (m<sup>2</sup>) : section mouillée dans la maille i au pas de temps j



- $Ks_i$  ( $m^{1/3}.s^{-1}$ ): coefficient de Strickler de la maille  $i$
- $Rh_i^j$  (m): rayon hydraulique dans la maille  $i$  à l'instant  $j$
- $I_i$  ( $m.m^{-1}$ ): pente de la maille  $i$
- **Paramètres à renseigner** :  $q_b^j$ ,  $p_b^j$ ,  $Ks_b$ ,  $I_b$
- **Variables calculées** :  $wc_i^j$ ,  $Q_i^j$ ,  $U_i^j$ ,  $Rh_i^j$  et  $\tau_i^j$  (Tension de frottement,  $N.m^{-2}$ )

Les variables hydrauliques et morphologiques sont résumées en Figure III-1.

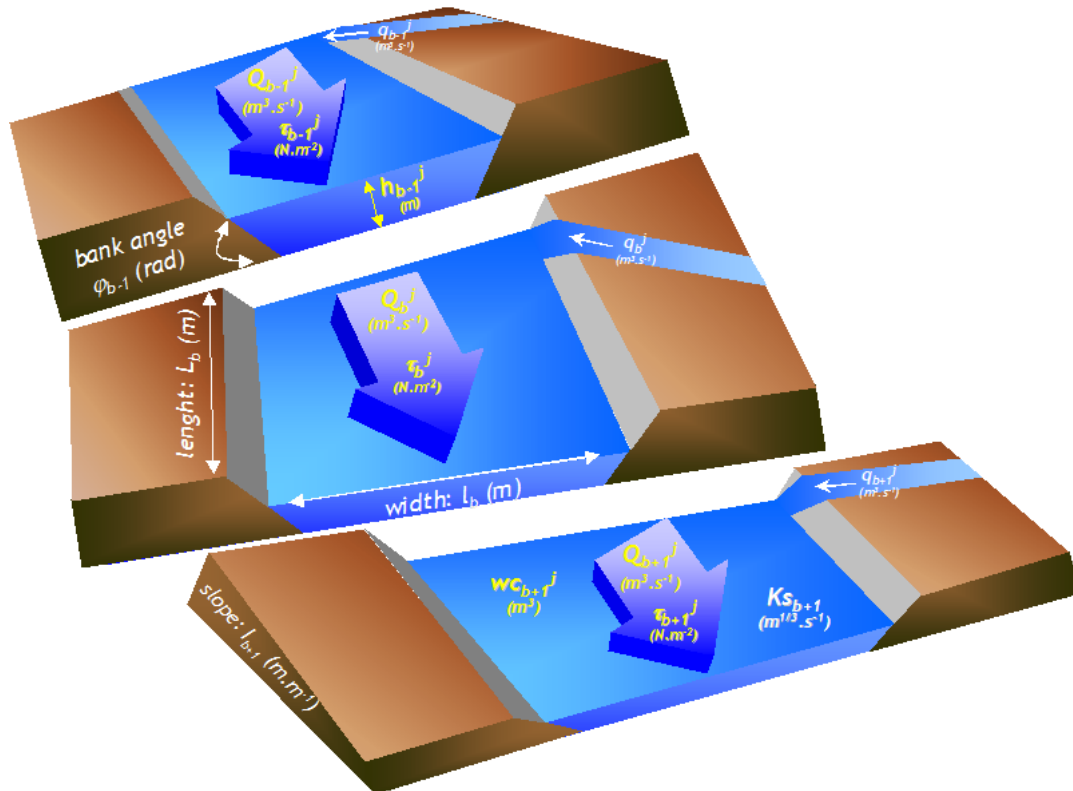


Figure III-1: Configuration des apports et des géométries dans Casteaur

### III.2. Biefs

Les biefs jusqu'à Arles ont été décrits dans (BRL, 2001). Ils sont au nombre de 34. Avec le modèle Casteaur actuel, le fleuve ne peut être représenté que par un simple chenal. Les aménagements du fleuve pour les barrages comme on peut en trouver dans le Rhône ne sont pas décrits par le modèle. L'impact d'une diffluence comme celle du Petit Rhône peut être pris en compte sur le chenal principal en imputant une perte sous forme de fraction du flux dévié. Toutefois, pour calculer l'écoulement dans le Petit Rhône il faut créer une seconde configuration centrée sur le Petit Rhône. Le terme source provient de la configuration précédente. Dans le cas d'un delta avec de multiples embouchures cela peut être très laborieux.

Aucun bief n'est décrit après Arles. La marée après cette limite devient trop importante et la validité du modèle Casteaur n'est plus garantie. Le rapport de BRL ayant déjà

sélectionné les biefs, la première partie du travail préliminaire est donc de choisir les affluents d'intérêt du Rhône et d'intégrer leurs débits à Casteaur. La seconde partie consiste à sélectionner les stations de mesures sur le linéaire du Rhône pour comparer la justesse de la modélisation des débits.

### III.3. Sélection des affluents

#### III.3.1. Rhône « amont »

Dans cette partie, le Rhône « amont » est le Rhône au niveau de la première CNPE. La première CNPE est celle de Creys-Malville (en démantèlement). Le débit amont choisi en entrée est celui observé à la station du pont de Groslée (898241.713 / 6515718.445 Lambert93).

#### III.3.2. Affluents

La plupart des affluents après le pont de Groslée cités en introduction ont été pris en compte. Certains affluents cévenols et méditerranéens absents de la configuration initiale du rapport BRL, notamment l'Eyrieux et le Doux ont des modules annuels faibles mais apportent une grande quantité d'eau en période de crue. Ils sont donc ajoutés au modèle. Concrètement, la configuration choisie est de 12 affluents, tous présentant un module de plus de  $3\text{m}^3/\text{s}$ . Cette configuration est plus simple que celle de MAGE de l'INRAE (M. Launay et al., 2019) qui utilise 7 affluents supplémentaires (Yzeron, Gier, Cance, Galaure, Ouvèze (rive droite), Roubion et Aygues).

La Base de Données pour les Observatoires en Hydrologie (BDOH) a pour vocation de permettre la gestion, la bancarisation et la mise à disposition des données hydrologiques et biogéochimiques issues des observatoires de long terme. Un des observatoires est l'Observatoire des Sédiments du Rhône (OSR). Ce site expérimental regroupe les suivis par les différents partenaires de l'OSR des débits, des concentrations en matières en suspension et des concentrations en micropolluants sur le Rhône et ses affluents.

Ces affluents utilisés dans Casteaur sont présentés en Tableau III-1 ainsi que le pK de confluence avec le Rhône et la source des données. Dans le cas de plusieurs stations par affluent, la station choisie est la plus proche de la confluence avec le Rhône.

Tableau III-1: Affluents utilisés sur l'emprise complète du domaine Casteaur Points d'entrée et sources des données de débits

Affluents (apport d'eau)	pK entrant	Source
Le Rhône à Pont de Lagnieux	0	BDOH
Bourbre	40	Banque Hydro
Ain	41	Banque Hydro
La Saone	76	BDOH
Le Doux	167	BDOH
L'Isère	182	BDOH
L'Eyrieux	201	Banque Hydro
La Drôme	207	Banque Hydro
L'Ardèche	267	Banque Hydro
La Cèze	289	Banque Hydro
L'Ouvèze	320	Banque Hydro
La Durance	324	BDOH
Le Gardon	338	BDOH

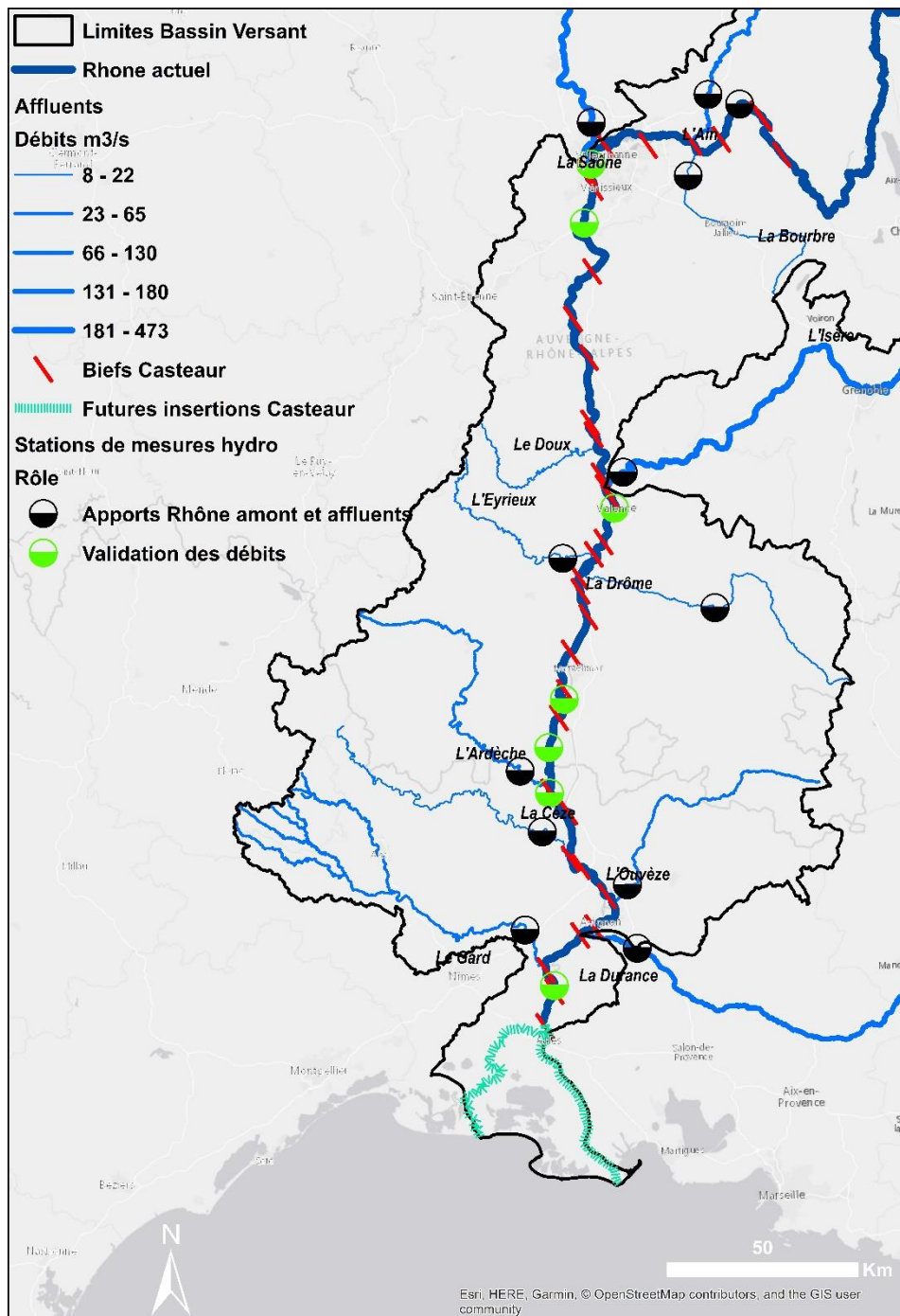
### III.3.3. Stations de validation

Les stations de validation sont présentées en Tableau III-2.

Tableau III-2 : Stations de mesure du débit utilisées pour la validation des débits du Rhône

Stations de validation du modèle	pK	Source	Pas de temps
Le Rhône à Perrache	74	Banque Hydro	Journalier
Le Rhône à Ternay	100	Banque Hydro	Journalier
Le Rhône à Valence	186	Banque Hydro	Journalier
Le Rhone a Viviers	242	Banque Hydro	Journalier
Le Rhone a Beaucaire	346	BDOH	Horaire
Le Rhône à Arles	353 (théoriquement plus loin, assimilé à la diffluence)	BDOH	Horaire

L'ensemble de ces données est synthétisé en Figure III-2.



*Figure III-2: Configuration de Casteaur retenue pour cette étude. Les traits rouges délimitent les biefs. Les affluents aux apports significatifs sont représentés en bleus. L'épaisseur des affluents est proportionnelle au débit moyen. Les stations de mesures pour représenter les apports des affluents ou servir à la validation sont représentées respectivement en noir et vert.*

### III.3.4. Propagation des débits

Il s'agit dans un premier temps de vérifier que Casteaur propage les débits à Arles de façon cohérente. Cette vérification a été faite sur l'année 2015 qui est récente et possède suffisamment de données, que ce soit pour les affluents ou le linéaire du Rhône. La comparaison entre les débits horaires calculés par Casteaur et les débits observés aux stations de mesures (journaliers ou horaire) sont présentées en Figure III-3 et Figure III-4.

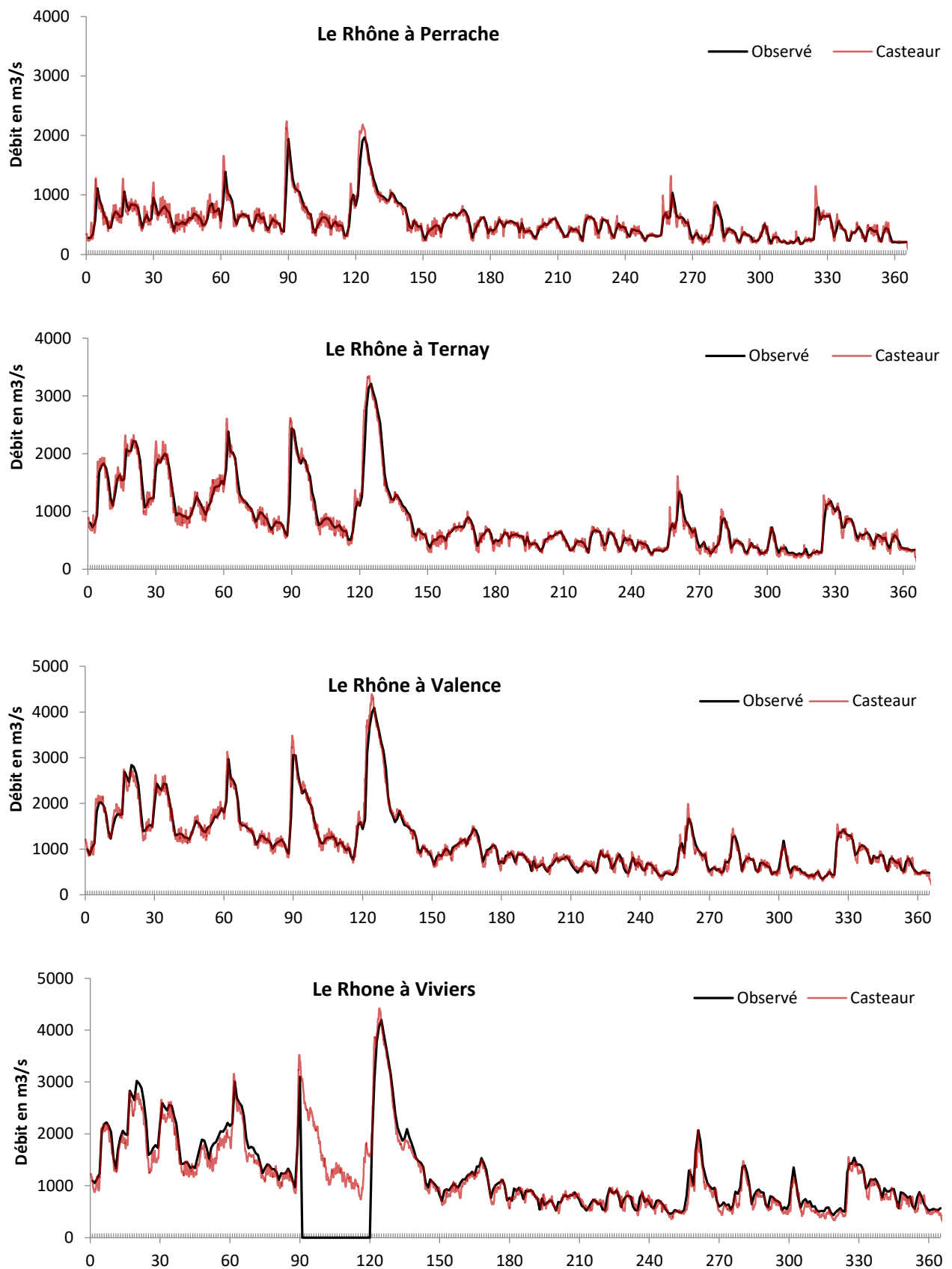


Figure III-3 : Comparaisons entre les débits simulés par Casteur et les débits observés (journaliers). De haut en bas : Stations de Perrache, Ternay, Valence, Viviers

On constate que si l'on regarde à l'échelle de la journée (pas d'acquisition des débits sur les stations) les tendances sont plutôt bien restituées, même en crue. Néanmoins on constate à partir de Viviers des débits légèrement plus faibles que ceux observés.

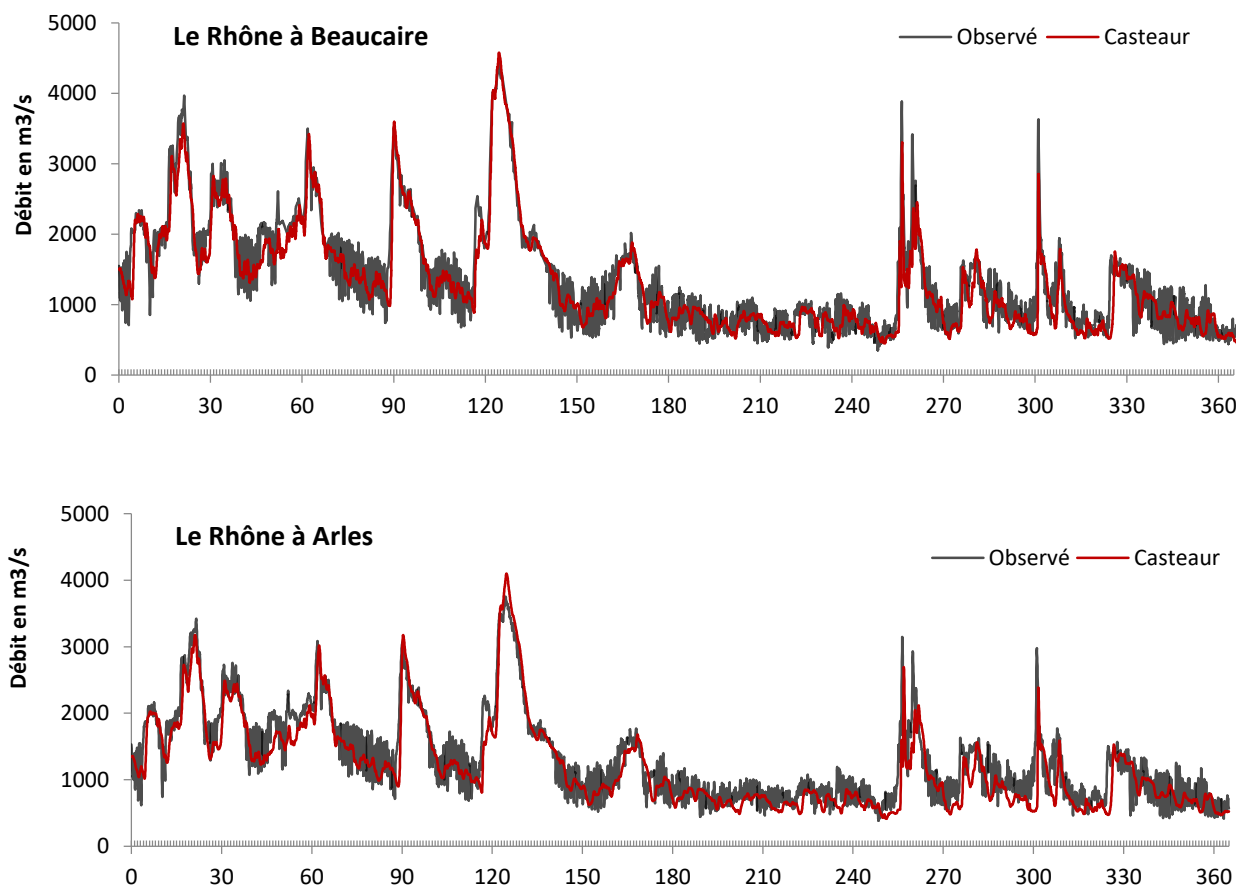


Figure III-4 : Comparaisons entre les débits simulés par Casteur et les débits observés (horaires). De haut en bas : Stations de Beaucaire et de Arles

Lorsque l'on regarde plus en aval (Beaucaire et Arles) et avec un pas de temps horaire on constate d'abord que le débit suit des oscillations qui se ressentent particulièrement lorsque le débit est en dessous du module. Ces oscillations sont très probablement dues à l'influence des barrages et de la marée (Faure, communication personnelle) que Casteur ne prends pas en compte ce qui expliquerait l'effet plus important à bas débit (en crue les barrages sont transparents et le marnage généré par la marée devient négligeable au regard de l'élévation de la ligne d'eau). Néanmoins, il est difficile lequel de ces facteurs est prépondérant. Ensuite, Casteur accuse parfois un retard d'une journée particulièrement visible lors des montées en crue (évènement cévenol entre le 320 et 330 ème jour de 2015 par exemple). Encore une fois, c'est l'absence des contraintes d'ouvrages qui en est la cause. Lorsque la crue monte mais que le débit reste raisonnable (proche du module), la très grande majorité de l'eau transite par le canal d'amenée, ou l'écoulement est plus rapide que dans le vieux Rhône. Casteur de son côté possède un bief moyen aux rugosités intermédiaires entre le vieux Rhône et le canal d'amenée. Ce bief moyen sous-estime la vitesse de l'écoulement dans cette configuration et expliquerait ce décalage. Un problème moindre est le déficit d'eau sur les crues de l'automne mais pas sur celles du printemps. Cela suggère qu'il manque encore des petits affluents cévenols/méditerranéens mais aux

apports d'eau significatifs en crue ou bien que la géométrie simplifiée n'est pas apte à restituer les crues éclairs avec un court temps de montée.

Pour Arles, les performances du modèle pour 2015 sont résumées en Tableau III-3. Le choix des coefficients décrivant la qualité de la prédiction de cette simulation appelée « CAST 1.0 » est exhaustif. Cela pourra servir de point de référence pour d'autres années hydrologiques, d'autres configurations de Casteaur ou d'autres modèles.

Tableau III-3 : Performances de Casteaur pour calculer les débits horaires de 2015 en Arles

Coefficient	R <sup>2</sup>	RMSE(m <sup>3</sup> /s)	NSE	BIAS (m <sup>3</sup> /s)	Skill (Index of agreement)
<i>Intervalle</i>	[-1 ;1]	X	[-∞ ;1]	X	[0 ;1]
<i>Cast 1.0</i>	0.83	305	0.79	127	0.95

D'un point de vue purement hydrologique, le modèle et cette configuration montrent des lacunes. L'erreur quadratique moyenne s'élève à 305 m<sup>3</sup>/s ce qui est environ 20 % du débit moyen, ce qui est important. Quant au biais, il est de 127 m<sup>3</sup>/s, c'est-à-dire qu'environ 8% du débit moyen du Rhône manque au bilan en 2015, ce qui confirme les observations faites sur la Figure III-3. D'un point de vue pratique, cela veut aussi dire que prendre en compte les 12 affluents cités plus haut permet de propager 92% du volume d'eau transitant dans le Rhône.

Les débits ne sont pas la variable « cible » à modéliser pour Casteaur mais les concentrations en RN dissous. Dans le paragraphe suivant nous regardons si les erreurs sur le débit induisent des erreurs acceptables pour les concentrations en RN dissous.

### III.4. Validation pour les éléments dissous

L'objectif de la thèse est de décrire le transfert des radionucléides dissous dans le continuum fleuve mer. Cela implique donc de modéliser correctement les concentrations de radionucléides dissous transitant dans le Rhône. Décrire les performances du modèle pour reproduire les débits pas à décrire les performances du modèle pour le transfert des radionucléides dissous. Par ailleurs, l'utilisation de plusieurs variables pour la calibration d'un modèle augmente sensiblement sa précision (Rode et al., 2007).

Dans la suite du chapitre nous testons différentes approches pour quantifier les capacités du modèle Casteur à reproduire les chroniques d'éléments dissous. Ces approches reposent sur le traçage, c'est-à-dire que l'on connaît suffisamment bien la source en un élément dissous (position sur le linéaire, durée du rejet, ampleur du rejet) pour pouvoir modéliser l'évolution de sa concentration et la comparer aux observations.

#### III.4.1. Tritium originaire des CNPE

Un traceur idéal est le tritium dissous rejeté par les CNPE. Sa demi-vie de plus de 12 ans est suffisamment longue pour que la désintégration radioactive soit négligeable sur nos échelles de temps. Bien qu'un fruit de fond en tritium existe (Eyrolle et al., 2018), les rejets des centrales augmentent sensiblement les concentrations au-dessus de ce bruit de fond.

Nous avons eu l'occasion d'utiliser un rejet concerté par la CNPE de Saint-Alban dont nous connaissions la date, la durée et l'amplitude. Des prélèvements moyennés sur 4 h et automatisés ont été effectués à Arles centrés sur l'arrivée « probable » du panache calculée par Casteur. La première modélisation est faite avec la configuration des affluents classique « Cast1.0 ». Une seconde, « Cast 2.0 » est faite sur un tronçon plus court et utilise les débits du Rhône amont à partir de Andancette (pK 144). A partir de là, les affluents sont les mêmes que ceux utilisés dans la configuration Cast1.0. Le pas de temps est de 10 min, le pas d'espace est de 1 km. Les résultats sont présentés Figure III-5.

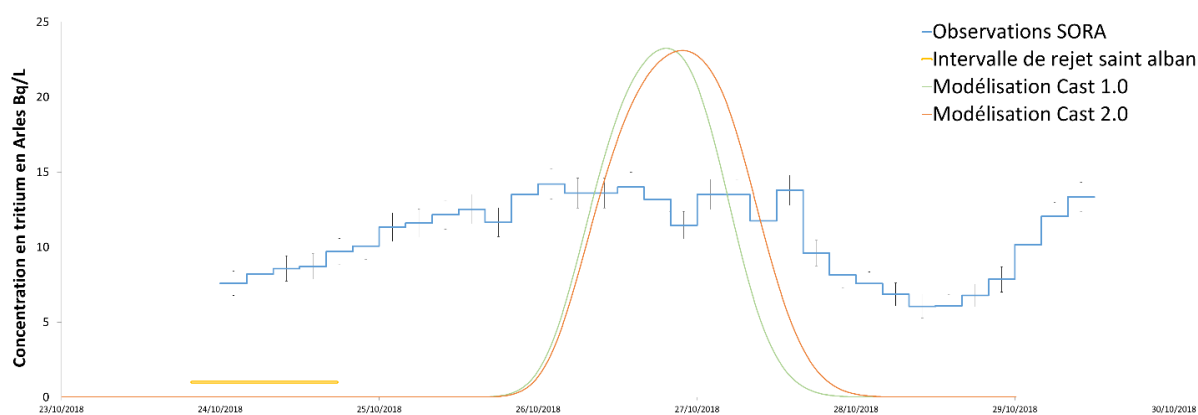


Figure III-5 : Modélisation en Arles de la chronique d'un rejet concerté de tritium par la CNPE de Saint-Alban.

On constate que les modélisations et les observations ne concordent ni en phases ni en amplitude. La montée progressive observée à partir du 24/10/2018 ne peut être imputée



au rejet de Saint-Alban qui venait juste de démarrer. Il n'a pas pu parvenir jusqu'à Arles en si peu de temps.

Une hypothèse est la présence d'un deuxième rejet. En intégrant l'aire sous la courbe entre le 24/10 et le 28/10, l'activité est similaire à celle du rejet de Saint-Alban ce qui rends l'hypothèse de superposition des deux rejets (l'initial plus celui de Saint-Alban) sur cette période peu probable. Mon hypothèse est que le panache de Saint-Alban est celui dont nous n'avons que le début et qui arrive en Arles à partir du 28/10 à midi (soit un temps de transfert de 5 jours). Cette hypothèse est appuyée par deux faits. Le panache modélisé avec la configuration Cast 2.0, plus précise puisque commençant plus en aval, arrive plus tard que la Cast 1.0 appuyant l'hypothèse d'une arrivée tardive du panache. De plus, une expérimentation plus récente sur un second rejet concerté au niveau de Saint-Alban a été faite pour des gammes de débit plus hautes (1100 m<sup>3</sup>/s). Cette expérimentation n'est pas discutée ici mais les premiers résultats révèlent eux aussi une sous-estimation du temps de transfert sur le Rhône.

Les résultats sur le tritium montrent que Casteaur présente des incertitudes très importantes sur les concentrations en éléments dissous à bas et moyens débits. Ceci est en accord avec nos observations sur les débits mal restitués lorsqu'ils sont faibles. Le tritium doit continuer à être utilisé comme traceur pour la calibration à l'avenir. Toutefois les expérimentations doivent être menées de manière à exclure toute potentielle interférence provenant de rejets d'autres centrales. Par ailleurs le modèle doit être amélioré en amont car c'est lui qui dimensionne la période de prélèvement. Si ses incertitudes sont trop élevées on risque de prélever beaucoup d'échantillons qui ne capturent pas le panache.

#### III.4.2. Utilisation de l'hétérogénéité hydrologique et géologique du bassin versant du Rhône

Les informations sur les rejets de tritium ne sont pas toujours accessibles. Une alternative est d'utiliser d'autres éléments dissous à condition qu'ils soient conservatifs dans le fleuve. Comme présenté en introduction, le Rhône possède des affluents avec des fonctionnements hydrologiques différents. Mais aussi, ses affluents s'écoulent sur des formations géologiques variées et vont solubiliser partiellement les roches mères. L'utilisation agricole ou minière de certains bassins versants a aussi changé les concentrations des rivières en éléments majeurs ou métalliques. Par conséquent, des variations de concentrations pour certains éléments traces sont observées à Arles selon les contributions des différents affluents (Ollivier, 2006).

Ainsi, on pourrait mettre à profit cette hétérogénéité pour tracer les masses d'eau de certains affluents du Rhône, et vérifier qualitativement les temps de parcours avec ceux calculés par Casteaur.

Utiliser cette hétérogénéité hydrochimique pour le traçage nécessite d'identifier quels sont les affluents les plus à même d'induire une variation de concentration observable à la fin du linéaire (Dans notre cas Arles). Cette variation est d'autant plus grande que le débit apporté par l'affluent est important et sa concentration significativement différente des autres.

#### III.4.2.a. Conductivité et affluents cévenols

Les affluents cévenols prennent leur source sur le massif central, principalement granitique (Figure III-6). Ces formations sont peu propices à la minéralisation des eaux et donc celles-ci vont théoriquement présenter une conductivité faible.

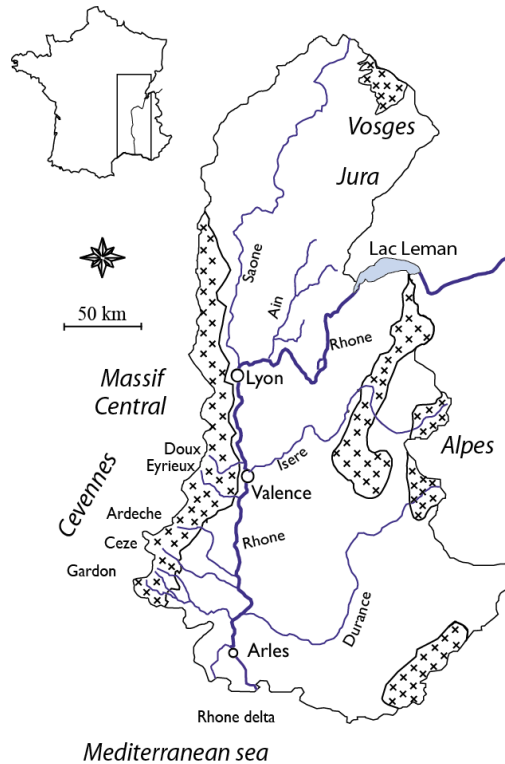


Figure III-6 : Formations granitiques sur le bassin versant du Rhône (croix). Adapté de Ollivier (2006).

Cela est confirmé par le boxplot en Figure III-7 qui a été généré à partir des données de la banque nationale sur la qualité des cours d'eau et des plans d'eau <http://www.naiades.eaufrance.fr/>.

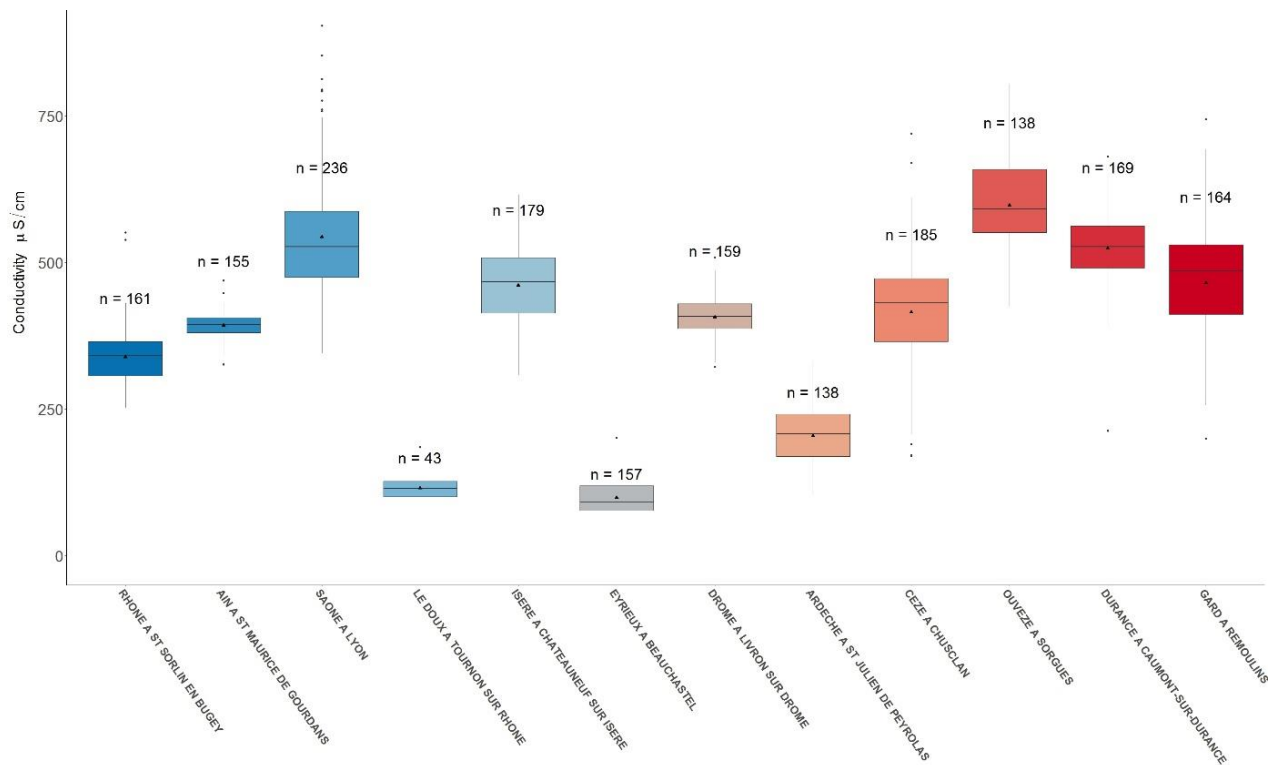


Figure III-7 : Boxplot des conductivités des principaux affluents du Rhône (configuration « Cast1.0 »). Données issues de <http://www.naiades.eaufrance.fr/> sur la période 2000-2020.

Les affluents cévenols à l'exception du Gardon présentent des conductivités significativement plus faibles que celles des autres affluents. La contribution ponctuelle, rapide et conséquente de ces affluents au débit du Rhône en crue est susceptible de générer une baisse rapide de la conductivité du Rhône. Cela est illustré en Figure III-8 où la conductivité est passée de 500 à 400  $\mu\text{S}/\text{cm}$ .

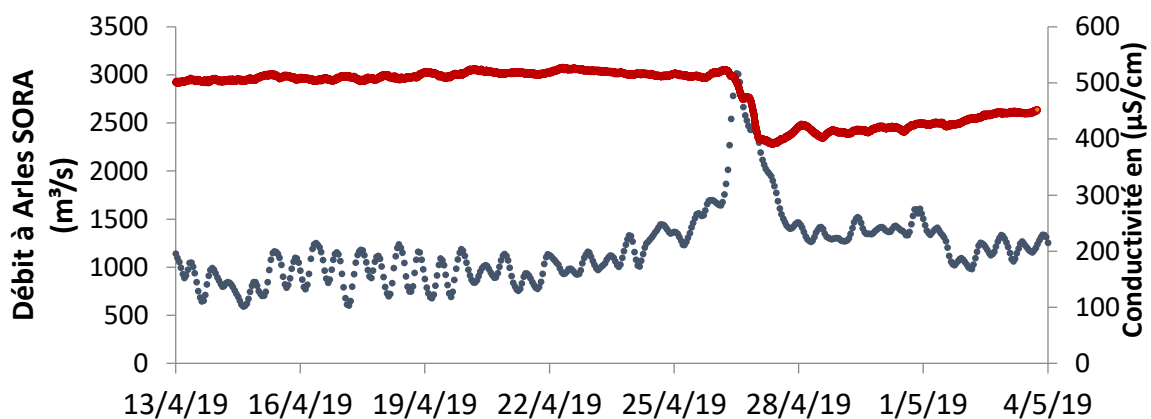


Figure III-8 : Débits (bleu) et conductivité (rouge) observés à Arles pendant une crue cévenole. Données acquises à la station SORA.

La combinaison de ces informations suggère que la conductivité, ou plus précisément son déficit, est un bon traceur des affluents cévenols en crue.

Un point fondamental est de savoir quel affluent cévenol est le principal contributeur pendant ces crues. Les boxplot présentent des conductivités mesurées à toute période et

pas uniquement en période de crue. On cherche donc à savoir l'évolution de ces tendances en crue.

Dzikowski & Jobard, (2012) observent dans les torrents que la conductivité EC suit une loi :

$$EC = aQ^b \quad (III-4)$$

Avec a et b des coefficients propres à la rivière. L'application de cette loi aux affluents cévenols est présentée Figure III-9. Les données sur le Doux, l'Eyrieux et le Gardon proviennent de naiades. Tandis que les données sur la Cèze et l'Ardèche proviennent respectivement de sondes de conductivité utilisées dans les thèses de Loïc Ducros et (Bounket, 2020).

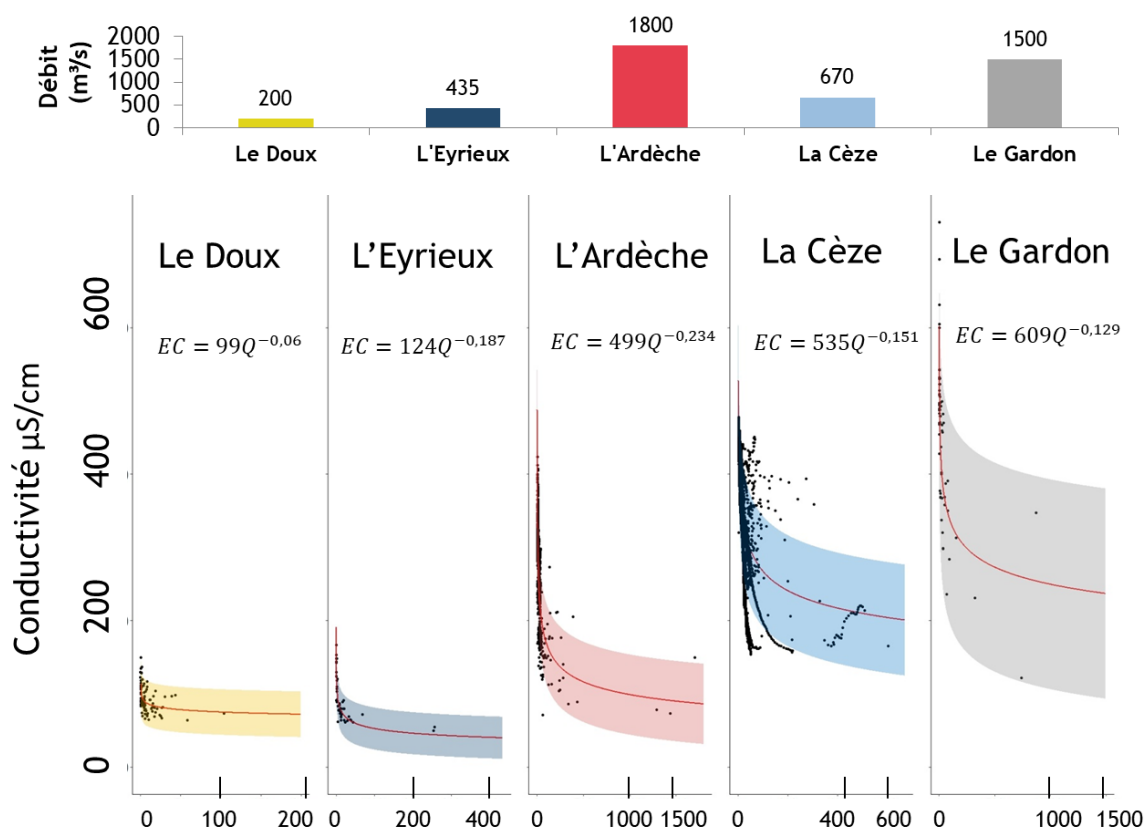


Figure III-9 : Comparaison des crues biennuelles des principaux affluents cévenols (haut) et conductivité des affluents cévenols en fonction du débit ( $x=[0;Q_{2ans}]$ ). Intervalles de prédiction  $\alpha=5\%$

On constate que le Doux et l'Eyrieux présentent les conductivités les plus faibles. Toutefois, leur contribution en crue est sensiblement plus faible que pour le Gardon et l'Ardèche si l'on regarde les crues biennuelles.

Finalement, l'Ardèche présente au risque d'erreur 5% une conductivité plus faible que celles du Gardon ou la Cèze tout en apportant davantage d'eau en crue. Pour ces raisons, on fait l'hypothèse que c'est l'Ardèche qui génère le déficit de conductivité le plus important dans la plupart des crues (ou l'Ardèche présente le débit le plus important) et nous l'avons

instrumenté avec une sonde de conductivité YSI de septembre 2019 à janvier 2020 pour s'assurer de sa conductivité pendant de potentiels épisodes de crue.

#### III.4.2.b. Validation avec la crue de Novembre 2019

Pendant la durée d'acquisition de la sonde YSI, le débit horaire de l'Ardèche atteint 3020 m<sup>3</sup>/s à 15 h le 23/11/2019 (temps de retour 10 ans). Le débit à Arles sera maximal le 24/11 à 1h du matin (5200 m<sup>3</sup>/s). Un déficit de conductivité similaire à celui de la Figure III-8 est observé en Arles vers 5 h du matin. Basé sur le paragraphe précédent, le déficit de conductivité est principalement apporté par l'Ardèche. Par conséquent, le temps de transit est d'environ 14 h entre Saint Martin d'Ardèche et Arles.

Connaissant le terme source, on peut comparer le déficit de conductivité calculé par Casteaur avec celui observé. On utilise la configuration réduite « Cast 2.0 » qui commence à Andancette. Les conductivités des affluents sont fixes et sont la moyenne des boxplot présentées en Figure III-7. Une exception est la conductivité de l'Ardèche qui est celle de la sonde (entre 90 et 180 µS/cm en crue). Le pas de temps choisi pour le calcul est de 10 min, le pas d'espace de 1000 m.

La comparaison entre la chronique de conductivité calculée par Casteaur et celle observée en Arles est présentée Figure III-10.

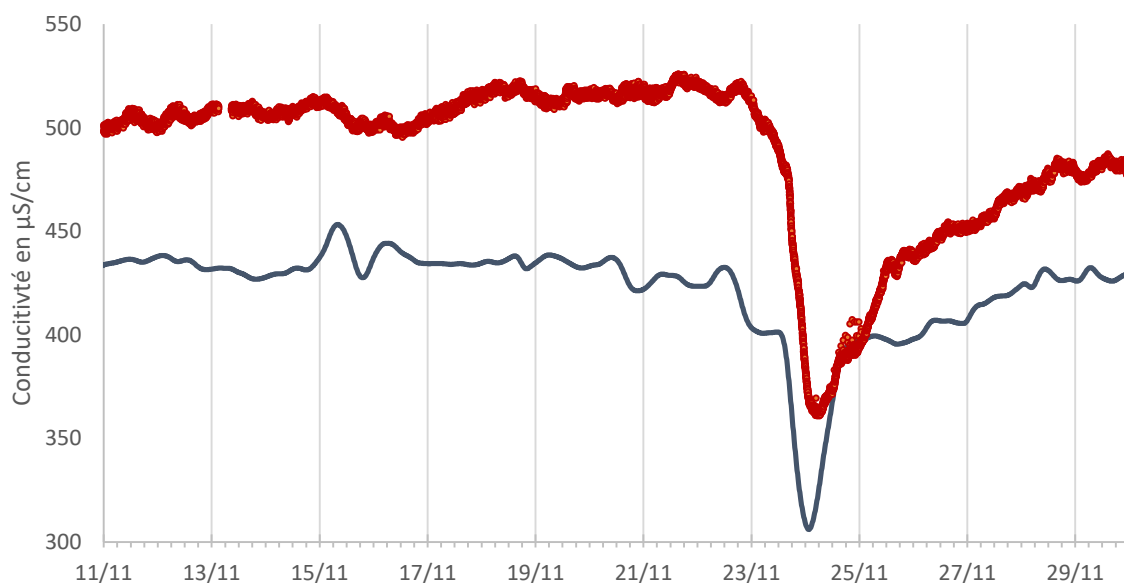


Figure III-10: Comparaison entre chroniques de conductivité en Arles modélisées par Casteaur (bleu) et observées (rouge) pour la crue du 24/11/2019.

Le pic de crue calculé par Casteaur est le 23/11 à 21 h30 et le minimum de conductivité est le 24/11 à 1h30. On constate que Casteaur à 3h30 d'avance sur le pic de crue et 3h30 d'avance sur le minimum de conductivité. A noter que l'écart de 4h entre le pic de débit et le minimum de conductivité est le même en observations et modélisation. Dans ce cas précis, l'erreur sur le temps de transit entre Casteaur et la réalité est de 3h30. On constate que même avec l'utilisation de moyennes l'erreur sur la conductivité n'est que d'environ 60 µS/cm. La conductivité nous a permis de tester la fiabilité des temps de transit calculés par le modèle. Au-delà de la chute significative du 24, la Figure III-10 montre que même les fluctuations plus négligeables de conductivité, en particulier celles du 28 et 29

novembre sont en partie retranscrites par Casteur malgré les simplifications faites sur la conductivité des affluents.

En réduisant l'incertitude sur la conductivité calculée par Casteur en installant une seconde sonde à hauteur de Andancette pour préciser la conductivité du Rhône amont on pourrait restituer plus de ces micro-fluctuations. La finalité est que plutôt qu'une validation qualitative (comparaison des chutes de conductivités prédites et observées) comme faite dans ce paragraphe, on pourrait procéder à une comparaison sur l'ensemble de la chronique voire s'en servir pour calibrer si les incertitudes sont suffisamment réduites. La théorie des ondelettes pour identifier ces « micro-patterns » pourrait être un atout significatif dans cette démarche.

#### III.4.2.c. Uranium naturel

Les travaux de Ollivier, (2006) et Zebracki et al., (2017) suggèrent des disparités sur la distribution de l'uranium naturel sur le Rhône. La distribution de l'uranium dans ses principaux affluents est obtenue en compilant les concentrations en uranium issues là aussi de la banque nationale sur la qualité des cours d'eau et des plans d'eau, en Figure III-11. Le Haut Rhône et l'Isère (via l'Arc surtout, vérifiable sur naïade) ont les concentrations les plus hautes en uranium naturel dissous.

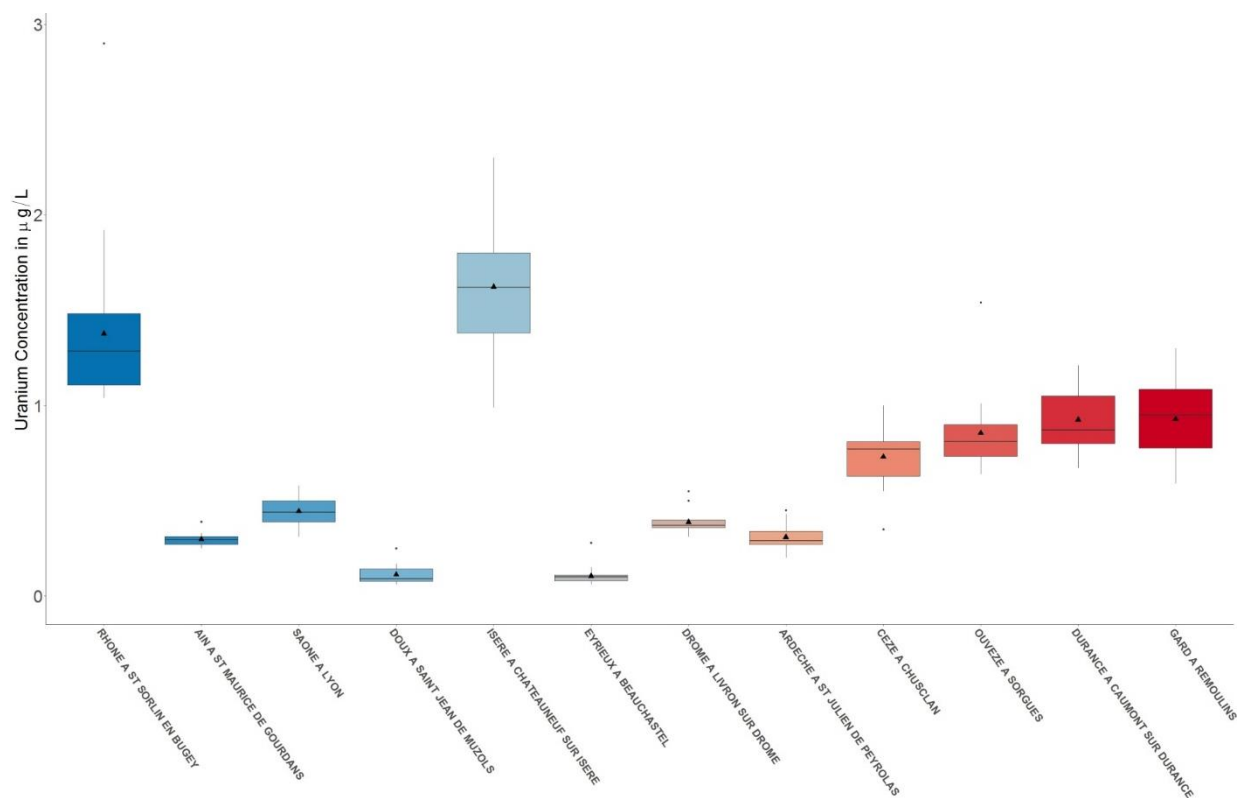


Figure III-11 : Boxplot concentrations en uranium naturel des principaux affluents du Rhône (configuration « Cast1.0 »). Données issues de <http://www.naiades.eaufrance.fr/> sur la période 2000-2020.

L'influence de l'Isère et du Haut Rhône se ressentent dans les concentrations d'uranium en aval ( Arles ou Saint Gilles) en été comme le montre la Figure III-12. En effet, les concentrations les plus hautes sont récurrentes en été. A cette période d'étiage, les principaux contributeurs du Rhône sont l'Isère et le Rhône amont via la fonte des neiges tandis que la participation des affluents cévenols est minimale.

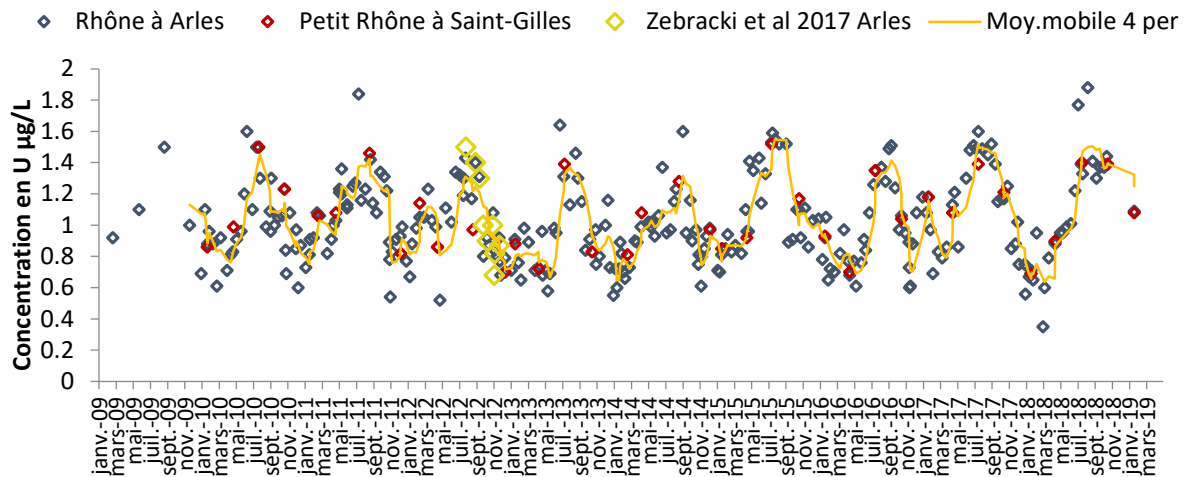


Figure III-12: Variation annuelle de la concentration d'uranium dissous dans le Rhône aval

L'uranium est intéressant car il permet de travailler sur toutes les gammes de débit et permet de remonter sur une partie du linéaire plus haute que pour la conductivité (confluence de l'Isère contre confluence de l'Ardèche). Toutefois, ces données n'ont pas été utilisées pour la validation car un prélèvement est effectué par mois ce qui est un pas de temps trop faible.

### III.4.3. Synthèse et perspectives

Casteur fournit des estimations de temps de transfert dans le Rhône. Que ce soit pour le tritium à bas débit ou la conductivité à haut débit Casteur sous-estime les temps de transit. L'erreur est de 25% pour la conductivité en crue et de 100% pour le tritium à bas débit. La nouvelle version à venir de Casteur, CasteurX inclut deux améliorations importantes qui devraient résoudre une grande partie des difficultés évoquées dans ce chapitre.

- Linéaire précisé

Les améliorations sur le linéaire de CasteurX permettront de prendre en compte les effets des barrages. Les barrages du Rhône sont « au fil de l'eau » et n'ont pas vocation à stocker de l'eau. Néanmoins, ils redistribuent l'eau dans deux canaux aux propriétés d'écoulements sensiblement différentes. Le « débit réservé » du vieux Rhône étant fixe, sa proportion est plus importante à bas débit. Tandis qu'en crue, les barrages deviennent transparents ce qui expliquerait les meilleures performances de Casteur sur l'épisode de crue.

- Prise en compte des équations de Barré de Saint Venant

Pour l'heure, Casteur propage les débits via l'équation de Manning Strickler et ne totalement l'effet de la hauteur d'eau en aval. Hors, celle-ci est en partie fonction de la mer à partir de Beaucaire. L'effet de la variation de la hauteur d'eau est d'autant plus important que le débit est faible.

La finalité de Casteaur est de calculer des concentrations de RN dissous. Néanmoins, le débit propagé peut servir comme forçage pour l'interface fleuve-mer du Rhône. Pour cette raison, il faut chercher à améliorer les résultats hydrauliques.

En l'état, on ne peut pas coupler Casteaur à un modèle de transfert en milieu marin puisque même les résultats à Arles sont biaisés par la surcôte marine. Une fois les améliorations citées plus haut prises en compte, on peut envisager de calibrer Casteaur avec les approches qui ont été testées où évoquées dans ce chapitre résumées en Tableau III-4.

Tableau III-4 : Résumé des traceurs dissous potentiellement utilisables pour

	Partie du linéaire étudiée	Difficulté de mise en œuvre	Contrainte analytique	Calage/validation	Commentaires
Tritium	Théoriquement l'ensemble	+++	++	Quantitatif	Attention superposition des rejets Coopération EDF
Conductivité	Ardèche-Arles	+	+	Qualitatif	Nécessite développements supplémentaires pour utilisations hors-crue
Uranium	Isère Arles.	++	++	Pseudo-Quantitatif	Isère discernable en étiages

#### III.4.4. Temps de transfert (Arles à l'embouchure dans la thèse)

Les traçages d'espèces dissoutes en III.4.1 et III.4.2 pour des conditions hydrologiques extrêmes (étiage vs crue) et des positions de rejet différentes nous permettent d'observer que les temps de transfert dans le Rhône varient de 14H (rejet hauteur Ardèche en crue) à 5 jours (rejet hauteur Saint-Alban en étiage). Ce temps de transfert sera notamment utilisé pour dimensionner la durée de la sorption en chapitre V.

Pour la suite de la thèse, on utilisera les données de débit les plus précises possibles et les plus en aval en l'occurrence le débit horaire observé en Arles.

Le temps de transfert dans l'estuaire (Arles à l'embouchure) est assurée par l'utilisation de la relation empirique  $u=f(Q)$  décrite dans Sakho et al. (2019) en Figure III-13.



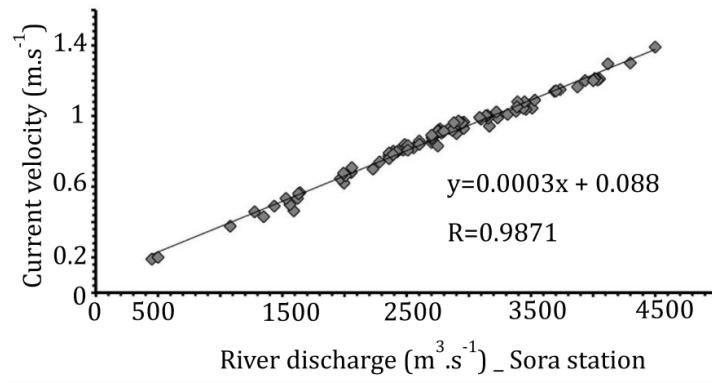


Figure III-13 Vitesse moyenne du courant dans la colonne d'eau observée au bac de Barcarin en fonction du débit mesuré en Arles.

Si il y a présence du coin salé, on utilisera le temps de résidence dans le panache (flushing time) calculé par l'interface DRACAR au chapitre suivant.

## IV. Interfaçage physique

Actuellement, les sorties de CASTEAUR doivent être mises en forme avant d'être exportables sur STERNE. Un logiciel permettant la mise en forme de grands jeux de données est Rstudio qui est disponible sous une licence libre. C'est aussi un environnement de développement pouvant effectuer des opérations mathématiques complexes sur les jeux de données. La stratégie d'interfaçage exposée en introduction ne nécessite pas de résolution numérique complexe. Ces deux arguments nous motivent, à développer un modèle d'interface sous R : DRACAR (Désorption des RADionuCléides à l'interfAce littoRale). Ce modèle devra reproduire les fonctions de transferts de l'estuaire vis-à-vis de l'eau et des solutés en régime permanent, incluant les radionucléides dissous. Ce modèle se compose d'une délimitation de l'estuaire et de sa stratification selon les conditions hydrodynamiques utilisant la « two-layer flow theory » (Krvavica and Ružić, 2020). Ensuite, la cohérence au niveau des échanges d'eau, de sel et d'énergie potentielle est assurée par un modèle boîte (Sun et al., 2017). Enfin, un temps de résidence dans le panache interne est calculé par la « fresh water fraction method » (Officer, 1980) pour prendre en compte les éventuelles cinétiques de désorption des radionucléides.

Ce chapitre présente en premier lieu les principaux phénomènes d'échange dans un estuaire avec l'accent mis sur les estuaires stratifiés. Les théories utilisées pour l'interface DRACAR sont présentées par la suite. Finalement, les résultats de DRACAR appliqué à l'estuaire du Rhône sont exposés. A chaque étape, les résultats sont comparés aux données disponibles ou à la littérature.

### IV.1. Estuaire et échanges

#### IV.1.1. Définition d'un estuaire

En reprenant Dionne (1963) on peut définir un estuaire au sens des transferts d'eau et de sa réactivité pour les ETM notamment le césium. Concrètement, cela regroupe l'estuaire « marin » en libre connexion avec la mer et l'estuaire « intermédiaire » où des échanges d'eau douce et d'eau de mer ont lieu. L'estuaire « fluvial » subit uniquement l'influence de la marée, ressenti par les variations de la hauteur d'eau. La plupart des modèles hydrodynamiques fluviaux 1D tels que MAGE sur le Rhône (Faure, 2019) sont à même de représenter l'influence de la marée sur l'écoulement.

Dans le cadre de ce chapitre, nous allons présenter un modèle décrivant les processus dans l'estuaire marin et intermédiaire, défini comme la portion du fleuve de longueur  $L$  où ont lieu des échanges d'eau et de sel. Il correspond également à la longueur de « l'intrusion saline » (Ippen and Harleman, 1961), qui peut être due à la présence d'un coin salé (ex Rhône) ou à une diffusion horizontale suffisamment importante pour remonter sur plusieurs kilomètres (ex Garonne). Cette longueur varie selon les conditions

hydrodynamiques (de 0 à 36 km pour le Rhône) et est cruciale pour définir les échanges. Nous verrons par la suite comment la caractériser.

#### IV.1.2. Quels sont les processus physiques à l'embouchure ?

Dans la plupart des estuaires le mélange est une combinaison de turbulences générées en interne et aux limites qui varient en importance au cours du temps et dans l'espace.

Les processus décrits ici ne sont pas exhaustifs des processus estuariens mais sont ceux qui seront évoqués lors du paramétrage du modèle.

##### IV.1.2.a. Entrainement

L'eau salée pénètre dans une partie ou dans la totalité de l'estuaire et l'eau du fleuve s'écoule au-dessus car moins dense. Les vecteurs vitesses (vers le continent pour le biseau, vers la mer pour le panache) étant contraires, un cisaillement se crée à l'interface avec des conséquences pour les deux écoulements. Le biseau salé est repoussé vers la mer jusqu'à former une pente assez raide pour résister à la force du fleuve. Sa pointe s'émousse et la pente à gravir est plus raide pour le panache d'eau douce. Quand le cisaillement est suffisamment fort (Nombre de Richardson « classique »,  $Ri=N^2/(du/dz)^2 >1/4$ ), des instabilités à forme de crête aussi appelées « Holmboe waves » se créent à l'interface et se dissipent dans le panache d'eau douce apportant du sel. Ce processus est à sens unique, c'est-à-dire que le panache supérieur gagne du sel et du volume d'eau mais le panache inférieur n'a pas d'eau douce en retour et n'est donc pas dilué.

##### IV.1.2.b. Diffusion turbulente

Pour  $Ri < 1/4$  les ondes ont une forme différentes et sont appelées *instabilités de Kelvin Helmholtz*. Dans les estuaires elles ont une longueur d'onde de l'ordre du mètre. A cause du cisaillement engendré dans l'estuaire, ces ondes se déforment, se renversent et s'enroulent en une spirale de type « œil de chat ». Le centre de ce vortex est situé là où le gradient est le plus important. Cette spirale se brise ensuite en un noyau turbulent appelé « *billow* » étalé en direction du cisaillement. Contrairement à l'entraînement, ce processus génère des échanges entre les deux couches.

La différence essentielle entre l'entraînement et la diffusion est le degré de turbulence dans les deux couches. Si la turbulence est similaire dans les deux couches, l'entraînement est minimal. Si le biseau salé est statique le mélange a uniquement lieu par diffusion turbulente.

Dans les estuaires stratifiés, le mélange se fait principalement par entraînement là où il se fait par diffusion turbulente dans les estuaires partiellement mélangés (Dyer, 1997).

##### IV.1.2.c. Boundary Layer Turbulence

La traînée de friction au fond de l'estuaire produit une zone de cisaillement car l'écoulement proche du fond est considérablement ralenti par rapport à celui au-dessus, et une turbulence est produite par l'écoulement sur la rugosité du fond. L'efficacité de cette

diffusion turbulente est amplifiée lorsque le cisaillement de la couche limite du fond se superpose au mélange qui a lieu à l'interface eau douce-eau salée au-dessus. (Dyer, 1997).

#### *IV.1.2.d. Ondes internes*

Des ondes internes appelées « lee waves » sont générées quand d'importants courants de marées s'écoulent au-dessus de discontinuités topographiques (plateau continental, seuil, rivage, embouchures (Xie and Li, 2019). S'il y a stratification, ces ondes vont interagir avec le cisaillement et là aussi des « billow » sont susceptible d'apparaître aux crêtes et au travers des ondes générant de la turbulence diffusive (Dyer, 1997; Wang, 2006). Dans les estuaires peu profonds, ce processus est souvent considéré comme relevant du « boundary layer turbulence ». Ce phénomène est complexe et son impact dans le mélange estuarien à l'interface fait l'objet de recherches récentes. Une description plus exhaustive du phénomène est fournie par Xie & Li (2019).

#### *IV.1.2.e. « Tidal pumping »*

Pendant un cycle de marée, de l'eau de mer proche de l'embouchure est "pompée" dans l'estuaire tandis qu'à marée descendante, de l'eau saumâtre est éjectée à la mer. La marée étant asymétrique (« jet-like » à marée descendante et « semi circulaire » durant le pompage (Stommel and Farmer, 1952)), le pompage tidal amène un flux moyen de sel et d'énergie dans l'estuaire.

## IV.2. Modélisation physique

Fort des observations et conclusions précédentes, DRACAR doit fournir des variables primordiales pour le couplage :

- Un débit sortant prenant les effets de l'entraînement à fournir au modèle marin
- La salinité à l'embouchure à fournir au modèle marin et pour modéliser correctement la désorption.
- Débit d'eau de mer entrant dans l'estuaire par le biseau salé à fournir au modèle marin.
- Un temps de résidence à l'interface avant rejet en mer nécessaire pour résoudre les équations des réactions chimiques avec une cinétique (désorption).
- Dans le cas d'un estuaire stratifié un dernier paramètre est la hauteur de la stratification sur tout le linéaire.

Les quatre premiers paramètres peuvent être estimés à l'aide de modèles boîtes (box-models) sans l'utilisation d'un modèle numérique. Ces box-models sont en effet utilisés depuis plusieurs décennies pour étudier et modéliser des processus dans une variété de systèmes côtiers, dont des Fjords et des estuaires. Parmi les problématiques traitées on retrouve les calculs de temps de résidence de l'eau (Sheldon and Alber, 2002), les flux de particules et nutriments (Painchaud et al., 1987), les dynamiques induites par le vent et la marée (Hearn and Robson, 2002).

Plus récemment les box-model ont été utilisés pour des problématiques de couplage du fleuve à la mer afin de représenter plus fidèlement l'entrée des rivières dans l'océan et les conséquences sur sa circulation (Garvine & Whitney, 2006 ; Sun et al., 2017 ; Verri et al.,

2020). Cependant, des box-models couplant des processus océanographiques et biogéochimiques sont rares.

Taft et al., (1978) ont étudié la circulation et la réactivité des formes de l'azote dans un estuaire semi-mélangé. Shiller (1996) a travaillé sur l'effet de l'entraînement couplé à la réactivité du zinc et du cadmium, et Testa and Kemp (2008) ont traité de la réactivité de l'oxygène et carbone dissous et la silice dans un estuaire semi mélangé. Néanmoins, tous les box-model de ce type sont forcés par des observations de salinité in-situ et sont plus descriptifs des processus géochimiques que prédictifs. Hors, le modèle à construire doit être prédictif.

#### IV.2.1. Les bases du box-model hydrodynamique dans un estuaire stratifié et approches actuelles

Pour la suite du chapitre, les variables utilisées et leur notation sont présentées en Tableau IV-1.

Tableau IV-1: Paramètres de l'interface DRACAR complète (Structure coin salé + box-model)

Variabl e	Nom	Unité	Utilisé description stratificatio n	Utilisé box model	Commenta ires
$Q_r$	Débit du fleuve	$m^3.s^{-1}$	x	x	
$Q_{LS}$	Débit d'eau marine entrant dans l'estuaire			x	
$Q_M$	Débit d'eau saumâtre sortant à l'embouchure			x	
$Q_{Ut}$	Débit échangé par le tidal pumping			x	
$g$	Accélération de la gravité	$m.s^{-2}$	x		9.81
$F_0$	Nombre de Froude	Adimensionnel	x		
$u_1$	Vitesse de l'écoulement dans le fleuve ou le panache interne	$m.s^{-1}$	x		
$u_2$	Vitesse de l'écoulement dans le biseau salé		x		
$U_t$	Vitesse des courants de marée			x	
$c$	Vitesse des ondes internes				
$S_0/\rho_0$	Salinité/densité de l'eau douce	Adimensionnel $kg.m^{-3}$	x	x	
$S_{LS}/\rho_{LS}$	Salinité/densité de l'eau de mer		x	x	
$S_{LL}/\rho_{LL}$	Salinité/densité moyenne du biseau salé			x	
$S_T/\rho_T$	Salinité/densité en début du biseau salé			x	
$S_{UL}/\rho_{UL}$	Salinité/densité moyenne du panache			x	
$S_M/\rho_M$	Salinité/densité du panache à l'embouchure			x	
$\gamma$	Différence absolue de densité entre les deux strates	Adimensionnel	x		0.026
$\beta$	Coefficient de contraction haline				$7.7.10^{-4}$
$\eta$	Élévation due à la marée	m		x	
$H_0$	Profondeur moyenne de l'estuaire	m	x	x	
$H'$	Épaisseur du « bottom boundary layer »	m		x	
$L$	Longueur de l'estuaire au sens de l'échange eau douce/eau salée	m	x	x	
$h_1$	Épaisseur du panache interne	m	x	x	
$h_2$	Épaisseur du biseau salé	m	x	x	
$S_l$	Pente moyenne de l'estuaire	Adimensionnel	x		
$b$	Élévation du fond	m	x		
$L_t$	Longueur d'excursion tidale	m		x	
$C_i$	Coefficient de cisaillement à l'interface	Adimensionnel	x		
$K_v$	Diffusivité turbulente « apparente »	$m^2.s^{-1}$		x	
$K_s$	Diffusivité turbulente verticale	$m^2.s^{-1}$		x	
$K_M$	Viscosité turbulente verticale	$m^2.s^{-1}$		x	
$a_0$	Coefficient d'ajustement pour la diffusion	Adimensionnel		x	
$a_t$	Coefficient géométrique (fraction de volume d'eau échangée pendant un cycle de marée)	Adimensionnel			
$C_d$	Rugosité du lit de l'estuaire	Adimensionnel	x	x	
$Sc$	Nombre de Schmidt	Adimensionnel		x	
$Ri_x$	Nombre de Richardson horizontal	Adimensionnel		x	
$n$	Coefficient de Manning	Adimensionnel		x	
$\tau_i$	Contrainte de cisaillement à l'interface	Pa	x		

Les bases théoriques d'un box-model sont les équations de bilan de masse d'eau et de sel de (Knudsen, 1900) pour caractériser l'échange dans les fjords et estuaires stratifiés. Elles sont décrites par un fleuve de débit  $Q_r$  et de salinité  $S_0$ , un débit d'eau salée entrant  $Q_{LS}$  de salinité  $S_{LS}$ . Un débit  $Q_M$  sort à l'embouchure avec une salinité  $S_M$ :

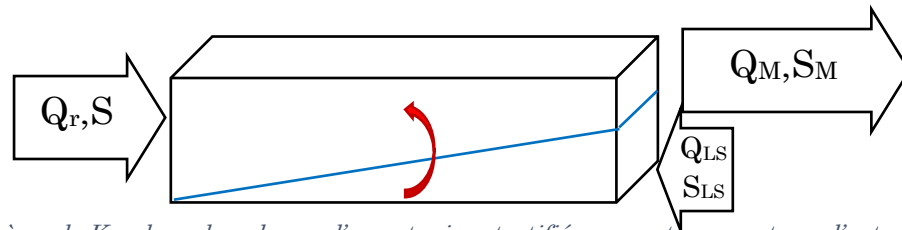


Figure IV-1 : Théorème de Knudsen dans le cas d'un estuaire stratifié sans autre apport que l'entrainement (flèche courbée rouge).

$$Q_M = Q_r + Q_{LS} \quad (IV-1)$$

Et

$$Q_M S_M = Q_r S_0 + Q_{LS} S_{LS} \quad (IV-2)$$

Ces équations reposent sur l'hypothèse forte que le transport de sel n'a lieu que par échange et ne prend pas en compte les autres processus exposés précédemment. Connaissant la salinité à l'embouchure et le débit de la rivière, Knudsen a résolu le système de deux équations d'inconnues  $Q_M$  et  $Q_{LS}$ . Ces équations sont toujours une base valable, reprises encore récemment (Burchard et al., 2018).

Par la suite, différentes études ont enrichi les bilans de nouveaux processus d'échanges et de mélange tels que la diffusion turbulente générée par : le vent (Rice et al., 2008), la tension à l'interface (Sun et al., 2017) et le tidal pumping (Sun et al., 2017), différencié ou non de la diffusion horizontale (Verri et al., 2020).

Si la salinité sortante  $S_M$  à l'embouchure n'est pas connue, ce qui sera notre cas, il est possible de la calculer en ayant une connaissance « a priori » de la structure de la salinité dans l'estuaire et en passant par l'énergie potentielle définie comme l'énergie « stockée dans l'estuaire ayant le potentiel de changer les dynamiques de l'estuaire lorsque cette énergie est libérée » (Rice et al., 2008 ; Sun et al., 2017).

Nous partirons de l'approche de Sun et al. (2017) car elle poursuit le but de prendre en compte les processus hydrodynamiques à l'interface pour une grande variété d'estuaires et nécessite des données assez basiques, principalement de morphologie. Le modèle de Verri (2020) est encore moins couteux en calibration mais dépendant des modèles hydrodynamiques marins. Une problématique de contamination peut survenir dans beaucoup de continuums et il n'existe pas toujours de champs hydrodynamiques du milieu marin. Avoir des résultats sur les flux transitant à l'estuaire indépendamment de champs de courants externes est une plus-value significative.

L'approche de Sun (2017), en régime permanent et moyenné latéralement et horizontalement sur un cycle de marée consiste à :

- 1) Définir la profondeur de l'interface et une longueur de boîte (longueur de l'intrusion) susceptible de changer en fonction des conditions d'entrée (débit, salinité de la mer, hauteur d'eau) pour une meilleure représentation des dynamiques dans l'estuaire (MacCready and Geyer, 2009).
- 2) Sommer tous les processus cités plus haut en jeu sous forme de bilans exposés dans Sun (2017). Ces bilans sont en volume (Sun 1), en salinité (Sun 2) et en énergie potentielle (Sun 3).
- 3) Utiliser les distributions de densité spécifiques au biseau et au panache interne.
- 4) Résoudre le système des 3 équations bilans à 3 inconnues ( $Q_{LS}, Q_M, \rho_M$ ).

Une grande partie de la méthodologie repose sur les travaux de développement et de revue de MacCready & Geyer (2009) qui fournissent des estimations simples des échanges dans les estuaires (longueur de la zone d'échanges et coefficients de diffusion). Il s'agit d'un travail préliminaire pour les box-model (Sun et al., 2017).

Le box-model de Sun et al. (2017) est une approche quasi complète pour décrire les systèmes estuariens mais montre ses limites pour le cas particulier des estuaires fortement stratifiés à biseaux salés, tel que le Rhône. Nous utiliserons une expression analytique pour décrire plus précisément la structure de la stratification, la surface d'échange et les volumes impliqués dans le box model. Par la suite, nous procédons à une modification sur la distribution de la densité pour étendre la solution de Sun et al. (2017) au cas particulier de ces estuaires fortement stratifiés.

#### IV.2.2. Prise en compte de la variabilité de la taille et de la structure de la boîte estuaire

##### IV.2.2.a. Structure simplifiée

Les parties de l'estuaire à représenter dans le modèle sont l'estuaire « intermédiaire » et « marin » ou ont lieu des échanges d'eaux et des mélanges. L'estuaire « fluvial » ne subit que la marée et ces variations de hauteur d'eau sont déjà prises en compte dans un modèle hydraulique 1D basé sur les équations de Barré Saint- Venant.

Pour un estuaire dominé par les échanges (MacCready and Geyer, 2009) la longueur  $L$  de l'estuaire s'écrit :

$$L = 0.024 \left( \frac{c^4}{\bar{u}} \right)^{1/3} \frac{H_0^2}{(K_S K_M^2)^{1/3}} \quad (\text{IV-3})$$

Où  $c$  est la vitesse maximum d'une « onde interne »  $c = \sqrt{g\beta S_{LS} H_0}$  et  $K_M$  et  $K_S$  sont respectivement les viscosités et diffusivité turbulentes verticales.  $\beta$  est le coefficient de contraction haline ( $\approx 7.7 \cdot 10^{-4}$ ) reliant densité et salinité par l'approximation de l'équation d'état :

$$\rho = \rho_0 (1 + \beta s) \quad (\text{IV-4})$$

L'équation III.3 montre ses limites pour les estuaires stratifiés, où la longueur de l'intrusion est dépendante des pentes ou des seuils (Poggioli and Horner-Devine, 2015).



Sun et al. (2017) compensent en ajoutant un coefficient d'ajustement  $a_1$  variant de deux ordres de grandeur (de 0,02 à 1,59).

Par ailleurs, pour les estuaires présentant une stratification, Sun et al. (2017) définissent les hauteurs du panache interne  $h_1$  et du biseau salé  $h_2$  par défaut comme étant égaux à la moitié de la profondeur  $H_0$  de l'estuaire. Toutefois, d'un point de vue théorique, l'épaisseur du panache interne du fleuve est sous-estimée à haut débit et surestimée à bas débits. Aussi, des estimations plus précises des dimensions de la boîte en amont sont nécessaires.

#### IV.2.2.b. Structure pour un estuaire fortement stratifié : two layer flow theory

La longueur du biseau salé est souvent approximable par des relations  $L=f(Q_r)$ , plus précisément,  $L \propto Q_r^{-n}$  ou  $n \in [2; 2,5]$  (W. R. Geyer and Ralston, 2012). Cependant, pour les estuaires présentant des seuils, des pentes de l'ordre de  $10^{-5}$  m/m ou supérieures, l'indice  $n$  est souvent inférieur à 1. Les régressions entre la longueur du coin salé et le débit du fleuve sont convaincantes d'après les auteurs (Ibañez et al., 1997), mais n'expliquent pas toujours la hauteur de la stratification.

Si l'on regarde une approche physique, les modèles canoniques de description du coin salé (Schijf & Schonfeld, 1953 ; Poggioli & Horner-Devine, 2015) appelés aussi « two-layer flow theory » (TLF) ont des hypothèses fortes. D'abord nous sommes dans l'approximation de la ligne rigide. C'est-à-dire que les déformations à l'interface ne se répercutent pas à la surface (Figure IV-2).

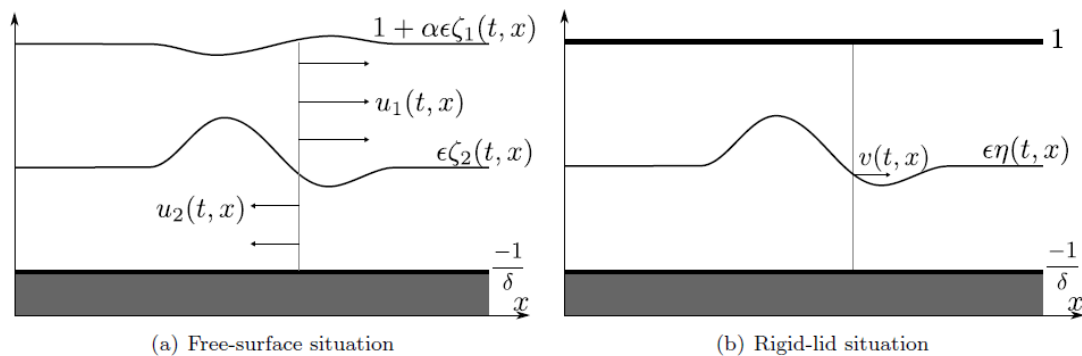


Figure IV-2: Illustration de l'approximation de la ligne rigide d'après Duchêne (2014).

Les effets de viscosité comme la friction et la turbulence sont représentés par des équations empiriques simples. La pression est hydrostatique, la pente de l'estuaire faible et la pycnocline fine. La vitesse et la densité sont uniformes dans le biseau et le panache. L'accélération verticale est négligeable. Les premières hypothèses sont classiques et vérifiées. L'hypothèse de la pycnocline fine illustre la viabilité de la « two layer flow theory » uniquement pour les estuaires fortement stratifiés. En effet, dans les estuaires fortement stratifiés, l'interface est fine, de l'ordre de 50 cm (Krvavica et al., 2016) car le gradient est très fort. Dans les estuaires semi-mélangés ce gradient s'émousse (Dyer, 1997) et donc l'épaisseur de l'interface s'allonge.

Ces solutions analytiques produisent des résultats assez fidèles à la réalité sur l'estuaire du Duwamish (Poggioli and Horner-Devine, 2015), Fraser (W. R. Geyer and Ralston, 2012) où l'estuaire de la Neretva (Krvavica and Ružić, 2020). Elles peuvent utiliser une géométrie plus ou moins complexe.

La description de ce type de système estuarien est présentée Figure IV-3.

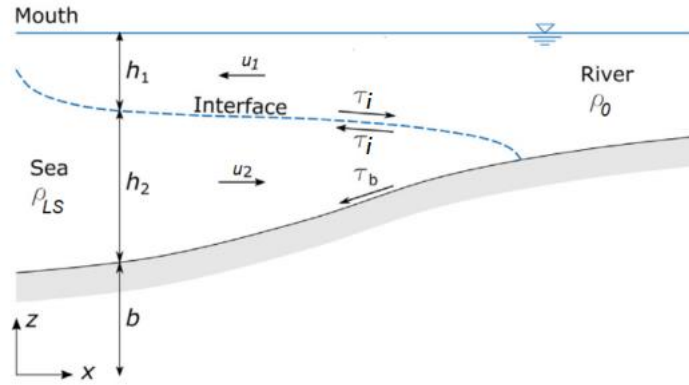


Figure IV-3: Section longitudinale caractéristique d'un estuaire à coin salé, adapté de Kravvavica et al. 2020.

Les premières équations de ce type pour l'intrusion du coin salé ont été posées par Schijf & Schonfeld (1953), pour un estuaire microtidal et prismatique (profondeurs et largeurs uniformes sur le linéaire) présentant un biseau salé. Le système d'une hauteur totale d'eau  $H_0$  est la somme de l'épaisseur  $h_1$  du panache interne et de l'épaisseur  $h_2$  du biseau salé. Le gradient de pression  $dp_2/dx$  dans le biseau est relié à sa pente (relative au plan horizontal) et au gradient de pression exercé par la couche d'eau douce s'écoulant au-dessus.

$$\frac{dp_2}{dx} = g\rho_{LS} \left( \alpha + \frac{dh_2}{dx} \right) + g\rho_0 \frac{dh_1}{dx} \quad (\text{IV-5})$$

Où  $\rho_0$  est la densité du fleuve,  $\rho_{LS}$  la densité de l'eau de mer et  $\alpha$  la pente. Le gradient de pression est positif vers l'amont. Un gradient de pression opposé est produit par la friction à l'interface entre les deux écoulements. La contrainte de cisaillement  $C_i$  à l'interface (CCCI) (interfacial shear stress coefficient) exercée par l'écoulement supérieur de la rivière sur le biseau est paramétrée comme :

$$\frac{\tau_i}{\rho_0} = C_i |u_1 - u_2| (u_1 - u_2) \quad (\text{IV-6})$$

ou  $u_1$  est la vitesse de l'écoulement dans le panache interne et  $u_2$  la vitesse d'écoulement dans le biseau salé.

L'intrusion du biseau salé est aussi influencée par la friction du fond. Le biseau étant considéré comme stationnaire la friction de fond ne se développe pas. L'écoulement de la rivière est confiné à la couche supérieure qui s'affine d'amont en aval. Cette réduction de section entraîne une augmentation de la vitesse.

La couche de surface est sujette à :

-un gradient de pression relié à la pente à la surface de l'eau relative au plan horizontal.

$$\frac{dp_1}{dx} = g\rho_0 \left( \alpha + \frac{dh_2}{dx} + \frac{dh_1}{dx} \right) \quad (\text{IV-7})$$

-La contrainte de cisaillement à l'interface :

$$\frac{dp_2}{p_2 dx} + \frac{\tau_i}{p h_2} = 0 \quad (\text{IV-8})$$

$$\frac{dp_1}{p_1 dx} + u_1 \frac{du_1}{dx} - \frac{\tau_i}{p h_1} = 0 \quad (\text{IV-9})$$

Le système est décrit par ces 4 équations couplées de continuité et de moments.

Puisque ces auteurs supposent un estuaire prismatique, la profondeur  $H_0$  et l'élévation du fond  $b$  ne varient pas le long du linéaire de l'estuaire tout comme la largeur de l'estuaire. En soustrayant (IV-5) et (IV-6)  $dh_2/dx$  et la pente  $\alpha$  sont éliminés. Sous l'approximation  $h_2 \approx H_0 - h_1$ , le terme  $u_1$  peut disparaître des équations en utilisant :  $h_1 u_1 = Q_r / b$  ou  $Q_r$  est le débit du fleuve.

En posant  $\varphi = h_1 / H_0$ ,  $\chi = C_f x / H_0$  et  $F_0$  le nombre de Froude de la rivière :

$$F_0 = \frac{Q_r}{H_0 w} \frac{1}{\sqrt{\frac{g H_0 (\rho_0 - \rho_{LS})}{\rho_0}}} \quad (\text{IV-10})$$

on obtient une équation différentielle non linéaire du premier ordre décrivant la position de l'interface le long du linéaire :

$$F_0 = \frac{Q_r}{H_0 w} \frac{1}{\sqrt{\frac{g H_0 (\rho_0 - \rho_{LS})}{\rho_0}}} \quad (\text{IV-11})$$

$$\frac{d\varphi}{d\chi} = \frac{F_0^2}{\varphi^3 - F_0^2} \left( \frac{1}{1 - \varphi} \right) \quad (\text{IV-12})$$

En intégrant sur la profondeur,

$$\chi = \int_{\varphi_1}^{\varphi_2} \left[ \frac{F_0^2}{\varphi^3 - F_0^2} \left( \frac{1}{1 - \varphi} \right) \right] d\varphi \quad (\text{IV-13})$$

Le fait de considérer qu'à l'embouchure l'écoulement du panache est critique (transition entre régime fluvial et torrentiel) (Schijf and Schonfeld, 1953), induit que :

$$\frac{u_1}{\sqrt{g \gamma h_1}} = 1 \quad (\text{IV-14})$$

$$\varphi_{mouth} = \frac{h_{1,mouth}}{H_0} = F_0^{2/3} \quad (\text{IV-15})$$

$$1 - \varphi_{mouth} = \frac{h_{2,mouth}}{H_0} = 1 - F_0^{\frac{2}{3}} \quad (IV-16)$$

A l'extrémité du biseau  $h_1/H_0=1$  et donc,  $\varphi_{upstream}$

En intégrant (IV-12) à ces deux conditions aux limites  $\varphi_{mouth}$  et  $\varphi_{upstream}$ , on obtient analytiquement la longueur de l'intrusion salée (Schijf and Schonfeld, 1953) :

$$L(H_0, C_i, F_0) = \frac{H_0}{20C_i} \left( 15F_0^{\frac{2}{3}} - 6F_0^{\frac{4}{3}} - 10 + F_0^{-2} \right) \quad (IV-17)$$

Par ailleurs, la forme du biseau, décrite par  $\varphi$  peut être retrouvée en reprenant l'équation (IV-12) en résolvant le polynôme en  $\varphi$  pour différentes valeurs de  $\chi \in [0 ; L(H_0, C_i, F_0)]$ . Cette équation (IV-17) n'utilise pas la pente du lit de fleuve. Hors, Poggioli & Horner-Devine (2015) ont montré que même une faible pente de l'ordre de  $10^{-5}$ m/m est susceptible d'influencer la forme du biseau salé. Il en ressort que l'équation (IV-17) risque de surestimer la longueur du coin salé, et c'est effectivement ce que nous avons observé en l'appliquant au cas du Rhône et des données de la littérature.

Une adaptation a été proposée en choisissant  $b$  variant avec  $x$  :  $b_0 = S_0 x$  (Krvavica and Ružić, 2020). L'équation (IV-12) devient :

$$\frac{d\varphi}{d\chi} = \frac{F_0^2}{\varphi^3 - F_0^2} \left( 1 + r \frac{\varphi}{1 - \frac{\chi S_0}{C_i} - \varphi} \right) \quad (IV-18)$$

Cette équation étant non linéaire pour  $\chi$  et  $\varphi$  elle ne possède pas de solution analytique et doit être intégrée numériquement. De cette équation on voit clairement que l'élément clef est le nombre de Froude  $F_0$ , fonction de la géométrie du canal et du régime de débit, il détermine la structure du coin salé.

Pour DRACAR, on peut maintenant améliorer cette solution analytique dans le cas d'un linéaire avec un changement marqué sur sa section. Sachant que la section  $S$  est décrite par  $S = H_0 w$  et en considérant que la différence de densité moyenne entre le panache et le biseau ainsi que la hauteur d'eau sont indépendants du régime de débit, on peut écrire :

$$F_0 = Q_r f r \quad (IV-19)$$

$$\text{avec } f r = \frac{1}{S \sqrt{\frac{g H_0 (\rho_0 - \rho_L S)}{\rho_0}}}$$

En considérant le gradient de densité et la hauteur d'eau constants pour les bas débits, le groupement de termes  $f r$  est uniquement dépendant de la géométrie du fleuve. Il est possible de décrire l'évolution de  $f r$ , et donc de  $F_0$  d'après (IV-19) d'amont en aval en fonction de  $\chi$ .

Dans la continuité de (Poggioli & Horner-Devine, 2015; Krvavica & Ružić, 2020), l'équation (IV-18) devient :

$$\frac{d\varphi}{d\chi} = \frac{F(\chi)_0^2}{\varphi^3 - F(\chi)_0^2} \left( 1 + r \frac{\varphi}{1 - \frac{\chi S_0}{C_i} - \varphi} \right) \quad (\text{IV-20})$$

La structure du coin salé obtenue dimensionnera le box-model.

Cette approche est à mettre en parallèle de celle de (Krvavica et al., 2016). Ces auteurs ont utilisé leurs données de terrain puis appliqué le théorème de Knudsen (1900) pour résoudre la structure du coin salé, tandis qu'ici nous cherchons à définir la structure du coin salé de manière simplifiée pour décrire ensuite plus précisément les échanges dans le modèle.

#### IV.2.3. Représentation de la distribution de la densité

Dans ce chapitre on va raisonner en densité mais ce raisonnement peut être étendu à la salinité. Pour les estuaires présentant une stratification il est nécessaire de paramétrer la diffusion turbulente verticale et la diffusion par entrainement. L'intégration des équations de bilans de salinité sur la profondeur et la longueur de l'estuaire nécessite d'avoir une connaissance « a priori » de la structure de salinité des différentes couches avant résolution du box-model.

MacCready (2004) dans sa théorie unifiée démontre que la structure de la salinité moyenne dans l'estuaire peut être linéaire, de  $\rho_0$  au début de l'estuaire à  $\rho_M$  ( $0 < \rho_M < \rho_{LS}$ ) à l'embouchure pour les estuaires stratifiés (solution de Chatwin, 1976), ou exponentielle de  $\rho_0$  à  $\rho_{LS}$  à l'embouchure pour les estuaires purement diffusifs. La structure de salinité d'un estuaire idéal ( $w$  et  $H_0$  fixes) pour chacun de ces cas est présentée Figure IV-4.

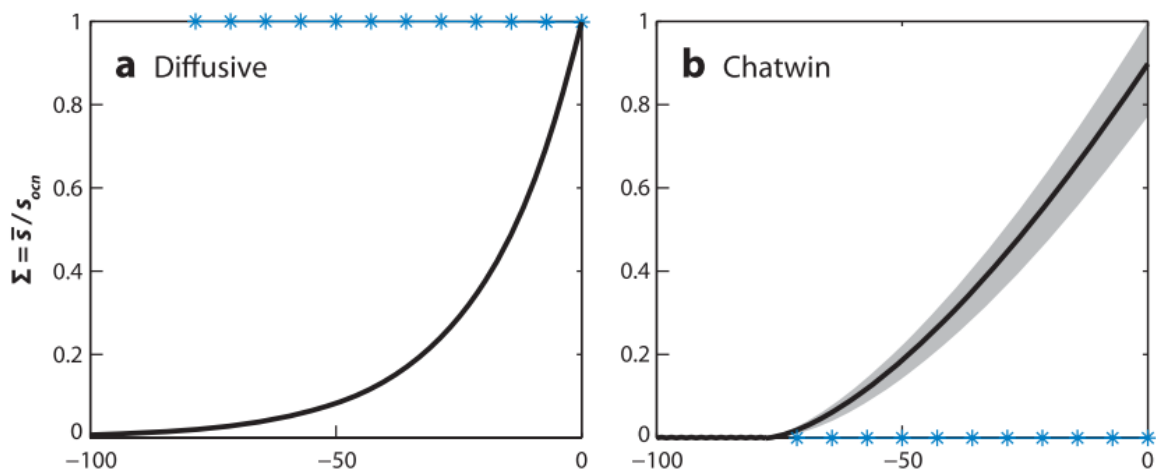


Figure IV-4: Structure de salinité (Salinité moyenne/Salinité de l'océan) de l'amont de l'estuaire à l'embouchure. L'axe des abscisses représente une distance hypothétique en amont de l'embouchure (0). L'axe des ordonnées représente  $\Sigma$  la salinité moyennée sur la vertical adimensionnée par la salinité de la mer dans le cas de la courbe noire ou la fraction d'échange diffusif dans le cas de la courbe bleue. A gauche solution pour un estuaire purement diffusif. A droite solution pour un estuaire avec pur entrainement. D'après (MacCready and Geyer, 2009).

Dans la pratique, les estuaires, notamment ceux semi-mélangés sont souvent un mélange des deux solutions avec en plus la bathymétrie générant parfois des turbulences locales ou des effets seuils (Peters, 1999).

Pour les estuaires présentant une stratification, une simplification courante est de considérer que la salinité varie linéairement avec la longueur de l'estuaire (Garvine 1992 ; Ralston & Geyer, 2019). Les box-model utilisent souvent la simplification linéaire (Rice et al., 2008 ; Sun et al., 2017) souvent observée in situ (Legović et al., 1994). C'est aussi la plus simple à intégrer.

Toutefois, des différences existent entre les deux approches de Rice et al. (2008) et Sun et al. (2017) pour la distribution de densité comme le montre la Figure IV-5.

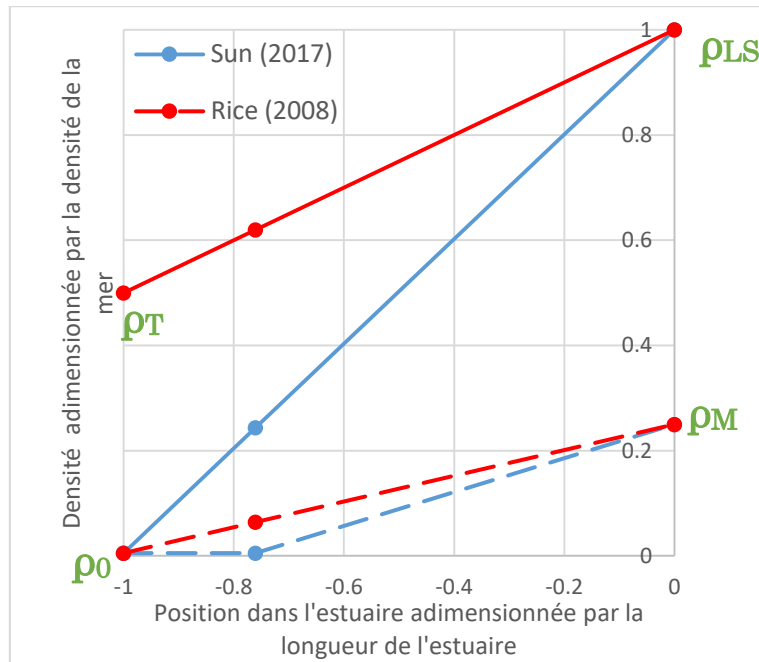


Figure IV-5 : Distributions de densité théoriques adimensionnées (dans l'exemple  $\rho_M=1/4 \rho_{LS}$  et  $\rho_T=1/2 \rho_{LS}$ ) pour deux box model estuariens différents et dans leurs deux compartiments respectifs. Les traits pleins correspondent aux distributions dans les biseaux salés, les traits pointillés correspondent aux distributions dans les panaches internes. Le point d'abscisse zero correspond à l'embouchure.

Rice et al. (2008) définissent la densité dans le panache interne comme croissante linéairement de  $\rho_0$  à  $\rho_M$  du début de l'estuaire à l'embouchure, tandis que pour le biseau elle est croissante linéairement de  $\rho_t$  à  $\rho_{LS}$  où  $\rho_t$  est une salinité au pied de l'intrusion  $\rho_0 \leq \rho_t < \rho_{LS}$ .

Sun et al. (2017), se basent sur les simplifications analytiques de (MacCready, 1999) et définissent la différence de densité entre les deux strates comme constante de l'embouchure jusqu'à un point P défini par  $\frac{\rho_M - \rho_0}{\rho_{LS} - \rho_0} L$ . Chez ces auteurs, la densité du panache interne est celle de la rivière  $\rho_0$  jusqu'au point P puis elle croit jusqu'à  $\rho_M$  à l'embouchure. Dans le biseau, la densité croit de  $\rho_0$  à  $\rho_{LS}$  à l'embouchure. Cette distribution de densité de Sun et al. (2017) est discutable dans les deux compartiments du box-model pour des estuaires stratifiés.

- Pour le panache supérieur, la salinité diverge de 0 dès lors que le coin salé est présent. En effet, la géométrie abrupte du coin salé à son extrémité amont le rend plus «érodable» et donc l'entraînement est globalement plus intense en ce point et amène déjà une quantité significative d'eau salée au panache supérieur. Ceci est

observé sur les estuaires méditerranéens comme l'Ebre (Ibañez et al., 1997), la Krka (Legović et al., 1994) ou le Rhône (Thill et al., 2001).

- Dans un estuaire stratifié, le principal mécanisme d'échange est l'entraînement, qui ne dilue pas le biseau salé (Dyer, 1997). Dès lors, la salinité dans le biseau peut être proche ou égale à la salinité de la mer même dans les derniers kilomètres du biseau.

En effet, dans ses campagne sur l'Ebre, un estuaire fortement stratifié de type biseau salé, Ibañez et al., (1997) montrent que la salinité dans le biseau ne varie pas le long des 15 km. De même dans l'estuaire de la Krka (Legović et al., 1994 ; Cindrić et al., 2015) le biseau demeure à la salinité maximale même à 25 km des côtes. Enfin Thill et al. (2006) montrent une salinité toujours supérieur à 30 sur le biseau salé lorsque celui-ci est épais d'au moins un mètre.

De ces observations, il apparait que les distributions de salinité proposées par Rice et al., (2008) moyennant un paramètre supplémentaire, la densité à l'extrémité amont du biseau salé  $\rho_T$ , sont plus exhaustives que celles proposées par (Sun et al., 2017).

#### IV.2.4. Proposition d'un box-model adapté dans DRACAR

La structure du coin salé obtenue par les équations présentées IV.2.2 est utilisée pour fournir un box-model de longueur  $L$  (distance de l'embouchure jusqu'à disparition du coin salé), une largeur  $W$  et hauteurs  $h_1$  et  $h_2$  moyennées sur la longueur du coin salé.

L'insertion de DRACAR dans la stratégie de couplage des modèles STERNE et CASTEAUR et la description de la géométrie et des échanges de sa boîte sont présentés en Figure IV-6. Les lignes pointillées représentent les interfaces où ont lieu les échanges d'eau et de sel. Débits et salinités sont représentés par les flèches aux limites fluviales et marines. La diffusion turbulente sous toutes ses formes est représentée par les flèches couplées. L'entraînement, qui est un « one way process » est représenté par une unique flèche. Le « tidal pumping » est représenté par la flèche horizontale bleue. Le gradient de couleurs représente les variations de salinité du fleuve (nuances claires) à la mer (nuances plus sombres).

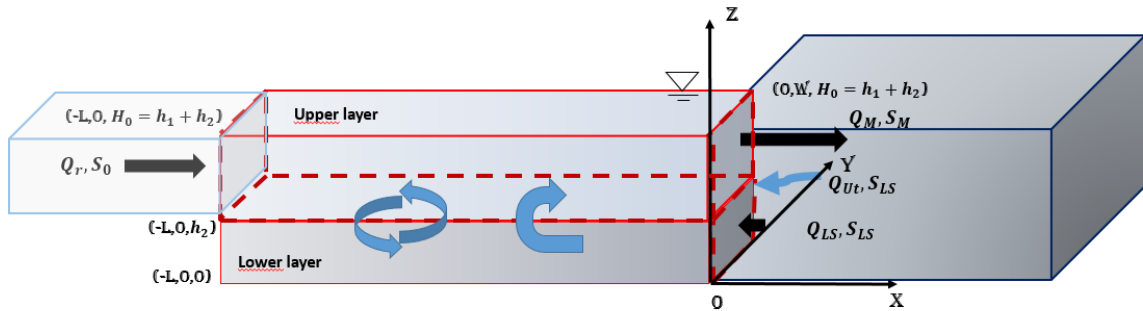
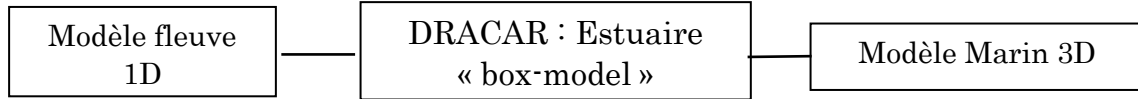


Figure IV-6: Gestion de la modélisation du continuum fleuve-mer centré sur l'estuaire « box-model » défini sur l'espace  $(x,y,z)$  par une longueur  $L$ , largeur  $W$ , et profondeurs  $h_1$  et  $h_2$  variables selon les conditions hydrologiques. Voir texte pour description des échanges.

Les 3 équations de bilans établies par Sun et al., (2017) après intégration verticale et horizontale sur l'estuaire des équations de continuité de mouvement doivent être adaptées à nos notations. Elles s'écrivent :

- Bilan volume d'eau :

$$Q_M + Q_{LS} - Q_r = 0 \quad (\text{Sun.1})$$

Où  $Q_{LS}$  est négatif et donc l'équation est identique à l'équation (IV-1) en introduction.

- Bilan masse de sel :

On retrouve ici aussi le bilan de sel de l'équation en introduction à l'exception que le terme à droite représente l'ajout d'eau salé apporté par le « tidal pumping ». Sun et al., (2017) à la suite de MacCready (2004) paramètre la diffusivité horizontale à l'embouchure à l'aide du concept de tidal pumping.

$$\rho_{LS}Q_{LS} + \rho_M Q_M - \rho_0 Q_r = (\rho_{LS} - \rho_M) a_0 a_t \frac{Q_{Ut}}{2} \quad (\text{Sun.2})$$

Où  $Q_{Ut}$  est le débit d'eau rentrant par tidal pumping (=0)

$$Q_{Ut} = 2 \frac{U_t}{\pi} W h_1 \quad (\text{IV-21})$$

$a_t$  un facteur géométrique correspondant à l'aire non chevauchante entre les jets de flux et reflux dus à la marée à l'embouchure et la zone d'influence de la marée.  $a_0$  est un paramètre de calibration.



- Bilan d'énergie potentielle:

$$\frac{1}{2}g\rho_{LS}Q_{LS}h_2 + \frac{1}{2}g(\rho_M Q_M - \rho_0 Q_T)(H_0 + h_2) = \frac{1}{4}a_0 a_t g(\rho_{LS} - \rho_M)Q_{Ut}(H_0 + h_2) + K_v g W \int_{-L}^0 [\rho_{LL}(X) - \rho_{UL}(X)]dx - \frac{1}{2L}gQ_{LS} \left[ h_1 \int_{-L}^0 \rho_{UL}(X)dx + h_2 \int_{-L}^0 \rho_{LL}(X)dx \right] \quad (\text{Sun.3})$$

Dans cette équation, les termes de gauche représentent l'advection de l'énergie potentielle due aux flux horizontaux entrants ou sortants de l'estuaire. Le premier terme du membre de droite est le tidal pumping paramétrée comme étant de la diffusion horizontale à l'embouchure sur le panache interne. Le second terme est la diffusion turbulente d'énergie potentielle entre le biseau et le panache ou  $K_v$  est un coefficient de diffusion uniforme sur la verticale. Enfin, le dernier terme correspond à l'apport d'énergie potentielle par entrainement. Cette équation bilan est à même de retranscrire les principaux processus dans la grande majorité des estuaires.

A partir d'ici nous étendons la théorie pour le cas des estuaires fortement stratifiés comme le Rhône en apportant 2 changements.

- Les structures de densité  $\rho_{UL}(X)$  et  $\rho_{LS}(X)$  sont remplacées par celles de Rice et al. (2008) que nous avons établies comme étant plus générales au paragraphe précédent.

$$\int_{-L}^0 \rho_{UL}(X) = L((1-b)\rho_M + b\rho_0) \quad (\text{IV-22})$$

$$\int_{-L}^0 \rho_{LL}(X) = L((1-b)\rho_{LS} + b\rho_T) \quad (\text{IV-23})$$

Ou  $b$  est un facteur de forme qu'on prendra par défaut à 0.5 pour ne pas alourdir la solution mathématique.

- La longueur  $L$  de l'intrusion n'est pas décrite par la formule (I-3) qui est limitée pour les biseaux salés (cf IV.2.2.a). Elle est remplacée par la distance à l'embouchure à partir de laquelle  $h_2=0$  (disparition du biseau salé), tirée du modèle analytique coin salé précédent.

Avec ces deux changements, on peut injecter Sun.1, Sun.2, (IV-22) et (IV-23) dans Sun.3 de manière à faire disparaître les termes  $\rho_M$  et  $Q_M$ . On obtient un polynôme du second degré de la forme

$$k_2 Q_{LS}^2 + k_1 Q_{LS} + k_0 \quad (\text{IV-24})$$

$$\begin{aligned} k_2 &= 2((\rho_{LS} - \rho_0)H_0 - h_2(\rho_T - \rho_0)) \\ k_1 &= 4K_v W L(\rho_T - \rho_0) + ((\rho_0 - \rho_{LS})H_0 + (\rho_T - \rho_0)h_2)a_0 a_t Q_{ut} + 4Q_T((\rho_0 - \rho_{LS})H_0 + (2\rho_T + 2\rho_{LS} - 4\rho_0)h_2) \\ k_0 &= 2K_v L W(\rho_0 - \rho_T)a_0 a_t Q_{ut} + Q_T K_v L W(8\rho_0 - 4\rho_{LS} - 4\rho_T) \end{aligned} \quad (\text{IV-25})$$

Cette équation générale peut être utilisée pour décrire les échanges dans un estuaire stratifié ou semi mélangé (selon la valeur de  $\rho_T$  fixé) si la longueur l'excursion tidale  $L_T$  est inférieure à la longueur de l'intrusion salée.

Si  $\rho_T = \rho_0$  la salinité du biseau baisse d'aval en amont en raison de la diffusion turbulente apportant de l'eau douce au biseau. On est dans le cas général de Sun et al., (2017) pour un estuaire semi-mélangé à la différence que l'on considère que la salinité du panache interne diverge de 0 dès l'apparition du biseau salé.

Si  $\rho_T = \rho_{LS}$  la diffusion turbulente n'est pas suffisante pour apporter de l'eau douce au biseau et donc sa salinité reste approximativement celle qu'il avait à l'embouchure. Le processus dominant est l'entraînement. On est dans le cas d'un estuaire fortement stratifié.

Pour le Rhône, nous définirons *a priori* que  $\rho_T = \rho_{LS}$ , en se basant sur la théorie et les observations sur des estuaires similaires.

$\rho_{LS}$  et  $S_{LS}$  sont choisies comme la densité et salinité de la mer (ici 1,0287 et 38,8) mais on peut utiliser la salinité calculée par le modèle marin sur la maille en aval après l'embouchure.

### IV.3. Description des paramètres et calibration pour le Rhône

#### IV.3.1. Termes d'échange du box-model

##### IV.3.1.a. Vitesse des courants de marées

Une grande partie des termes d'échange sont dépendants des vitesses de courants de marée. Nous allons déterminer cette vitesse moyenne dans l'estuaire au préalable.

$U_t$  est la vitesse des courants de marées calculée par

$$U_t = \frac{\eta}{H_0} \sqrt{gH_0} \quad (\text{IV-26})$$

Où  $\eta$  est l'élévation du niveau de la mer due à la marée.

Les chroniques de variation de la hauteur d'eau à Barcarin et Grand Boisviel sont traitées sur la période de juillet à octobre 2017 par la commande « tides » du package « oce » (Kelley et al., 2020) qui fournit l'amplitude moyenne des marées. Les résultats sont affichés Figure IV-7 et Figure IV-8 directement produites par Rstudio. L'amplitude de la marée est de 30 cm à Barcarin et diminue à Grand Boisviel avec une amplitude de 25 cm. D'après le package, la composante principale  $M_2$  (période de 12,4 h) a une amplitude de  $\eta = 0.075$  m à Barcarin et à Grand Boisviel. En utilisant (IV-26), on trouve des courants de marée d'une vitesse de 0,085 m/s<sup>-1</sup>.

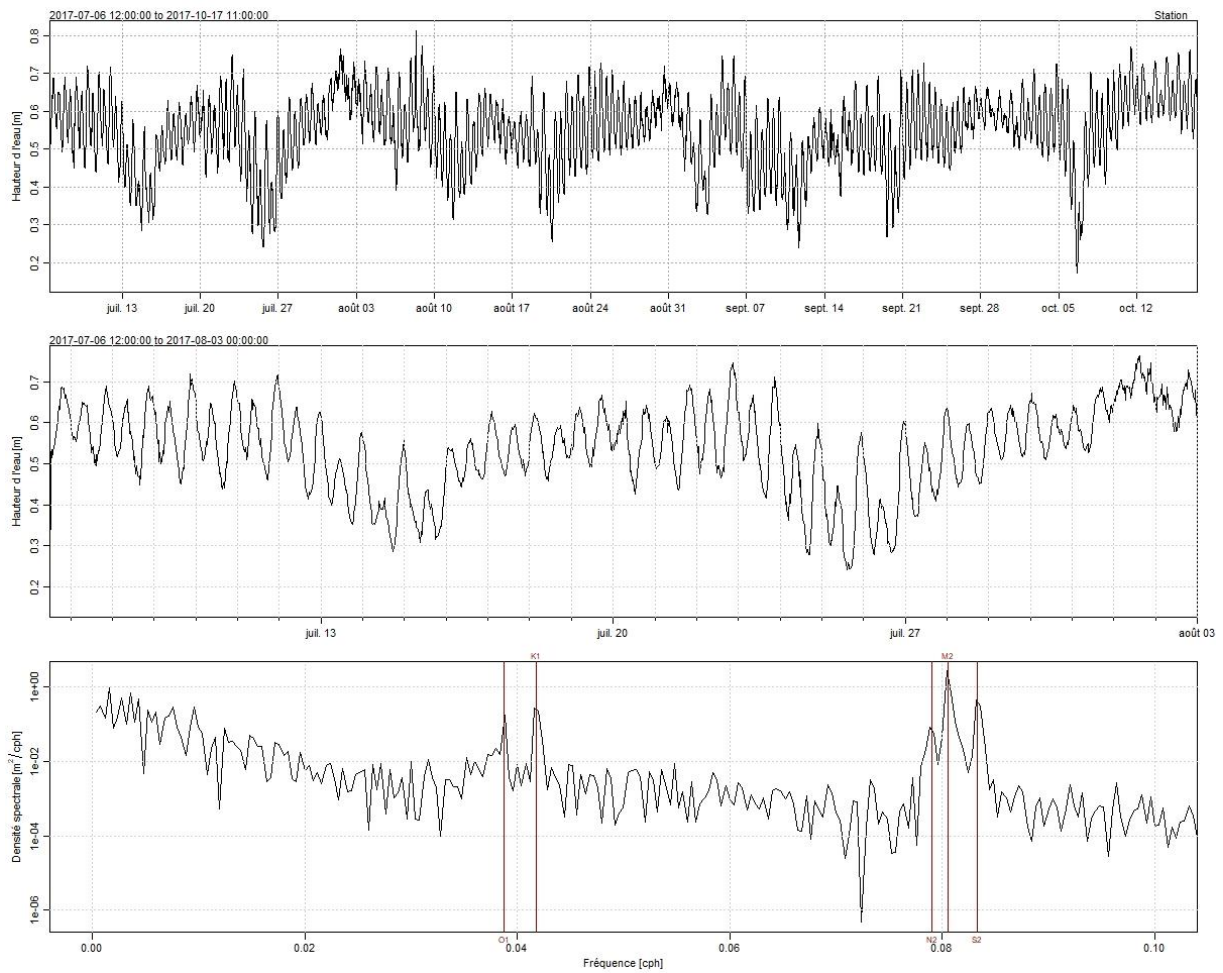


Figure IV-7: Variations de la hauteur d'eau à Barcarin et traitement des harmoniques de marée.

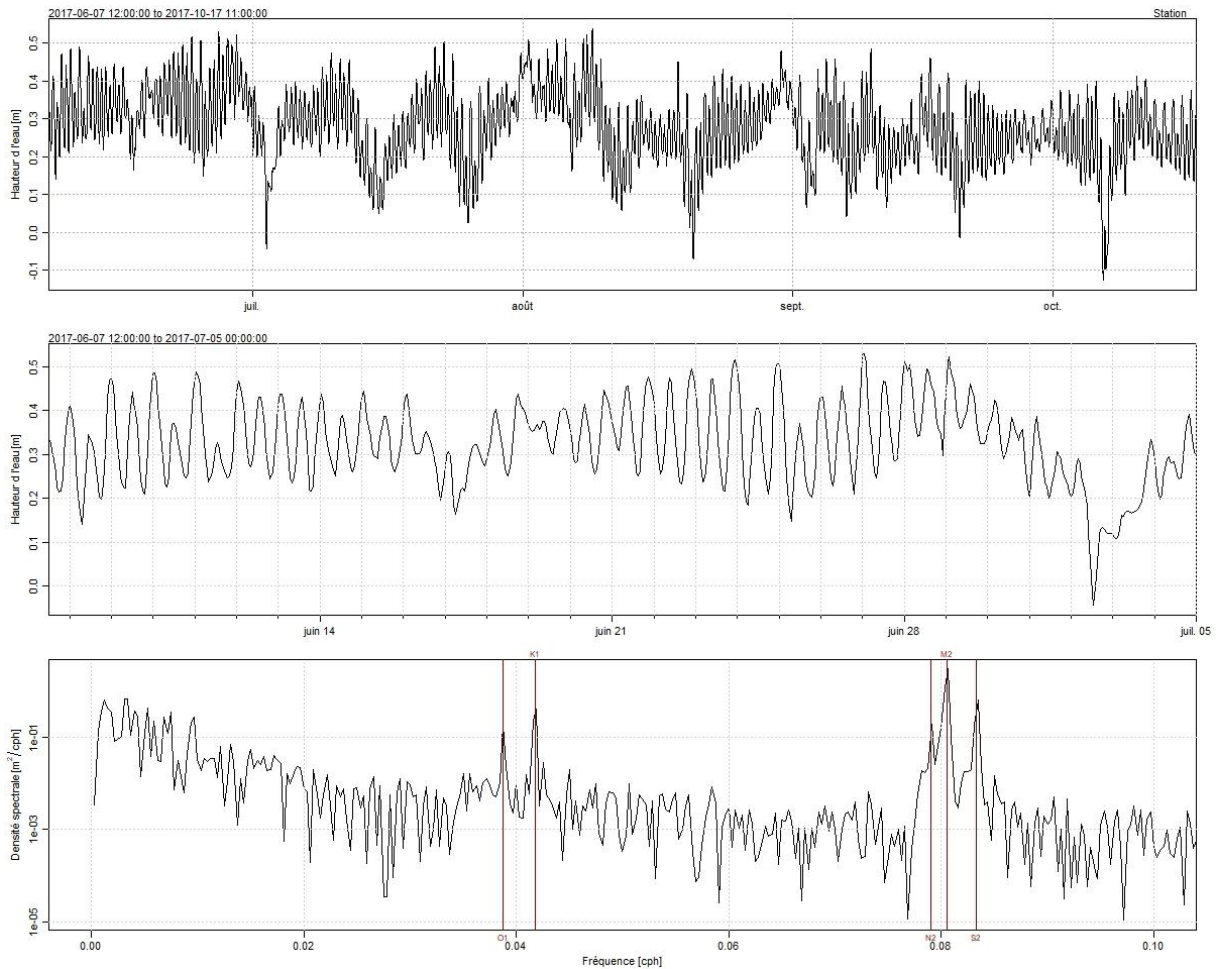


Figure IV-8 : Variations de la hauteur d'eau à Grand Boisviel et traitement des harmoniques de marée.

#### IV.3.1.b. Paramétrage du tidal pumping

Comme exposé en (IV-21), le débit apporté par le tidal pumping s'écrit :

$$Q_{Ut} = \frac{2}{\pi} U_t W(h_1)$$

Le sel apporté par le tidal pumping s'écrit :

$$(\rho_{LS} - \rho_M) a_0 a_t \frac{Q_{Ut}}{2} \quad (IV-27)$$

Et  $a_t$  est le rapport de superposition défini de la façon le plus simple par MacCready (2004) comme

$$a_t = 1 - \sqrt{\frac{2W}{\pi L_T}} \quad (IV-28)$$

$L_T$  est l'excursion tidale, pour la composante M2 elle s'écrit :

$$L_T = \frac{12.4 \times 3600}{\pi} U_t \quad (IV-29)$$

Le terme  $a_0$  est un paramètre de calibration. Comme nous ne disposons pas de données pour cette calibration, nous prendrons par défaut  $a_0=1$ , même si cette valeur peut surestimer ce phénomène selon (MacCready, 2007). Les courants de marée étant très faibles sur le Rhône l'impact du paramétrage de ce terme est de faible importance.

#### IV.3.1.c. Paramétrage de la diffusion turbulente verticale

Un dernier paramétrage est à faire sur  $K_v$  qui inclut la « viscosité verticale turbulente ». Ce coefficient dépend de  $K_M$  correspondant à la diffusion générée par les frottements sur le fond, et de la « diffusion verticale turbulente »  $K_S$  générée à l'interface (MacCready and Geyer, 2009).

$$K_v = (K_M^2 K_S)^{1/3} \quad (\text{IV-30})$$

Avec  $K_M = A_0 C_D U_t H'$  et  $K_S = \frac{K_M}{Sc}$  (Ralston et al., 2008)

$A_0$  est un paramètre de calibration souvent compris entre 0.024 et 0.065 (MacCready and Geyer, 2009).  $C_D$  est le « drag coefficient »,  $Sc$  est un nombre de Schmidt variant généralement entre 1,5 et 4,9. L'augmentation de  $Sc$  est croissante avec la stratification de l'estuaire (Ralston et al., 2008).

$H'$  est une estimation de l'épaisseur de la couche de fond à l'interface (« bottom boundary layer ») définie comme

$$H' = \min(H_0, H_0 \sqrt{\frac{R_{fc}}{Ri_x}}) \quad (\text{IV-31})$$

Où  $R_{fc}$  est le nombre de Richardson pour le flux et pris égal à 0.2 (MacCready and Geyer, 2009).  $Ri_x$  est un nombre de Richardson horizontal et mesure l'importance relative de la stratification par rapport au mélange (Monismith et al., 1996).

$$Ri_x = \frac{g\beta H_0^2 d\bar{S}}{c_D U_t^2 dx} \quad (\text{IV-32})$$

Le gradient  $d\bar{S}/dx$  est la variation de la salinité moyenne de l'estuaire selon  $x$ . Sachant que la salinité moyenne de l'estuaire est gouvernée par le coin salé, le gradient de salinité est proportionnel au gradient d'épaisseur du coin salé et donc en première approximation

$$\frac{d\bar{S}}{dx} \cong S_{LS} \frac{d\varphi}{dx} \quad (\text{IV-33})$$

Le gradient  $\frac{d\varphi}{dx}$  étant fourni par la « two-layer flow » (T.L.F) au préalable.

Pour les estuaires ayant une stratification plus faible, cette approximation du « bottom boundary layer »,  $H'$  devient plus grossière. Néanmoins, la diffusion turbulente étant potentiellement plus forte dans ces estuaires,  $Ri_x$  est plus faible et donc d'après (IV-31),  $H'$  est souvent égal à la profondeur totale de l'estuaire (W. Rockwell Geyer and MacCready, 2014).

En définissant  $C_D$  pour des estuaires peu profonds avec la formule de Cheezy Manning :

$$C_D = \frac{gn^2}{\sqrt[3]{H_0}} \quad (\text{IV-34})$$

Ou  $n$  est le coefficient de Manning égal en moyenne à  $1/37 \approx 0.27$  d'après les données du modèle hydraulique MAGE fluvial d'INRAE sur l'estuaire du Rhône jusqu'au PK 323. A titre de comparaison, (Boudet, 2017) utilise  $n=0.25$  sur l'estuaire du Rhône avec Delft3D.

Pour une profondeur moyenne du Rhône  $H_0$  de 6.22 m (calculé d'après des données bathymétrique fournies par INRAE),  $C_D$  prend une valeur de  $4.10^{-3}$ , supérieure au coefficient de  $2,6.10^{-3}$  de Ralston et al., (2008) sur l'estuaire de l'Hudson qui est plus profond.

Cette prise en compte de la potentielle superposition de la couche limite de fond avec l'interface a pour effet de faire croître la diffusion verticale paramétrée par Ralston et al., (2008) en fonction de  $H_0^{2/3}$  au lieu de  $H_0$  dans les estuaires peu profonds.

En prenant les valeurs les plus utilisées  $Sc=2,2$  et  $A_0=0,028$  on obtient  $K_V$  compris entre  $1,5$  et  $8,10^{-6}$   $m^2/s$  selon les conditions de débits. Cette valeur est de deux ordres de grandeur inférieure aux valeurs observées avec ce paramétrage dans d'autres études. Néanmoins, cet ordre de grandeur pour le coefficient de diffusion se retrouve dans (MacCready et al., 2009) dans un modèle numérique de l'estuaire de la Columbia lui aussi très stratifié. Ce résultat est une confirmation de la faible influence de la diffusion turbulente dans l'estuaire du Rhône, et donc d'une dilution quasi inexistante du biseau. Il justifie le choix de  $\rho_T = \rho_{LS}$  du paragraphe IV.2.4.

### IV.3.2. Structure du box-model DRACAR

#### IV.3.2.a. Nombre de Froude

Comme établi en IV.2.2.b, il est possible d'améliorer la précision de l'équation (IV-18) en introduisant une fonction décrivant le nombre de Froude en fonction de  $x$ , la distance à l'embouchure.

Les sections  $S_i$  et profondeurs  $H_i$  sont celles utilisées pour le modèle MAGE ADIS TS jusqu'au PK 323 (Launay et al., 2019). Ensuite, les 7 km restants proviennent des relevés bathymétriques acquis par multifaisceaux en 2012-2013 (pour le CEREGE dans le cadre de l'OSR).

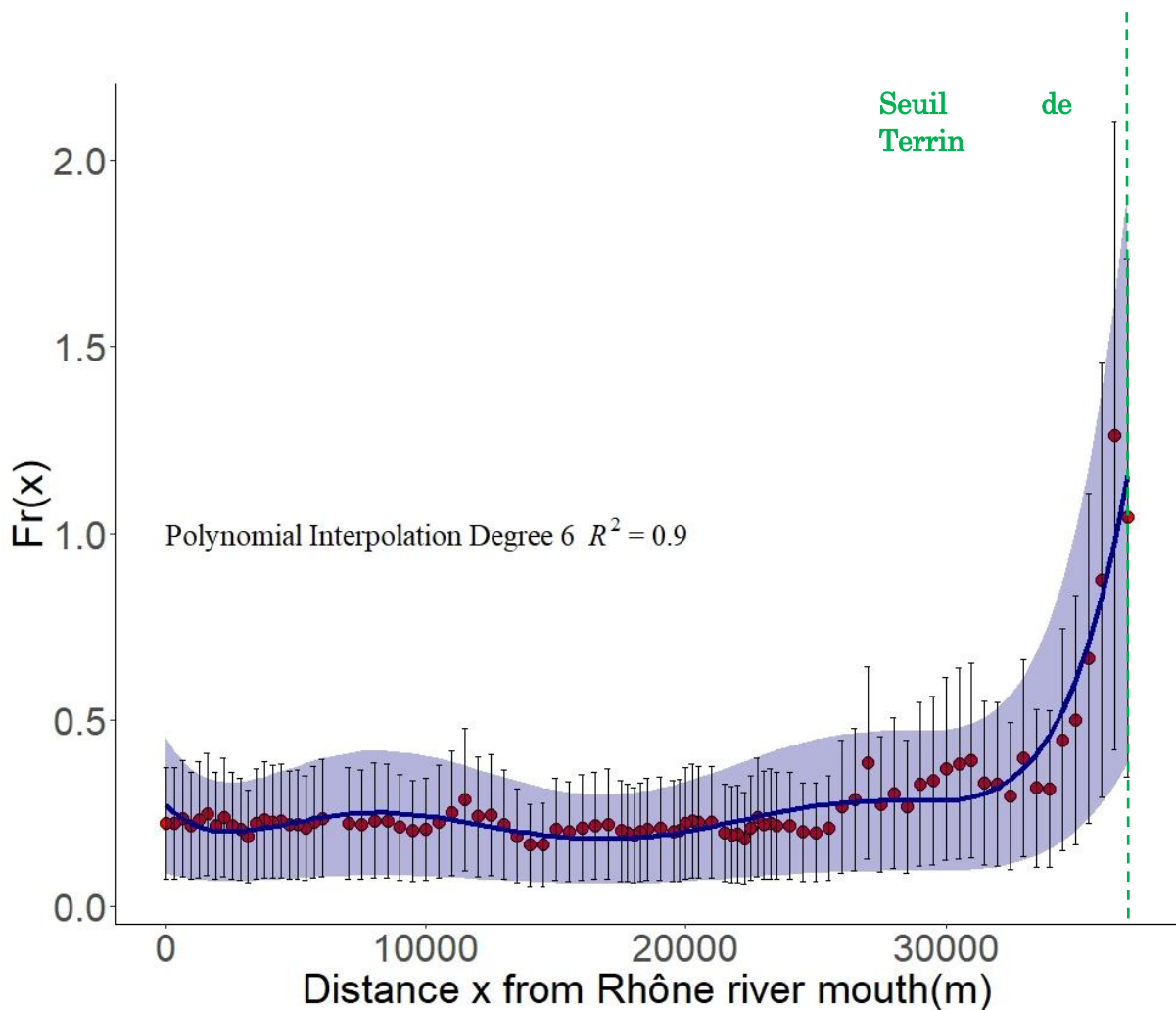


Figure IV-9: Gamme théorique des nombres de Froude selon la formule (IV-19) sur le linéaire du Rhône entre 300 et 1500 m<sup>3</sup>/s (points rouges et barres d'erreur) et interpolation polynomiale pour le même intervalle

Une interpolation polynomiale de degrés 6 décrit les grandes tendances de l'évolution de l'écoulement dû à la morphologie du linéaire du Rhône dans ses 35 derniers km. En aval du seuil de Terrin (PK 294.5), point le plus à droite sur Figure IV-9, la section du fleuve s'élargit car la profondeur et la largeur du fleuve augmentent vers l'embouchure, et donc en conséquence le nombre de Froude diminue.

On constate que dans les conditions de bas débit du Rhône ( $Q_r \in [350 ; 1500]$ ) (Laurie Boudet, 2017), le nombre de Froude est inférieur à 1 en aval du seuil de Terrin. Cela signifie qu'aucun rétrécissement de la section sur cette portion du Rhône n'est suffisant pour changer son régime d'écoulement pour cette gamme de débit, et que le contrôle hydraulique s'exerce bien à l'embouchure conformément à l'hypothèse de la théorie « Two-layer Flow » (Poggioli and Horner-Devine, 2015).

#### IV.3.2.b. Résolution

D'après le paragraphe précédent, la première condition aux limites est bien à l'embouchure ou  $\varphi_{mouth} = \frac{h_{1,mouth}}{H_0} = F_0^{2/3}$ .

Dans notre exemple, calculer  $F_0$  à partir de la géométrie à l'embouchure et non pas la géométrie moyenne de l'estuaire augmente la précision des résultats. Verri et al. (2021) ont aussi mis en évidence la géométrie de l'embouchure comme une variable importante dans la résolution des box-model dans des environnements stratifiés.

La seconde condition aux limites est le point de disparition du coin salé ou  $\varphi_{amont} = 1$

L'équation (IV-20) est résolue numériquement en utilisant une résolution de Runge-Kutta du quatrième ordre (Carpenter et al., 2005) en utilisant la commande « runge.kutta » du package Rrmutil (Swihart and Lindsey, 2020). La longueur du coin salé est la longueur à partir de laquelle  $\varphi=0$  (uniquement de l'eau douce sur la colonne d'eau).

#### IV.3.2.a. Calibration

La calibration s'effectue généralement en balayant les intervalles  $I_n$  de valeurs des  $n$  variables concernées et en sélectionnant l'erreur quadratique moyenne la plus basse (Poggioli and Horner-Devine, 2015)(Krvavica et al., 2016). Cette procédure peut être coûteuse en temps de calcul car il est proportionnel à la taille du jeu de donnée de calibration à la puissance du nombre de variables testées.

Le premier coefficient à calibrer est  $C_i$ , la contrainte de cisaillement à l'interface. Dans la littérature, (Poggioli & Horner-Devine, 2015; Krvavica et al., 2016) ont testé des gammes de valeurs larges allant de  $10^{-6}$  ou  $10^{-5}$  jusqu'à  $10^{-2}$ , la meilleure valeur étant  $4.10^{-4}$ . Habituellement  $C_i$  est de l'ordre de  $10^{-4}$  sur des campagnes in-situ (Sorgard et al., 1990 ; Krvavica et al., 2016) où les nombre de Reynolds sont de l'ordre de  $10^6$ . Des valeurs plus élevées de  $10^{-3}$  à  $10^{-2}$  sont parfois observées mais généralement en laboratoire (Arita et al., 1988). Ces considérations nous motivent à réduire l'intervalle pour le coefficient de friction à  $[1,10^{-4}; 1,10^{-3}]$  en se déplaçant de  $1,10^{-4}$ .

La pente moyenne de l'estuaire  $S_i$  est testée sur l'intervalle  $[1,10^{-5}; 4,10^{-4}]$  qui correspond aux valeurs de pente rencontrées en Rhône aval. Les données de calibration sont les longueurs du coin salé et la profondeur de l'interface à 7 km de l'embouchure des publications de Ibañez et al., (1997) et Levasseur & Doutriaux, (1992) lorsque le débit à Arles des 48 h précédant les observations est disponible. Le choix d'utiliser le débit à Arles plutôt qu'à Beaucaire se justifie car plus proche de la mer et car c'est le point de référence pour la plupart des études et là où le plus grand nombre de données sont disponibles.

Les résultats des tests de calibration sont présentés en Figure IV-10 et Figure IV-11.



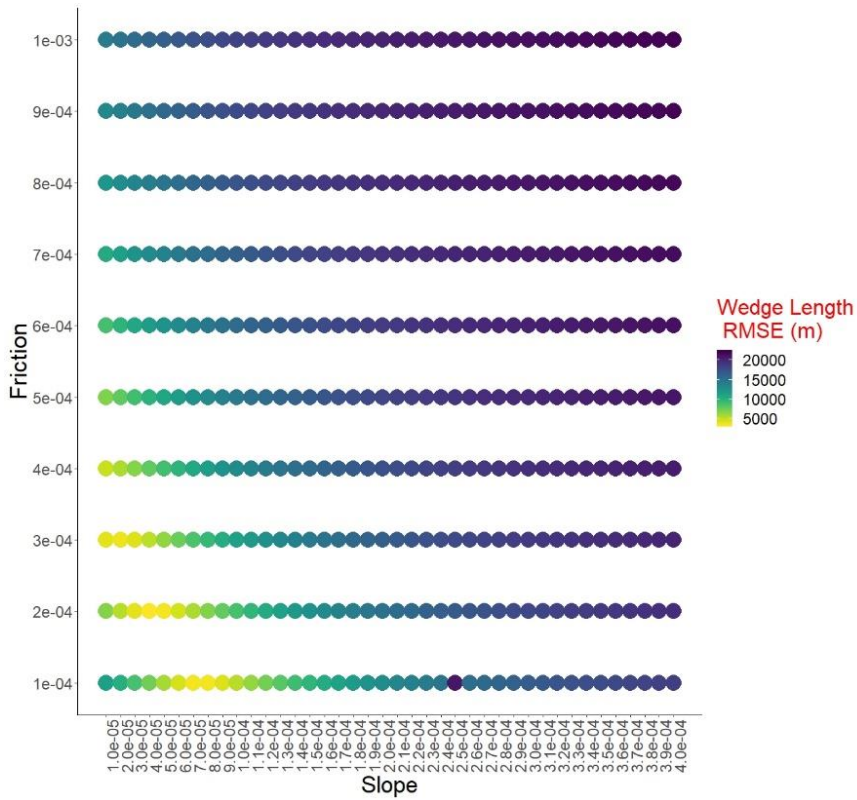


Figure IV-10: Erreur quadratique moyenne sur la longueur du coin salé en fonction des paramètres de friction et de pente

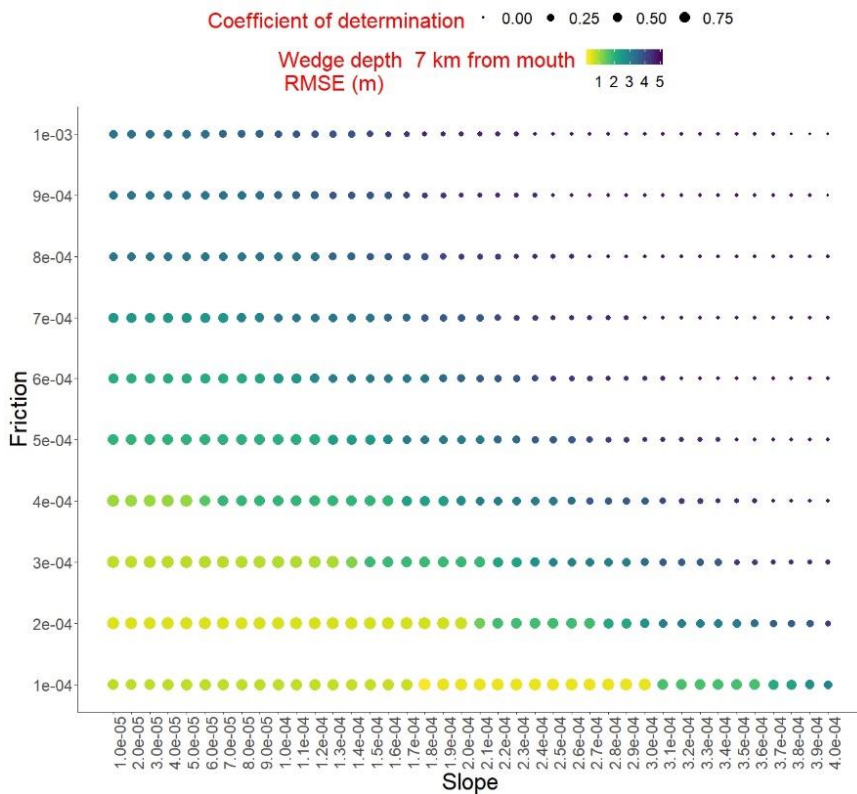


Figure IV-11 : Erreur quadratique moyenne sur la profondeur du coin salé à 7 km de l'embouchure en fonction des paramètres de friction et de pente

L'intervalle de calibration choisi est correct et l'erreur pour les deux paramètres est minimisée pour des valeurs basses de  $C_i$  et  $S_l$ .

Néanmoins, le couple  $C_i$  et  $S_l$  minimisant l'erreur sur la longueur est différent du couple  $C_i$  et  $S_l$  minimisant l'erreur sur la profondeur. On cherchera en priorité à minimiser l'erreur sur la longueur car :

- D'après la Figure IV-11, l'erreur sur la profondeur est déjà inférieure à 1 m pour beaucoup de couples  $(C_i, S_l)$  y compris celui minimisant l'erreur sur la longueur. Ces 1 m d'erreur sont à relativiser compte tenu de l'amplitude de la variation de la hauteur d'eau de 40 cm présentée en Figure IV-7 et Figure IV-8 et qui n'est pas quantifiée dans le modèle ainsi que l'incertitude de mesure sur la profondeur de l'interface.
- Une erreur sur la longueur mène à une erreur d'un ordre de grandeur plus importante sur le volume de l'estuaire qu'une erreur sur la profondeur.

Un second run plus précis sur les intervalles  $C_i \in [1,10^{-4}; 2,10^{-4}]$  et  $S_l \in [3,10^{-5}; 5,10^{-5}]$  est effectué pour optimiser le résultat.

Finalement, les valeurs retenues sont  $C_i=1,7 \times 10^{-4}$  et  $S_l=5,10^{-5}$ .

Ces valeurs de coefficients de cisaillement sont dans la moyenne de celles observées dans la littérature et à comparer à celle de  $8.10^{-4}$  sur le Rhône sur un modèle similaire (Levasseur and Doutriaux, 1992).

Les valeurs de pente dans l'estuaire du Rhône sont là aussi réalistes et proches des pentes des biefs Casteaur après Arles d'une valeur moyenne de  $3.5 \times 10^{-5}$  m/m. Ce couple  $(C_i, S_l)$  présente une erreur quadratique moyenne de 3216 mètres pour la longueur et de 50 cm pour la profondeur. La droite de calibration et le goodness of fit sont présentés en Figure IV-12. Le coefficient de détermination ( $R^2$ ) est de 0.84 pour les longueurs et de 0.94 pour la profondeur de l'interface. On peut comparer nos résultats à ceux obtenus par l'approche d'Ibañez et al. (1997) utilisant  $L=f(Q_r)$ . On prend pour ceci les débits des 48 dernières heures à Arles, notre point de référence amont. Avec cette approche, les coefficients de détermination sont de 0.81 pour la longueur et 0.79 pour la profondeur de l'interface à 7 km de l'embouchure inférieure aux coefficients de DRACAR.

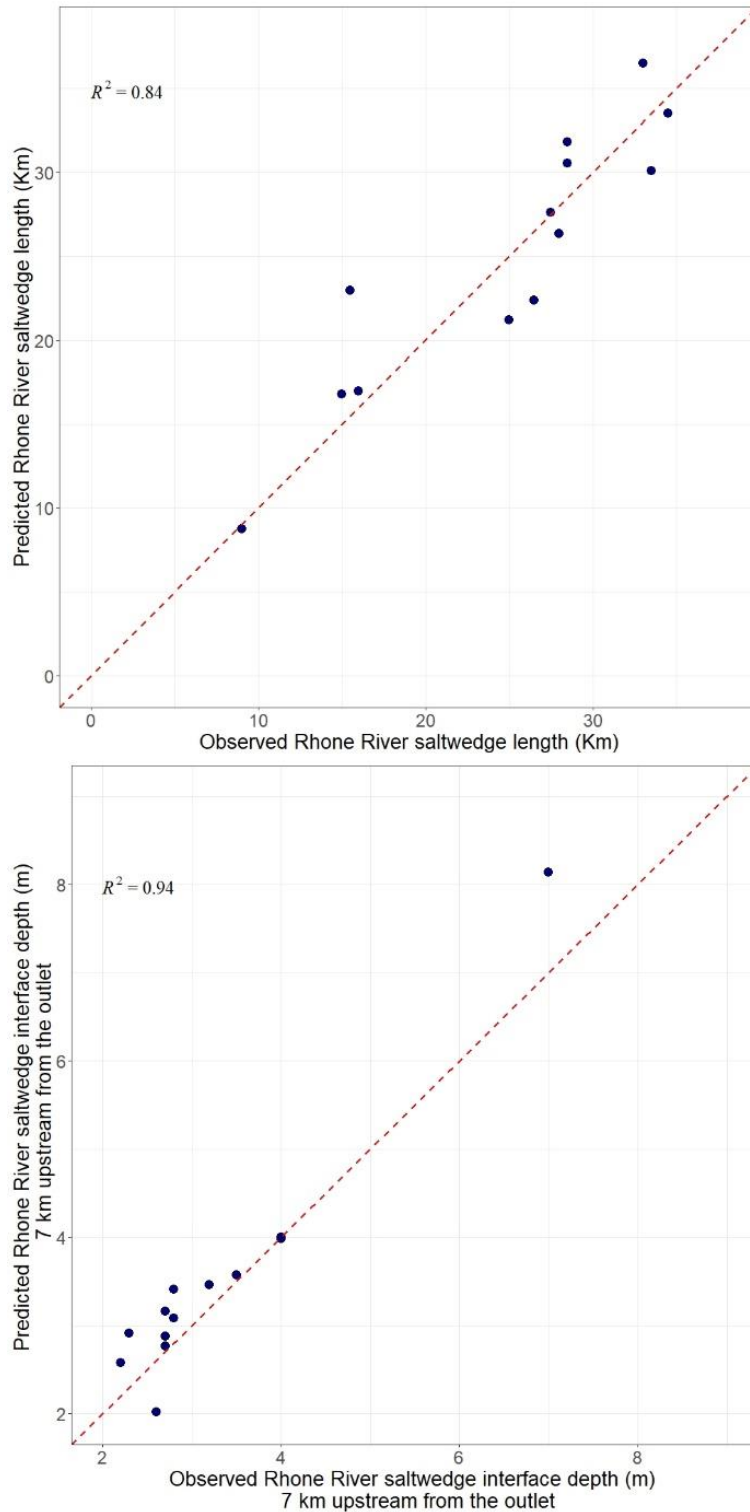


Figure IV-12 : Courbe de calibration entre les résultats du modèle du coin salé issu de la "two layer flow theory" sur le Rhône et avec les observations (Ibanez et al, (1997) Levasseur & Doutriaux, (1992)). Résultats sur la longueur du coin salé en haut résultats sur la profondeur de l'interface à 7 km de l'embouchure en bas.

L'avancée du coin salé en fonction du débit des 48 dernières heures en Arles calculé par le modèle est présentée Figure IV-13. On retrouve la partie linéaire de la courbe similaire à la droite de régression d'(Ibañez et al., 1997) jusqu'à des débits de  $1250 \text{ m}^3/\text{s}$ . En deçà la longueur du coin salé diminue moins vite contrairement à la régression linéaire. Ainsi, le coin salé remonte encore sur théoriquement 5 km à  $1500 \text{ m}^3/\text{s}$  là où les régressions linéaires  $L=f(Q_r)$  comme celle de la Figure II-5 indiquent sa disparition.

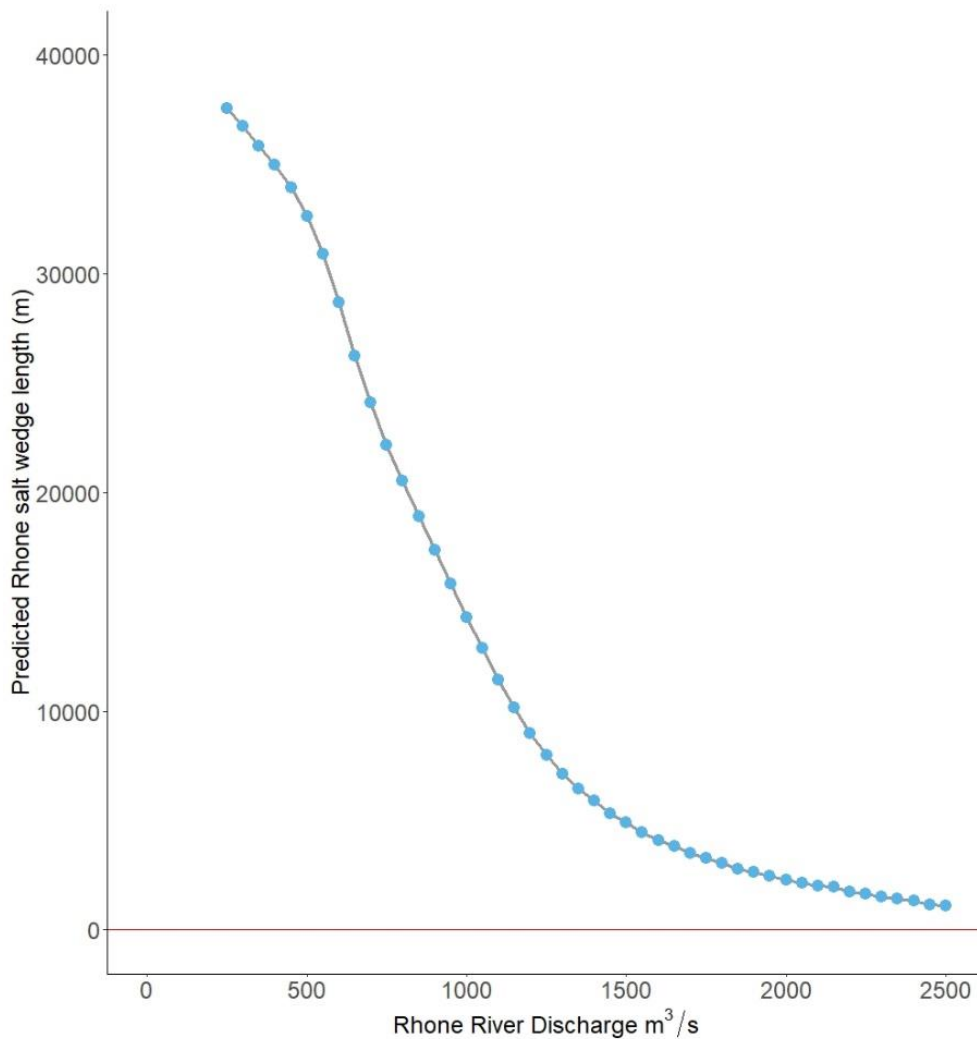


Figure IV-13 : Progression du coin salé en fonction du débit du Rhône des 48 dernières heures.

Rappelons que si l'approche box-model proposée ici est générale pour tout estuaire, elle nécessite de décrire au préalable la structure de la boîte (stratification et longueur). Nous avons utilisé la théorie « two-layer flow theory » qui donne des résultats satisfaisants pour les estuaires fortement stratifiés comme le Rhône. Pour d'autres types d'estuaires, il est recommandé de définir cette structure à partir d'autres méthodes. Toute approche fournissant avec le minimum d'erreur la longueur de l'estuaire et une éventuelle stratification ( $h_1$  et  $h_2$ ) reste une base valable. C'est typiquement le cas de l'équation (IV-3) de (MacCready and Geyer, 2009).

## IV.4. Résultats du box-model

### IV.4.1. Résolution

Toutes les variables d'échange et de structure du box-model étant définies, on résout le polynôme (IV-25) sur  $\mathbb{R}$ , avec le package « polynom » (Hornik et al., 2019). On trouve ainsi le débit d'eau saumâtre sortant à l'embouchure (Sun.1) puis la salinité du panache (Sun.2). Les résultats du box model sont présentés dans les paragraphes suivants, de même que les conséquences en termes de débits de sel et d'eau sortants/entrants.

### IV.4.2. Validation

Pour la suite une carte décrivant l'estuaire du Rhône et les données disponibles est présentée Figure IV-14.

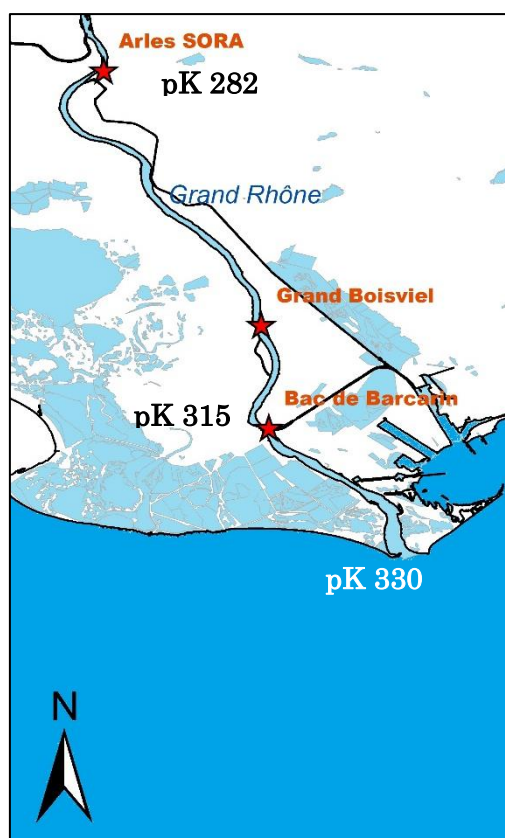


Figure IV-14 : Localisation des principales sources de données sur l'estuaire du Grand Rhône et leurs points kilométriques (pK) (points de référence le long du linéaire du Rhône allant de 0 (Pont Pasteur, Lyon) à 330 (Embouchure du Grand Rhône)).

#### IV.4.2.a. Campagne du 09/07/2020

La structure de salinité est validée avec une campagne effectuée dans le cadre de la thèse les 9 juillet 2020. Cette campagne a pour objectifs de :

- Comparer la profondeur de l'interface entre le panache et le biseau salé calculée par la « two-layer flow theory » en première partie de DRACAR avec les observations en différents points de l'estuaire. En effet, nous avons calibré uniquement avec la hauteur de l'interface à 7 km de l'embouchure et pas en d'autres points de l'estuaire.
- Comparer la salinité du panache avec celle calculée par DRACAR

Les profils produits par DRACAR sont simplifiés. La salinité  $S_{(X)}$  est constante de la surface à la profondeur de l'interface et interpolée comment étant la moyenne de  $S_M$  et  $S_0$  pondérée par la longueur du coin salé conformément aux hypothèses sur la linéarité de la salinité dans l'estuaire faite en paragraphe IV.2.3.

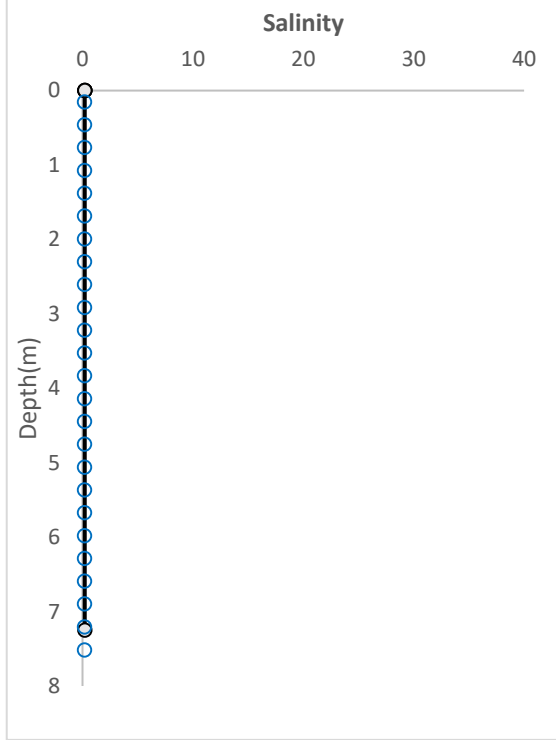
$$\begin{cases} S_{(X)} = S_0 \frac{X}{L} + S_M \left(1 - \frac{X}{L}\right) & L \geq X \\ S_{(X)} = S_0 & L < X \end{cases} \quad (\text{IV-35})$$

Où  $X$  est la position du transect par rapport à l'embouchure. La salinité du biseau  $S_{LL}$  est constante et est fixée à 38,8 comme dit plus haut.

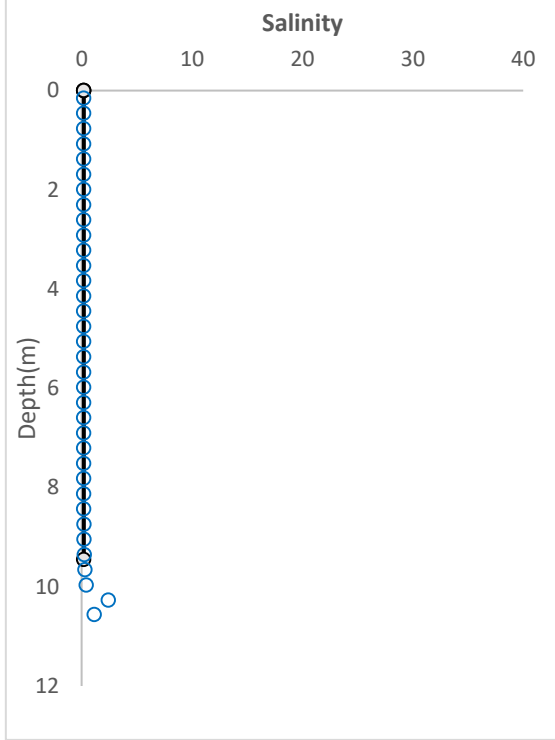
A cette date, le débit du Rhône des 48 h dernières heures est de 1022 m<sup>3</sup>/s en Arles. DRACAR fournit une longueur de coin salé de 13700 mètres et une salinité à l'embouchure de 1,69.

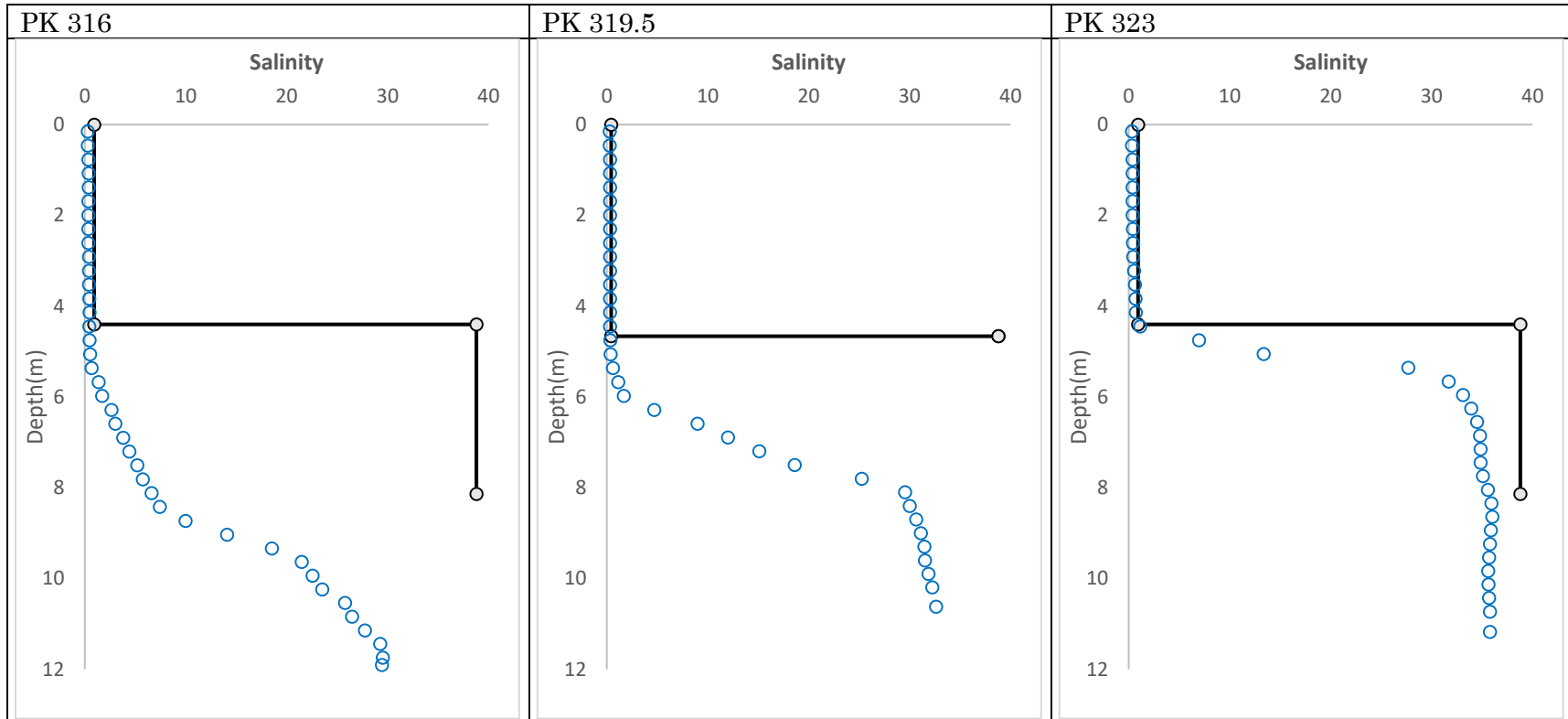
On constate que DRACAR sous-estime l'intrusion du coin salé d'un de 1300 mètres puisqu'au PK 315 la sonde indique la présence d'eau légèrement salée sans qu'on puisse parler d'une réelle stratification tandis que DRACAR indique l'absence de coin salé à ce niveau. DRACAR restitue bien aussi la salinité du panache interne tandis que la salinité du biseau est surestimée puisque nous l'avons fixée à 38.8. Utiliser la salinité fournie par le modèle marin sur la maille à l'embouchure devrait réduire cette erreur. Au niveau de la structure, on constate que les profils simplifiés de DRACAR sont assez fidèles pour les 7 premiers kilomètres amont de l'embouchure en plaçant l'interface au milieu de la couche limite généralement épaisse d'un mètre dans la réalité. Plus en amont, les résultats sont moins satisfaisants en particulier au PK 316 où la diffluence avec le canal semble entraîner un mélange plus conséquent entre les deux couches. Cette dégradation des résultats plus en amont que le PK 323 s'explique certainement car nous avons calibré le modèle avec la profondeur de l'interface au PK 323. Utiliser un second point plus en amont pour la calibration augmenterait sensiblement la précision des résultats.

PK 314



PK 315







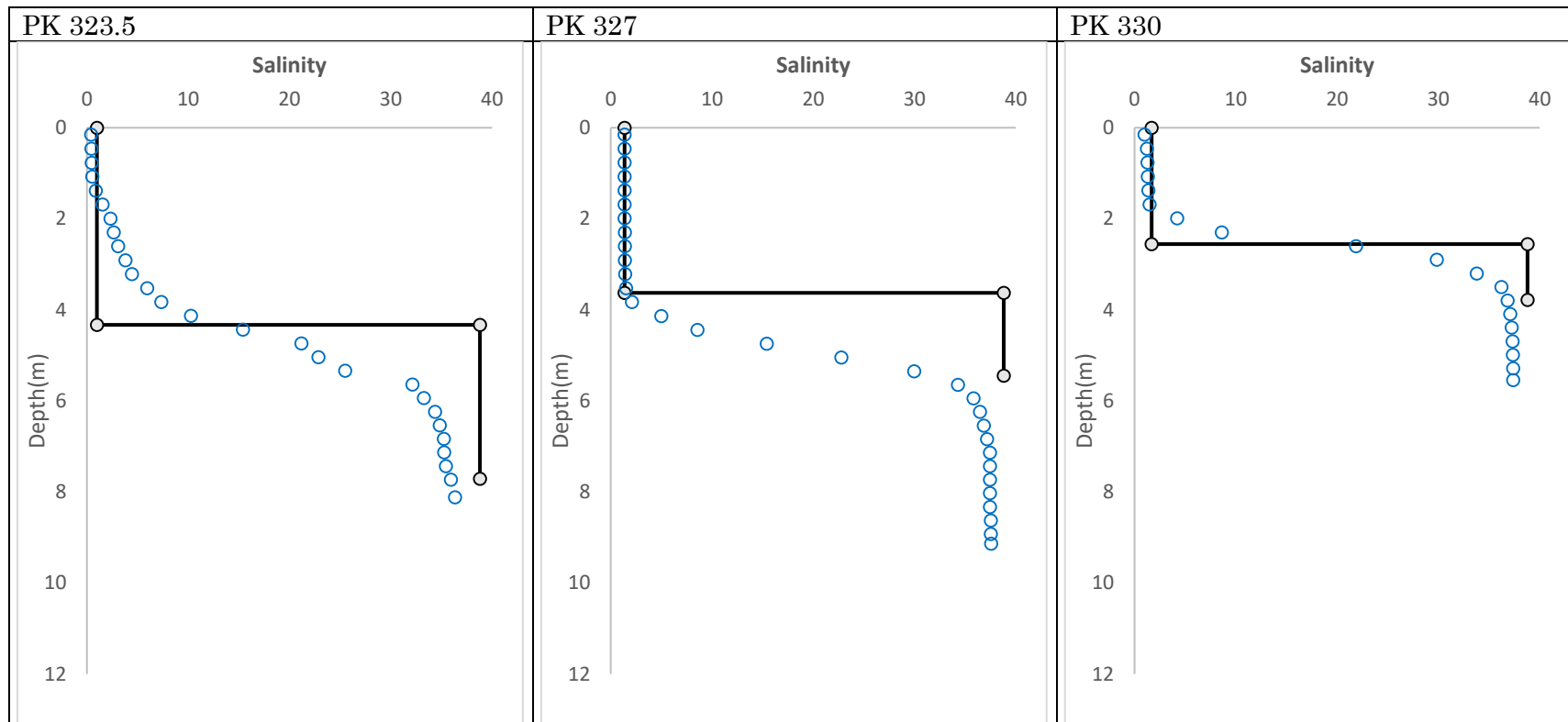


Figure IV-15 : Profils de salinité pour différents transects de l'estuaire du Rhône obtenus à l'aide d'une sonde CTD pour la campagne du 09/07/2020 pour un débit en Arles des 48 dernières heures de  $1022 \text{ m}^3/\text{s}$ . Les cercles bleus correspondent à l'acquisition de la sonde CTD tandis que le trait plein noir indique le profil simplifié fourni par DRACAR.

IV.4.2.b. Sonde de Barcarin

Les données d'une sonde exo multi paramètres placée au niveau de Barcarin (O Radakovitch et al., 2014)(PK 315) vont permettre d'estimer la qualité de la représentation de la salinité du box-model sur un point précis du linéaire mais sur des conditions hydrodynamiques différentes centrées sur les étés. D'après l'équation (IV-35) la salinité du panache à hauteur de Barcarin se calcule comme suit :

$$\begin{cases} S_{(X=15000)} = S_0 \frac{15000}{L} + S_M \left(1 - \frac{15000}{L}\right) & L \geq 15000 \\ S_{(X=15000)} = S_0 & L < 15000 \end{cases} \quad (\text{IV-36})$$

La comparaison des chroniques de salinité prédites à Barcarin avec la salinité moyenne des 48 dernières h à Barcarin est présentée Figure IV-16. Le « goodness of fit » entre ces mêmes données est présenté en Figure IV-17.

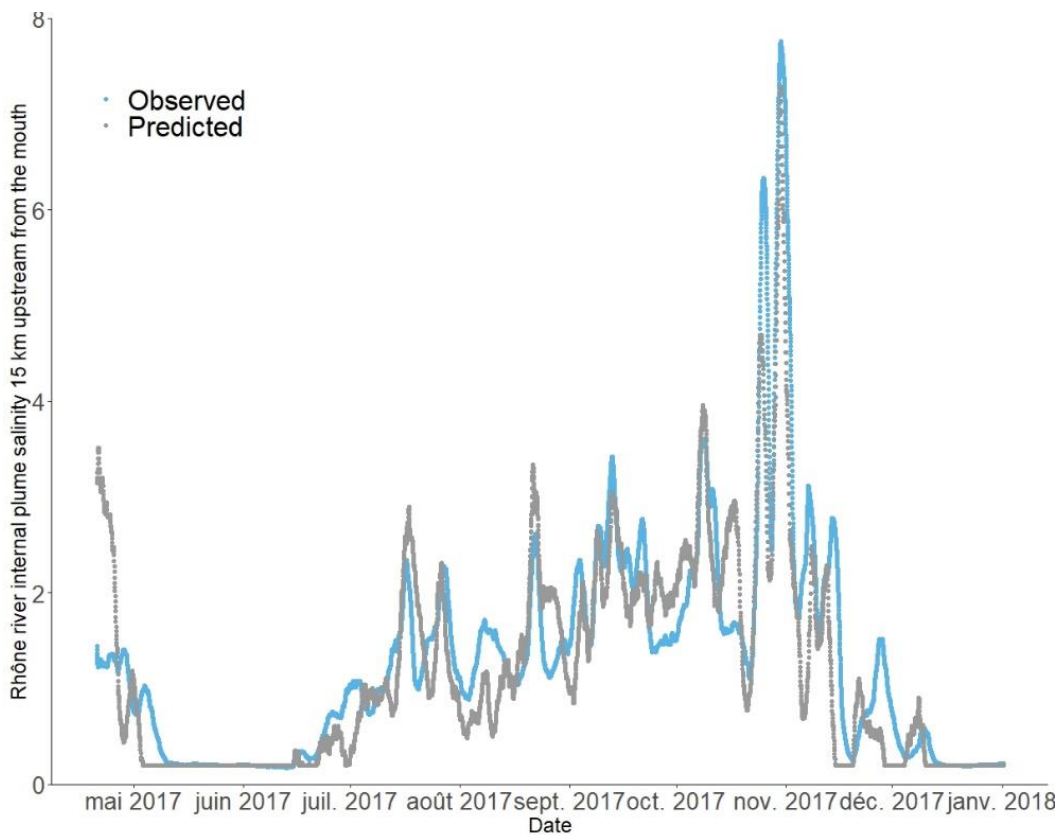


Figure IV-16: Comparaison des chroniques de salinité prédites à Barcarin (PK 315) avec la salinité moyenne observée sur les 48 dernières heures (Validation).

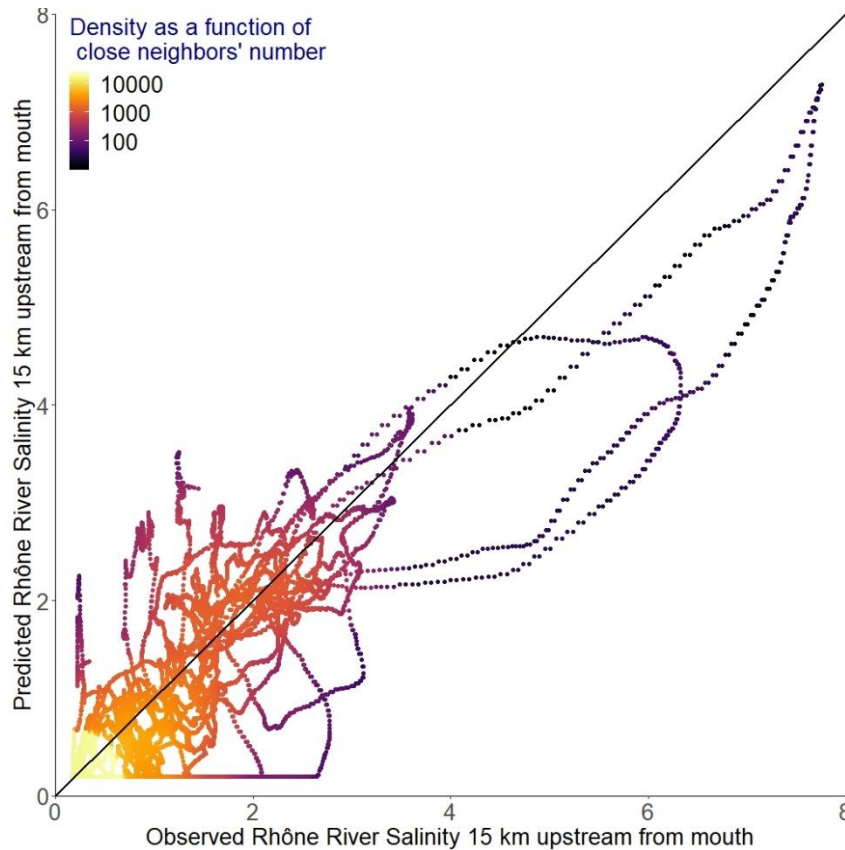


Figure IV-17: Goodness of fit entre les salinités prédites à Barcarin (PK 315) par le box-model avec la salinité moyenne observée sur les 48 dernières heures (Validation)

On constate que tous les pics de salinité sont bien restitués ainsi que les périodes d'absence du coin salé (salinité de 0,2). En revanche, on constate que le modèle est déphasé avec généralement un retard avec les observations. Ce résultat n'est pas surprenant car le modèle est en régime permanent et assume mal les effets transitoires. Un autre aspect positif est que durant cette période, malgré deux épisodes de vents (les deux pics observés supérieurs à 6 de salinité) susceptibles de modifier la stratification (Mistral et Vent de mer en octobre) le modèle suit les extrema même s'il les sous-estime un peu.

La faible occurrence des événements en période de coin salé (30% Delaval et al, 2021) suggère que la prise en compte du vent n'est pas la priorité sur le Rhône. Toutefois, le vent peut jouer dans d'autres estuaires. Une solution est un paramétrage plus fin de  $K_v$  en fonction du vent ou alors d'ajouter l'énergie apportée par le vent dans les bilans de Sun. Une formulation de l'énergie apportée par le vent est présente dans (Rice et al., 2008) et (Ralston et al., 2008).

Les performances du box-model à Barcarin sont présentées en Tableau IV-2. Aucun indicateur de performance n'est parfait, certains sont sensibles aux outliers ou aux biais ( $R^2$  en particulier) (Legates and McCabe Jr, 1999). Aussi plusieurs coefficients sont calculés pour pallier à cela. Les coefficients sont calculés avec le package R « hydroGOF », les formules des coefficients sont donnés dans Zambrano-Bigiarini (2020).

Sur l'ensemble des données (première ligne du tableau) le box-model présente une erreur quadratique moyenne (RMSE) sur la salinité de 0.5, le coefficient de Nash-Sutcliffe (NSE) est supérieur à 0 indiquant que le box-model est un meilleur estimateur que la moyenne (estimateur naïf). L'« index of agreement » est supérieur à 0,9 ce qui est très bon. En moyenne, la salinité est légèrement sous-estimée (biais négatif).

Une partie de ces bonnes performances peut être due à la précision de l'estimation de l'intrusion salée par la TLF combinée à (IV-35) indiquant une salinité nulle, égale aux observations si l'intrusion ne va pas jusqu'à Barcarin ce qui réduit l'erreur globale. En effet, 53% du jeu de données à Barcarin sont des observations en l'absence du coin salé. Les performances du modèles sont recalculées sur le jeu de données ré-échantillonné uniquement lorsque le coin salé est présent à Barcarin (Salinité observée > 0,27). Les performances baissent mais restent satisfaisantes.

Ces performances sont difficilement comparables aux papiers sur des box-model qui observent l'énergie potentielle (Rice et al., 2008) . La plus proche comparaison peut se faire avec Sun et al., (2017) sur la Columbia. Ces auteurs ont obtenu un  $R^2$  de 0,70 entre  $S_M$  et la salinité observée avec une bouée à l'embouchure, ainsi qu'un biais de -0,06 et RMSE de 1,7 (toutefois la salinité moyenne observée est de 16, plus élevée que celle de Barcarin).

Une dernière comparaison est faite avec les résultats d'une régression des débits sur la salinité (Tableau IV-2, dernière ligne). Elle est intéressante car l'on compare une approche statistique (régression) avec l'approche mécanistique du box-model. Ces deux approches utilisent la même série temporelle d'entrée unique : les débits des 48 dernières heures à Arles.

Tableau IV-2 : Comparaison des performances de modélisation de la salinité à Barcarin entre le box-model et une régression puissance en fonction du débit. Cf package R « hydroGof » pour la description des formules utilisées.

Nombre de données	Coefficient	$R^2$	RMSE	NSE	BIAS	Skill (Index of agreement)
	Intervalle	[-1 ;1]	X	[-∞ ;1]	X	[0 ;1]
N=28237	Box_model (données brutes)	0.73	0.50	0.72	-0.06	0.92
N=13397	Box-model ré-échantillonné (coin salé présent)	0.61	0.72	0.55	-0.13	0.88
N=28237	S=f(Q) (données brutes)	0.76	0.47	0.76	-0.04	0.93

On constate que les performances entre le meilleur fit ( $S_{(X=15000)}=7.012 \times 10^6 Q_r^{-2.358}$ ) et le modèle DRACAR sont similaires. Cette similitude confirme la qualité des sorties du modèle. Ce dernier n'ayant pas été calibré spécifiquement pour Barcarin, on peut s'attendre à une même fiabilité pour d'autres points de l'estuaire.

#### IV.4.3. Synthèse sur l'interface

La structure du coin salé du Rhône a été reproduite par la « two-layer flow theory » avec prise en compte des seuils. La théorie box-model de Sun et al (2017) a été étendue au cas particulier des estuaires à coin salé. La combinaison de ces deux approches forme l'interface DRACAR qui fournit la stratification, la salinité et débits sortants à l'embouchure, ceci afin de représenter plus fidèlement l'apport des fleuves dans les modèles hydrodynamiques marins. Le modèle fournit aussi les temps de résidences et la salinité moyenne dans l'estuaire, variables selon les conditions hydrodynamiques. Ces paramètres gouvernent les réactions de désorption des métaux, notamment celle du

césium et permettent d'estimer quantitativement la réactivité d'un estuaire pour le transfert des radionucléides. Ces différents apports augmentent la cohérence des entrées-sorties des modèles de transfert de radionucléides en fleuve et en mer.

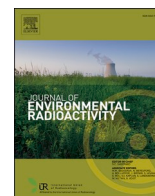
La calibration ayant été faite sur la structure du box-model, les résultats confirment l'importance de box-model aux dimensions adaptables aux conditions hydrodynamiques pour la justesse dans la résolution des bilans (MacCready and Geyer, 2009). La prise en compte de la pente pour des estuaires très stratifiés semble aussi être une amélioration intéressante. Une meilleure prise en compte de la géométrie, notamment la surface d'échange, contraint les coefficients de calibration (ici  $A_0$  et  $a_0$ ) et permet à terme de différencier et préciser les processus physiques.

Les performances de cette interface sur l'estuaire du Rhône confirment la viabilité des box-model y compris sur les estuaires à coin salé. L'association de la description de la structure et la résolution du box-model semble donc une approche efficace au moins pour ces estuaires. Cette base pourrait prendre en compte des améliorations futures telles que la prise en compte du vent et des variations de la hauteur d'eau sur le Rhône, et être adapter à d'autres estuaires.

# V. Etude de la désorption à l'interface

## V.1. Article de review sur l'intensité du phénomène de désorption du césium sur un gradient de salinité

L'objectif majeur de cette thèse est de modéliser la fonction de transfert que constitue l'interface fleuve-mer en intégrant la modélisation du gradient de salinité (cf chapitre précédent) et en décrivant la réactivité des radionucléides dans ce gradient. Pour appréhender cette réactivité, nous avons travaillé uniquement sur le césium-137 et avons cherché dans un premier temps à faire une synthèse la plus exhaustive possible des connaissances sur ce radionucléide. Cette synthèse de 32 études a été publiée dans *Journal of Environmental Radioactivity* et est reproduite ci-dessous. Elle vise à déterminer l'ampleur de ce processus, trouver les constantes qui le gouvernent et mettre en évidence les verrous scientifiques.



## A review on cesium desorption at the freshwater-seawater interface

A Delaval<sup>a,\*</sup>, C Duffa<sup>a</sup>, O Radakovitch<sup>a,b</sup>

<sup>a</sup> IRSN (Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire), PSE-ENV/SRTE/LRTA, 13115, Saint-Paul-Les-Durance, France

<sup>b</sup> Aix Marseille Univ, CNRS, IRD, INRAE, Coll France, CEREGE, Aix-en-Provence, France

### ABSTRACT

Understanding the processes governing the behavior of radiocesium in the sea is still essential to make accurate assessments of its potential impacts on marine ecosystems. One of the most important of this process is the desorption that may occur at the river-sea interface due to changes in physico-chemical conditions, including ionic strength and solution composition. It has been the subject of many studies using field measurements or laboratory experiments, but there was no global interpretation of these works and their results.

The present review summarizes relevant laboratory experiments studying desorption of Cs (stable or radioactive) from particles in sea or brackish waters. To date, 32 experimental studies have been carried out on 68 Cs-bearing samples since 1964. A wide range of desorbed fraction (0–86%) was observed, partly depending on the experimental design. For particles containing radiocesium issued from a contamination in the environment, the desorption ranges from 0 to 64% of the particulate activity, with a median at only 3%. Particles contaminated in laboratory show a range between 6 and 86% with a multimodal distribution. The desorption initiates at low salinity (3–4) and rapidly reaches a threshold around 10–15. Laboratory experiments show that two first-order reactions govern the kinetics of the process, with half-life reaction times of 1 h and a few days. These two reactions are probably linked to the adsorption of Cs onto different particles sites. Also, the dynamic of Cs desorption depends on its initial distribution on these different sites, in relation with the history of its contamination and an aging effect.

### 1. Introduction

The pollution of marine ecosystems by radionuclides is a major concern for society since the beginning of the nuclear era. It may be due to different sources including: *in-situ* releases from coastal nuclear power-plants, accidents associated with nuclear vessels (vessels, missiles), Naturally Occurring Radioactive Materials (NORMs) related to oil or gas production and direct or indirect global releases associated with nuclear tests or accidents on installations. A direct input is provided by atmospheric fallout and/or offshore releases (Fukushima), while an indirect input is due to the transport by rivers, collecting radionuclides from watersheds consequently to atmospheric fallout. Finally, submarine groundwater discharge may constitute a very specific direct input (Sanial et al., 2017).

Cesium radioactive isotopes (<sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs) have been extensively monitored in the environment due to their significant radioecological hazard (Garnier-Laplace et al., 2011) and their persistence (half-life of 2.4 and 30.2 years respectively). They are produced through uranium fission within nuclear reactors and thus can be found in both accident or authorized releases.

In the case of accidents and atmospheric nuclear testing, radiocesium has been spread over large spatial scales by the way of atmospheric deposition (Mattsson et al., 1991), but rivers constitute an additional

input to the sea (Trapeznikov et al., 1995; Yamashiki et al., 2014). These rivers bring radiocesium through the releases of reprocessing and power plants as well as by the runoff of contaminated watersheds like in Chernobyl or Fukushima (Walling and He, 1999; Garcia-Sanchez and Konoplev, 2009; Sakaguchi et al., 2018). Cesium exists in rivers as dissolved Cs<sup>+</sup> with small tendency to form colloids (Onishi et al., 1981; Eyrolle and Charmasson, 2004) but is mainly transported in particular form (Takahashi et al., 2017) because of its high affinity for clay minerals (Torstenfelt et al., 1982; Fan et al., 2014).

At the river-sea interface, the important changes in physico-chemical conditions including ionic strength, solution composition and pH may induce the desorption of Cs from particles to the dissolved phase. A direct consequence is the shift of its distribution coefficient K<sub>d</sub> (ratio between solid and liquid activities, L/Kg), decreasing from 6,66.10<sup>3</sup>–1,35.10<sup>5</sup> in freshwater (Tomczak et al., 2019) to 4,5.10<sup>2</sup>–2.10<sup>3</sup> in seawater (IAEA, 2004; Tagami and Uchida, 2013).

This desorption has been highlighted in laboratory experiments and *in-situ* studies, through the monitoring of dissolved activities (Matishov et al., 2006; Kakehi et al., 2016) or sediment inventories (Kusakabe et al., 2013). It is well recognized that clay minerals are the most important solid phase for the adsorption of radiocesium, but a fraction may also be attached to organic material, at least in contaminated watersheds near Fukushima (Naulier et al., 2017). For clays, illite is the

\* Corresponding author.

E-mail address: [adrien.delaval@irsn.fr](mailto:adrien.delaval@irsn.fr) (A. Delaval).

most important and strong absorbent but kaolinite, smectite and vermiculite are also active, as well as biotite for phyllosilicate (Okumura et al., 2018)).

The negatively charged basal oxygen surfaces found on clay planar sites can form strong inner-sphere complexes with monovalent cations with low hydration energy, such as  $K^+$ ,  $NH_4^+$ ,  $Rb^+$  and  $Cs^+$  (Sposito et al., 1999). These sites have usually low affinity due to their low selectivity (Wauters et al., 1996), but they adsorb  $Cs^+$  more efficiently than the other cations due to its lowest hydration energy (Nakao et al., 2014). This cation uptake can be effective within a few hours (Onishi et al., 1981). Other sorption occurred on edge sites, hydrated interlayer sites or frayed edge sites, corresponding to weathering fronts of micaceous minerals (Okumura et al., 2018). Finally, interlayer sites are not accessible to hydrated cations with large effective ionic radii, but are accessible to easily dehydrated cations such as  $Cs^+$  (Zachara et al., 2002). This binding could result in a strong fixation, similar to those of native stable Cs already present in the mineral (Yin et al., 2016). However, binding on both planar and interlayer sites are partially reversible, and the increase of competitive ions in seawater ( $K^+$ ,  $Na^+$  or  $NH_4^+$ ) moves the equilibrium towards a release of  $Cs^+$ , providing an additional input to the dissolved phase.

If desorption process at the freshwater-seawater interface has been already demonstrated, there is no consensus on the potential quantity of Cs that can be desorbed depending on the salinity. According to Sakaguchi et al. (2018): “the desorbed value remains open for discussion”. Furthermore, the influence of the major cations on the desorption efficiency is not completely clear. According Yin et al. (2016), questions remain on how each site is likely to desorb and on the various associated kinetic rates.

This paper provides a review on experimental laboratory studies conducted on Cs desorption in seawater. It aims to precise this process by identifying the values that can be expected according to the salinity, by characterizing the parameters of influence and by underlining unknowns for an eventual modelling work.

## 2. Material and methods

### 2.1. Literature search

All laboratory experiments exposing particles to a Cs (stable or radioactive) contamination in freshwater or seawater and then desorbing in seawater media were examined. The information required were the distribution of Cs between the solid and the dissolved phase.

Searches were performed to list all experimental studies carried out on stable and radioactive cesium desorption from particles samples in salt water. We included peer-reviewed and conferences papers, thesis and technical reports from 1950 to present. The databases used were Google Scholar, Scopus, and the CRIS (Centre de ressources en informations scientifiques et techniques) of IRSN.

Searches were performed using the keywords: “Cesium”, “cesium”, and “desorption”, “remobilization”, “leaching”, “distribution” and “saltwater”, “seawater”, “sea”, “salinity”. Studies reporting distribution of radiocesium between solid and liquid phases in the field were not considered because of the lack of information on duration of desorption, delay between adsorption and desorption as well as the salinity of the media. We focused only on experimental laboratory approach that explicitly addressed cesium desorption in saltwater (minimal salinity of 1). Three studies which did not provide the fraction of desorbed Cs from samples after the desorption experiment (or a way to obtain it such as graphs, Kd, or activities in both phases before and after experiment) were excluded. The completeness of the results obtained was considered as satisfactory when no more relevant references on the topic could be found in the selected studies. This is the “snowballing approach” proposed by (Sayers, 2007)

### 2.2. Database construction

A bibliographic database was created to list all publications concerning cesium desorption from particles samples in saltwater according to the enounced modalities, leading to a total of 32 publications (Table 1).

Different kinds of information were extracted from this database and reported into sections described hereunder. Some are presented in Table 1:

- **Paper information and objectives of the experiment:** This section includes reference information such as title, year and authors of the publication.
- **Sampling location information:** Geographical information on the sampling sites as well as available information on main physico-chemical parameters: grain-size, cation exchange capacity (CEC), organic content and clay content. It is important to note that samples can be different and include suspended particles in the water column, sediments or soils. The results obtained on samples that were modified are not taken into account (sieving of grain-size or removal of specific mineral phases; Ouaniche, 1984; El Assy et al., 1991).
- **Experimental design:** This section focused on the materials and methods information such as the conditions of cesium uptake and the isotope used. Four main experimental designs were found and differentiated for our work (see the scheme of their classification on Fig. 2).
  - ✓ 1) desorption of Stable Cesium (SCs) corresponding to  $^{133}Cs$  naturally incorporated into the mineral material of the particles (not spiked). A good example of the experiment is provided by Takata et al. (2015).
  - ✓ 2) desorption of RadioCesium (RCs) from particles which have been exposed to  $^{134}Cs$  or  $^{137}Cs$  in the field (Yamasaki et al., 2016).
  - ✓ 3) desorption of RadioCesium from particles spiked ( $^{134}Cs$  or  $^{137}Cs$ ) in Laboratory and in Freshwater media (RCs.Lab.Fw; ex. Onodera et al., 2017).
  - ✓ 4) desorption of RadioCesium from particles spiked in Laboratory in Saltwater media at salinity >1 (RCs.Lab.Sw; ex. Oughton et al., 1997).
- **Experimental conditions:** this section reports experimental parameters such as salinity, ratio between sample mass and volume of seawater, use of natural or artificial seawater, duration of the sorption and desorption phases.
- **Results collection methodology:** All the results concerning the distribution of cesium between the solid and the dissolved phases after exposition to saltwater were collected. When a study reported multiple values corresponding to change of the experimental conditions or of the sample used, all results were also collected. Results were homogenized into a percentage of Cs activity (or concentration for stable Cs) desorbed in seawater. The section reports the methodology used to obtain this percentage which are values: (i) directly provided by the authors, (ii) calculated from graphical extraction with plot digitizer, (iii) calculated from activities of (iv) the sample or from the Kd provided by the authors.

## 3. Global overview of the database

### 3.1. Worldwide and historic concerns on radiocesium desorption at river-sea interfaces

The 32 studies selected correspond to 68 samples and a total of 502 experimental results. 87% of these samples were sediments, 10% suspended particles and 3% soils. The sediments were collected mostly in river (56%), sea or bays (30%), or estuaries (14%). The majority of studies (14) were interested in the fate of radiocesium sorbed onto soils after atmospheric depositions due to global fallout or nuclear accidents. Also, most of the sediment or suspended particle samples were collected



**Table 1**  
Main information of the studies compiled in this article.

References	Sample type	Number of samples used in the study	Description medium	Experimental design				Studies used for linearization	Studies used for Freshwater Seawater Kd comparison	Origin of the data used in the study
				SCs	RCs	RCs. Lab. Fw	RCs. Lab. Sw			
Reynolds and Gloyna (1964)	Guadalupe river sediments	1	San Antonio bay water			X	X		X	Graphical extraction
Clanton (1968)	Guadalupe river sediments	1	San Antonio bay water			X		X	X	Graphical extraction
Cheng and Hamaguchi (1968)	Terrigenous sediments Hokkaido	1	Japanese seawater			X				Graphical extraction
Ganapathy et al. (1968)	Bombay harbour sediments	1	Bombay harbour water				X			Provided
Robertson et al. (1973)	Columbia river sediments	1	Pacific ocean water		X					Graphical extraction
Brisbin et al. (1974)	Savannah river sediments	1	NaCl solution		X					Reported by Onishi et al. (1981)
Patel (1978)	Bombay harbour sediments	2	Bombay harbour water		X					Graphical extraction
Stanners and Aston (1982)	Ravenglass estuary sediments	1	Irish seawater		X					Calculation from activities
Evans et al. (1983)	Savannah river pond sediments	2	NaCl solution		X					Provided
Ferrer (1983)	Suspended particles Rhône river	3	Artificial seawater			X		X	X	Graphical extraction
Ouaniche (1984)	Rhône sediments	2	Rade de Toulon water		X	X			X	Provided
Bale (1987)	Tamar estuary sediments	1	Manche seawater			X			X	Graphical extraction
El-Assy et al. (1991)	Suez canal sediments	1	Suez gulf water			X		X		Graphical extraction
Davison et al. (1993)	Esthwaite Water lake sediments	1	Artificial seawater		X					Provided
Desai et al. (1994)	Bombay harbour sediments	1	Bombay harbour water		X					Provided
Kleinot (1994)	Tamar estuary sediments	1	Artificial seawater				X			Graphical extraction
Knapinska-Skiba et al. (1994)	Baltic sea sediments	2	Gdansk Bay water		X		X			Graphical extraction
Oughton et al. (1997)	Kara sea sediments	4	Oslo Fjord water		X	X	X			Graphical extraction and calculations from Kd
Fuhrmann et al. (2001)	Kara sea sediments	1	Atlantic ocean water				X			Graphical extraction
Borretzen and Salbu (2002)	Stepovogo Fjord sediments	1	Kara seawater				X			Graphical extraction
Standring et al. (2002)	Mayak ponds sediments	4	Artificial seawater		X					Calculation from activities
Topcuoğlu et al. (2002)	Black sea sediments	4	Blacksea water				X			Graphical extraction
Ciffroy et al. (2003)	Suspended particles Loire river	2	Atlantic ocean water			X		X	X	Graphical extraction and calculations from Kd
Saengkul et al. (2013)	Bang Pakong estuary sediments	2	Thailand gulf water				X			Graphical extraction
Tagami and Uchida (2013)	Fukushima soil	1	Pacific ocean water			X				Provided
Otosaka and Kobayashi (2013)	Marine sediments Fukushima	2	Pacific ocean water		X					Graphical extraction
Fan et al. (2014)	Abukama and Kuchibuto river sediments	4	Artificial seawater			X			X	Graphical extraction and calculations from Kd
Berthail (2015)	Nitta and Otta river sediments and Sellafeld estuary sediments	3	Seawater (origin unspecified)		X					Provided
Takata et al. (2015)	Abukama, Tone, Kuji and Naka river sediments	12	Pacific ocean water	X	X					Graphical extraction
		1	Artificial seawater		X					

(continued on next page)

Table 1 (continued)

References	Sample type	Number of samples used in the study	Desorption medium	Experimental design				Studies used for linearization	Studies used for Freshwater Seawater Kd comparison	Origin of the data used in the study
				SCs	RCs	RCs. Lab. Fw	RCs. Lab. Sw			
Yamasaki et al. (2016)	Kuma river sediments									Graphical extraction
Onodera et al. (2017)	Suspended particles Abukama and Natsui rivers.	2	Artificial seawater, pacific ocean water and NaCl solution			X		X	X	Graphical extraction
Sakaguchi et al. (2018)	Fukushima soil	1	Seawater nearby Kikajima island	X	X					Calculation from activities

at the output of contaminated watersheds as shown by the locations of the sites (Fig. 1), mostly related with the Fukushima accident or with nuclear power-plant releases. Only one study reported data directly in relation with the Chernobyl accident (Davison et al., 1993). Four specific studies were also conducted in the Artic Sea in relation with the dumping of radioactive material (17000 containers and 19 vessels) and the potential release from high activity sediments.

The aim of the other works (5) was related to the understanding of stable elements transfer at the river-sea interface, using of their radioactive analogs.

### 3.2. Influence of the experimental design

The values of Cs desorption percentage are reported in Fig. 2. They relate the initial activity onto the particles, i.e. 100% indicates that all radiocesium was released into dissolved phase. They are directly issued from the document or calculated according different methodologies (Table 1). When this value in % was not given in the study, it was calculated as following:

$$\%des = 1 - \frac{A_{solid\ final}}{A_{solid\ initial}} \times 100 \tag{1}$$

Or

$$\%des = 1 - \frac{A_{liquid\ final} * V_{liq\ final}}{A_{solid\ initial} * M_{solid}} \times 100 \tag{2}$$

Where  $A_{solid\ initial}$  and  $A_{solid\ final}$  are the massic activities (Bq/kg) of the sample before and after desorption,  $A_{liquid\ final}$  the dissolved activity after the desorption experiment (Bq/L),  $M_{solid}$  the mass of sample used (kg) and  $V_{liq\ final}$  the mass of water in the media (L).

The design of the experiment may have an influence on the results. Indeed, while the desorption protocol was similar between experiments, the Cs sorption (in the lab or in the environment) was very different. This could lead to different desorption dynamics depending on the solid to liquid ratio used for the contamination (Onodera et al., 2017), or the ionic composition of the spiked medium as shown by Benes et al. (1992) in freshwater. Consequently, results were separated into 4 different experimental designs defined in section 1.2, and the distribution of the percentage of desorption obtained are presented in Fig. 2.

The range of desorption rate for experiments SCs and RCs varied greatly since they are limited between 0 and respectively 10 and 64%. They present however the same modal class at 2–6%. On the other hand, experiments RCs.Lab.Fw and RCs.Lab.Sw show wider and multimodal distributions, extending from 6 to 86% and 7–88%.

Our aim is to evaluate the state of knowledge and major uncertainties on the fate of radiocesium at the river-sea interface. We will focus on the RCs and RCs.Lab.Fw experiments because SCs concerns stable Cs and

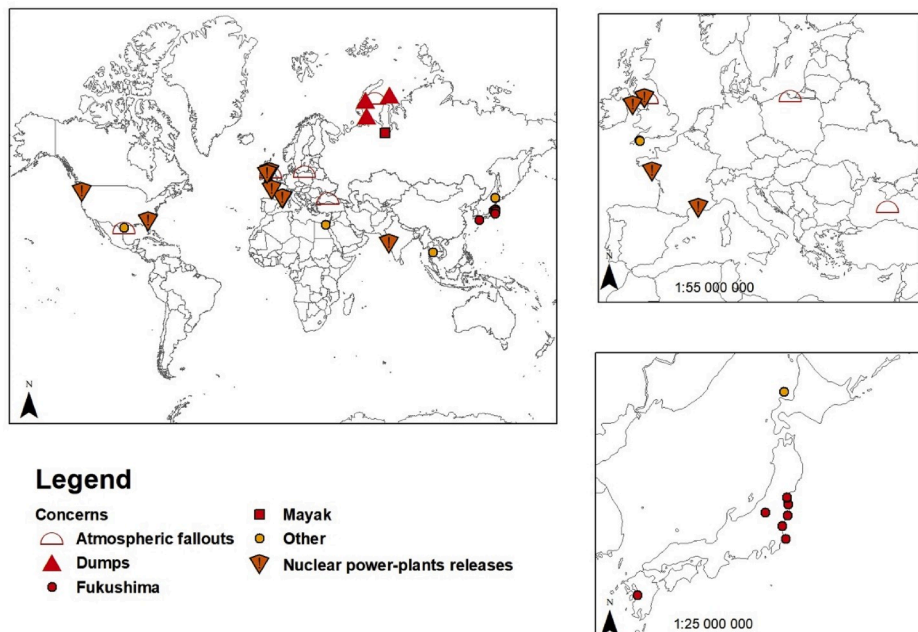


Fig. 1. Locations of the sampling sites relative to the documents reporting results on cesium desorption. The symbols refer to the sources of contamination of the particles.

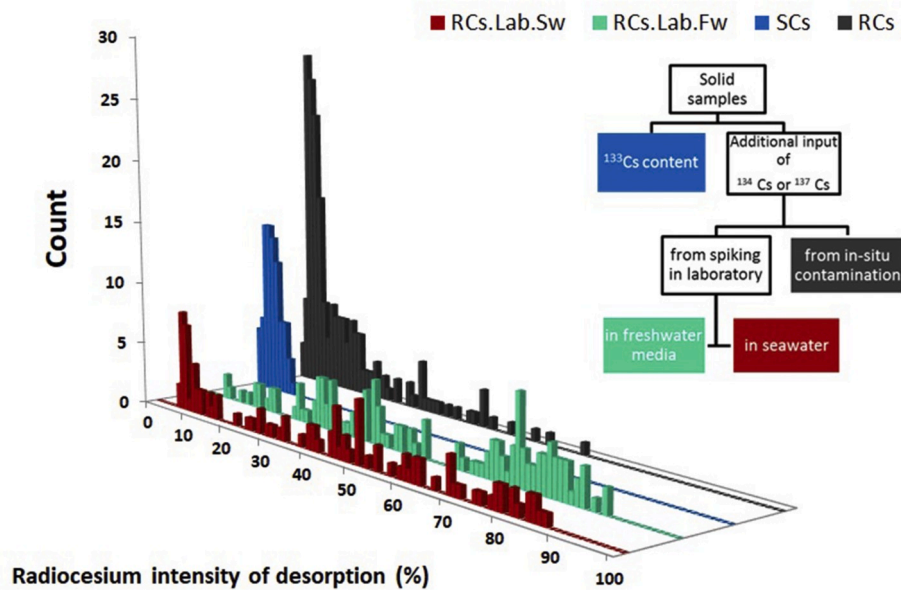


Fig. 2. Percentage of desorption distributions obtained for the 4 different experimental designs (see text for details). The scheme in the top right corner presents the classification of these designs.

RCs.Lab.Sw sorption phase occurs in seawater. These two experiments answer to different questions described below. They were designed to give an order of magnitude of the Cs released after a sorption in freshwater, and they did not look at the influence of various physico-chemical parameters.

The experimental design RCs includes (but not only) riverine particles or sediments issued from contaminated watersheds (Sakaguchi et al., 2018) or contaminated directly in the river (Standring et al., 2002). These particles are likely to be transported from river to sea especially during a flood event (Takata et al., 2015).

The experimental design RCs.Lab.Fw aims to reproduce the fate of suspended particles or bottom sediments contaminated after a radioactive release directly into freshwater (river), but desorption is still considered into seawater (Ciffroy et al., 2003). In general, such experiment is more difficult to carry out because it requires an additional

sorption phase using radioactive sources. This could explain the lower number of available results.

#### 4. Overview on experiments

Results of the RCs experiments follow a log-normal distribution (Figs. 2 and 3). The percentages of desorption range between 0 and 65%, but the modal class 2–6% gathers more than 47% of the experimental results (93/197). Furthermore, it should be noted that values above 30% are issued from three studies only, and two of them used sediments from Bombay Harbour (Desai et al., 1994; Patel, 1978). These authors reported little information on their samples. The last and maximal value of 65% comes from the Ravenglass estuary (Stanners and Aston, 1982).

In contrary, results of RCs.Lab.Fw do not follow any classical distribution (Figs. 2 and 4) and present many modes. Low desorption below

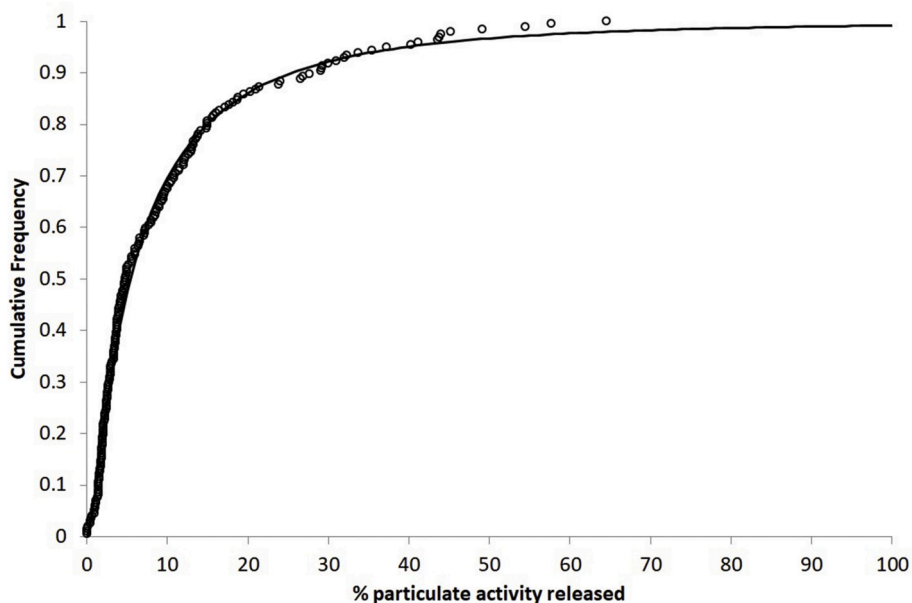


Fig. 3. Cumulative frequency of cesium desorption percentage and its distribution for experiment RCs.

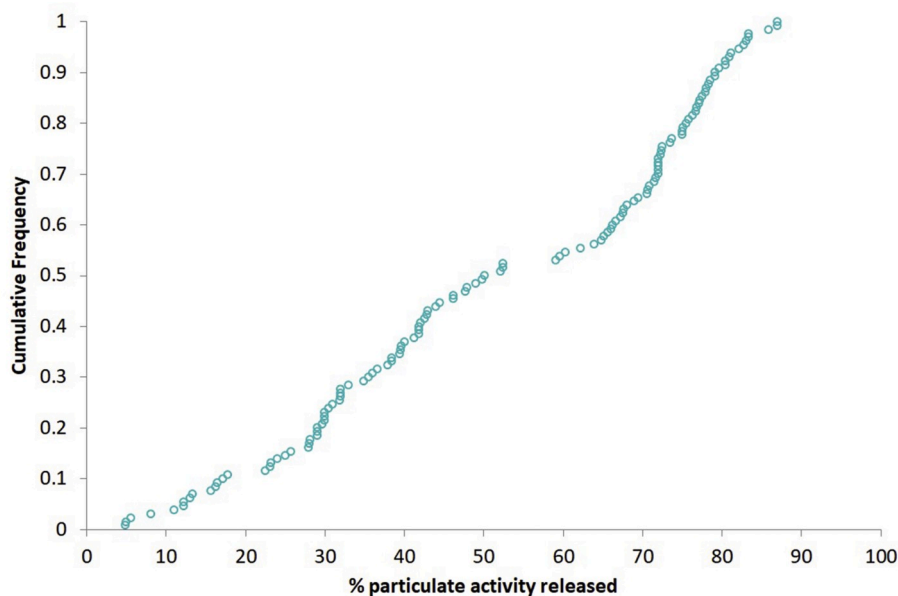


Fig. 4. Cumulative frequency of cesium desorption percentage and its distribution for experiment RCc.Lab.Fw.

10% concerned only particles with solid to liquid ratios at or above 10,000 mg/L. This concentration is already above most of those observed in rivers, even in floods (Meybeck and Moatar, 2014; Sadaoui et al., 2016). The highest desorption value (86%) was found for particles from the Tamar estuary (Bale, 1987).

4.1. Influence of salinity

There is no significant statistical relation between the salinity and the desorbed fraction or  $K_d$ , when the results of the 32 studies related to RCs and RCs.Lab.Fw experiments are plotted together (Fig. 5). However, most of these studies tested just one salinity value, and only two of them reported results over a range of salinity. In RCs experiments, Sakaguchi et al. (2018) tested two salinities (16.5 and 33) using successive desorption experiments, and each time the desorption at the 33 salinity medium increases by a factor 1.5–2 compared to those at 16.5. Patel (1978) found a linear relation between salinity and the amount of desorbed Cs for two different samples of the Bombay Harbour for salinities ranging between 9.5 and 38.

For RCs.Lab.Fw, Reynolds and Gloyna (1964) found a positive linear

relation between released Cs and salinity, whereas Ciffroy et al. (2003) and Bale (1987) found that the same fraction of Cs is desorbed for low (respectively 13 and 10) and high salinity (34), similarly to a threshold over which salinity had no more influence on the fraction of desorbed Cs. It must be noted however that in both studies, the desorbed fraction increased significantly in the range 0–10 of salinity.

It is impossible from these various results to parametrize a relation between the salinity and desorption of Cs from the particles. This might be due to the various solutions chemistry used for these experiments, ranging from natural seawater to monoionic solutions of  $Na^+$ . Indeed, the use of monoionic solutions ( $Na^+$ ,  $K^+$ ) as desorption medium leads to different effects. Mukai et al. (2018), Onodera et al. (2017), and Desai et al. (1994) observed that for the use of  $K^+$  solutions always reached a plateau in the Cs desorption, which was similar whatever the range of  $K^+$  concentrations, respectively  $10^{-5}$  to 1 M, 0.01–1 M and 0.01–1.6 M. On the other hand, desorption increased linearly with  $Na^+$ , using respective ranges of  $10^{-5}$  to 1M, 0.47–1M, and 0.01–1.6 M. By comparison, the mean concentrations of  $K^+$  and  $Na^+$  in seawater at 35 salinity are 0.01 and 0.47M, and their molar ratio is 47.

These authors explained their results by the fact that  $Na^+$  has a

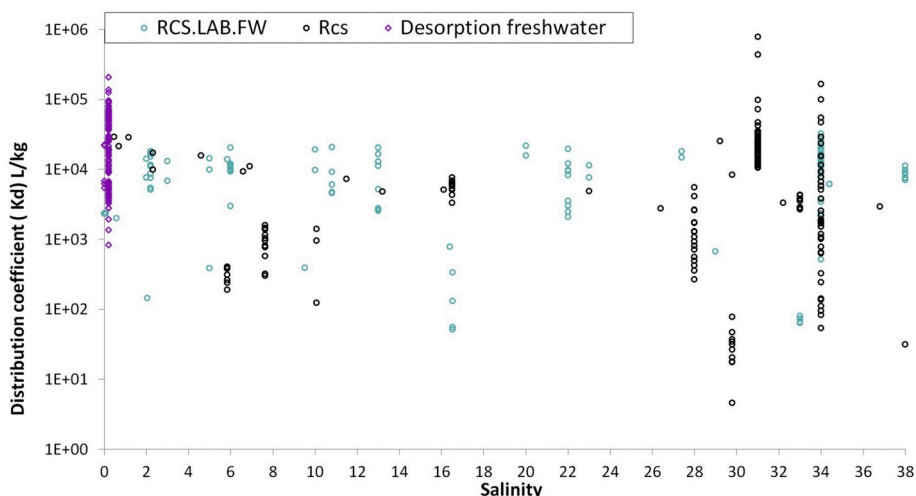


Fig. 5. Distribution coefficient of radiocesium in function of salinity for different experimental designs.

higher hydration energy and the capacity to enhance the interfoliar layer of clays, releasing thus the Cs stored on these sites. On the other hand,  $K^+$  has a lower hydration energy and cannot release this Cs. It is only involved in the cation exchange reaction occurring on surficial sites.

In addition, Mukai et al. (2018), and Onodera et al. (2017) both found that an increase of  $K^+$  concentration from 0.001 to 0.01 M (seawater) combined with  $Na^+$  (at 1M or 0.47 M) decreased the desorption by a factor 2 (60%–30% for Onodera) or even 4 (80%–20% for Mukai et al.), which is also the amount of desorption observed with natural seawater in their experiment.

These authors and Desai et al. (1994), argue that the “shrinking” or “collapsing” effect of  $K^+$  on the interfoliar gap of clays (Mela, 1962) inhibits Cs release from these interfoliar sites. Increasing salinity undoubtedly influences the desorption due to  $Na^+$  and  $K^+$  and their mechanisms discussed above. However, while desorption increases linearly with  $Na^+$  alone, addition of  $K^+$ , around 0.001–0.01M range (corresponding to concentrations in seawater of salinity 3.5–35) leads to a desorption plateau, due to its shrinking properties on clay. These results suggest that the desorption no longer significantly increases once a minimal salinity has been reached (>3.5). This is in agreement with Fig. 5 showing that  $K_d$  are similar in seawater regardless of salinity. This could also explain the salinity threshold found by Ciffroy et al. (2003) and Bale (1987).

Care must thus be taken on desorption results obtained only with  $Na^+$  solution at high concentrations which would lead to an over-estimation of the amount of desorbed Cs due to the absence of the inhibitive effect of  $K^+$ .

#### 4.2. Influence of the duration of the desorption phase

Studies performing experiments in the form of successive desorption (Sakaguchi et al., 2018; Berthail, 2015; Ouaniche, 1984; Yamasaki et al., 2016) were not taken into account as each time that a new desorption media is added, equilibrium is moved, allowing additional Cs to be released.

Durations of desorption phase for RCs ranged between half an hour and 8 months. The desorption was not more important by extending the experiment over one week (Takata et al., 2015), one month (Otosaka and Kobayashi, 2013) or two months (Standring et al. (2002)). Only Stanners and Aston (1982) found that the amount of released Cs is still increasing after few days in their experiments.

The desorption phase for RCs.Lab.Fw ranged between 10 min and ten days. The five studies of RCs.Lab.Fw experiments looking at desorption over time showed a fast increase of release within the first hours and then a plateau. The timescales of these five studies differed and we integrated rate laws in order to compare the desorption rates (Jannasch et al., 1988; Simonsen and Saetra, 2019). This approach assumes that trace element uptake and release, including Cs, are the sum of a complex series of first order reversible reactions (Okumura et al., 2018; Jannasch et al., 1988).

$M_d$  and  $M_s$  being the metal in dissolved and solid phases, each reaction can be written as:  $M_d \xrightleftharpoons[k_{-i}]{k_i} M_s$

Each first-order reaction should verify the linearized equation:

$$-\ln\left(\frac{M_d - [M_d]_e}{[M_i] - [M_d]_e}\right) = (k_i + k_{-i}) \cdot t \quad (3)$$

where  $[M_d]_e$  is the metal in dissolved phase at equilibrium and  $M_i$  the total metal in the solid-liquid system. Demonstration of the equation is available in Simonsen and Saetra (2019) and Jannasch et al. (1988).

Plotting the left member of equation (3) in function of time provides the slope.

Because the number of experimental data points ( $n \approx 5$ ) for each desorption studies was too small, multiple linearization was not possible

and the equation was derived only one time for each experiments (16) with the available points. Observations ranged between 0.17 and 168 h. One analytical curve by experiment is then plotted using exponential transformation of equation (3). The 16 curves are presented in Fig. 6.

The integration allows to define 3 cases (Fig. 6):

- The equation was verified but a significant intercept (different from zero) exists (7/16 experiments; black curves)
- The equation was not verified (slope not significant at 0.05 error) and a significant intercept exists (7/16; dotted blue curves)
- The equation was not verified (2/16) and there is no significant intercept at 0.05 error (dotted red curves)

The significant intercept observed on 14 studies proves the existence of one or more desorption processes at a timescale inferior to 1 h (Jannasch et al., 1988). The fraction of Cs released by these fast processes on the total released is  $86\% \pm 13$  (mean of the intercepts). The non-significant slopes (9/16; case 2 and 3) can be due to the fact that an increasing number of data within the plateau relatively to those in the rising limb minimizes the trend.

These observations lead to the conclusion that Cs desorption in this kind of experimental design is governed by one or more processes on a timescale inferior to 1 h releasing in average 86% of the available Cs, and less frequently by an additional (or more) reaction on timescales inferior to 7 days. This justify the use of at least two reactions for an accurate representation of desorption process for timescales over 1 h.

In modelling, these reactions are usually taken into account through two successive desorption kinetics involving surficial and interlayer sites of clays, they have led to a two box model (or more) used for both saltwater and freshwater (e.g. Comans and Hockley, 1992).

The kinetic of the first reaction is given by the slope coefficient between time 0 (origin) and the first point of measure. These overall rates ( $k_1 + k_{-1}$ ) obtained for the 16 studies range between  $1.10^{-4}$  and  $1.10^{-3} s^{-1}$  (half-reaction time,  $t_{1/2}$ , of 0.2–2 h) similar to those obtained in freshwater (Ciffroy et al., 2003; Benes et al., 1992; Comans and Hockley, 1992). They are theoretically related to surficial sites. The second reaction, theoretically related to interlayer sites, presents overall rates ranging between  $5.10^{-6}$  and  $1.10^{-5} s^{-1}$  (half-reaction time of two days to one week) in seawater, half an order of magnitude above those in freshwater ( $1.10^{-6}$  to  $5.10^{-6}$ ); (Benes et al., 1992; Comans and Hockley, 1992; Ciffroy et al., 2003).

These two reactions are considered to occur consecutively (Comans and Hockley, 1992; Oughton et al., 1997; Ciffroy et al., 2001) or in parallel (Benes et al., 1992; Yamamoto et al., 2015). Since the fast desorption rate of surficial Cs is usually two orders of magnitude higher, most of the slowly released pool of Cs within interlayers must remain available even if the reactions are in parallel. In any case, this difference is not so much important for timescales inferior to one week and does not change the goodness of fit of the models (Benes et al., 1992; Borretzen and Salbu, 2002).

#### 4.3. Influence of the cesium distribution into particles prior to desorption

The existence of different sites with their own affinity for Cs implies that preliminar distribution of cesium on these sites influences the quantities and the dynamics of desorbed Cs. When plotting the values of  $K_d$  obtained after desorption in seawater from experiment RCs.Lab.Fw in function of their  $K_d$  after adsorption in freshwater (8 studies; Fig. 7) we observe a positive and significant correlation ( $R^2 = 0.43$ , p-value =  $2.10^{-14}$ ) and a decrease by a factor 6 in seawater. This leads to the hypothesis that particles presenting high affinity with cesium in freshwater (high  $K_d$ ) partially keep this affinity in seawater.

Consequently, we investigated factors influencing cesium repartition on material and consequences for desorption.

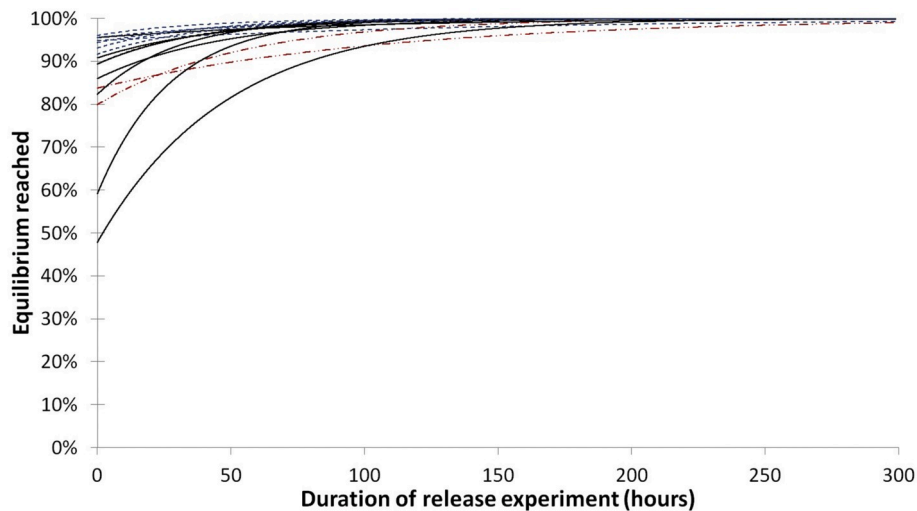


Fig. 6. Compilation of kinetic trends for cesium desorption in seawater. See text for the explanation of the different curves.

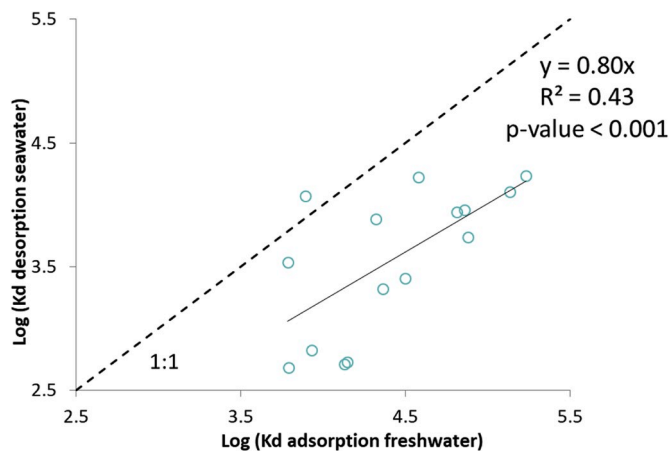


Fig. 7. Cs distribution coefficients ( $K_d$ ) calculated after desorption in seawater Vs  $K_d$  calculation after laboratory sorption. See Table 1 for involved studies.

#### 4.3.1. Influence of material

Authors generally refer to three components as main adsorbents for  $\text{Cs}^+$  with different properties:

- strongly sorbing non-expandable 2:1 phyllosilicates such as micaeous mineral (biotite) or illite with relatively low cation-exchange capacity (CEC) with high affinity sites (Nakao et al., 2014).
- weakly sorbing expandable 2:1 phyllosilicate such as smectite with relatively high CEC (Mckinley et al., 2001).
- organic matter with usually high CEC (Valcke and Cremers, 1994).

Since particles composition is a heterogeneous mixing of mineral and organic phases in different proportions, we can expect a high spatio-temporal variability in the proportion of available sites with their own capacity to sorb Cs. Such heterogeneity may explain the discrepancies in distribution coefficients in freshwater between sites (Boyer et al., 2018; Takahashi et al., 2017). In the case where riverine particles directly reach the coastal zone (small rivers, sea with no tides), the characteristics of the particles regarding Cs fixation can be conserved in seawater, explaining the good relation of Fig. 7.

The important role of the nature of particulate material is highlighted in RCs.Lab.Fw, by the fact that two samples from the same river presents a similar desorption, even if they were not collected at the same time. Ferrer (1983) and Ouaniche (1984) obtained 40% of desorption in

the Rhône river; Clanton (1968) and Reynolds and Gloyna (1964) also obtained 40% in Guadalupe river. Ciffroy et al. (2001) used two samples from the Loire river collected over 6 months, and they found 60–80% of desorption for both.

#### 4.3.2. Influence of the contamination process

Sites with high affinity (FES: Frayed Edge Site) contributes predominantly to Cs sorption at low concentrations under  $10^{-8}\text{M}$  (Sawhney, 1970; Bradbury and Baeyens, 2000). However, they also present the lowest capacity (Nakao et al., 2014) and constitutes only 0.25% of the CEC of the illite (Bradbury and Baeyens, 2000). Once these sites are saturated, excess Cs goes to surficial sites with lower affinity.

Usually the particles spiked for the RCs.Lab.Fw experiment present higher activities than those for RCs. This potentially results in a higher fraction of Cs in surficial sites, more subject to a rapid remobilization.

Beyond that, an increase of solid-to-liquid ratio during the contamination phase leads to a lower desorption. Onodera et al. (2017) found that the desorbed fraction of radiocesium followed a negative power law with a ratio ranging from 0.17 g/L to 10 g/L during the spiking phase. According to the authors, a larger number of strong adsorption sites were available when the solid-to-liquid ratio was higher, leading to an increase of the fraction of strongly adsorbed Cs onto particles and, as a result, desorption became more difficult.

Finally, it is possible that a longer contact time with the Cs solution decreases the amount of extractable Cs from all sites (Okumura et al., 2018).

Comans and Hockley (1992) argued that radiocesium is able to migrate from basal surface sites to interlayer sites and can be incorporated into the mineral as stable Cs. This migration called “aging effect” may impact its mobility; (Madruza and Cremers, 1997; Roig et al., 2007). This effect has been studied in a  $1\text{M Na}^+$  solution only by Mukai et al. (2018) on weathered biotites from Fukushima. They found that a sorption time longer than one week decreased desorbed fraction from 90% to less than 10%, compared to a one day or one week sorption. Biotite sampled at the same site, containing radiocesium post-Fukushima (RCs like experiment) desorbed the same amount of radiocesium. However, it should be noted that this experiment was conducted at pH 4.5, clearly different from those of seawater.

The aging effect has been more studied in experiments using freshwater for both the adsorption and desorption phase. Ciffroy et al. (2001) found that the fraction of Cs released after 24 h decreases by a factor 2 when the duration of the contact time of the sorption phase increases from 30 min to 100 h. Benes et al. (1992) also found that a sorption phase of 5 and 21 days instead of 2 h decreased the fraction of released

Cs by a factor 1.3 and 2 respectively.

From these experiments it seems that a longer sorption phase allows to fix Cs more irreversibly, at least in freshwater media. These results could partly explain why the desorption in RCs experiment is usually lower than for RCs.Lab.Fw and closer to SCs experiment. Indeed the contact time for the samples used in RCs is longer because it corresponds to the delay between the *in-situ* sample contamination and its desorption once the particles are exposed to seawater. This longer delay facilitates Cs migration into the mineral lattice with strong affinity.

## 5. Discussion

The objective of this review is to summarize data from literature in order to precise the efficiency of Cs desorption processes into seawater medium. We show that results issued from two main experimental designs may be used for that purpose. In the first design, RCs, particles have been exposed to  $^{134}\text{Cs}$  or  $^{137}\text{Cs}$  in the field, whereas the second one, RCS. Lab.Fw, concerns the desorption of radiocesium from particles spiked ( $^{134}\text{Cs}$  or  $^{137}\text{Cs}$ ) in laboratory and in freshwater media.

In the case of field exposition, most of the values of desorption fractions are around 3% (Fig. 2), and this is valid for both radiocesium (RCs) and stable Cs (SCs). Furthermore, any sample of particles collected in the environment consequently to a contamination by  $^{137}\text{Cs}$  or  $^{134}\text{Cs}$  (RCs experiment) released in 95% of cases one third or less of its radiocesium (Fig. 3). These results have to be compared with the value proposed by IAEA for the proportion of desorbable Cs in coastal sediments: 20% (IAEA, 2004). Above 20% Fig. 3 shows that a plateau is effectively reached, but this value is clearly above the mode at 3% determined here.

Important points are that the efficiency of desorption (i.e. the fraction of Cs released) does not depend on the duration of desorption, and that an increase of salinity does not influence so much the desorbed fraction.

In RCs.Lab.Fw experiments, samples were highly contaminated and thus different mineral sites with different sorption isotherms may have stored cesium, including those with low affinity. Overall amount of released Cs is higher than for RCs experiment and could reach sometime 87%. Usually, two kinetic rates are observed and 80% of equilibrium is reached in 1 h. A short duration of contamination reduces the “aging” effect resulting in a consequent pool of easily released cesium.

Here, the percentages of desorbed Cs do not follow any regular distribution.

Experimental design RCs.Lab.Fw looks like an “ideal” case based on the fact that there is “no aging”, no change in equilibrium between the fixation of Cs onto particles and their arrival into brackish waters. However, it may correspond to the case where suspended particles are contaminated in freshwater and rapidly reach the sea because of short transit times in rivers. In this case, desorption could be as high as 80%, and it is not possible to predict it regarding the irregular distribution observed here. In case of an accident, an evolution of the Cs desorbed may be thus expected with time, related to the duration of transit of the particles between their contamination and the sea.

This desorption is also dependent on salinity until a certain threshold. Studies showed that for salinity above 2, concentrations of  $\text{K}^+$  ( $5.10^{-5}$  M) and  $\text{Na}^+$  (0.027 M) are in theory sufficient to desorb superficial Cs, but there was no change in desorption from 10 to 35 of salinity.

The repartition of Cs onto different sites of the mineral may thus partly explain the differences in desorbed Cs found between both experiments. The various proportions of adsorption sites between samples plus a possible aging effect are an additional source of variability. For each area of interest, we thus recommend to use a sample representative of the site for the sorption/desorption experiments, in order to properly discuss the dynamics of Cs transfer.

## 6. Conclusion

Desorption of radiocesium from contaminated particles was observed at any salinity above 3, and the fraction desorbed ranges widely from 0 to 86%. For particles containing radiocesium due to an environmental contamination, this range extends from 0 to 64% with a peak at 3%. Particles containing radiocesium issued from a contamination in laboratory show higher values of Cs released and a reaction implying two first-order kinetics. The first one is really short with a half-life reaction time about 1 h, whereas it is of a few days for the second one. These two parallel or successive reactions must be related to sites with different affinity for Cs, and thus radiocesium distribution on mineral prior to desorption is a key factor to take into account.

As a result, a two kinetic box-model calibrated for each site of interest is suitable to predict more accurately desorbed cesium at the interface. However, these conceptual models should be supported by recent developments on clay mineral structures and avoid over parametrization.

## Declaration of competing interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

## Acknowledgments

The authors are indebted to the Institute for Radiological Protection and Nuclear Safety (IRSN) and to Region Sud (Provence-Alpes-Côte d'Azur) authorities for the PhD funding. We thank the CRIS (Centre de ressources en informations scientifiques et techniques) of IRSN for their help to provide various documents. This study was conducted within the Rhône Sediment Observatory (OSR) program, a multi-partner research program funded through Plan Rhône of the European Regional Development Fund (ERDF), Agence de l'Eau Rhône Méditerranée Corse, CNR, EDF and three regional councils (Région Auvergne-Rhône-Alpes, PACA and Occitanie).

## References

- Bale, A., 1987. The Characteristics Behaviour and Heterogeneous Chemical Reactivity of Estuarine Suspended Particles. PhD report. University of Plymouth, 216 pp.
- Benes, P., Cernik, M., Lam Ramos, P., 1992. Factors affecting interaction of radiocesium with freshwater solids. *J. Radioanal. Nucl. Chem. I* (2), 201–218.
- Berthail, T., 2015. Détermination des phases porteuses et de la réactivité du  $^{137}\text{Cs}$  dans les sédiments marins au large de la centrale de Fukushima. Master report. Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Lille, 47 pp.
- Borretzen, P., Salbu, B., 2002. Fixation of Cs to marine sediments estimated by a stochastic modelling approach. *J. Environ. Radioact.* 61 (1), 1–20. [https://doi.org/10.1016/S0265-931X\(01\)00107-2](https://doi.org/10.1016/S0265-931X(01)00107-2).
- Boyer, P., Wells, C., Howard, B., 2018. Extended Kd distributions for freshwater environment. *J. Environ. Radioact.* 192, 128–142. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.06.006>.
- Bradbury, M.H., Baeyens, B., 2000. A generalised sorption model for the concentration dependent uptake of caesium by argillaceous rocks. *J. Contam. Hydrol.* 42 (2–4), 141–163.
- Brisbin, I., Beyers, R., Dapson, R., 1974. Patterns of radiocesium in the sediments of a stream channel contaminated by production. *Health Phys.* 27, 19–27.
- Cheng, H.S., Hamaguchi, H., 1968. Studies on the adsorption of radioisotopes on marine sediments. *Health Phys.* 14, 353–363.
- Ciffroy, P., Garnier, J.M., Benyahya, L., 2003. Kinetic partitioning of Co, Mn, Cs, Fe, Ag, Zn and Cd in fresh waters (Loire) mixed with brackish waters (Loire estuary): experimental and modelling approaches. *Mar. Pollut. Bull.* 46 (5), 626–641. [https://doi.org/10.1016/S0025-326X\(02\)00517-9](https://doi.org/10.1016/S0025-326X(02)00517-9).
- Ciffroy, P., Garnier, J.M., Khanh Pham, M., 2001. Kinetics of the adsorption and desorption of radionuclides of Co, Mn, Cs, Fe, Ag and Cd in freshwater systems: experimental and modelling approaches. *J. Environ. Radioact.* 55 (1), 71–91. [https://doi.org/10.1016/S0265-931X\(01\)00026-1](https://doi.org/10.1016/S0265-931X(01)00026-1).
- Clanton, 1968. Sorption and Release of Strontium-89 and Cesium-137 by Recent Sediments of the Guadalupe River of Texas. PhD report. University of Texas at Austin, 80 pp.
- Comans, R.N.J., Hockley, D.E., 1992. Kinetics of cesium sorption on illite. *Geochem. Cosmochim. Acta* 56 (3), 1157–1164. [https://doi.org/10.1016/0016-7037\(92\)90053-L](https://doi.org/10.1016/0016-7037(92)90053-L).

- Davison, W., Spezzano, P., Hilton, J., 1993. Remobilization of caesium from freshwater sediments. *J. Environ. Radioact.* 19, 109–124.
- Desai, D.V., Sathi, S.K., Pillai, K.C., 1994. Influence of major cations of sea water on the desorption of <sup>137</sup>Cs from marine sediments. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 187 (3), 197–205.
- El-Assy, N.B., Fattah, A.T., Essa, M.W.A., 1991. Adsorption-Desorption equilibria of some radionuclides in sediment-sea water system. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 152 (1), 31–35.
- Evans, D.W., Alberts, J.J., Clark, R.A., 1983. Reversible ion-exchange fixation of cesium-137 leading to mobilization from reservoir sediments. *Geochem. Cosmochim. Acta* 47 (6), 1041–1049. [https://doi.org/10.1016/0016-7037\(83\)90234-X](https://doi.org/10.1016/0016-7037(83)90234-X).
- Eyrolle, F., Charmasson, S., 2004. Importance of colloids in the transport within the dissolved phase (< 450 nm) of artificial radionuclides from the Rhône river toward the Gulf of Lions (Mediterranean sea). *J. Environ. Radioact.* 72 (3), 273–286. [https://doi.org/10.1016/S0265-931X\(03\)00178-4](https://doi.org/10.1016/S0265-931X(03)00178-4).
- Fan, Q., Tanaka, K., Sakaguchi, A., Kondo, H., Watanabe, N., Takahashi, Y., 2014. Applied geochemistry factors controlling radiocesium distribution in river sediments: field and laboratory studies after the Fukushima dai-ichi nuclear power plant accident. *Appl. Geochem.* 48, 93–103. <https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2014.07.012>.
- Ferrer, M.C., 1983. Etude expérimentale du comportement de huit radionucléides artificiels lors des cours terminal du Rhône. PhD report. *Université de Bordeaux*, 147 pp.
- Fuhrmann, M., Zhou, H., Neiheisel, J., Shoonen, M.A.A., Dyer, R., 2001. Sorption of radioactive contaminants by sediment from the Kara Sea. *Mar. Pollut. Bull.* 43 (1–6), 102–110. [https://doi.org/10.1016/S0025-326X\(00\)00232-0](https://doi.org/10.1016/S0025-326X(00)00232-0).
- Ganapathy, S., Pillar, K.C., Ganguly, A.K., 1968. Adsorption of trace elements by near shore sea bed sediments. Bhabha Atomic Research Centre Bombay.
- García-Sánchez, L., Konoplev, A.V., 2009. Watershed wash-off of atmospherically deposited radionuclides: a review of normalized entrainment coefficients. *J. Environ. Radioact.* 100, 774–778. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2008.08.005>.
- Garnier-Laplace, J., Beaugelin-Seiller, K., Hinton, T.G., 2011. Fukushima wildlife dose reconstruction signals ecological consequences. *Environ. Sci. Technol.* 45 (12), 5077–5078. <https://doi.org/10.1021/es201637c>.
- IAEA, 2004. Sediment Distribution Coefficients and Concentrations Factors for Biota in the Marine Environment, vol. 422. Tech-doc, Vienna, 95pp.
- Jannasch, H.W., Honeyman, B.D., Balistrieri, L.S., James, W.M., 1988. Kinetics of trace element uptake by marine particles. *Geochem. Cosmochim. Acta* 52 (2), 567–577. [https://doi.org/10.1016/0016-7037\(88\)90111-1](https://doi.org/10.1016/0016-7037(88)90111-1).
- Kakehi, S., Kaeriyama, H., Ambe, D., Ono, T., Ito, S., Shimizu, Y., Watanabe, T., 2016. Radioactive cesium dynamics derived from hydrographic observations in the Abukuma River Estuary, Japan. *J. Environ. Radioact.* 153, 1–9. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.11.015>.
- Kleinot, J., 1994. Interaction of radionuclides with estuarine sediments. PhD report. University of London.
- Knapinska-Skiba, D., Bojanowski, R., Radecki, Z., 1994. Sorption and release of radicaesium from particulate matter of the baltic coastal zone. *Neth. J. Aquat. Ecol.* 28 (3–4), 413–419.
- Kusakabe, M., Oikawa, S., Takata, H., Misonoo, J., 2013. Spatiotemporal distributions of Fukushima-derived radionuclides in nearby marine surface sediments. *Biogeosciences* 5019–5030. <https://doi.org/10.5194/bg-10-5019-2013>.
- Madruka, M., Cremers, A., 1997. Effect of ionic composition and temperature on the radiocesium fixation in freshwater sediments. *Water Air Soil Pollut.* 99 (1–4), 201–208.
- Matishov, D., Matishov, G., Kasatkina, N., 2006. <sup>137</sup>-Cs exchange processes in the Azov Sea. In: *Proceedings of International Conference in Monaco. Isotopes in Environmental Studies*, pp. 25–29. October 2004.
- Mattsson, S., Moberg, L., Moberg, L. (Eds.), 1991. Fallout from Chernobyl and Atmospheric Nuclear Weapons Tests Chernobyl in Perspective. Swedish Radiation Protection Institute, Sweden.
- McKinley, J.P., Zeissler, C.J., Zachara, J.M., Jeffrey Serne, R., Lindstrom, R.M., Schaeff, H. T., Orr, R.D., 2001. Distribution and retention of <sup>137</sup>Cs in sediments at the hanford site, Washington. *Environ. Sci. Technol.* 35 (17), 3433–3441. <https://doi.org/10.1021/es0018116>.
- Mela, M.P., 1962. Fixation of ammonium by clay minerals in relation to some probable effect on the vegetative development of plants. *Soil Sci.* 93 (3), 189–194.
- Meybeck, M., Moatar, F., 2014. Daily variability of suspended particulate concentrations and yields and their effect on river particulates chemistry. In: *Sediment Dynamics from the Summit to the Sea, Louisiana, USA, 11–14 December 2014*, vol. 367. IAHS Publ, 2014.
- Mukai, H., Tamura, K., Kikuchi, R., Takahashi, Y., Yaita, T., Kogure, T., 2018. Cesium desorption behavior of weathered biotite in Fukushima considering the actual radioactive contamination level of soils. *J. Environ. Radioact.* 190–191, 81–88. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.05.006>.
- Nakao, A., Ogasawara, S., Sano, O., Ito, T., Yanai, J., 2014. Radiocesium sorption in relation to clay mineralogy of paddy soils in Fukushima, Japan. *Sci. Total Environ.* 469, 523–529.
- Naulier, M., Eyrolle-boyer, F., Boyer, P., Métivier, J., Onda, Y., 2017. Particulate organic matter in rivers of Fukushima: an unexpected carrier phase for radiocesiums. *Sci. Total Environ.* 579, 1560–1571. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.11.165>.
- Okumura, M., Kerisit, S., Bourg, I.C., Lammers, L.N., Ikeda, T., Sassi, M., Machida, M., 2018. Radiocesium interaction with clay minerals: theory and simulation advances Post-Fukushima. *J. Environ. Radioact.* 189, 135–145. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.03.011>.
- Onishi, Y., Serne, R., Arnold, E., Cowen, C., Thompson, F., 1981. Critical Review: Radionuclide Transport, Sediment Transport, and Water Quality Mathematical Modeling; and Radionuclide Adsorption/desorption Mechanisms. Technical report. Battelle Pacific Northwest Labs, Richland, WA (United States).
- Onodera, M., Kirishima, A., Nagao, S., Takamiya, K., Ohtsuki, T., Akiyama, D., Sato, N., 2017. Desorption of radioactive cesium by seawater from the suspended particles in river water. *Chemosphere* 185, 806–815. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2017.07.078>.
- Otosaka, S., Kobayashi, T., 2013. Sedimentation and remobilization of radiocesium in the coastal area of Ibaraki, 70 km south of the Fukushima dai-ichi nuclear power plant. *Environ. Monit. Assess.* 185 (7), 5419–5433. <https://doi.org/10.1007/s10661-012-2956-7>.
- Ouaniche, D., 1984. Influence de la matière organique sur la distribution de 4 radioéléments entre les phases solubles et particulaires dans des milieux à salinité variable. PhD report. Université Aix-Marseille, 151 pp.
- Oughton, D.H., Borretzen, P., Salbu, B., Tronstad, E., 1997. Mobilisation of <sup>137</sup>Cs and <sup>90</sup>Sr from sediments: potential sources to arctic waters. *Sci. Total Environ.* 202 (1–3), 155–165. [https://doi.org/10.1016/S0048-9697\(97\)00112-5](https://doi.org/10.1016/S0048-9697(97)00112-5).
- Patel, 1978. Desorption of radioactivity from the nearshore sediment. *Estuar. Coast Mar. Sci.* 221, 49–58.
- Reynolds, Gloyna, 1964. Uptake and release of radionuclides by stream sediments. *Water Pollution Control Federation* 36 (3), 279–280.
- Robertson, D.E., Silker, W.B., Petersen, M.R., Langford, J.C., 1973. Pacific Northwest Laboratory 2, 81–84.
- Roig, M., Vidal, M., Rauret, G., Rigol, A., 2007. Prediction of radionuclide aging in soils from the Chernobyl and Mediterranean areas. *J. Environ. Qual.* 36 (4), 943–952.
- Sadaoui, M., Ludwig, W., Bourrin, F., Raimbault, P., 2016. Controls, budgets and variability of riverine sediment fluxes to the Gulf of Lions (NW Mediterranean Sea). *J. Hydrol.* 540, 1002–1015. <https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2016.07.012>.
- Saengkul, C., Pakkong, P., Pachana, K., Sawangwong, P., 2013. <sup>137</sup>Cs adsorption and desorption on marine sediments from the upper Gulf of Thailand. *Advanced Materials Research* 770, 339–342. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/AMR.770.339>.
- Sakaguchi, A., Chiga, H., Tanaka, K., Tsuruta, H., Takahashi, Y., 2018. Estimation of desorption ratios of radio/stable caesium from environmental samples (aerosols and soils) leached with seawater, diluted seawater and ultrapure water. *Geochem. J.* 52 (2), 187–199. <https://doi.org/10.2343/geochemj.20496>.
- Sanial, V., Buesseler, K.O., Charette, M.A., Nagao, S., 2017. Unexpected source of Fukushima-derived radiocesium to the coastal ocean of Japan. *Proc. Natl. Acad. Sci. Unit. States Am.* <https://doi.org/10.1073/pnas.1708659114>, 201708659.
- Sawhney, B.L., 1970. Potassium and cesium ion selectivity in relation to clay mineral structure. *Clay Clay Miner.* 18, 47–52.
- Sayers, A., 2007. Tips and tricks in performing a systematic review. *Br. J. Gen. Pract.* 57 (538), 759.
- Simonsen, M., Saetra, O., 2019. Determination of Transformation Rates from Sorption and Desorption Measurement. Technical report, 10 pp.
- Sposito, G., Skipper, N.T., Sutton, R., Park, S.H., Soper, A.K., Greathouse, J.A., 1999. Surface geochemistry of the clay minerals. *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 96 (7), 3358–3364. <https://doi.org/10.1073/pnas.96.7.3358>.
- Standing, W.J., Oughton, D., Salbu, B., 2002. Potential remobilization of <sup>137</sup>Cs, <sup>60</sup>Co, <sup>99</sup>Tc, and <sup>90</sup>Sr from contaminated mayak sediments in river and estuary environments. *Environ. Sci. Technol.* 36 (11), 2330–2337.
- Stanners, D.A., Aston, S.R., 1982. Desorption of <sup>106</sup>Ru, <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs, <sup>144</sup>Ce and <sup>241</sup>Am from intertidal sediment contaminated by nuclear fuel reprocessing effluents. *Estuarine. Coastal Shelf Sci.* (14), 687–691.
- Tagami, K., Uchida, S., 2013. Seawater, sediment-seawater distribution coefficient for radionuclides and estimation of radionuclide desorption ratio from soil in seawater. *Jpn. Soc. Anal. Chem.* 62 (6), 527–533.
- Takahashi, Y., Fan, Q., Suga, H., Tanaka, K., Sakaguchi, A., 2017. Comparison of solid-water partitions of radiocesium in river waters in Fukushima and Chernobyl areas. *Sci. Rep.* 1–11 <https://doi.org/10.1038/s41598-017-12391-7>.
- Takata, H., Hasegawa, K., Oikawa, S., Kudo, N., Ikenoue, T., Isono, R.S., Kusakabe, M., 2015. Remobilization of radiocesium on riverine particles in seawater: the contribution of desorption to the export flux to the marine environment. *Mar. Chem.* 176, 51–63. <https://doi.org/10.1016/j.marchem.2015.07.004>.
- Tomczak, W., Boyer, P., Krimissa, M., Radakovitch, O., 2019. Kd distributions in freshwater systems as a function of material type, mass-volume ratio, dissolved organic carbon and pH. *Appl. Geochem.* 105, 68–77.
- Topcuoğlu, S., Güngör, N., Kirbaşoğlu, Ç., 2002. Distribution coefficients (Kd) and desorption rates of <sup>137</sup>Cs and <sup>241</sup>Am in black sea sediments. *Chemosphere* 49, 1367–1373. [https://doi.org/10.1016/S0045-6535\(02\)00290-4](https://doi.org/10.1016/S0045-6535(02)00290-4).
- Torstenfelt, B., Andersson, K., Allard, B., 1982. Sorption of strontium and cesium on rocks and minerals. *Chem. Geol.* 36, 123–137.
- Trapeznikov, A., Aarkrog, A., Pozolotina, V., Nielsen, S.P., Trapeznikova, V., Yushkov, P., Polikarpov, G., 1995. Radionuclides in the Ob-Irtysh river region system and their contribution to pollution of the Arctic. In: Strand, P., Cooke, A. (Eds.), *Environmental Radioactivity in the Arctic*. Norwegian Radiation Protection Authority, Østerås, pp. 68–71.
- Valcke, E., Cremers, A., 1994. Sorption-desorption dynamics of radiocesium in organic matter soils. *Sci. Total Environ.* 157 (C), 275–283. [https://doi.org/10.1016/0048-9697\(94\)90590-8](https://doi.org/10.1016/0048-9697(94)90590-8).
- Walling, D., He, Q., 1999. Improved models for estimating soil erosion rates from cesium-137 measurements. *J. Environ. Qual.* 28 (2), 611–622. <https://doi.org/10.2134/jeq1999.00472425002800020027x>.
- Wauters, J., Vidal, M., Elsen, A., Cremers, A., 1996. Prediction of solid/liquid distribution coefficients of radiocesium in soils and sediments. Part two: a new



- procedure for solid phase speciation of radiocaesium. *Appl. Geochem.* 11 (4), 595–599. [https://doi.org/10.1016/0883-2927\(96\)00028-5](https://doi.org/10.1016/0883-2927(96)00028-5).
- Yamamoto, K., Tagami, K., Uchida, S., Ishii, N., 2015. Model estimation of <sup>137</sup>Cs concentration change with time in seawater and sediment around the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant site considering fast and slow reactions in the seawater-sediment systems. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 304 (2), 867–881. <https://doi.org/10.1007/s10967-014-3897-0>.
- Yamasaki, S., Imoto, J., Furuki, G., Ochiai, A., Ohnuki, T., Sueki, K., Utsunomiya, S., 2016. Radioactive Cs in the estuary sediments near Fukushima daiichi nuclear power plant. *Sci. Total Environ.* 551–552, 155–162. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.01.155>.
- Yamashiki, Y., Onda, Y., Smith, H.G., Blake, W.H., Wakahara, T., Igarashi, Y., Yoshimura, K., 2014. Radiocaesium to the ocean from the largest Nuclear Power Plant. *Sci. Rep.* 1–7. <https://doi.org/10.1038/srep03714>.
- Yin, X., Takahashi, H., Inada, Y., Takeshita, K., 2016. Desorption of cesium ions from vermiculite with sea water by hydrothermal process. *Chem. Lett.* 45, 256–258. <https://doi.org/10.1246/cl.151045>.
- Zachara, J.M., Smith, S.C., Liu, C., McKinley, J.P., Serne, R.J., Gassman, P.L., 2002. Sorption of Cs<sup>+</sup> to micaceous subsurface sediments from the Hanford site, USA. *Geochem. Cosmochim. Acta* 66 (2), 193–211. [https://doi.org/10.1016/S0016-7037\(01\)00759-1](https://doi.org/10.1016/S0016-7037(01)00759-1).

### V.1.1. Synthèse de l'article

Cet article révèle une grande disparité dans l'intensité de désorption observée. Une première hypothèse formulée pour expliquer cette variabilité était l'influence de la nature de la particule, différente d'un site à l'autre. Cependant, il est apparu que l'intensité de désorption change avec le design expérimental. Les expérimentations ou la contamination des particules à lieu en laboratoire peuvent montrer des quantités de césium désorbé par la suite supérieures à 80%, tandis que les particules ayant adsorbé du césium en milieu naturel ne relarguent en général que 3% de leur activité en milieu salé. Dès lors, une seconde hypothèse avancée est qu'un paramètre important est l'historique de la contamination des particules. Cette historique inclut les conditions dans laquelle elles ont été contaminées (temps d'adsorption, durée depuis l'adsorption, concentrations en MES) qui influent sur leur capacité à relarguer le césium par la suite. L'effet « vieillissement » déjà évoqué par Benes et al. (1992) en eau douce est donc particulièrement important. Cette synthèse a aussi permis d'observer que même si les particules désorbent mieux en eau salée, l'intensité de désorption n'est pas forcément croissante avec la salinité. Enfin, nous concluons que la désorption est régie par au moins deux cinétiques de premier ordre et confirmons la nécessité de faire des expérimentations propres aux sites pour caler ces cinétiques.

Dans la continuité de cette review, nous avons donc planifié et dimensionné des expérimentations de laboratoire en utilisant des particules du Rhône pour :

- Estimer leur intensité de désorption en milieu salé
- Confirmer les cinétiques de désorption
- Tester l'influence du gradient de salinité sur la désorption (linéaire ou à seuil)
- Tester l'influence de l'effet vieillissement sur la désorption. Ce processus bien documenté pour les sols (Mukai et al., 2018) n'a pas encore été investigué en milieu salé.

## V.2. Déroulement de l'expérimentation de laboratoire

Pour répondre aux objectifs de l'expérimentation cités ci-dessus, nous avons choisi un design du type « RCS.Lab.Fw » décrit dans la review. C'est-à-dire que la sorption et la désorption sont effectuées en laboratoire. La sorption se fait en eau douce, la désorption sous trois valeurs de salinité : 0, 4 et 37. Ces deux dernières correspondent respectivement à la salinité « seuil » délimitée dans la review et à la teneur en mer Méditerranée.

Trois temps de sorption ont été fixés : 1 h, 3 jours et 30 jours. 1h et 30j sont assez extrêmes et permettront un calage des cinétiques assez robuste. Le temps de sorption intermédiaire de 3 jours correspond lui à un temps de parcours classique de la radioactivité dans le Rhône depuis une installation nucléaire jusqu'à la mer selon les temps de parcours du Chapitre III.

Des prélèvements ont été effectués à différents moments et pour différentes salinités de désorption à l'issue de ces trois phases de sorptions. Le planning et le déroulement de l'expérimentation sont décrits en Figure IV-1.



### V.2.1. Phase de Sorption

La source mère radioactive utilisée est fabriquée par le Laboratoire d'Étalons d'Activités (LEA), filiale d'ORANO. Elle est préalablement diluée dans 5 ml d'eau du Rhône et avec un ajout de NaOH pour compenser la variation de pH qu'elle induit. Cette source diluée (27000 Bq d'activité de  $^{137}\text{Cs}$ ) est introduite dans une bouteille en polycarbonate contenant des particules du Rhône (500 mg) remises en suspension avec de l'eau du Rhône filtrée (245 ml). Les particules sont issues d'une collecte par piège à particules en Arles et lyophilisées (mais non broyées). La remise en suspension est faite 2 h en avance avec un barreau aimanté, car des tests préliminaires ont montré qu'une remise en suspension inférieure à 2 h laissait un dépôt de particules beaucoup plus important sur le fond. L'expérimentation de sorption se fait en duplicat A et B, et des blancs sans particules ont été réalisés pour vérifier qu'il n'y ait pas d'adsorption sur les parois. La sorption du  $^{137}\text{Cs}$  sur les particules commence à cet instant.

L'activité devant être injectée a été calculée en faisant les hypothèses qu'une sorption d'au moins 90% aurait lieu sur les particules (fortement appuyé par la littérature) et que pour une concentration en solution de 40 mg/L de particules en eau saumâtre, une désorption de 5% ou plus produirait au minimum 20 Bq en solution (limite pour laquelle les spectres pour l'analyse en gamma n'ont pas à être retraités).

Le mélange une fois homogène après l'ajout de la source ( $t < 1\text{h}$ ), un prélèvement de 1 ml de suspension est fait sans filtration pour compter l'activité totale de la suspension. La même procédure est effectuée à la fin de l'expérimentation, car en comparant l'activité totale initiale et finale on peut vérifier si les prélèvements effectués au cours de l'expérimentation ont été fait de manière homogène (même proportion d'eau et de particule prélevée). Des prélèvements de 10 ml de la suspension sont effectués à intervalles réguliers et filtrés pour compter l'activité en phase dissoute jusqu'à  $t = 38$  jours et suivre ainsi la sorption. Enfin, des séries de prélèvements non filtrés de 5ml sont fait et réintroduits dans des batchs d'eaux douce ou salée pour démarrer la phase de désorption.

### V.2.2. Phase de désorption

Trois séries de batch de désorption sont créés en extrayant 5ml des batchs de sorption et en les réinjectant dans des eaux saumâtres sans activité. Ces eaux saumâtres sont obtenues en mélangeant dans les proportions adéquates l'eau du Rhône et l'eau de la mer Méditerranée filtrées.

Les batchs de désorption ainsi obtenus doivent avoir une concentration moyenne de 40 mg/L ce qui est un compromis entre la concentration observée dans les eaux du Rhône (généralement inférieure) et le fait d'avoir suffisamment d'activité mesurable en phase dissoute en cas de désorption. A noter qu'il n'est pas possible d'évaluer la concentration en particules dans ces batchs. Comme pour la sorption, la désorption est faite en duplicat et les batch de sorption A et B génèrent les batchs de désorption A et B.

Comme exposé en V-I, une première série de 3 batchs (salinité 0, 4 et 37) est créé à  $t_{\text{sorption}} = 1\text{h}$ , une autre de 8 batchs (salinité 0, 4, 8, 12, 18, 25, 30 et 37) à  $t_{\text{sorption}} = 3$  jours et une dernière de 3 batchs (salinité 0, 4, 37) à  $t_{\text{sorption}} = 31$  jours. 20 mL de suspension sont prélevées à intervalles régulier pour analyser la phase dissoute jusqu'à

t=31 j (dernier temps non montré en 10 ml sont aussi extraits à la création du batch de désorption et à la fin de l'expérimentation pour vérifier que les prélèvements ont été faits de manière homogène, ainsi que pour calculer combien de particules ont été introduites en solution lors de la phase de désorption.

### V.3. Résultats et discussion

#### V.3.1. Sorption

Les résultats des expériences de sorption (moyenne des deux réplicats) sont présentés en Figure V-2. La sorption augmente très rapidement jusqu'à 90% en moins d'une heure puis continue à monter jusqu'à la fin de l'expérimentation pour arriver à 99% d'activité sorbée à 38 jours. Ces résultats sont en accord avec d'autres expérimentations de sorption de césium sur des MES en eau douce pour cette gamme de concentration en MES (Clanton, 1968 ; Onodera et al., 2017).

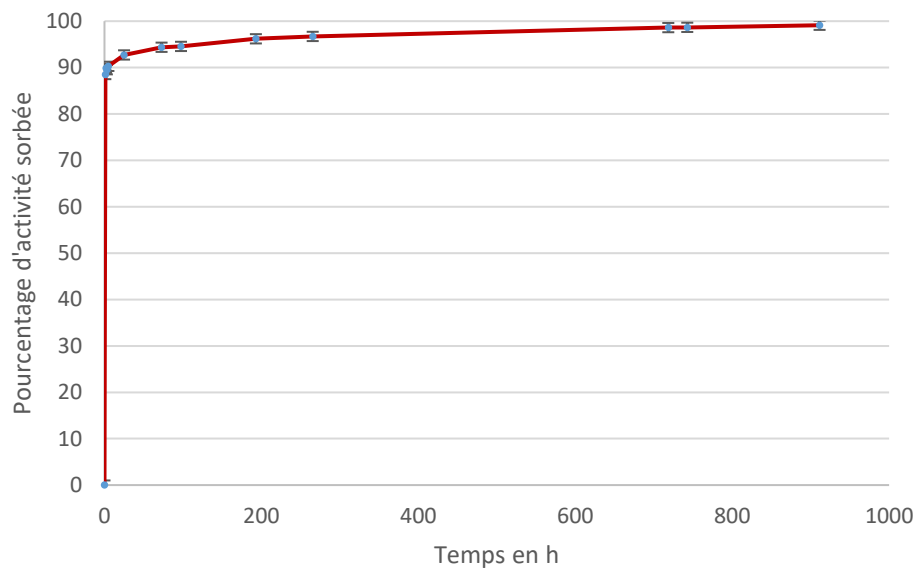


Figure V-2 : Pourcentage d'activité de césium sorbée sur les particules du Rhône en fonction du temps (Concentration en MES = 2 g/L).

#### V.3.2. Désorption

Les résultats de toutes les expérimentations de désorption sont compilés dans la Figure V-3.

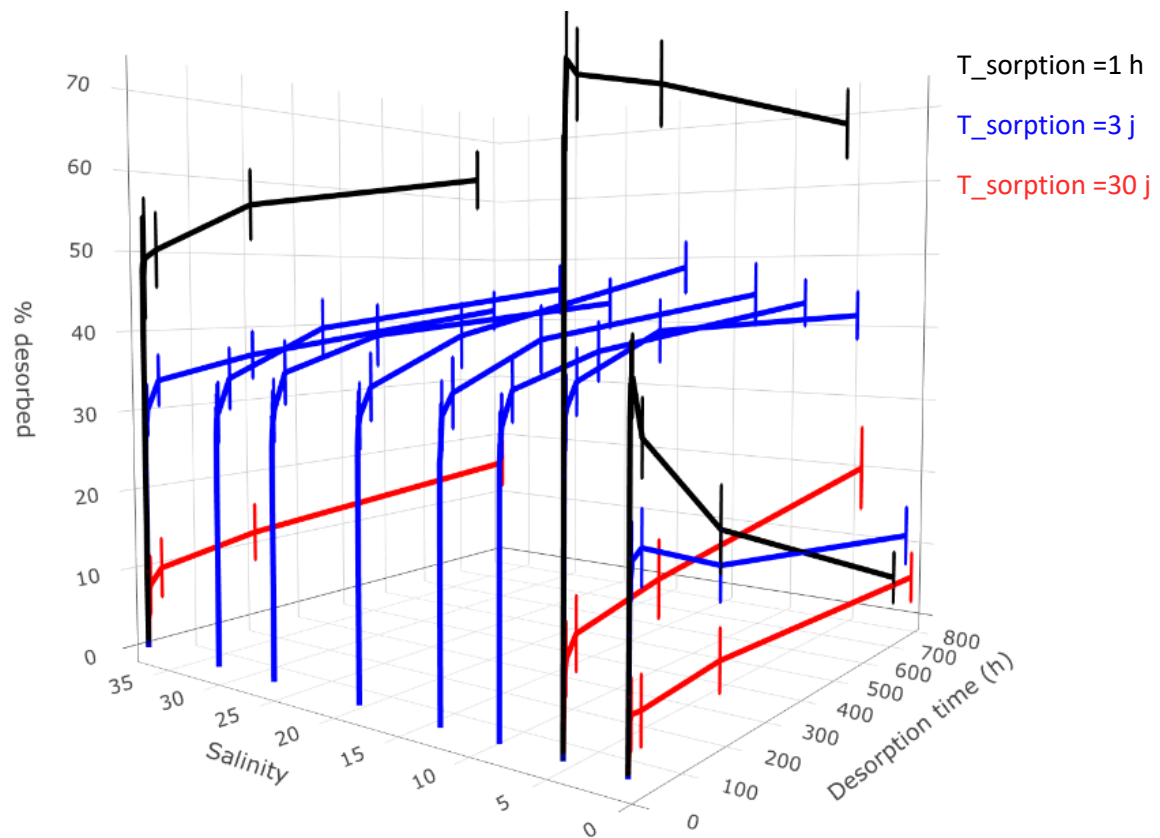
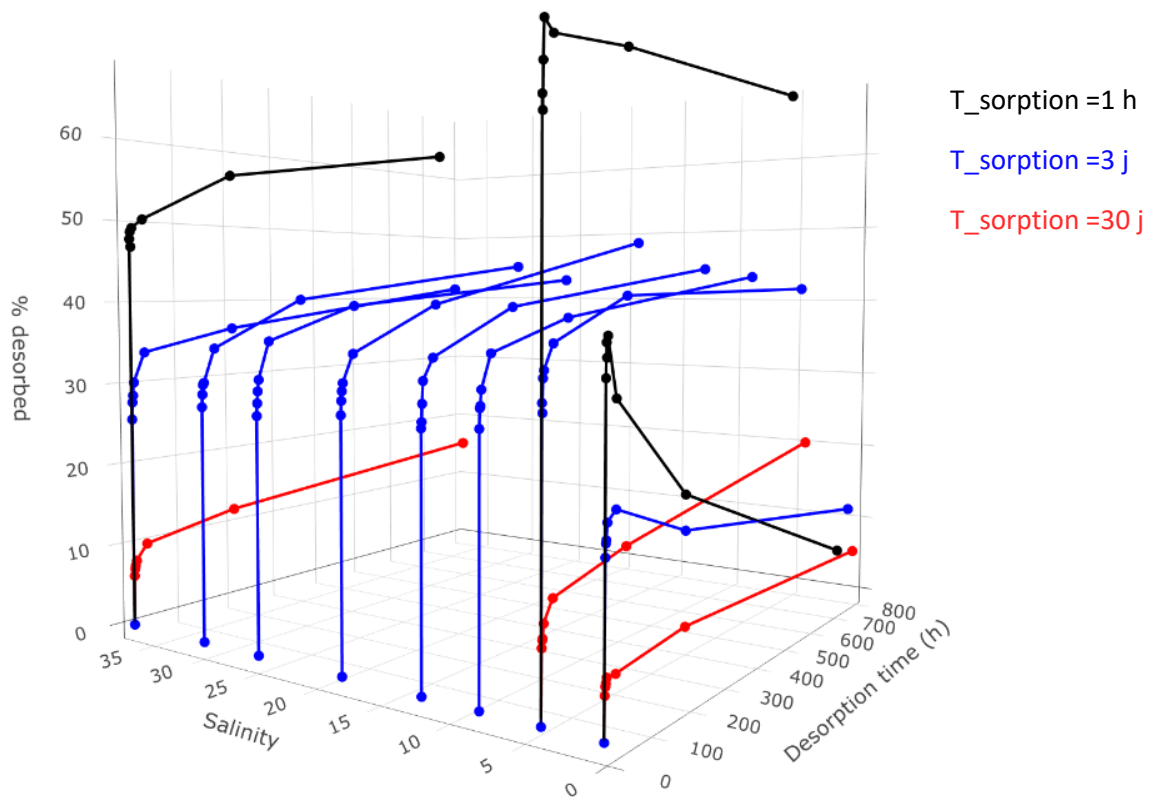


Figure V-3 : Pourcentage d'activité désorbée de césium en fonction du temps et de la salinité sans et avec incertitudes pour plus de lisibilité.

#### *V.3.2.a. Cinétiques de désorption*

Les courbes de désorption en fonction du temps ont l'allure d'exponentielles superposées et mettent en évidence la succession de cinétiques du premier ordre. Dans les expérimentations cités dans la review (Delaval et al ; 2020), 80% de l'équilibre est atteint dès le premier point de mesure, pris à t=7 jours dans la plupart des expérimentations. Ici, nos données à t=7 jours sont plutôt à 60 et 70% de l'équilibre atteint, voire 50% pour les sorptions de 31 jours (courbes rouges). On peut noter que les expérimentations de Ferrer, (1983) montraient déjà une cinétique plus lente pour les particules du Rhône comparées aux autres échantillons de la review.

#### *V.3.2.b. Temps de sorption*

Le temps de sorption apparait ici comme un facteur très important car les intensités de désorption sont significativement différentes selon ce temps. Si l'on fait abstraction de la désorption en eau douce, l'intensité de désorption passe en moyenne de 65% avec 1h de sorption à 42% pour 3j de sorption. Enfin, elle passe à 17% avec 31j de sorption. Même les salinités maximales ne sont pas aptes à libérer plus de césium.

#### *V.3.2.c. Influence du gradient de salinité*

On constate que toutes les expérimentations effectuées à 0 de salinité la désorption se fait moins que pour les autres salinités, et ce pour les 3 conditions de sorption différentes. On constate aussi une réadsorption de césium, de plus en plus tardive avec la durée de la sorption. Si l'on regarde pour une sorption de 3 j (courbes bleues) là où le gradient est le plus complet, on constate que les salinités de 4 et au-delà présentent des intensités de désorption similaires aux environ de 42%. Ces observations corroborent l'hypothèse d'une « salinité seuil » exposée dans la review.

#### *V.3.2.d. Intensité de désorption et synthèse*

Nous parvenons à reproduire une large gamme d'intensités de désorption avec l'étendue de cette expérimentation. Les intensités les plus faibles sont celles à 0 de salinité après un temps de sorption de 31j, avec une moyenne désorbée de 5,6%. Les plus élevées sont à 4 de salinité après un temps de sorption de 1h avec une moyenne désorbée de 64%. Cette large gamme d'intensités est modulée en grande partie par le temps de sorption et démontre l'implication de ce paramètre. C'est une confirmation des hypothèses de la review qui expliquerait ainsi les différences entre les deux designs expérimentaux présentés en V.1. Les particules contaminées dans l'environnement, récoltées puis mises à désorber en laboratoire ont systématiquement un « historique » plus long que celles contaminées en laboratoire, car elles ont un temps de contact généralement plus important qu'en laboratoire. Nous avons vu que ce seul temps de contact peut réduire la désorption à 15%, ce qui est une valeur rencontrée ou dépassée 30% du temps dans l'expérimentation RCs (Delaval et al. 2020). Par ailleurs, elles peuvent subir des changements d'équilibres plus nombreux via par exemple des eaux non contaminée apportées par des affluents, favorisant alors le placement du césium dans les sites difficilement désorbables et réduisant drastiquement l'intensité de désorption.

### V.3.2.e. Comparaison avec la distribution in-situ en Arles

Les distributions observées en laboratoire sont-elles cohérentes avec celles observées in-situ ? La Figure V-4 compile les coefficients de distribution mesurés en Arles (moyennés sur 1 mois) lors de ces 20 dernières années (données IRSN, Kd fournis par P. Boyer, comm. perso). Ils sont comparés avec les Kd calculés à différents moments de l'expérimentation :  $K_{d_{ads=1h}}$ ,  $K_{d_{ads=3j}}$ ,  $K_{d_{ads=38j}}$  et  $K_{d_{ads=31 \text{ jours}+des=31 \text{ j}}}$ . Le dernier Kd est différent puisqu'il correspond au résultat de la désorption au bout de 30 j de particules ayant été contaminées pendant 30 j ce qui implique que cet échantillon a eu un changement d'équilibre supplémentaire comparé aux autres.

On constate que les Kd mesurés in-situ sont compris entre  $K_{d_{ads=3j}}$  et  $K_{d_{ads=38 \text{ jours}+des=31 \text{ j}}}$ . On peut donc faire l'hypothèse raisonnable que les particules en Arles ont une répartition en césium intermédiaire entre celle représentant plus des conditions de rejet ( $K_{d_{ads=3j}}$ , 72 h étant un temps de parcours raisonnable entre une installation nucléaire et Arles d'après II), et celle consécutive à un « effet vieillissement » plus prononcé et des changements d'équilibres plus importants ( $K_{d_{ads=38 \text{ jours}+des=31 \text{ j}}}$ ) qui est plus proche d'une répartition du césium sur les particules du bassin versant. Ceci est en accord avec (J.M. Martin and Thomas, (1990) qui observaient un Kd plus bas en aval du centre de Marcoule qu'en amont. Enfin, (Eyrolle et al., 2020) indiquent que la proportion de césium arrivant du bassin versant a augmenté dans le temps, ce qui expliquerait l'augmentation des valeurs hautes de Kd observées en Arles après 2012 (Figure IV-4) plus proches des Kd des expérimentations de sorptions longues.

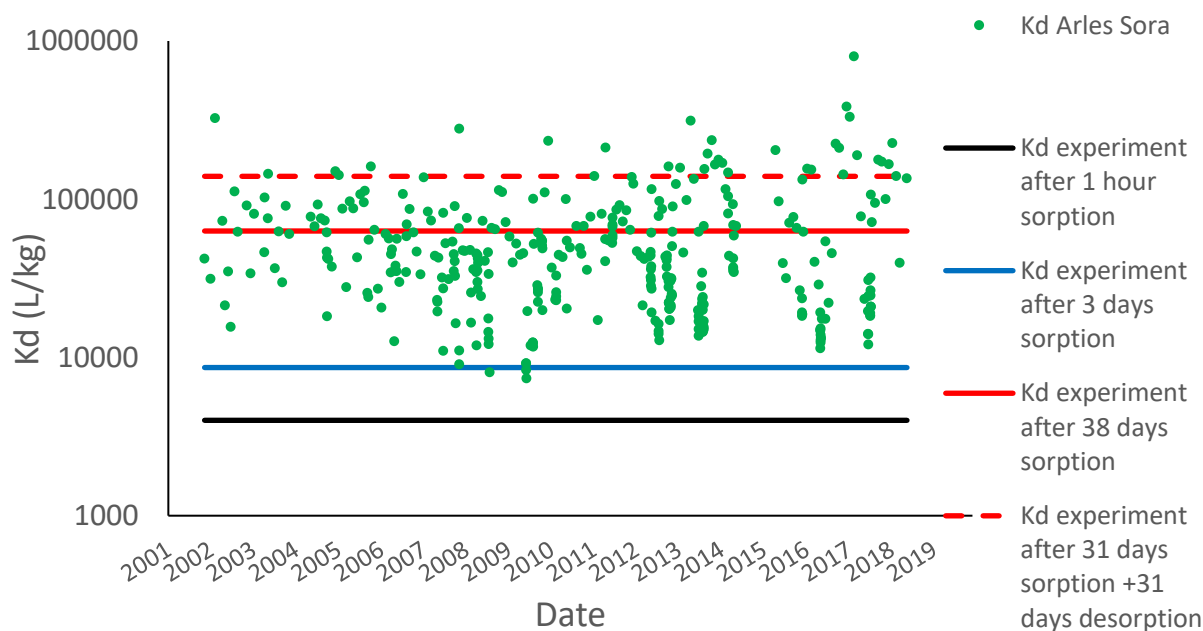


Figure V-4 : Coefficients de distribution solide-liquide du césium (moyenné sur 1 mois) sur les 20 dernières années observés en Arles et comparaison avec les expérimentations de laboratoire



### V.3.2.f. Comparaison avec l'estuaire de la Loire

Ciffroy et al., (2003) ont mené des expérimentations très similaires sur la Loire que nous pouvons, dans une certaine mesure, comparer avec nos résultats.

Pour la phase de sorption, si l'on compare le rapport  $\frac{Kd_{ads}^{t=96h}}{Kd_{ads}^{t=1h}}$ ,  $Kd_{ads}^{t=96h}$  provenant aussi de l'expérimentation, nous obtenons 2,2 avec nos expérimentations, contre 1,7 et 2,3 sur la Loire selon les échantillons, ce qui suggère une cinétique de sorption très similaire. Toutefois, ce rapport augmente jusqu'à 16 à t=38j dans nos expérimentations, indiquant qu'à 96h l'équilibre n'est pas atteint et que la seconde réaction d'adsorption (cf IV.4.2.a indiquant une succession de cinétique) devient plus importante par la suite.

Pour comparer les coefficients de distribution entre le Rhône et la Loire on doit utiliser la phase de sorption se déroulant sur 1h dans l'expérimentation de Ciffroy et al (2003) et nos résultats de désorption correspondants à la sorption de 1h : Figure V-5. La courbe de désorption après une sorption de 30 jours est ajoutée pour comparaison. On constate que les Kd entre le Rhône après 1h de sorption et la Loire sont très proches (compris dans un demi ordre de grandeur) tandis que ceux du Rhône après 30 jours de sorption sont supérieurs d'un ordre de grandeur. Ainsi, dans cet exemple, le temps de sorption semble générer plus de variabilité que l'origine des particules.

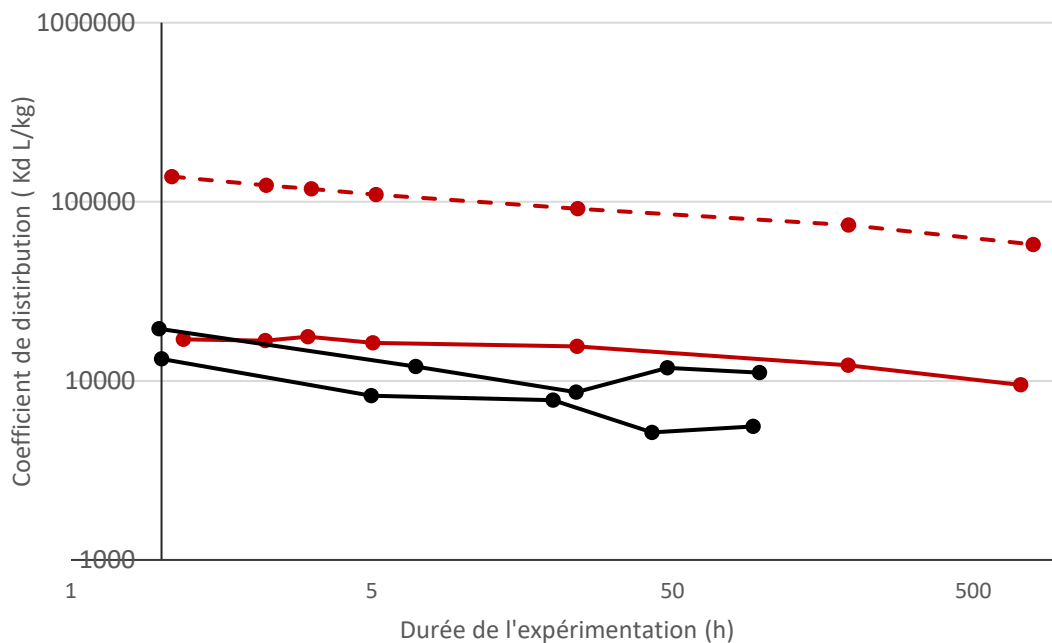


Figure V-5 : Evolutions des Kd de désorption pour le Rhône (salinité maximale :37) et la Loire (salinité maximale :22) (Ciffroy et al, 2003). Les deux échantillons traités de la Loire sont en noir tandis que celui du Rhône est en rouge (trait plein pour sorption de 1h, pointillés pour sorption de 30 j).

## V.4. Modélisation

### V.4.3. Modèle

Ces résultats, notamment sur l'effet vieillissement, confirment la pertinence d'un modèle à double cinétique comme exposé dans Delaval et al (2020). Ce modèle permet de décrire plus précisément l'état de la contamination des particules qui est un facteur influençant l'intensité de désorption. La Figure V-6 décrit les compartiments de cette modélisation géochimique dynamique.

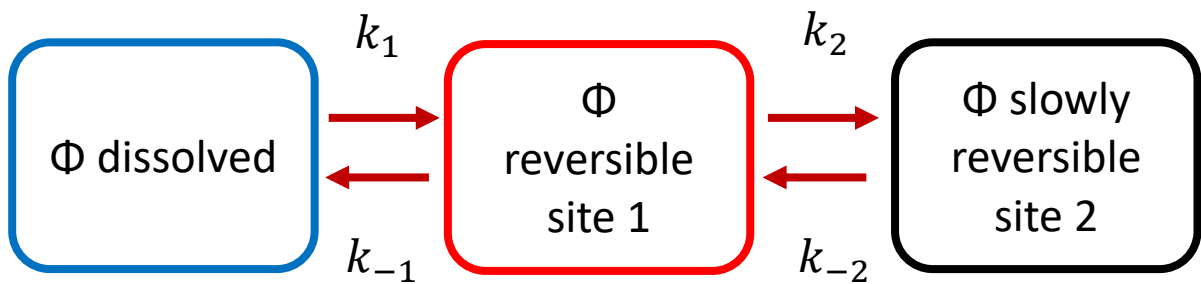


Figure V-6 : Schéma représentant un modèle cinétique d'adsorption/désorption des contaminants en deux étapes. Les sites 1 et 2 correspondent à des sites réversibles ou faiblement réversibles, soit à faible ou forte affinité pour le césium.

L'évolution du système est décrite par 4 constantes cinétiques. Les numéros font référence au compartiment impliqué tandis que les signes font référence à la sorption (signe +) ou à la désorption (signe-). Ce système est régi par les équations différentielles du premier ordre couplées :

$$\begin{cases} \frac{\partial A_w}{\partial t} = -k_1 \frac{m}{V} A_w + k_{-1} \frac{m}{V} A_r \\ \frac{\partial A_r}{\partial t} = k_1 A_w - k_{-1} A_r - k_2 \frac{m}{V} A_r + k_{-2} \frac{m}{V} A_{sr} \\ \frac{\partial A_{sr}}{\partial t} = k_2 \frac{m}{V} A_r - k_{-2} \frac{m}{V} A_{sr} \end{cases} \quad (V-1)$$

$A_w$ ,  $A_r$ ,  $A_{sr}$  sont les activités en phase dissoute (Bq/L), en phase solide réversible (Bq/g) et en phase solide lentement réversible (Bq/g).  $m$  désigne la masse de solides en suspension (g) et  $V$  le volume d'eau (L). Les constantes cinétiques  $k_1, k_2, k_{-2}$  sont toutes en  $l.g^{-1}.s^{-1}$  à l'exception de  $k_{-1}$  qui est en  $s^{-1}$ .

Ce système d'équation que l'on retrouve dans Ciffroy et al., (2003) ou (Periáñez et al., (2018) est vérifié à tout instant  $t$  de l'expérimentation.

#### V.4.3.a. Résolution

Le but est d'obtenir les 4 constantes cinétiques, sachant que notre nombre d'observations est suffisant pour que le système ne soit pas sous déterminé, c'est-à-dire que le nombre de systèmes d'équations (chaque prélèvement à un instant  $t$  générant un système) est inférieur au nombre d'inconnues.

La méthode de résolution de Ciffroy et al. (2003) consiste à faire des hypothèses fortes sur les constantes cinétiques rapides ( $k_1/k_{-1}$ ). Les constantes cinétiques restantes sont ajustées en minimisant l'erreur quadratique moyenne entre la solution analytique de l'équation (V-1) et les observations sur la phase dissoute. Cette approche trop simplifiée ne nous a pas fourni des résultats adéquats et donc nous avons opté pour une calibration des 4 paramètres sur une résolution numérique.

La calibration est faite en couplant deux packages R

- La fonction « ode » de Solve qui résout des systèmes d'équations différentielles connaissant les conditions initiales avec le package.
- La fonction « modFit » de FME qui estime la qualité de calibration entre les sorties de « ode » et les observations de l'expérimentation.

Une première calibration est effectuée en utilisant les résultats sur l'eau douce sur chacun des réplicats (Sorption, Desorption\_S0\_1h, DesorptionS0\_3j et DesorptionS0\_31j) soit un total de 68 observations. Les conditions initiales pour la sorption correspondent à une activité nulle dans les deux compartiments solides et une activité dissoute égale à l'activité introduite par la source. Les conditions initiales pour la désorption correspondent aux sorties de la phase de sorption aux temps 1h, 3j et 31j.

En partant de valeurs initiales pour ( $k_1, k_{-1}, k_2, k_{-2}$ ), une routine itérative ajuste au fur et à mesure les valeurs des constantes cinétiques. La valeur initiale choisie à son importance pour la convergence de l'algorithme. Basé sur la review, on choisit une valeur initiale de  $10^{-4}$  pour les constantes cinétiques de site 1 et de  $10^{-6}$  pour les constantes cinétiques de site 2. Ces constantes servent à décrire l'évolution de la distribution du césium entre l'eau du Rhône et les différentes phases particulières avant son arrivée dans le gradient de salinité. La calibration est faite avec la fonction « std » cela signifie que les observations sont pondérées par la déviation standard du jeu de données d'observation. Cela a pour effet de réduire l'impact des valeurs élevées de concentrations dissoutes qui varient d'un facteur 10 à 100 entre la phase de sorption et de désorption puisque l'on effectue une dilution des activités par 50 entre les phases de sorption et désorption par ajout d'eau non contaminée.

#### V.4.3.b. Résultats

Les constantes cinétiques obtenues sont présentées en Tableau V-1. Malgré les incertitudes sur la mesure, elles sont toutes très significatives. Le même procédé est utilisé pour obtenir les constantes cinétiques à 4 de salinité (salinité estuarienne) en Tableau V-2 et 37 (pleine mer) en Tableau V-3. Les conditions initiales en eau douce sont calculées à partir du Tableau V-1 et de l'équation (V-1).

*Tableau V-1 : Constantes cinétiques pour la distribution du césium entre la phase particulaire et la phase dissoute pour une cinétique en deux étapes en eau douce. Calibration issue de l'expérimentation de laboratoire sur des particules.*

	Estimation	Erreur standard	p-value
$k_1$	4.58E-03	1.05E-03	4.58E-05
$k_{-1}$	3.31E-04	7.02E-05	1.45E-05
$k_2$	2.03E-06	1.42E-07	<2.00E-16
$k_{-2}$	4.17E-07	3.19E-08	<2.00E-16

Tableau V-2 : Constantes cinétiques pour la distribution du césium entre la phase particulaire et la phase dissoute pour une cinétique en deux étapes pour une salinité de 4. Calibration issue de l'expérimentation de laboratoire sur des particules.

	Estimation	Erreur standard	p-value
$k_1$	3.47E-03	1.08E-03	0.002703
$k_{-1}$	4.32E-04	1.14E-04	0.000516
$k_2$	3.88E-07	1.99E-06	0.846172
$k_{-2}$	2.20E-06	6.79E-07	0.0025

Tableau V-3 : Constantes cinétiques pour la distribution du césium entre la phase particulaire et la phase dissoute pour une cinétique en deux étapes pour une salinité de 37. Calibration issue de l'expérimentation de laboratoire sur des particules.

	Estimation	Erreur standard	p-value
$k_1$	3.81E-03	1.66E-03	0.0273
$k_{-1}$	3.11E-04	1.19E-04	0.0127
$k_2$	-2.47E-06	1.56E-06	0.1208
$k_{-2}$	1.20E-06	4.96E-07	0.0205

Les valeurs de  $(k_1+k_{-1})$  pour les différentes salinités ne sont pas significativement différentes entre elles comme il a été observé dans Delaval et al., (2020). On constate toutefois que  $k_{-1}$  à la salinité de 4 est plus élevé qu'à 0 et 37, suggérant une désorption des sites légèrement favorisée à 4 de salinité par rapport aux autres. L'ordre de grandeur de  $(k_1+k_{-1})$  est aussi similaire aux autres expérimentations reprises dans Delaval et al (2020).

Les valeurs de  $(k_2+k_{-2})$  sont un ordre de grandeur en dessous de celle listées dans la review pour l'eau douce, et d'un demi ordre de grandeur en dessous pour les eaux saumâtres ou salées. Ces résultats suggèrent une plus faible mobilité du césium (sorption et désorption lentes) dans les sites 2 (forte affinité) des particules du Rhône comparées à d'autres particules fluviales analysées dans la review.

On constate qu'en eaux salée et saumâtre la significativité est plus faible en particulier pour la constante  $k_2$  qui correspond à la sorption sur les sites forts. Pour des salinités de 4 et de 37 la constante  $k_2$  n'est plus significative.

Les temps de demi-réaction spécifiques à chaque site (temps nécessaire à charger ou décharger 50% du contenu d'un site) peuvent être calculés à l'aide des constantes cinétiques en résolvant le polynôme (V-2) issu de l'équation caractéristique de (V-1) (Ciffroy et al., 2003):

$$r(\sigma)^2 + (k_{-1}(\sigma) + (k_1(\sigma) + k_{-2}(\sigma))[SS])r(\sigma) + [SS][k_{-1}(\sigma)k_2(\sigma)[SS] + k_1(\sigma)k_{-2}(\sigma)[SS]] = 0 \quad (V-2)$$

Le temps de demi-réaction pour les sites 1 est indépendant de la salinité et varie entre 1 minute et 1 h (décroit avec la concentration en MES). Pour les sites 2 il est beaucoup plus dépendant de la concentration en MES et sera calculé sur des concentrations de MES étudiées en Chapitre VI.

#### V.4.3.c. Calibration et goodness of fit

Les activités mesurées dans les différents batches sont comparées aux activités modélisées après calibration des constantes cinétiques sur ces mesures selon l'équation (V-1). Ces comparaisons pour l'eau douce, l'eau saumâtre (4 de salinité) et l'eau de mer (37 de salinité) sont présentées respectivement en Figure V-7, Figure V-8 et Figure V-9. La Figure V-7 est en échelle log car elle inclut aussi la phase de sorption où les activités sont plus importantes d'un facteur 10, et cela permet de comparer l'ampleur de la déviation aux observations entre les différentes expérimentations.

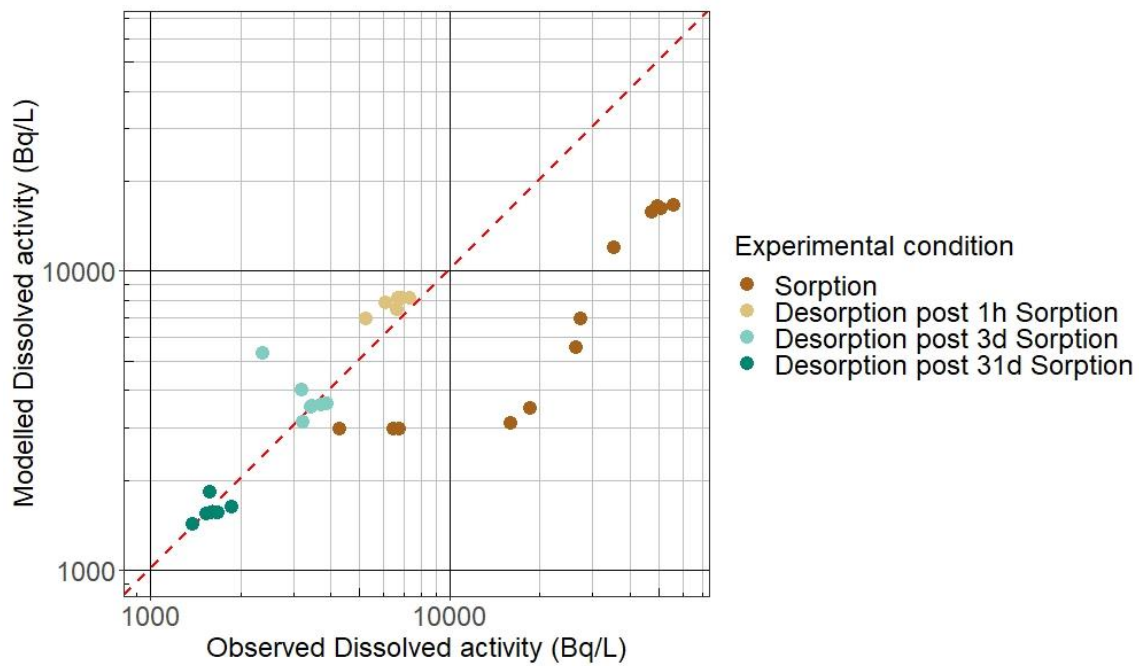


Figure V-7: Comparaison des activités dissoutes observées et modélisées à 0 de salinité.

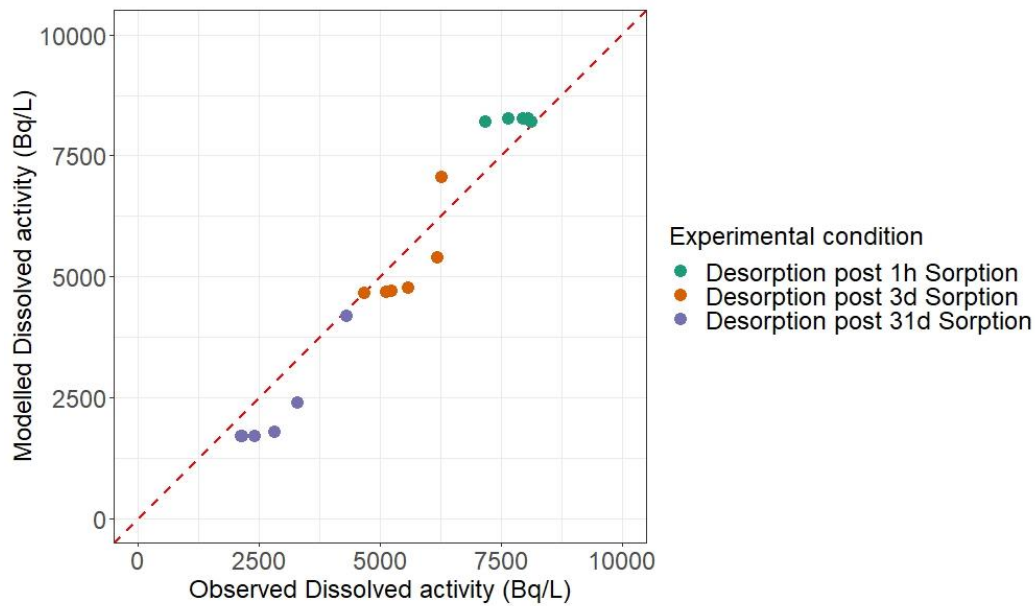


Figure V-8 : Comparaison des activités dissoutes observées et modélisées à 4 de salinité.

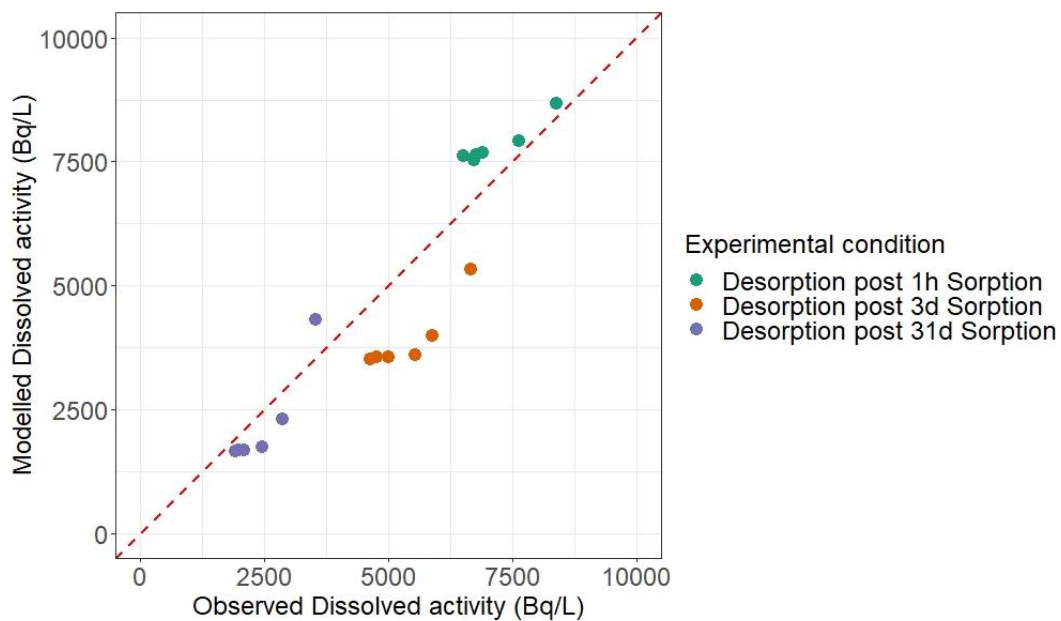


Figure V-9 : Comparaison des activités dissoutes observées et modélisées à 37 de salinité.

Le modèle restitue correctement les phases de désorption pour l'eau douce mais mal la phase de sorption pour laquelle il sous-estime les activités sur les premières observations. Ainsi, les constantes choisies marchent particulièrement bien pour les phases de désorption mais beaucoup moins pour la sorption. Ceci traduit que la réversibilité des réactions en Figure V-6 n'est pas toujours vérifiée pour le césium, un point déjà évoqué par Ciffroy, Garnier, and Khanh, (2001). Cependant, une autre hypothèse pouvant expliquer ceci est la dépendance des constantes cinétiques aux MES. En effet, la sorption s'effectue à 2000 mg/L alors que la désorption s'effectue à 50 mg/L en moyenne. Il reste toutefois à expliquer pourquoi la sorption serait plus lente lorsque plus de particules sont

présentes en solution. Les résultats sont meilleurs en eau saumâtre et eau salée avec des coefficients de détermination de 0,97 à 4 de salinité et de 0,87 à 37 de salinité.

#### V.4.4. Discussion et conclusion

Les hypothèses de la review concernant la salinité seuil pour déclencher la désorption ainsi que l'impact de l'effet vieillissement sont confirmées par les résultats de cette expérimentation.

Une désorption du césium des particules sans réadsorption a lieu pour toute salinité autre que 0. Un temps de sorption allongé passant de 1 h à 31 jours réduit l'intensité de désorption de 60 % à 20 % en eau salée. Nos expérimentations donnent des coefficients de distribution en eau salée similaires à ceux observés sur la Loire pour des phases de sorption qui se sont déroulées sur la même échelle de temps. L'effet de vieillissement (ageing effect) pourrait expliquer en partie les disparités importantes que l'on observe sur les différentes expérimentations de la littérature, pour lesquelles la contamination à généralement lieu en laboratoire.

La modélisation dynamique de la répartition du césium entre phase dissoute et solide à deux sites apporte des informations supplémentaires sur ce processus via les constantes cinétiques. Les couples ( $k_1$ ;  $k_{-1}$ ) ne sont pas significativement différents pour toutes les conditions de salinités. Les sites 1, considérés de faible affinité, ont donc le même comportement pour l'échange du césium avec la phase dissoute quelle que soit la salinité. La désorption depuis ces sites 1 est donc uniquement due au changement d'équilibre qu'est l'apport d'une eau non contaminée au système. Si les constantes cinétiques pour les sites faibles ne sont pas liées à la salinité dans le Rhône cela ne semble pas être le cas sur la Loire ou Ciffroy et al., (2003) ont observé que le rapport  $k_1/k_{-1}$  baisse avec la salinité, en particulier sur l'intervalle [0 ;5].

En revanche, en eau salée la constante  $k_2$  correspondant à la fixation du césium sur les sites 2 à forte affinité n'est plus significative, et la constante  $k_{-2}$  de désorption de ces sites baisse d'un ordre de grandeur. Ainsi, il n'y a plus de stockage du césium sur les sites 2 à forte affinités à 4 et 37 de salinité, et la désorption des sites 2 est aussi facilitée par rapport à l'eau douce. Cette indisponibilité des sites 2 pour le stockage peut s'expliquer par leur saturation ou altération par  $\text{Na}^+$  (Onodera et al., 2017).

Le rôle de ces deux types de sites se retrouve dans nos résultats Figure V-2. Les expérimentations montrent une augmentation brutale de la désorption dues aux sites 1 qui s'ajustent à l'ajout d'une eau non contaminée. Par la suite, les expérimentations à 0 de salinité montrent une ré-adsorption du césium sur les particules, également observée dans d'autres expérimentations notamment (Benes et al., 1992). Cette ré-adsorption a lieu sur les sites 2 et son intensité est inversement proportionnelle au temps de sorption en eau douce (plus de sites 2 disponibles). En revanche, les expérimentations sur les eaux saumâtres ou salées poursuivent leur désorption puisque les sites 2 ne peuvent que désorber en eaux saumâtres ou salées.

La désorption du césium dans le temps et sur un gradient de salinité est désormais mieux connue. Il reste à observer le comportement du césium sur les échelles de salinités et de temps obtenues par les chapitres III et IV sur le Rhône. Ces constantes cinétiques peuvent être utilisées sur des échelles de temps et de salinité réalistes obtenues au

Chapitre III pour le Rhône et au Chapitre IV pour l'estuaire, permettant ainsi d'interroger la sensibilité de la distribution du césium dissous à l'embouchure selon différents scénarios réalistes. C'est l'objet du chapitre VI.



# VI. Essai de couplage hydrodynamique et géochimique

Les apports des chapitres II, III et IV sont synthétisés ici pour produire des abaques de l'état de la répartition du césium (dissous vs particulaire) sur le continuum fleuve-mer.

## VI.1. Méthodologie

### VI.1.1. Distribution du césium en eau douce

Les abaques fluviales ci-dessous décrivent l'état de la répartition du césium en phase dissoute et particulaire dans le Rhône obtenu en utilisant les constantes cinétiques pour l'eau douce (Tableau V-1) et en résolvant l'équation (V-1). Pour cette partie fluviale en eau douce, la répartition du césium suite à un rejet dans le Rhône est associée, en l'état de nos connaissances, à la concentration en MES et au temps de contact.

Le césium est considéré comme arrivant entièrement sous forme d'un rejet dissous ( $A_w(t=0)=1$  ;  $A_r(t=0)=0$  ;  $A_{sr}(t=0)=0$ ). Les concentrations en MES ( $\frac{m}{v} = SS$ ) sont les concentrations en MES en Arles.

Ces chroniques de concentration de MES (SS) en Arles peuvent être :

- Calculées par Casteaur
- Extrapolées à partir du débit (Poulier et al., 2019)
- Observées in-situ

#### *VI.1.1.a. Abaques en fonction de la concentration en MES*

Nous balayons un intervalle réaliste de MES sur le Rhône allant de 5 mg/L à 4 g/L (Sadaoui et al., 2016) et un intervalle réaliste de temps de parcours dans le Rhône (0 à 7 jours) basé sur le Chapitre III.

On peut donc, pour toutes conditions de débit et de temps de parcours, décrire la distribution du césium entre la phase dissoute et les différents sites particulières à la hauteur de Arles : Figure VI-1 et Figure VI-2. Les conditions de la crue cévenole du 24/11/2019 depuis la confluence de l'Ardèche et du rejet depuis la centrale de Saint Alban du 24/10/2008 sont placées sur les abaques à titre indicatif. Pour ces deux exemples, le temps de sorption correspond au temps de parcours entre le point de rejet et Arles calculé par Casteaur, et les concentrations de MES sont prises sur la base de données BDOH.

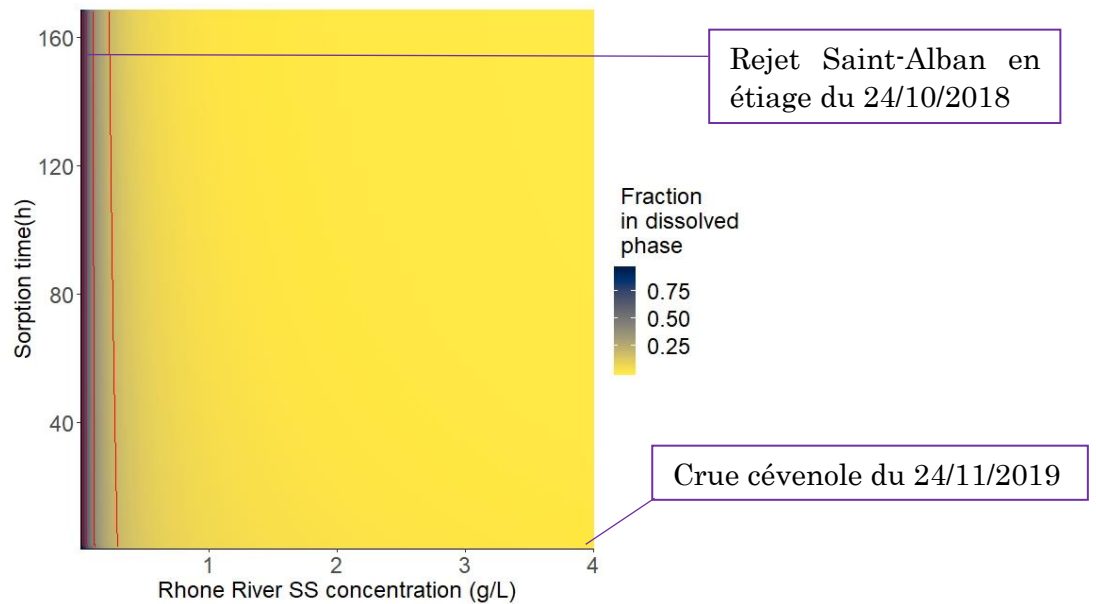


Figure VI-1 : Fraction de l'activité en césium en phase dissoute dans le Rhône en fonction de la concentration de MES (5 mg à 4000 mg/L) et le temps de sorption en zone fluviale. Des cas réalistes issus du Chapitre III sont placés pour information. Les lignes rouges délimitent les zones où la fraction de l'activité totale en phase dissoute est supérieure à 0.8, 0.6, 0.4, 0.2 et 0.

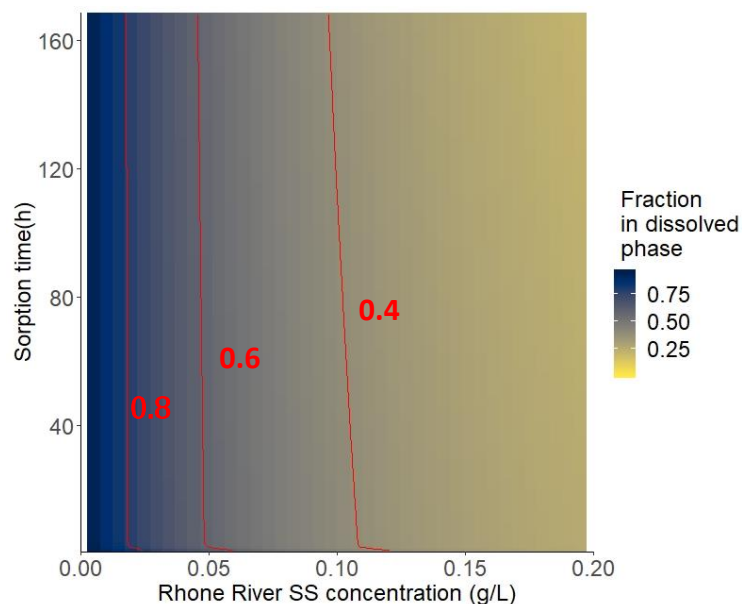


Figure VI-2 : Fraction de l'activité en césium en phase dissoute dans le Rhône en fonction de la concentration de MES (5mg à 200 mg/L) et le temps de sorption en zone fluviale. . Les lignes rouges délimitent les zones où la fraction de l'activité totale en phase dissoute est supérieure à 0.8, 0.6, 0.4 et inférieures à 0.4

On constate sur les Figure VI-1 et Figure VI-2 que le césium est principalement en phase particulaire pour 100 mg/L et au-delà (60% en phase particulaire à partir de cette concentration). Ainsi, si un rejet avait lieu pendant l'épisode de la crue cévenole du 24/11/2019 il serait à 99% en phase particulaire. A l'opposé, un rejet pendant la période d'étiage du 24/10/2018 serait théoriquement à 95% en phase dissoute.

L'effet vieillissement mis en évidence au Chapitre V est plutôt marginal sur les faibles concentrations et pour des temps de sorption de l'ordre de la semaine. Cela se matérialise par un gradient de couleur qui ne se voit pas à l'œil nu en ordonnées, et par les contours en rouge quasi à la verticale (Figure VI-2).

Le détail de la répartition du césium sur les sites 2 des particules est présenté en Figure VI-3. A fortes concentrations de MES, le temps de sorption joue et favorise l'adsorption sur les sites 2 à l'échelle de la semaine. Par exemple, pour SS=40 mg/L, le temps de demi-réaction nécessaire à l'adsorption du césium sur les sites 2 est de 60 jours d'après l'équation (V-2). Pour SS=3000 mg/L il n'est plus que de 43 heures. Cela s'explique par le fait que plus la concentration de MES augmente plus le nombre de sites 2 augmente.

Nos résultats confirment que la distribution du césium dans le Rhône varie beaucoup selon les concentration de MES (Rolland, 2006) mais aussi le temps de contact entre les particules et le césium, qui sera différent en cas de rejet direct ou d'un dépôt atmosphérique sur le bassin versant.

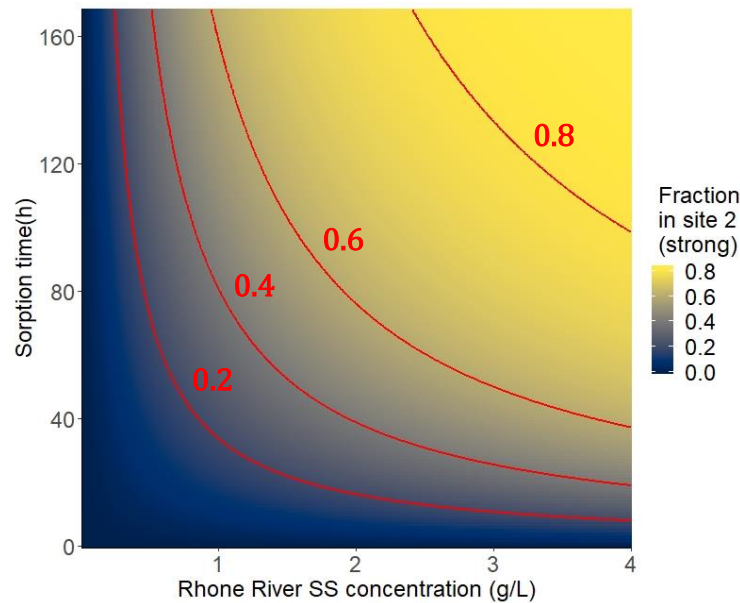


Figure VI-3 : Fraction de césium présente sur les sites 2 (forte affinité pour le césium) en fonction de la concentration de MES (5mg à 4000 mg/L) et le temps de sorption en zone fluviale. Les lignes rouges délimitent les zones où la fraction d'activité totale sur les sites 2 est supérieure à 0, 0.2, 0.4, 0.6 et 0.8.

#### VI.1.1.b. Abaques en fonction des débits

On peut aussi définir l'état de la répartition en utilisant le débit puisqu'il est corrélé avec les concentration de MES sur le Rhône (Boudet, 2017 ; Poulier et al., 2019). Pour ceci les équations débit-MES de Poulier et al., (2019) ont été mises à jour avec les données récentes de 2020 (Lepage communication personnelle) et l'on obtient :

$$\begin{cases} SS = 1.4 \times 10^{-4} Q_r^{1.69708} & Q_r \leq 2744 \\ SS = 3.06 \times 10^{-4} (Q_r - 1999)^{1.91365} & Q_r > 2744 \end{cases} \quad (\text{VI-1})$$

Avec SS en mg/L et  $Q_r$  en  $\text{m}^3/\text{s}$ .

En balayant l'intervalle des débits de 250 à 5000  $\text{m}^3/\text{s}$  on balaie indirectement un intervalle de MES de 1,6 à 1380 mg/L. Cet abaque définit l'état initial de la distribution du césium entre phase particulaire et dissoute avant son arrivée en eau saumâtre (estuaire ou panache) et il est présenté en VI.2.1.

## VI.1.2. Prise en compte de la géochimie dans DRACAR

Pour pouvoir produire les abaques dans le coin salé et sur les premiers mètres de panache il convient d'adapter DRACAR pour la géochimie en calculant le temps de résidence et la dilution sur les concentrations (MES et activités liquides) engendrée par l'apport d'eau de mer d'activité 0 en césium.

### VI.1.2.a. Concentrations en éléments dissous non réactif

Pour les éléments dissous non réactifs on peut reprendre les expressions de Officer, (1980) qui utilisent la salinité comme traceur du mélange. On définit  $C_{UM}$  comme la concentration de l'élément dans le panache de l'estuaire en sortie,  $C_{LS}$  comme la concentration de l'élément en mer et  $C_0$  sa concentration dans le fleuve.

$$C_{UM} = \frac{S_{LL} - S_{UL}}{S_{LL} - S_0} C_0 + \frac{S_{UL} - S_0}{S_{LL} - S_0} C_{LS} \quad (VI-2)$$

### VI.1.2.b. Gestion des MES

Bien que la thèse ne porte pas sur la dynamique des sédiments, ce sont eux qui apportent une partie du césium à la mer. Comme décrit en VI.1.1.b, les concentrations de MES en Arles,  $SS$  sont obtenues par la relation  $C_s=f(Q_r)$ . Ces MES vont être diluées dans l'estuaire, si il y a un coin salé, avec l'eau de la mer selon :

$$\widetilde{SS} = \frac{S_{LL} - S_{UL}}{S_{LL} - S_0} SS \quad (VI-3)$$

Ou  $\widetilde{SS}$  est la concentration de matière en suspension en prenant en compte la dilution due à l'apport d'eau salée (concentration de MES apportée par la mer fixée à 0) en utilisant l'équation (VI-2).

Une partie de ces sédiments est susceptible de se déposer. On peut en faire une première approximation ici car les box-model sont aptes à utiliser des lois simples de dépôt/remise en suspension des MES (Officer, 1980). Thill et al., (2006) ont étudié la dynamique des MES (coagulation, floculation sédimentation) dans le panache du Rhône et a proposé l'équation simple suivante pour calculer la concentration de particules en suspension :

$$\widetilde{SS}_{susp} = \widetilde{SS} e^{\left(-\frac{V_{SL}}{u_1 h_1}\right)} \quad (VI-4)$$

$u_1$ ,  $h_1$  et  $L$  sont respectivement la vitesse moyenne de l'écoulement dans le panache interne, la profondeur moyenne du panache interne et la longueur du coin salé définis en IV.  $h_1$  et  $L$  sont calculés dans DRACAR.

$u_1$  peut-être calculé avec des sorties de DRACAR :

$$u_1 = \frac{Q_{UM}}{wh_1} \quad (VI-5)$$

On obtient des vitesses du panache entre 0,12 et 0,6 m/s pour les gammes de 250 à 2500 m<sup>3</sup>/s ce qui est cohérent avec les observations d' Ibañez et al. (1997) et (Boudet et al., 2017).

Enfin,  $V_s$  est la vitesse de sédimentation des particules. Celle-ci peut varier de plusieurs ordres de grandeur, mais Thill et al. (2006) ont calibré la relation sur le panache du Rhône pour identifier  $V_s$  avec de bons résultats. Selon les résultats de l'OSR (OSR, 2014), la distribution en taille des particules pour les faibles débits donne des diamètres de  $D_{50} = 10 \mu\text{m}$  et  $D_{90} = 30 \mu\text{m}$ , soit une gamme globale couvrant 2-3 à  $30 \mu\text{m}$ . En utilisant une vitesse  $V_s = 8.10^{-7} \text{ m/s}$  (pour les particules de diamètre de  $3.5 \mu\text{m}$ ) et  $V_s = 6.10^{-6} \text{ m/s}$  ( $30 \mu\text{m}$ ) fournies par Thill (2006) et les variables fournies par DRACAR, on obtient la proportion de particules qui sédimentent selon ces deux valeurs extrêmes en fonction du débit. Cette généralisation en Figure VI-4, propre à la géométrie du box-model n'est qu'une tendance moyenne sur l'estuaire.

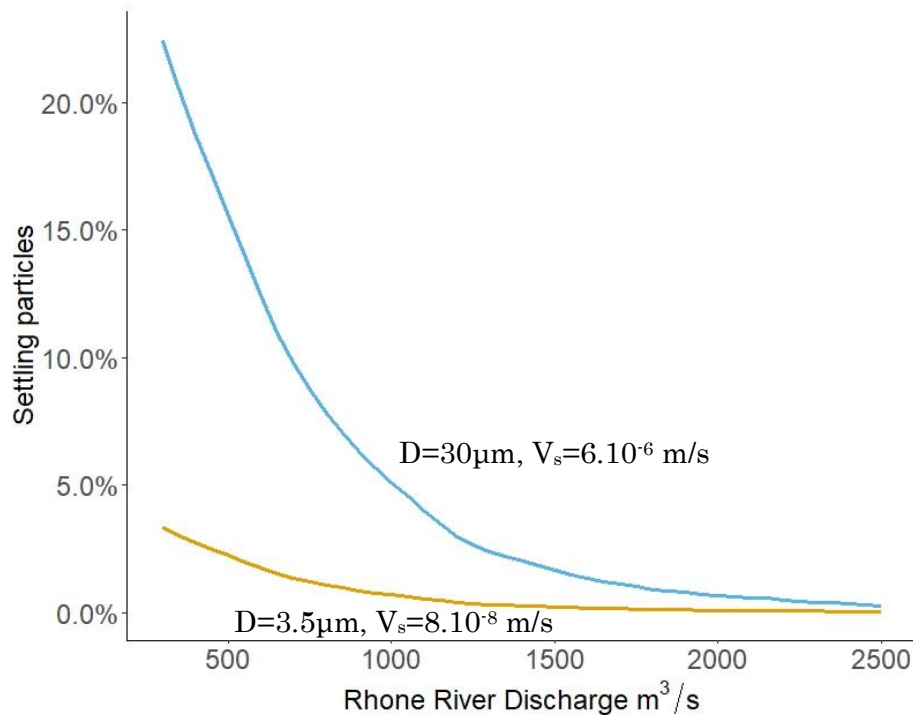


Figure VI-4 : Pourcentage de particules sédimentant dans le panache interne de l'estuaire du Rhône en fonction du débit moyen des 48 dernières heures

Avec l'augmentation du débit les particules sédimentent moins par effet de l'augmentation de la vitesse, de la réduction de la longueur du coin salé et de l'augmentation de la profondeur du panache interne. La sédimentation des particules de moins de  $30 \mu\text{m}$  serait inférieure à 25% et on peut donc négliger le processus de sédimentation dans cette étude. Toutes les particules sont donc supposées arriver jusqu'à la mer quel que soit l'état du coin salé, et ce d'autant plus qu'elles doivent rester dans le panache de surface sans pouvoir facilement pénétrer la couche salée en dessous (effet de densité).

Cette simple équation peut être utilisée dans d'autres estuaires pour déterminer un éventuel abattement de la teneur en MES due à la sédimentation. Les variables sont fournies par DRACAR tandis que la vitesse de sédimentation est à rechercher dans la littérature.

#### VI.1.2.c. Flushing time

Le flushing time  $F$ , appelé « residence time » dans (Officer, 1980) est le temps de séjour moyen d'une particule dans le panache interne. C'est un paramètre primordial pour

estimer la réactivité d'un contaminant dans l'estuaire en comparant ce flushing time au temps de demi-réaction (Lucas and Deleersnijder, 2020)

Son expression est donnée par :

$$F_1 = \frac{S_{LL} - S_{UL}}{S_{LL}} \frac{V_m}{Q_r} \quad (\text{VI-6})$$

Où  $V_m$  est le volume occupé par le panache interne dans l'estuaire. Le flushing time en fonction du débit du Rhône est présenté en Figure VI-5. Les incertitudes proviennent de la propagation des erreurs quadratiques moyennes (RMSE) sur la profondeur de l'interface, la longueur du coin salé et la salinité calculées en IV.4. Ce flushing time ainsi que l'équation de la Figure III-13 lorsque le coin salé n'est pas présent seront utilisés pour calculer le décalage temporel entre Arles et l'embouchure.

L'évolution du flushing time dans le Rhône en présence du coin salé et en fonction du débit est présentée Figure VI-5. Il augmente de manière exponentielle quand le débit décroît, jusqu'à une valeur maximale de 96 h. Ces valeurs sont parmi les plus faibles de toutes celles reportées pour les estuaires recensés par (Dürr et al., 2011), cf Figure I-4.

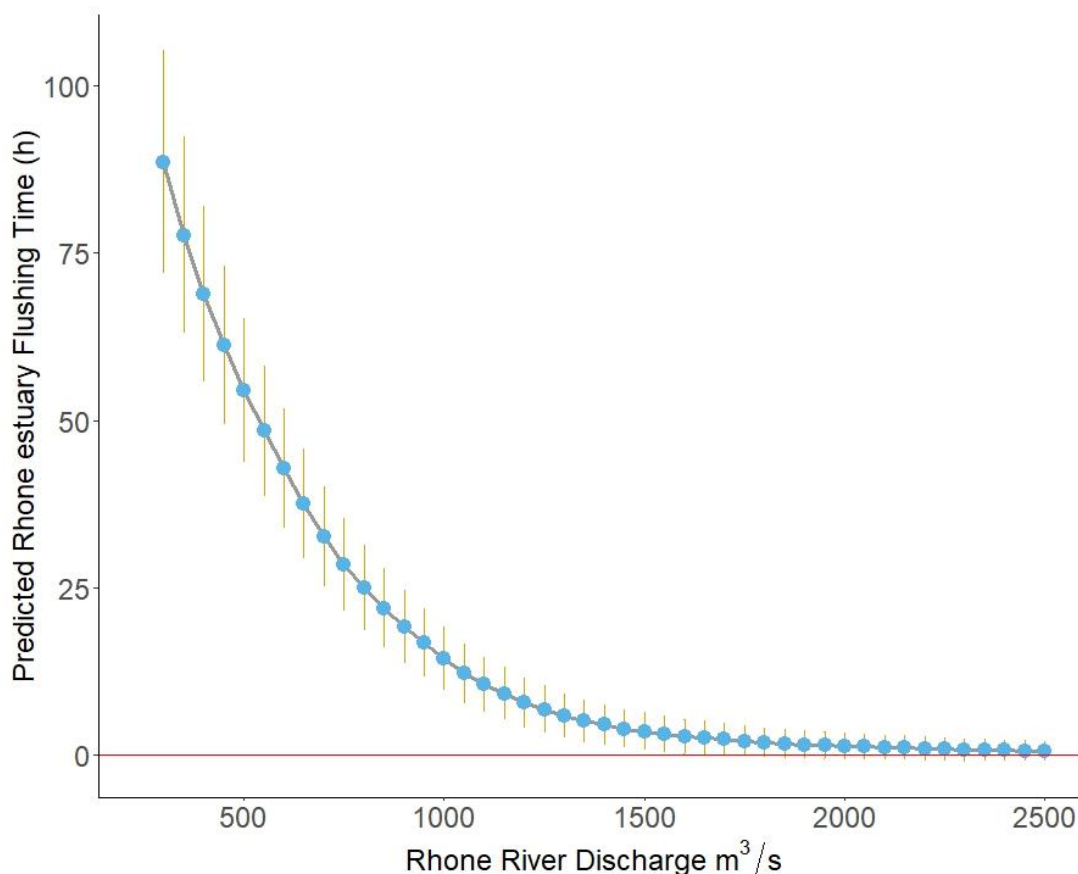


Figure VI-5 : Flushing time (ou temps de résidence dans le panache interne) en fonction du débit moyen du Rhône des 48 dernières heures.

#### VI.1.2.d. Abaques estuaire

Sur la base de ces informations et en utilisant les constantes calculées en IV pour l'eau saumâtre (salinité de 4, cf Tableau V-2), on peut réaliser des abaques décrivant l'état de

la répartition du césium en phase dissoute et particulaire à la sortie de l'estuaire. Les constantes non significatives  $k_2$  sont fixées à 0.

Deux cas de figure se présentent pour l'estuaire:

- $S_{UM} < 3$

$S_{UM}$  est la salinité à l'embouchure dont on sait qu'elle majore la salinité moyenne de l'estuaire. Par conséquent, si la salinité à l'embouchure fournie par DRACAR est inférieure à 3 on ne peut pas utiliser les constantes d'eau saumâtre et on utilisera les constantes de l'eau douce, moins favorables à la désorption d'après V.4.3.b.

- $S_{UM} \geq 3$

La salinité est suffisante pour amorcer la désorption. On utilisera les constantes propres aux conditions de salinité 4 du Tableau V-2 pour résoudre numériquement (V-1) en utilisant les conditions initiales ( $\frac{S_{LL}-S_{UL}}{S_{LL}-S_0} A_{w, T_{sorption}}$ ;  $A_r(T_{sorption})$ ;  $A_{sr}(T_{sorption})$ ) définies à la fin de la phase de sorption en eau douce, c'est-à-dire en Arles. A noter la pondération sur  $A_w$  due à l'apport d'eau de mer non contaminée dans le panache et qui dilue l'activité dissoute. Pour la phase de désorption, le ratio  $m/v$  est égal à la concentration de MES en Arles pondérée par la dilution de l'eau de mer ( $\widetilde{SS}$ ) conformément à l'équation (VI-3). Pour chaque condition de débit on choisira l'état final correspondant au flushing time de l'estuaire correspondant. La salinité du panache dans l'estuaire du Rhône est supérieure à 3 pour des débits de 700 m<sup>3</sup>/s et en dessous.

### VI.1.3. Panache proximal

Pour les systèmes stratifiés, le panache proximal est le panache proche de l'embouchure, principalement influencé par le débit du fleuve. Il est parfois appelé « near-field plume » dans la littérature (Poggioli and Horner-Devine, 2018). Ce système est un élément supplémentaire de l'interface fleuve-mer pour le continuum Rhône Méditerranée puisque les conditions dans ce panache peuvent aussi permettre la désorption du césium. Cet élément de l'interface n'a pas été spécifiquement étudié dans cette thèse. En effet, après l'embouchure les champs de courants sont fournis à l'IRSN par IFREMER et il ne nous était pas possible de les éditer ou d'augmenter leur résolution notamment par un zoom AGRIF (Gangloff, 2018). Dans un futur proche une convention va permettre à l'IRSN de travailler en collaboration avec le SHOM pour obtenir de nouveaux jeux de champs de courant, et l'incorporation des processus hydrodynamiques et géochimiques dans ce panache se fera alors à ce moment-là.

#### VI.1.3.a. Méthodologie en utilisant la modélisation existante

Après l'embouchure, on utilise les sorties de salinité du modèle MENOR (données fournies par I. Pairaud, IFREMER) sur la maille proche de l'embouchure (1,2 km par 1,2 km et donc couvrant une aire  $A=1,44$  km<sup>2</sup>) pour définir une seconde boîte assimilée au panache proximal. Cette résolution est très grossière pour la dynamique du panache où une résolution plus fine est souvent nécessaire pour capturer toutes les dynamiques (Dufois, 2008; Pairaud et al., 2011).

Les données disponibles couvrent la période 2015 à 2019 (14500 observations). La profondeur du panache correspond à la profondeur de la couche sigma dont la différence absolue de salinité est la plus importante avec la salinité de la couche précédente. La salinité du panache est la salinité moyenne des couches sigma (pondérée par leurs épaisseurs respectives) comprises dans le panache. Le traitement de ces données netcdf est effectué sur Rstudio avec le package « ncd4 ». On trouve généralement une profondeur moyenne de 0,8 à 2m ce qui est raisonnable comparé aux observations de Thill et al., (2006) à la bouée de Roustan ( $\approx 1,6$  km de distance de l'embouchure). Les données de Mesurho ne sont pas comparables ici car elles ne fournissent pas la stratification. La profondeur du panache est croissante avec le débit tandis que la salinité du panache est décroissante avec celui-ci. On utilise la moyenne glissante de ces deux paramètres en fonction du débit (largeur de la fenêtre : 50  $m^3/s$ )

Ces développements apportent l'information que pour des débits supérieurs à 1750  $m^3/s$ , la salinité moyenne dans ce panache proximal est inférieure à 3 ce qui est en accord avec les observations de Thill et al. (2006) au niveau de la bouée de Roustan pour la campagne effectuée à des débits de 2000  $m^3/s$ . Cette valeur est en revanche sensiblement plus faible que celles (Gangloff, 2018) qui observe en 2014 un minimum de 10 à 20 de salinité dans le panache au même point de mesure.

Le volume du panache est calculé en multipliant sa profondeur par sa surface (1,44  $km^2$ ). Le volume avec la salinité moyenne du panache fournissent un flushing time utilisable pour calculer le temps de résidence moyen des particules dans cette maille pour la désorption selon la même approche qu'en VI.1.2.d. Ce flushing time  $\tau$  est calculé selon (VI-6) où  $S_{UL}$  est la salinité moyenne du panache après l'embouchure. Comme pour l'estuaire, on choisit  $Q_r$  comme étant le débit moyen en Arles des 48 dernières heures. Le flushing time du panache proximal varie entre 0,12 et 0,33 h.

En réutilisant l'équation (VI-4) avec  $L=1200$  m,  $h_1$  calculée au paragraphe précédent et en utilisant des vitesses dans le panache comprises entre 0,2 et 0,6 m/s (Thill et al., 2001), on trouve que seulement 5% des particules de taille inférieure à 30  $\mu m$  sédimentent dans ce panache proximal ce qui est en net désaccord avec toutes les études définissant cette zone après l'embouchure comme une zone importante de sédimentation (Calmet and Fernandez, 1990; Marion, 2010; Gangloff, 2018).

#### *VI.1.3.b. Critique de la méthodologie*

Les salinités moyennes après l'embouchure ainsi que la faible sédimentation interpellent lorsqu'on les compare aux données de terrain de différentes études. Ces incohérences ont deux sources, la première est sans doute la résolution grossière de cette zone hautement dynamique (augmentation très rapide de la diffusion par rapport à l'entraînement après l'embouchure) qui est incapable de reproduire le gain en salinité rapide du panache après l'embouchure. Ensuite, cette géométrie simplifiée n'est pas prévue pour utiliser l'équation (VI-6) pour les sédiments mais des lois classiques de dépôts-érosion.

Nous avons dit plus haut que des développements supplémentaires pour la zone après l'embouchure n'étaient pas nécessaires. Toutefois, au vu des incertitudes sur cette zone lorsque les mailles sont grossières on peut envisager de construire un second box-model pour la zone proche de la côte (Garvine and Whitney, 2006). De même que l'on a défini l'interface estuarienne en couplant structure et box-model, la théorie est prolongeable pour le panache proximal (Poggioli and Horner-Devine, 2018) et ses échanges (Hordoir et al., 2008). Ce second box-model avec une géométrie plus fidèle permettrait d'être plus juste au niveau de la salinité et des temps de résidence comme démontré en IV.4.3 pour l'estuaire.



Toutefois, les dynamiques sédimentaires sont beaucoup plus complexes que pour l'estuaire (Boudet, 2017 ; Gangloff, 2018) et l'équation (VI-6) difficilement applicable.

## VI.2. Résultats et discussion

Deux types d'abaques peuvent être produits à l'interface :

- ceux décrivant l'intensité de désorption du césium, c'est-à-dire le pourcentage d'activité en phase particulaire perdue au cours du passage à l'interface selon les conditions de débits et de sorption.
- Ceux décrivant la proportion de césium en phase dissoute. Ils indiquent selon les conditions de débit et de sorption quelle fraction de l'activité totale doit être introduite dans STERNE sous forme d'activité dissoute.

### VI.2.1. Distribution en Arles

La distribution du césium dans la phase liquide en Arles en fonction des débits est présentée en Figure VI-6. Cette figure est similaire à la Figure VI-1 mais utilise la relation débits-MES du V.1.1.b et est zoomée sur l'intervalle de MES correspondant aux débits de 250 à 5000 m<sup>3</sup>/s (1,6 à 1380 mg/L). On constate toujours la grande variation de la répartition puisqu'à 300 m<sup>3</sup>/s 96% de l'activité est en phase dissoute contre 1,5% pour 5000 m<sup>3</sup>/s. C'est cet état initial qui est utilisé pour la désorption à l'estuaire.

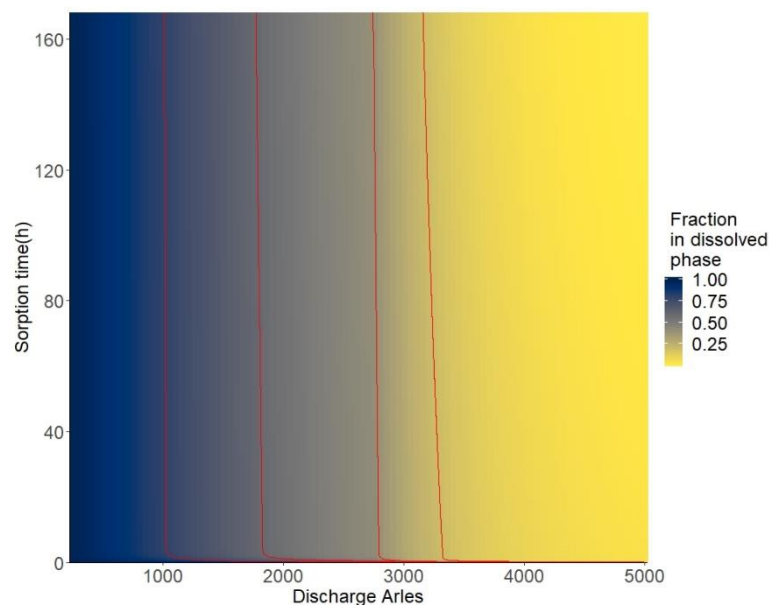


Figure VI-6 : Fraction de l'activité en césium en phase dissoute dans le Rhône en Arles en fonction du débit et du temps de sorption en zone fluviale. Les lignes rouges délimitent les zones où la fraction de l'activité totale en phase dissoute est supérieure à 0.8, 0.6, 0.4, 0.2 et 0.

### VI.2.2. Distribution et désorption dans l'estuaire

L'intensité de désorption dans la zone estuarienne est présentée en Figure VI-7. On constate une désorption de 41 à 52% à pour des débits inférieurs à 700 m<sup>3</sup>/s. Pour les débits de 700 à 2000 m<sup>3</sup>/s, la désorption reste inférieure à 5% seulement car l'apport d'eau de mer est insuffisant pour augmenter la salinité au-dessus de 3. L'influence du temps de sorption n'est pas visible pour des temps de sorption de moins de 7 jours, les sites 2 étant très peu chargés à basses concentrations de MES comme exposé en VI.1.1.a. Par ailleurs, pour une gamme de concentration en MES de 5 à 40 mg/L le temps de demi-réaction des sites 2 varie de 462 à 2912 h ce qui est bien supérieur au flushing time de l'estuaire. Pour un rejet direct dans le fleuve la désorption générée dans l'estuaire du Rhône est principalement une désorption des sites 1.

Cette désorption entraîne en revanche de faibles modifications pour les flux de césium dissous en Figure VI-8, car il y a une faible concentration en particules dans les gammes de débits de 250 à 700 m<sup>3</sup>/s (inférieure à 10 mg/L). Ainsi, le flux d'activité en phase dissoute passe de 88-97 % à 93-99% du flux total. En testant sur une concentration en MES de 40 mg/L (maximum observable en dessous de 700 m<sup>3</sup>/s) on observe que le fractionnement en phase dissoute passe de 63 à 80%. Ainsi, même s'il y a désorption dans l'estuaire pour de très faibles débits, celle-ci n'a que peu d'influence sur les flux dissous au sortir de cette zone car il y a peu de particules.

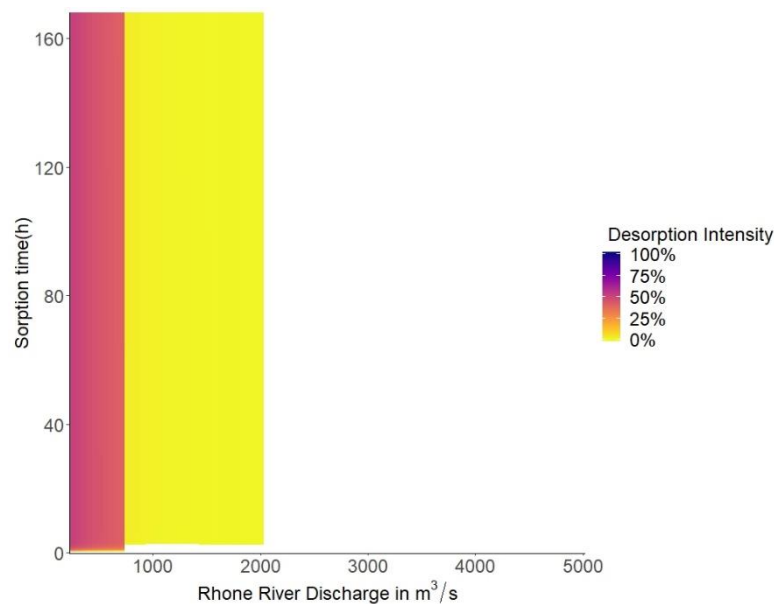


Figure VI-7 : Intensité de désorption dans le panache proximal (activité solide en césium finale/ activité solide en césium en zone fluviale) en fonction du débit et du temps de sorption en zone fluviale. Les zones blanches correspondent à une désorption nulle dans cette zone.

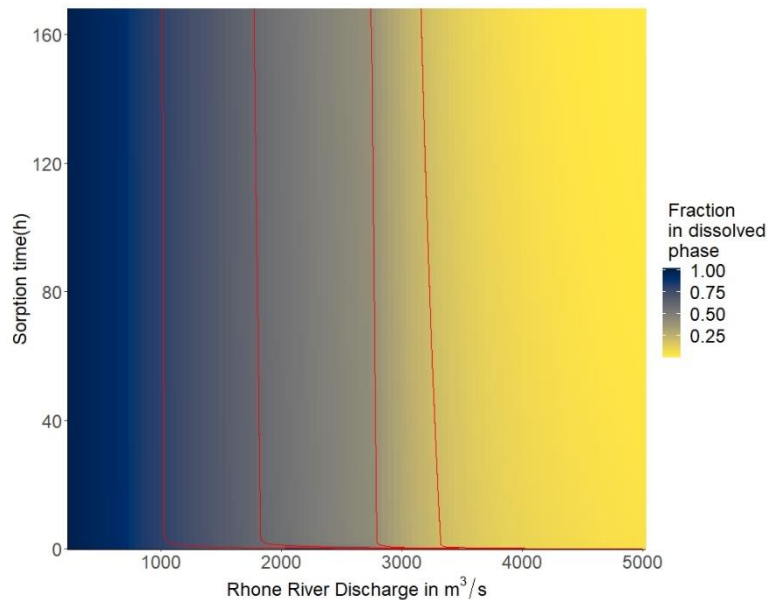


Figure VI-8 : Fraction de l'activité en césium en phase dissoute dans l'estuaire du Rhône entre Arles et l'embouchure en fonction du débit et du temps de sorption en zone fluviale. Les lignes rouges délimitent les zones où la fraction de l'activité totale en phase dissoute est supérieure à 0.8, 0.6, 0.4, 0.2 et 0.

### VI.2.3. Distribution et désorption dans le panache proximal

L'intensité de désorption dans la zone du panache proximal, cumulée ici à celle de se produisant dans l'estuaire, est présentée en Figure VI-9. Pour des débits inférieurs à 700 m<sup>3</sup>/s, les particules perdent jusqu'à 50% de leur activité dans l'estuaire puis 10% de plus dans le panache proximal (60% en tout). Entre 700 et 1750 m<sup>3</sup>/s, la désorption finale est de 15 à 25% et se produit uniquement dans le panache proximal. Pour des débits plus élevés on a une légère dilution avec l'eau de mer sans que le panache atteigne 3 de salinité ce qui entraîne une désorption marginale de moins de 5%.

En dessous de 700 m<sup>3</sup>/s, cette désorption fait que plus de 90% de l'activité totale est en phase dissoute, et ce avant même d'atteindre le panache où le gain n'est que de 1%, Figure VI-10 (temps de résidence dans l'estuaire bien supérieurs au panache proximal). Pour les débits entre 700 et 1750 m<sup>3</sup>/s la fraction d'activité dissoute augmente de 5% dans le panache pour atteindre entre 65 et 75% du total. On constate encore l'impact négligeable de l'effet vieillissement pour des temps de sorption entre 0 et 7 jours et des concentrations en MES faibles en dessous de 1750 m<sup>3</sup>/s (inférieures à 45 mg/L).

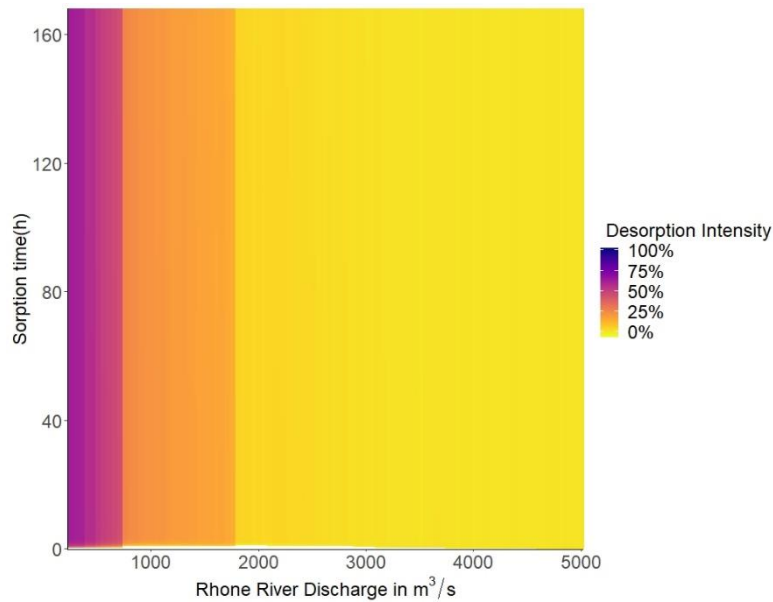


Figure VI-9 : Intensité de désorption (activité solide en césium finale/activité solide en césium en zone fluviale) en fonction du débit et du temps de sorption en zone fluviale. Cette désorption est simulée après le passage des particules dans l'estuaire puis dans le panache proximal.

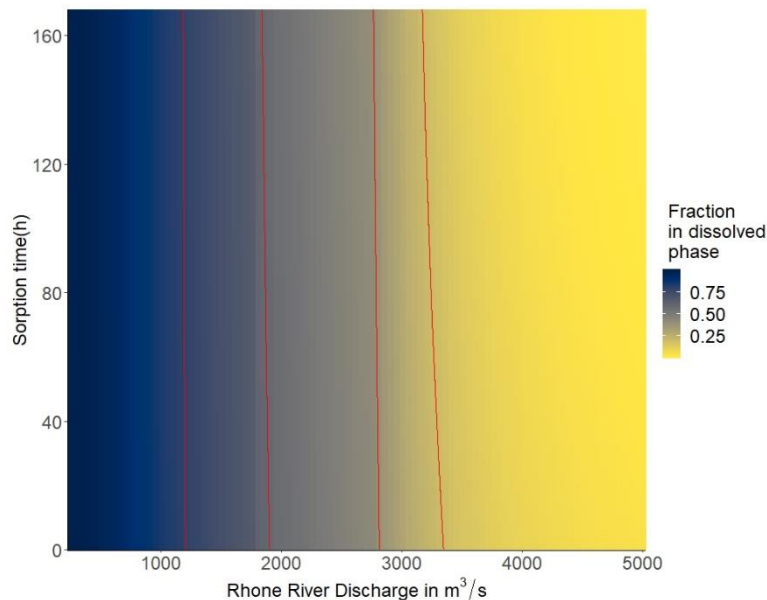


Figure VI-10 : Fraction de l'activité en césium en phase dissoute dans le panache proximal du Rhône ( $1,44 \text{ km}^3$  à l'embouchure) en fonction du débit et du temps de sorption en zone fluviale. Les lignes rouges délimitent les zones où la fraction de l'activité totale en phase dissoute est supérieure à 0.8, 0.6, 0.4, 0.2 et 0.

#### VI.2.4. Panache en mer

Les paragraphes précédents indiquent que 0 à 62% de l'activité particulaire peut être désorbée dans le système estuaire+panache proximal selon les conditions de débits, mais quel est le maximum théorique que peuvent désorber les particules beaucoup plus au large ?

Pour ceci on va considérer qu'une particule reste dans la colonne d'eau marine jusqu'à atteindre une dilution au 1/100 et qu'elle y demeure 6 jours sans sédimenter. L'état initial

du système est celui obtenu à l'issu du passage par le panache proximal décrit en Figure VI-10. Les résultats sur l'intensité de désorption sont présentés en Figure VI-11.

Pour tout débit inférieur à 3000 m<sup>3</sup>/s près de 99% de l'activité de la particule est désorbée. Au-delà de 3000 m<sup>3</sup>/s (169 mg/L) la désorption est incomplète et on constate l'impact de l'effet vieillissement. Nous avons vu que des fortes concentrations en MES favorisaient le stockage en sites 2 à forte affinité (cf Figure VI-3). En conséquence l'intensité de désorption en mer n'est plus que de 25% dans le coin haut droit de la figure correspondant à une charge en MES élevée (1380 mg/L) et un temps de sorption de 7 jours.

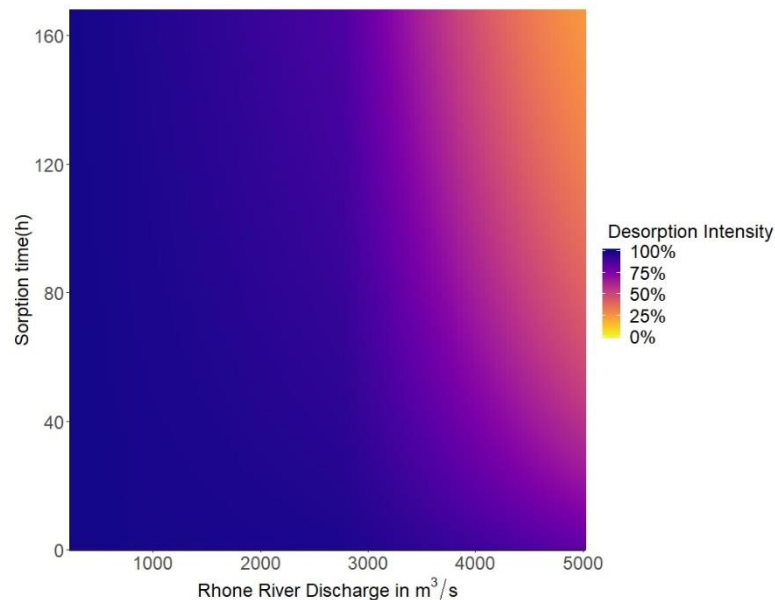


Figure VI-11 : Fraction de l'activité en césium en phase dissoute dans le panache du Rhône dilué au 1/100 après 6 jours fonction en du débit et du temps de sorption en zone fluviale

Cette valeur de 99% de désorption interpelle car elle n'a pas été observée dans nos expérimentations en V.3 ni même dans l'ensemble des expérimentations recensées dans (Delaval et al., 2020). Il y a deux explications pour ce chiffre. La première est que nous modélisons une dilution au 1/100. Or, aucune expérimentation en batch de la revue n'a fait de dilution au 1/100 ou au-delà pour des contraintes expérimentales de pesée et de détection de l'activité. Une dilution au 1/100 dans une eau non contaminée favorise plus facilement le transfert de l'activité de la phase particulaire à la phase dissoute que pour une dilution au 1/50 comme c'était le cas dans nos expérimentations. Un second aspect est que le modèle géochimique de désorption a été calibré sur des concentrations en MES moyennes de 40 mg/L. En pleine mer, avec la dilution au 1/100, ces concentrations sont comprises entre 0,02 et 14 mg/L. Même si le modèle géochimique est censé être applicable à toute valeur de MES, la différence est de plusieurs ordres de grandeur et donc les coefficients obtenus en V.4.3.b sont peut être beaucoup moins pertinents pour des gammes plus basses de valeurs de MES. Cette hypothèse a déjà été évoquée en paragraphe V.4.3.b appuyée par la Figure V-7 du où on constate que pour l'eau douce, les activités dissoutes pour l'expérimentation de 2000 mg/L (phase de sorption) sont beaucoup moins bien modélisées que pour les expérimentations à 40 mg/L (phase de désorption) en utilisant les mêmes constantes cinétiques. Ces résultats suggèrent que les constantes cinétiques du modèle décrit en V.4.3 ne sont peut-être pas flexibles au point d'être utilisés sur plusieurs ordres de grandeurs de concentrations de MES.

### VI.2.5. Diagramme d'évolution du $^{137}\text{Cs}$ dans le gradient salé

Les abaques produits en VI.2 fournissent la proportion d'activité dissoute à introduire dans STERNE ou bien l'intensité de désorption qui indique l'activité perdue par les particules lors de leur passage par l'estuaire et le panache proximal. Une dernière variable à regarder pourrait être l'évolution des concentrations dissoutes dans les différents compartiments du continuum en fonction de la salinité.

Pour ce faire nous reprenons la méthodologie de ce chapitre en calculant l'évolution des concentrations dissoutes de césium pour des débits de 300 à 1700 m<sup>3</sup>/s qui sont les conditions pour lesquelles la désorption du césium est possible dans l'estuaire ou le panache proximal, et pour lesquelles nous avons une bonne idée des temps de résidence. Pour toutes ces conditions de débit, la concentration en MES est fixée à 40 mg/L. L'activité initiale est la même<sup>1</sup> pour toute condition de débit. Elle est prise à 1 Bq/L en phase dissoute et 0 sur les phases particulaires. Cette valeur est utilisée uniquement comme référence pour simuler une contamination, sachant que l'activité dissoute actuelle dans le Rhône est de 0,0001Bq/L. Pour la mer l'activité est fixée à 0 Bq/L (actuellement elle est de 0,0015 Bq/L pour la Méditerranée (Radakovitch et al., 2021)). L'état de sorption au niveau d'Arles est l'évolution du système (sorption partielle sur les particules) au bout de 7 jours. Après ces 7 jours la répartition est de 0,63 Bq/L en phase dissoute et le reste est en phase solide. On obtient un diagramme d'évolution partiel (Figure VI-12) puisque l'on ne différencie que 4 points correspondant à 4 zones : Rhône en Arles, estuaire entre Arles et l'embouchure, panache proximal et désorption maximale dans la colonne d'eau marine.

---

<sup>1</sup> En toute rigueur les activités liquides changent selon les conditions de débit en cas de rejet accidentel dû à la dilution plus ou moins importante de l'activité par le fleuve.

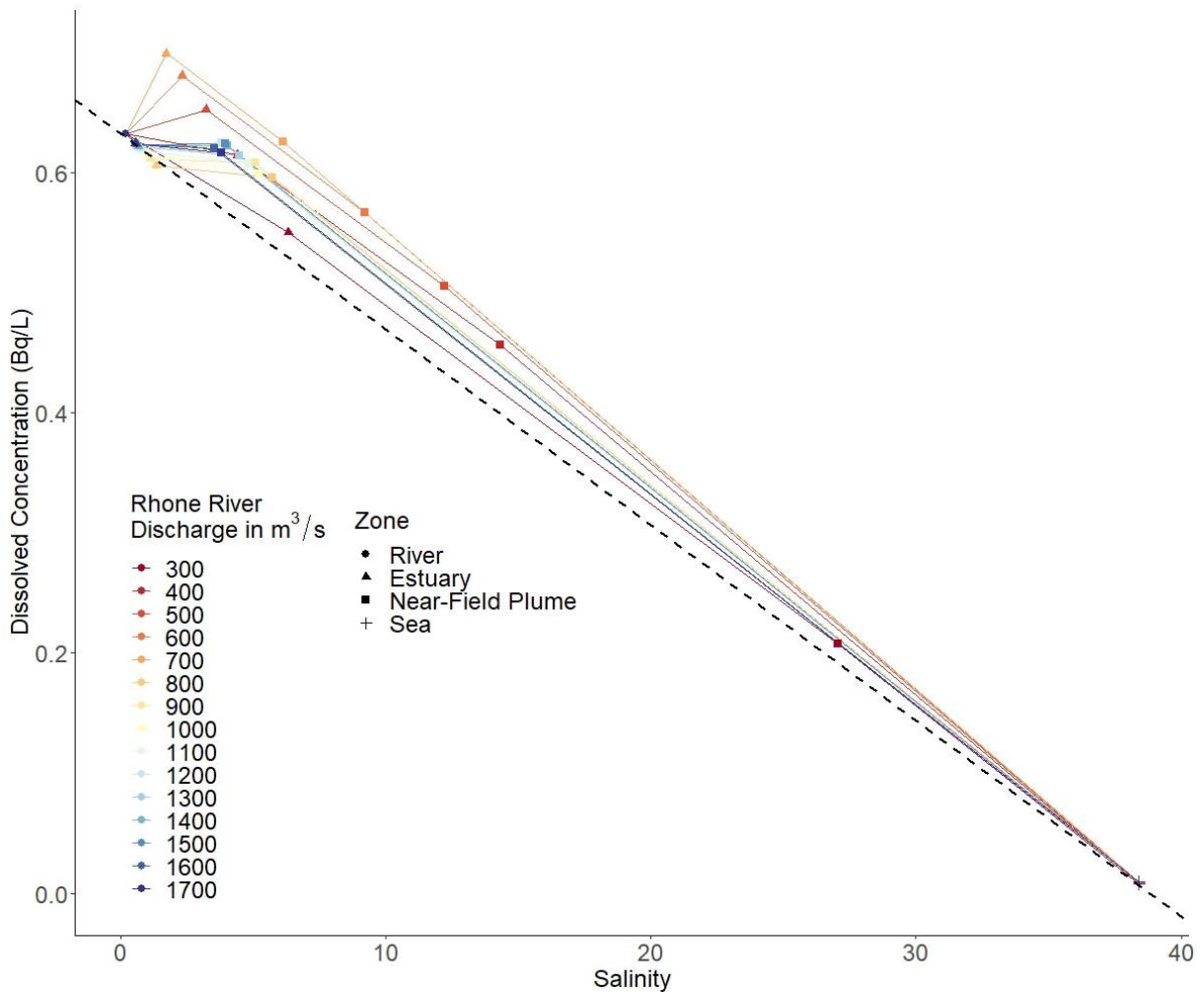


Figure VI-12 : Diagramme d'évolution théorique du césium dissous sur le gradient de salinité Rhône-Méditerranée. Un écart à la droite de mélange (trait noir pointillé) indique une réactivité de l'élément considéré. Les activités en eau douce et en mer sont fixées théoriquement pour simuler une contamination depuis le fleuve.

De par la désorption, les concentrations dissoutes sont plus élevées que celles attendues pour une simple dilution. L'augmentation de concentration la plus importante (environ 15,6%) est au niveau de l'estuaire si la salinité est supérieure à 3. En deçà, il n'y a pas de désorption et les concentrations se rapprochent de la ligne de dilution. Dans le panache, la désorption continue pour les débits inférieurs à 700 m<sup>3</sup>/s ou commence pour les débits supérieurs à 700 m<sup>3</sup>/s. Néanmoins, elle est beaucoup plus faible dans le panache que dans l'estuaire à cause des temps de résidence plus faibles. En effet, il faut parfois 96 h dans l'estuaire pour passer d'une salinité de 0,2 à 13, là où cette transition est atteinte en moins d'une heure dans le panache proximal. Ces temps de résidence supérieurs dans l'estuaire sont plus favorables à la désorption du césium. L'écart sera d'autant plus grand que la concentration en MES est élevée, néanmoins une concentration en MES supérieure à 40 mg/L est très peu probable pour des débits inférieurs à 700 m<sup>3</sup>/s.

#### VI.2.5.a. Comparaisons avec des campagnes dans le gradient salé du Rhône (DRIM)

L'étude de la désorption du  $^{137}\text{Cs}$  a été conduite en 2019 sur le gradient salé du Rhône dans le cadre de deux campagnes de terrain réalisées pour le programme OSR (Radakovitch et al., 2021). Succinctement, la méthode consiste à pomper 20 à 60 L d'eau (volume décroissant avec la salinité, l'eau de la Méditerranée ayant à cette date plus d'activité dissoute que l'eau du Rhône). L'eau est prélevée à 20cm de profondeur sous la surface à l'aide d'une pompe et passée sur une cartouche filtrante à 0,4 microns. Selon les conditions du Rhône, une partie du gradient se situe dans l'estuaire. Auquel cas les prélèvements sont effectués en zodiac jusqu'à la bouée de Roustan. Après la bouée de Roustan, les prélèvements ont été fait depuis le navire Antédon. Cette eau est passée sur une résine KNiFC-PAN qui retient le  $^{137}\text{Cs}$  de l'eau. Cette résine est ensuite comptée en spectrométrie gamma au laboratoire souterrain de Modane (très bas bruit de fond) étant données les faibles activités. Le rendement de l'extraction du  $^{137}\text{Cs}$  est évalué par un ajout de Cs stable dans l'échantillon et mesuré par ICP-MS au laboratoire LR2T (IRSN/SRTE) de Cadarache. Plus de détails sur le déroulement de la campagne et la méthodologie sont disponibles dans (Radakovitch et al., 2021) .

La première campagne s'est déroulée dans des conditions de débits de  $1100 \text{ m}^3/\text{s}$  en Arles et la seconde à  $450 \text{ m}^3/\text{s}$ . Les résultats déjà présentés en introduction sont repris en Figure VI-13.

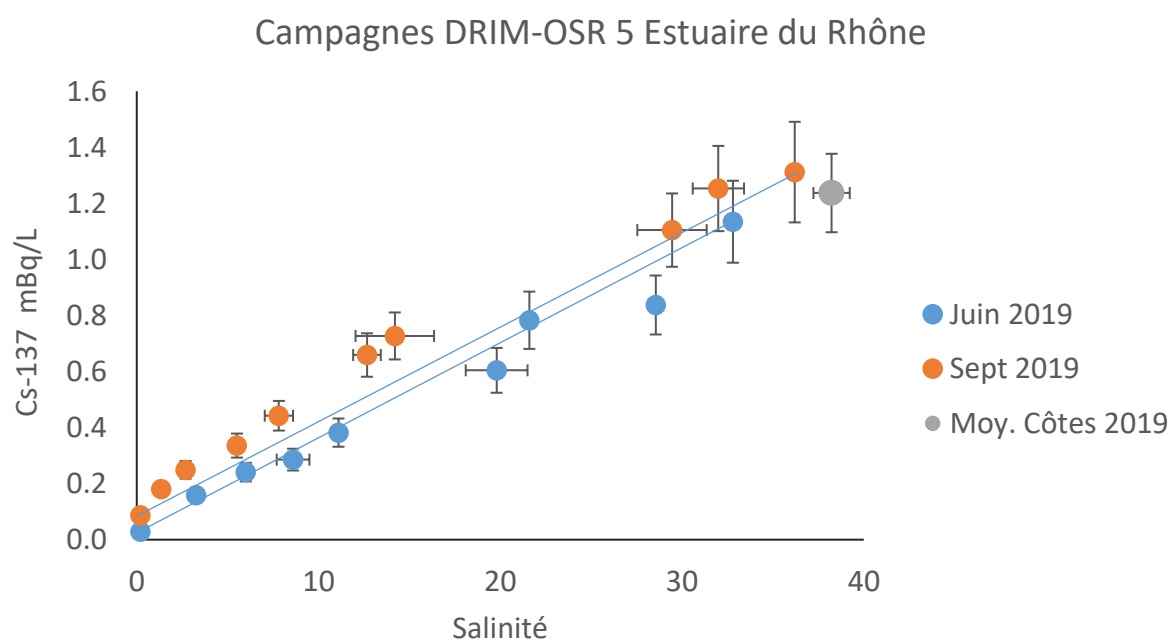


Figure VI-13 : Activités de  $^{137}\text{Cs}$  dissous mesurées durant les campagnes DRIM de Juin ( $1100 \text{ m}^3/\text{s}$ ) et Septembre 2019 ( $450 \text{ m}^3/\text{s}$ ). Le point gris correspond à la moyenne de 3 échantillons mesurés au large de Toulon et Marseille en Avril 2019. Issu de Radakovitch et al (2021).

Si l'on se réfère à la méthodologie d'interprétation d'une telle figure présentée en I.5 il y aurait une potentielle désorption pour des débits de  $450 \text{ m}^3/\text{s}$  (points au-dessus de la ligne de mélange binaire) mais pas de désorption à  $1100 \text{ m}^3/\text{s}$  (points sur la ligne). A  $450 \text{ m}^3/\text{s}$ , sur 9 points de mesure, nous avons prélevé les 4 premiers points dans l'estuaire, les 4 suivants dans le panache proximal et le dernier à 9 km de l'embouchure. A  $1100 \text{ m}^3/\text{s}$  seul le point de référence salinité 0,2 a été pris en amont de l'embouchure. Or d'après la Figure



VI-12, c'est bien dans l'estuaire que l'augmentation de l'activité dissoute serait la plus importante pour les débits de 400-500 m<sup>3</sup>/s. En revanche, elle serait beaucoup plus modérée sur l'ensemble du gradient de salinité pour des débits de 1100 m<sup>3</sup>/s. L'évolution théorique des concentrations dissoutes de <sup>137</sup>Cs sur le gradient de salinité synthétisée par la Figure VI-12 semble donc en accord avec ces observations.

#### *VI.2.5.b. Comparaison avec les résultats observés sur la zone de Fukushima*

Sur la figure V-12 on peut voir une augmentation théorique de la concentration dissoute de maximum 15% dans l'estuaire par rapport à la droite de dilution et de 10% par rapport à la concentration en fleuve. Cette augmentation est modérée si on la compare à celle de Kakehi et al., (2016) qui observent une augmentation de 36% par rapport à la droite de mélange sur des concentrations dissoutes en 2013 et 2014 dans le système Abukama-Baie de Sendai peu avant l'embouchure. A ma connaissance, il n'existe pas d'autres études avec diagramme de mélange pour le <sup>137</sup>Cs dissous dans des estuaires dans la zone de Fukushima.

#### VI.2.6. Synthèse

Ces résultats montrent qu'un très faible débit en dessous de 700 m<sup>3</sup>/s permet la remontée d'un coin salé où les conditions de salinité entraînent la désorption du césium. Pour une sorption inférieure à 7 jours, 40 à 50% de l'activité particulaire (Bq/kg) passe en phase dissoute dans l'estuaire. Cette désorption estuarienne implique les sites de type 1 à faible affinité car les temps de résidence estuariens sont trop courts pour réellement impliquer la désorption des sites 2 à forte affinité. Ces conditions estuariennes permettraient un gain de 3 à 17 % de l'activité pour la phase dissoute.

Si ce débit augmente, la salinité favorable à la désorption du césium ne se retrouve que dans le panache proximal (1,2 km proche de l'embouchure), ou plus au large pour plus de 1700 m<sup>3</sup>/s. Des incertitudes demeurent sur le flux dissous apporté par la désorption après l'embouchure. Les particules peuvent théoriquement désorber 99% de leur activité suite à une dilution au 1/100 dans l'eau de mer, mais cette valeur extrême sera abaissée pour les cas où les teneurs en matière en suspension sont élevées, où le temps de sorption aura été long et si la sédimentation des particules est rapide. Les processus de sédimentation peuvent en effet retirer les particules de la colonne d'eau avant qu'elles n'aient eu le temps de désorber. Ainsi (Marion, 2010) observe en 2006 que 54 % de l'activité particulaire de <sup>137</sup>Cs du Rhône est immobilisée dans les sédiments du prodelta. Quoiqu'il en soit, cette désorption peut se produire post-dépôt et diffuser vers la colonne d'eau (Kambayashi et al., (2021)).

Ainsi, plus les débits seront élevés plus la désorption se fera en mer après l'estuaire, amplifiant le rôle potentiel de la sédimentation. De plus, un temps de sorption élevé sur le continent augmente le temps en mer nécessaire pour atteindre l'équilibre suite à la désorption. Ce temps supplémentaire permet à plus de particules de sédimer. Ces résultats motivent l'utilisation d'un modèle sédimentaire, même simplifié, après l'embouchure pour quantifier ces processus en parallèle de la désorption.

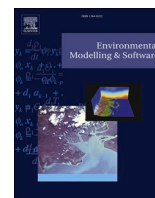
# VII. Classification « floue » des forçages du panache du Rhône : Application pour un rejet accidentel de radionucléides

Les modèles une fois couplés nécessitent d'être testés pour différents forçages hydrométéorologiques (débits, conditions de vents...) pour évaluer leurs performances. Ces conditions étant très variables, nous avons cherché à appréhender les combinaisons de forçages les plus récurrentes que l'on puisse retrouver à l'embouchure du Rhône, un peu comme ce qu'a réalisé Boudet (2017) en regardant les successions d'évènements de crues et tempêtes sur cette zone. Ces combinaisons peuvent être assimilées à des « scénarios types », utiles par exemple pour des études cherchant à anticiper les conséquences d'un rejet accidentel de contaminants dans le fleuve et arrivant en mer. Toutefois, la sélection de ces conditions est subjective, laissée à la seule appréciation du modélisateur, et elle est parfois incomplète.

Nous proposons dans ce chapitre d'identifier de manière subjective les combinaisons les plus probables de forçages hydrométéorologiques à l'embouchure du Rhône en appliquant un algorithme de *fuzzy clustering* sur les données de la bouée MesuRho acquises entre 2010 et 2019. Les résultats montrent 6 scénarios différents à l'embouchure incluant les scénarios classiques de Mistral, vent de mer ou de crue du Rhône. Ces scénarios ont une variabilité saisonnière et génèrent différentes extensions spatiales du panache.

Les conséquences de ces conditions pour les courants de surface in-situ sont quantifiées. Le panache résultant de chacun des scénarios a été modélisé avec STERNE. Comme nous ne disposons que d'une seule année simulée en termes de données hydrodynamiques (2010), les périodes de références choisies pour les 6 scénarios sont définies comme les périodes de 48 h cumulant le plus haut pourcentage d'appartenance au cluster/scénario considéré. L'algorithme proposé a été synthétisé sous forme d'un arbre de régression permettant d'identifier, en temps réel, quel scénario hydroclimatique se produit à l'embouchure et ainsi de visualiser très vite qu'elle devrait être la dispersion potentielle du panache. Cette approche reste approximative mais pourra être utilisée en quelques instants en cas de rejet.

Ce chapitre est valorisé sous forme d'article dans le journal « Environmental Modelling and Software ». La criticité de certains de ces scénarios pour le transfert du  $^{137}\text{Cs}$  dissous à l'interface est discutée en conclusion au Chapitre VIII.



# A fuzzy classification of the hydrodynamic forcings of the Rhone River plume: An application in case of accidental release of radionuclides

A. Delaval<sup>a,\*</sup>, C. Duffa<sup>a</sup>, I. Pairaud<sup>b,c</sup>, O. Radakovitch<sup>a</sup>

<sup>a</sup> IRSN (Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire), PSE-ENV/SRTE/LRTA, 13115, Saint-Paul-Les-Durance, France

<sup>b</sup> UMR 6523 CNRS, IFREMER, IRD, UBO, Laboratoire D'Océanographie Physique et Spatiale, 29280, Plouzané, France

<sup>c</sup> IFREMER, Centre Méditerranée, Laboratoire Environnement Ressources Provence Azur Corse, F, 83507, La Seyne sur Mer, France

## ARTICLE INFO

### Keywords:

Coastal plume  
Fuzzy c-mean clustering  
Accidental release scenarios  
Rhone river  
Radioprotection  
Coastal management

## ABSTRACT

Assessing and modelling the coastal plume dispersion of nuclearized rivers is strategic in case of accidental releases, but taking into account the variation of main hydrodynamic forcings is challenging. This study uses fuzzy c-mean clustering of a 10 years series of discharge and wind speed at the Rhone River estuary (France) in order to explain the variability of its plume. The method allows to classify the data into 6 scenarios of hydrodynamic forcings that were related to different spatial extensions of the plume, as well as to surface currents measured in-situ. These scenarios were used to simulate the extension and dilution of a radioactive release issued from the river. Based on threshold values of the forcings, a decisional tree is proposed to provide a quick decision tool identifying, in real time, which climatological scenario occurs at the river mouth and the potential plume pattern.

## 1. Introduction

The Rhone River catchment extends over 98,000 km<sup>2</sup> and covers one fifth of the French metropolitan territory. It is the main source of particles and freshwater for the Gulf of Lion in the North Western Mediterranean sea (Durrieu De Madron et al., 2000), and all together one of the most important input to the Mediterranean sea (Ludwig et al., 2009). The Rhone valley also hosts the largest concentration of nuclear power plants in Europe with 4 nuclear power plants in process and a spent fuel reprocessing center, under dismantlement since 1997. Eyrolle et al. (2020) recently synthesized the studies showing that this river carries artificial radionuclides from decades, resulting from authorized releases of low level radioactive liquid wastes and from the export of atmospheric deposits on watersheds consequently to nuclear weapons testing and Chernobyl accident.

France is presently ranked second in the world for the production of nuclear energy, and the total electricity production in the combined regions of Northern, Western and Southern Europe is projected to increase by 2050 (IAEA, 2019). Also, the risk of incident on any kind of nuclear installations is still of concern in France and must be taken into account. As for any river, the transport of artificial radionuclides in case of accidental release occurs both in dissolved and particulate form, depending on the amount of suspended particulate matter and on the

chemical properties of the radionuclides, and particularly their distribution coefficient (Tomczak et al., 2019). For the Rhone River, the prediction of dissolved vs particulate fluxes and the associated time scale for transit can be evaluated through numerical modeling (Launay et al., 2019), but the behavior of radionuclides once at sea is clearly less constrained, because it will primarily depend on the forcings governing the shape of the Rhone River plume.

The area of the Rhone river mouth is characterized by a very small tidal amplitude about 30 cm inducing the formation of a sedimentary delta. As usual in this case, the freshwater input forms a thin stratified plume of low salinity water (and higher turbidity) overlying the seawater and extending between 4 and 1000 km<sup>2</sup> (Estournel et al., 1997; Gangloff et al., 2017) with a thickness decreasing seaward (Pairaud et al., 2011; Gangloff et al., 2017). It is preferentially deflected westward in a clockwise orientation running East to West (Reffray et al., 2004) due to the general circulation induced by the Northern Current along the continental slope. Under north-northwest winds, the plume extends offshore towards the southwest, whereas it is pushed to the coast west of the river inlet in case of southeastern winds. Satellite and modelling results have also shown that the plume size increases with river discharge (Frayse et al., 2014; Gangloff et al., 2017). More episodic processes impact the plume pattern such as dense water formation and cascading (Ulses et al., 2008), upwelling cells and marine storms (Millot,

\* Corresponding author.

E-mail address: [adrien.delaval@irsn.fr](mailto:adrien.delaval@irsn.fr) (A. Delaval).

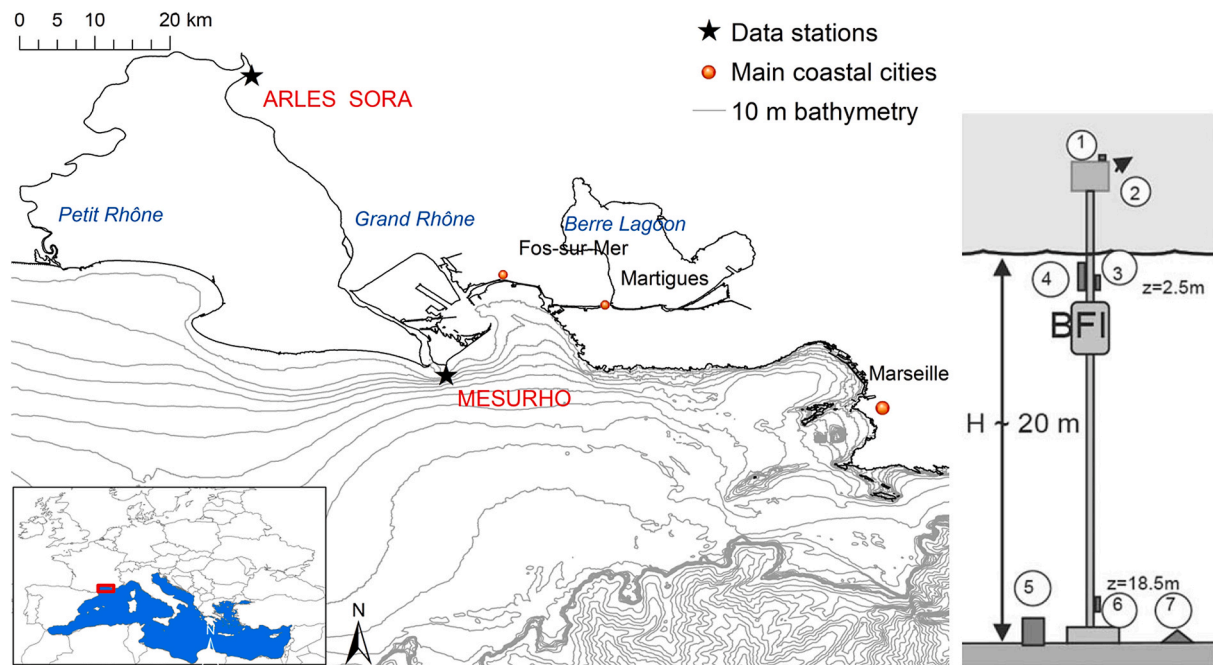


Fig. 1. Map of the GoL (Mediterranean sea) and Rhone River estuary indicating the locations of discharge and weather stations used in the fuzzy-clustering algorithm. Scheme of Mesurho buoy devices Weather station + PAR (1), solar panels and control and transmission automat ABIN (2), Multiparameters sondes (3 and 6) nitrates captor ISUS (4), benthic station (5), ADCP (7).

1990, 1999). As a result, this plume extends far beyond the coastal areas and may covers a large area in the GoL extending from the vicinity of the mouth up to the Cap de Creus at the french-spanish border (Sanchez-Cabeza et al., 1992). It can also reach the Gulf of Fos (Gontier et al., 1992; Charmasson et al., 1999) or the Bay of Marseille (Pairaud et al., 2011; Fraysse et al., 2014) on the eastern side of river mouth. The Gulf of Fos is an important economic area with one of the biggest commercial port in Europe and a large shellfish area, and Marseille is one of the biggest Mediterranean coastal city with one million inhabitants. Due to the oligotrophic nature of the Mediterranean Sea, the region of freshwater influence (ROFI) of the Rhone river has a major influence on the distribution of plankton groups (Diaz et al., 2019) and thus pelagic catches on the GoL. Obviously, the inputs of chemical contaminants from the Rhone River can greatly affect the fishery activity.

The combination of meteorological and hydrodynamic forcings with the dynamics of the Rhone River discharge results in a large spatio-temporal variability in freshwater and associated pollutants delivery to the GoL (Martin et al., 2019). If an accidental release occurs in the Rhone River, the dissolved radionuclides may reach the estuary within 48 h h to few days depending on the source location and water discharge [unpublished results]. Once at sea, the different shapes that the plume may present will depend on hydrodynamic and weather conditions and will lead to contaminate different areas. Since one goal of radioprotection is to predict the transfer of radionuclides in the environment, there is a need to anticipate their dispersion at any time and in any kind of meteorological and hydrodynamical conditions.

Different numerical hydrodynamic models have been set up in the GoL, including the river mouth (Pairaud et al., 2011; Duffa et al., 2016), and they could be used actually in case of accidental release in order to predict the behavior of the freshwater input. However, the delay necessary for their implementation will range from few hours to few days, whereas very quick and concise information should be provided to experts and decision-makers as a first picture of the local issues. Also the potentially impacted zones will be better defined by performing a fine spatial scale simulation adequately centered, compared to a large-scale simulation.

As a result, a preliminary study embraces all possible plume patterns

is necessary, and a first step is to target the general behavior of the estuarine-plume system. Bårceña et al. (2015) explained that two approaches may be conducted for that: simulating several scenarios using constant conditions of hydrodynamic forcings or simulating few scenarios using the most frequent or extreme real hydrodynamic forcings during short-medium term periods (month to year).

These authors demonstrated that the first approach is not complete because real forcings cannot be deduced from the combination of simple idealized scenarios. The second approach relies on a subjective selection of scenarios by an expert and it will have an expensive computational cost for simulations if the need is to get on overview of the different kind of realistic responses of the estuarine-plume mean behavior. In this case, and to minimize subjectivity, a methodology based on data mining should be able to select the most relevant condensed hydrodynamic scenarios, taking into account the time evolution and the occurrence probability of the forcings.

Plume classifications based on satellite observations or hydrodynamic model output have been defined in several river-sea systems using Empirical Orthogonal Function or Self-Organizing-Map (Falcieri et al., 2014; Xu et al., 2019). Such classification method deals with large spatial scale but implies a heavy data pretreatment like « masking » to treat the satellite data or for the computation of the model. In addition, the need of long-term environmental databases (e.g., 10–20 years) to assess probabilities implies significant computational costs as well as long and multiple series of data to be used as boundary conditions and climatic forcings. Another approach is to classify the main hydrodynamics drivers by looking for example at the catchment discharge and the winds intensities and directions (Kaufmann and Whiteman 1999; Zhang et al., 2011). Since the plume response to these forcings can be longer than 24h (Demarcq and Wald, 1984; Estournel et al., 1997), the classification should work observation by observation but must also keep consistency over longer temporal scales of few days in order to be accurate. Clustering performed on temporal series helps to assess the consistency of a trend over time, and a fuzzy clustering algorithm provides a continuous cluster membership function allowing to spot significant trend changes.

In this context, this paper presents a methodology based on statistical

analysis and numerical modelling that was developed to address the limitations of the previously mentioned approaches. Firstly, we used a fuzzy *c*-mean algorithm to identify and classify combinations of winds and discharge at the mouth of the Rhone river in order to define “model scenarios” of realistic forcings. Secondly, the consequences for sea surface currents will be assessed and the resulting plume pattern will be modelled for each scenario, as well as the distribution of dissolved radionuclides due to a hypothetical and episodic release on the Rhone River. These *plumes scenario* can be used as a support for operational tools improvement and decision.

## 2. Material and methods

### 2.1. Field study and data

The Rhone River hourly discharges have been provided by the C.N.R (Compagnie Nationale du Rhône) thanks to the Rhone Sediment Observatory (OSR program). They were measured at the SORA station, in the city of Arles located 47 km upstream of Rhone River mouth (Fig. 1). It must be noted that the Rhone River splits in two branches upstream of this station: the Grand Rhone and Petit Rhone. The station reports the discharge for the Grand Rhone River only, which represents about 90% of the total Rhone River discharge (Boudet et al., 2017). In our case we focus only on the river plume at the Grand Rhone outlet.

Weather data and subsurface marine currents data are issued from the MesuRho station (Pairaud et al., 2016), operational since June 2009 and located at the Buoy Float Immersed (BFI) maritime buoyage Roustan East (43° 19.2 N, 4° 52 E) on the Rhone prodelta (20 m water depth). It is about 1 mile southeast of the mouth and was configured to collect physico-chemical data in near real time and at high frequency (about 30 min) in the fresh/marine waters transition zone. It is equipped with a weather station at 10 m height and an Acoustic Current Doppler Profiler (ADCP). The instrumentation is connected by a cable to a controller located above the sea surface and powered by solar panels. The measurements are transmitted to the Coriolis data center via GPRS (about 1 transmission every 12h since 2015, 4h before).

Weather variables used are the average wind speed over 30 min and the gust wind speed. Gust wind speed is the maximal mean wind speed over 0.5 s observed during a period of 30 min.

The observations used were registered between 2009 and 2019 and result in a total of 128,262 data. The subsurface currents (maximum depth of 1.5 m) from 2010 to 2019 were also used, when available and after quality control validation, leading to a total of 31,826 observations.

In order to perform multivariate analysis and regression, wind and currents variables (expressed in terms of velocities  $u$  and directions  $\theta$ ) are described by an Eastward and a Northward component  $X$  and  $Y$  and calculated as follow:

$$\begin{cases} X = u \cdot \cos(\theta) \\ Y = u \cdot \sin(\theta) \end{cases} \quad (1)$$

The corresponding hourly discharges in Arles (64,131 obs.) were shifted with a 24 h delay, which corresponds to the transit time between Arles and the river mouth for a mean liquid discharge.

### 2.2. Principal Component Analysis

Principal Component Analysis (PCA) has been widely used in environmental sciences including hydrologic and hydrodynamics (e.g. Hannah et al., 2000; Pairaud et al., 2008). The common goal to all principal component methods is to describe a data set ( $X$  with  $i$  individuals or observations and  $w$  variables) using a small number ( $p < w$ ) of uncorrelated variables, while retaining as much information (variance) as possible. The reduction is achieved by transforming the data into a new set of continuous variables named the principal components.

The reduction of dimensionality provides a framework to visualize data which is especially important for large datasets (Husson et al., 2010). This facilitates the analyses based on geometrical criteria such as separate observations into  $k$  distinct sub-groups (clustering) or determination of extreme points (Renner, 1993; Napoleon and Pavalakodi, 2011).

Using PCA as a pre-processing tool in order to cluster presents two additional advantages. The reduction of dimensionality speeds up the convergence of classification algorithms, which usually depends on the square of  $p$  and  $i$  (Ben-Dor et al., 2004), and it reduces the noise, the essential of the information being on the first components whereas the noise is on the lasting ones (Husson et al., 2010). PCA has been performed using the R package “FactoMineR” (Lê et al., 2008).

### 2.3. Fuzzy *c*-mean algorithm

Clustering is a usual method for data mining when it comes to identify groups and classify individuals, but many algorithms exist and present different results and convergence speeds (Jain et al., 1999). The first goal is to find an algorithm based on geometrical criteria as simple as possible for a more realistic interpretability, and the second one is to find a fast convergence algorithm in order to treat the important dataset.

The most usual method is the *c*-mean or *k*-mean (MacQueen, 1965; Yadav and Sharma, 2013) and its fuzzy alternative (Bezdek, 1981; Fu Lai and Tong, 1994). *C*-means are iterative algorithms that classify individuals of a dataset into  $C$  groups. The algorithm allows to randomly define  $C$  centroids in the same coordinate systems as the individuals. Each individual  $x$  (total of  $K$ ) is then assigned to the closest centroid center  $c_i$ . The barycenter of each subgroup is then calculated and becomes the new centroid. Again, individuals are reassigned to the closest centroid. This iterative procedure minimizes the objective function ( $J$ ) and the procedure ends when  $J$  reaches an inferior threshold in Eq (2).

$$J = \sum_{i=1}^C \sum_{x_k \in C_i} \|x_k - c_i\|^2 \quad (2)$$

This method is defined as “crisp”, which means that each observation is set to belong to its closest centroid cluster. Consequences are that observations with different distances from the nearest cluster are classified into this cluster without degree of uncertainty and the ambiguity of the data is eliminated.

Cluster boundaries are usually not sharp in environmental sciences (Zadeh et al., 1965), especially when ambiguous data exist, and membership degrees are more realistic than crisp assignments (Klawonn and Höppner, 2003). A priori we do not expect a crisp classification and it is important to have feedback on the confidence of classification for each individual. As a result, the ambiguity of the data can be preserved and his probability can be used later for post treatments (Kim et al., 2011).

The fuzzy alternative introduces two new parameters. The first one is the membership coefficient  $\mu_{ik}$ , the coefficient of the  $k$ th observation to the  $i$ th cluster. This membership represents how closely the  $k$ th data object ( $x_k$ ) is located from the  $i$ th cluster center. It varies from 0 to 1 depending on the distance ( $\|x_k - c_i\|^2$ ), and a higher membership coefficient indicates stronger association between the  $k$ th data object to the  $i$ th cluster.

$$\mu_{ik} = \left[ \sum_{j=1}^C \left( \frac{\|x_k - c_i\|^2}{\|x_k - c_j\|^2} \right)^{\frac{2}{m-1}} \right]^{-1} \quad (3)$$

The second parameter  $m$  is the fuzziness coefficient. It is greater than 1 and usually dependent on the dataset structure because it represents the degree of overlap of the clusters (Klawonn and Höppner, 2003). If we set  $m$  to a smaller value, more (less) weight is given to the objects that are located closer to (farther from) a cluster center. As  $m$  is close to 1,  $\mu_{ik}$  converges to 0 for the objects that are far from a cluster center, or 1 for those close to a cluster center, which implies less fuzziness (i.e. clearer

cut).

The symbol denotes any vector norm that represents the distance between the data object and the cluster center. Here we use the 2-norm (Euclidean norm) which is widely used in the FCM.

The new c-mean function to minimize becomes:

$$J = \sum_{i=1}^C \sum_{k=1}^K (\mu_{ik})^m \|x_k - c_i\|^2 \quad (4)$$

The robustness brought by the fuzzy approach over the crisp classification is a significant improvement in term of efficiency and convergence. Because each individual (observations) has a probability to belong to each center, centers are adjusted faster and the algorithm converges faster (Fu Lai and Tong, 1994; Ferraro and Giordani, 2015).

Also, without any prior information on the cluster structure (sphericity of clusters, possible overlap) the fuzzy c-mean provides better results than its crisp counterpart (Selim and Kamel, 1992). As a result, hydrologic and climatologic combinations can be identified by fuzzy-cmean (Kim et al., 2011; Zhang et al., 2011; Bárcena et al., 2015).

In this study the fuzzy-cmean algorithm is performed using the “e1071” package from R software (Meyer et al., 2019).

#### 2.4. Choice of the number of clusters $C$ and the coefficient of fuzziness $m$

Fuzzy c-mean algorithm needs to be initialized with the number of clusters  $C$  and the coefficient of fuzziness  $m$ . The best combination of these parameters is not determined by the algorithm. One approach is to run different simulations with different  $\{C, m\}$  pairs and to check the efficiency of clustering with a quality criteria (Ramze Rezaee et al., 1998; Setnes and Babuška, 1999).

Many criteria and their efficiency are available in Wang and Zhang (2007) and Liu et al. (2010). Some have fast calculation like partition coefficient (PC) or partition entropy (PE), but they monotonously decrease with the number of clusters and the lack of direct connection to the geometry of the dataset. Others are more complete but computationally expensive, such as the Dunn index (Dunn, 1974) or the fuzzy silhouette (Campello and Hruschka, 2006), and they could not be calculated with this dataset. The Xie and Beni index (Xie and Beni, 1991) could be calculated based on Eq (5). XB has a direct connection to the geometrical property of dataset because it takes into account both compactness and separation of the clusters. It deals correctly with noisy datasets, size or density variations (Liu et al., 2010).

$$XB = \frac{\sum_{i=1}^C \sum_{k=1}^K \mu_{ik}^m \|x_k - c_i\|^2}{K \min_{i,j} \|c_j - c_i\|^2} \quad (5)$$

Calculation of XB is also fast for our dataset: from 4 to 10 s depending on  $\{C, m\}$  pair.

$C$  could be any integer number between 2 and 358, the last one being theoretically the square root of the dataset length (Chaimontree et al., 2010). The fuzzifier  $m$  can be in theory any real number between 1 and  $\infty$ . In our case, the interval of  $\{C, m\}$  simulations has been restrained based on the following:

- Depending on the river-sea system involved, a different number of plume patterns exist. In literature, we found that a river plume can present up to 8 patterns (Xu et al., 2019). As a result, we do not expect our number of cluster to exceed 8 and the number of clusters  $C$  was set between 2 and 8.
- Previous studies report that values of  $m$  can range from 1 to 4. Most of them use  $m \in [1.5, 2.5]$  and as result  $m$  is usually set to 2 by default (Klawonn and Höppner, 2003). Overall  $m$  is lower for large datasets (Klawonn and Höppner, 2003), and the lower limit will be fix in our case to 1. Using the empirical threshold equation based on the length and dimensions of the dataset proposed by Schwämmle and Jensen (2010), we found that the superior threshold value of  $m$  for our

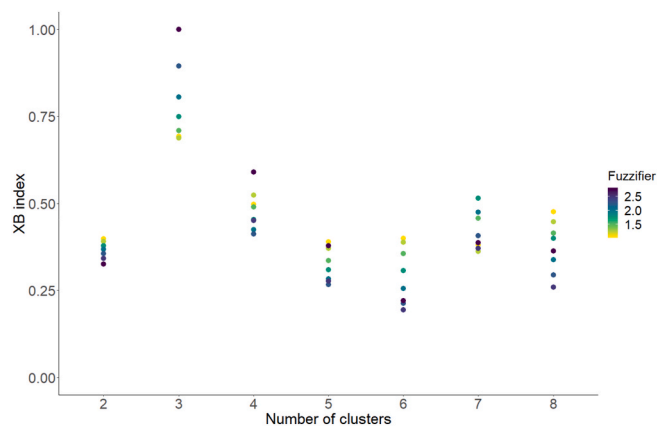


Fig. 2. Xie and Beni index values for different  $\{C, m\}$  simulations with fuzzy c-mean algorithm. A lower index indicates a better classification.

dataset is around 2.5. By safety, this threshold value is increased by +0.25.

As a result, parameter  $m$  will be tested in the interval  $[1; 2.75]$  and  $C$  in the interval  $[2; 8]$ .

### 3. Results and discussion

#### 3.1. Principal Component Analysis

PCA successfully reduced the five original variables (Wind speed toward North and East, Gust wind speed toward North and East and Rhone discharge) into three components and gave a summed variance of 96.4% (Fig. 1 supplementary material). This is not surprising since the gust wind speed and mean wind speed are correlated due to same direction (Fig. 2 supplementary material). The first axis contains 51% of variability with the information on wind direction. The second axis with 25% of variability contains the information on wind speed, and the last one (20% variability) corresponds to the Rhone discharge. The “elbow criteria”, the “Kaiser rule” and the interpretation of the components confirm without ambiguity these three components (Fig. 1 supplementary material). The lasting 3.6% carried by the two remaining components concern really specific and scarce interactions like the anticorrelation between mean wind speed and gust wind speed.

As a result, 80 and 20% of the variability are due to the variations of winds and liquid discharge respectively.

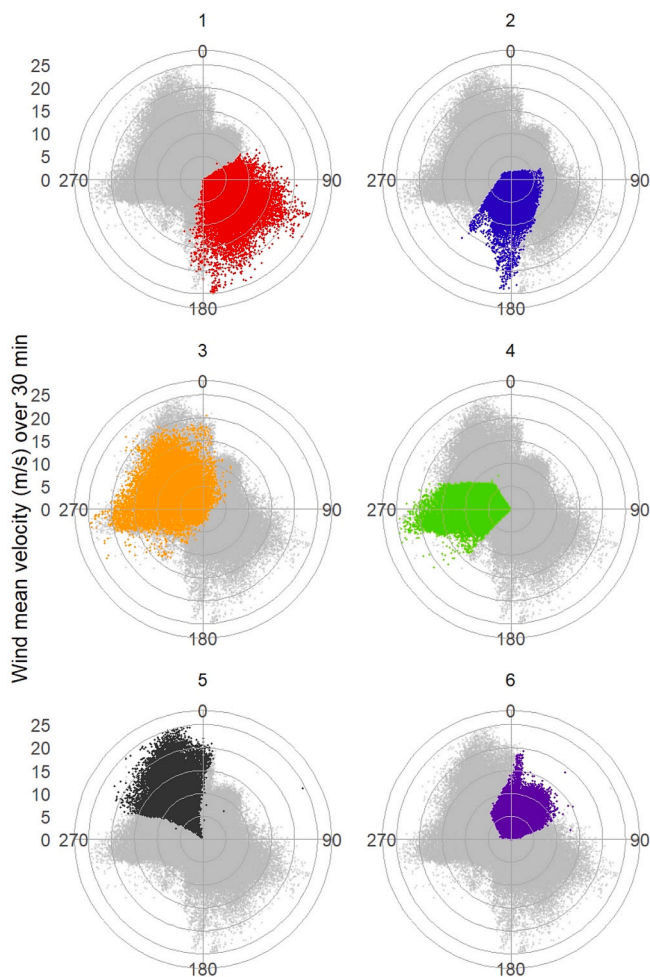
#### 3.2. Clustering results and performances

Fuzzy-c-mean clustering was performed on the 128,262 observations and the three main dimensions resulting from PCA. A summary on classification performances based on XB index is shown Fig. 2. All configurations performs reasonably well except the one with 3 clusters. An interesting result is that the 2 clusters configuration performed reasonably well, which confirms that the plume dynamics can be described as a first approach by considering only the wind direction that is South East against North West winds. This is in agreement with the 50% of variability held by the wind direction discussed hereunder. However, the configuration selected is the one giving the better result for XB, with 6 clusters optimized at  $m = 2.45$  ( $XB = 0.19$ ).

#### 3.3. Characterization of the scenarios

A cluster gathers observations having close values for one or more variables. These properties on variables are specific to each cluster and are then interpreted hereunder as a scenario.

In order to interpret the clustering and to characterize the resulting



**Fig. 3.** Grey dots: mean wind origin and speed (m/s) over 30 min from 2009 to 2019 measured at the Mesurho buoy, in front of the Rhone river. Color dots: cluster mean wind and speed sub-distributions.

scenarios we present the distribution of winds and discharges in Figs. 3 and 4, whereas Fig. 5 shows the percentage of occurrence of these scenarios for each month. The discharge distribution in each cluster was significantly different from the global distribution of Rhone discharge in Arles based on the Kolmogorov-Smirnov test (see Fig. 4).

In the description below, a flood event for the Rhone River refers to a discharge above a threshold set at  $3900 \text{ m}^3/\text{s}$  in Arles (Boudet et al., 2017). A storm criteria is usually the significant wave height, but this parameter showed too many breaks in the time series transmitted in near real time by the buoy over the 2009–2019 period. Also, we defined sea storm here by using as a threshold the quantile 98 of our offshore gust wind speed dataset (50.3% of total dataset) which is  $27.8 \text{ m/s}$  ( $100 \text{ km/h}$ ) (Klawns and Ulbrich, 2003).

Cluster 1 gathers South-East winds (paragon  $126^\circ$ ) with  $9.2 \text{ m/s}$  mean wind-speed and  $16 \text{ m/s}$  mean gust. It contains 86% of all observed sea storm events (with the highest intensity) and 19% of the flood events. The distribution of the hourly water discharge does not characterize this cluster. Observations belonging to this cluster have less than 6% occurrence in July–September, rising up to 23% in October and November. This cluster can be interpreted as moderate to high waves scenario resulting from fresh breeze to violent storm South-East marine winds.

Observations in cluster 2 are winds with velocities around  $4.5 \text{ m/s}$ , and  $9.2 \text{ m/s}$  gust fully coming from the South ( $171^\circ$ ). It contains 12% of all observed sea storm events. It gathers discharges values under  $2500 \text{ m}^3/\text{s}$ , with a median at  $960 \text{ m}^3/\text{s}$ . The observations mainly occur in

August–September with 23% occurrence. This cluster can be interpreted as a Rhone River low flow scenario mainly associated with South-East marine breeze or sometimes a Sirocco wind coming from the South (Reiter, 1975).

Wind observations in cluster 3 show an important variability and are superimposed with clusters 4 and 5. Most representative winds present a mean speed of  $8.5 \text{ m/s}$ , and gust speed of  $13.1 \text{ m/s}$ . The Rhone discharge distribution for cluster 3 is very different from the reference distribution (highest Kolmogorov's D statistic). It gathers discharges higher than  $2000 \text{ m}^3/\text{s}$  and contains most of the flood events (79% of them). This is also the cluster showing the highest contrast in seasonality, with an occurrence up to 33% from November to February, decreasing to 0–2% during the July–October period. Cluster 3 can be interpreted as the “high river flow” scenario with a combination of different winds coming from the North West.

In cluster 4, observations are usually winds with  $7.2 \text{ m/s}$  mean wind-speed and  $9.1 \text{ m/s}$  mean gust coming from the West ( $272^\circ$ ). It contains 2% of all observed sea storm events. Discharges are below  $2500 \text{ m}^3/\text{s}$  with a median around  $1070 \text{ m}^3/\text{s}$ . These observations mainly occur in July–August–September with 33% of occurrence. A specific point is that their occurrence increases during the afternoon with a peak around 1h AM (Fig. 3 supplementary material). Interpretation of this cluster is a Rhone River low flow scenario gathering moderate sea-breeze coming from the South-West (Cros et al., 2004), with sometimes a strong onshore gale from West.

Cluster 5 corresponds to winds with  $12.3 \text{ m/s}$  average speed and  $18.6 \text{ m/s}$  gust coming from a restricted area in the North ( $325^\circ$ ). The corresponding water discharge distribution is on the lower part of the global distribution (median of  $1140 \text{ m}^3/\text{s}$ ) and discharges are always below  $3000 \text{ m}^3/\text{s}$ . The monthly occurrence is stable (15%) with a peak in February at 25%. The strong average wind intensities and gust speeds (highest at  $340^\circ$ ) combined with the restricted wind direction parallel to the Rhone valley stand for the characteristics of the Mistral wind (Reiter, 1975). As a result, cluster 5 can be interpreted as a Mistral wind scenario (dry and strong breeze to strong gale) associated with low to moderate discharges.

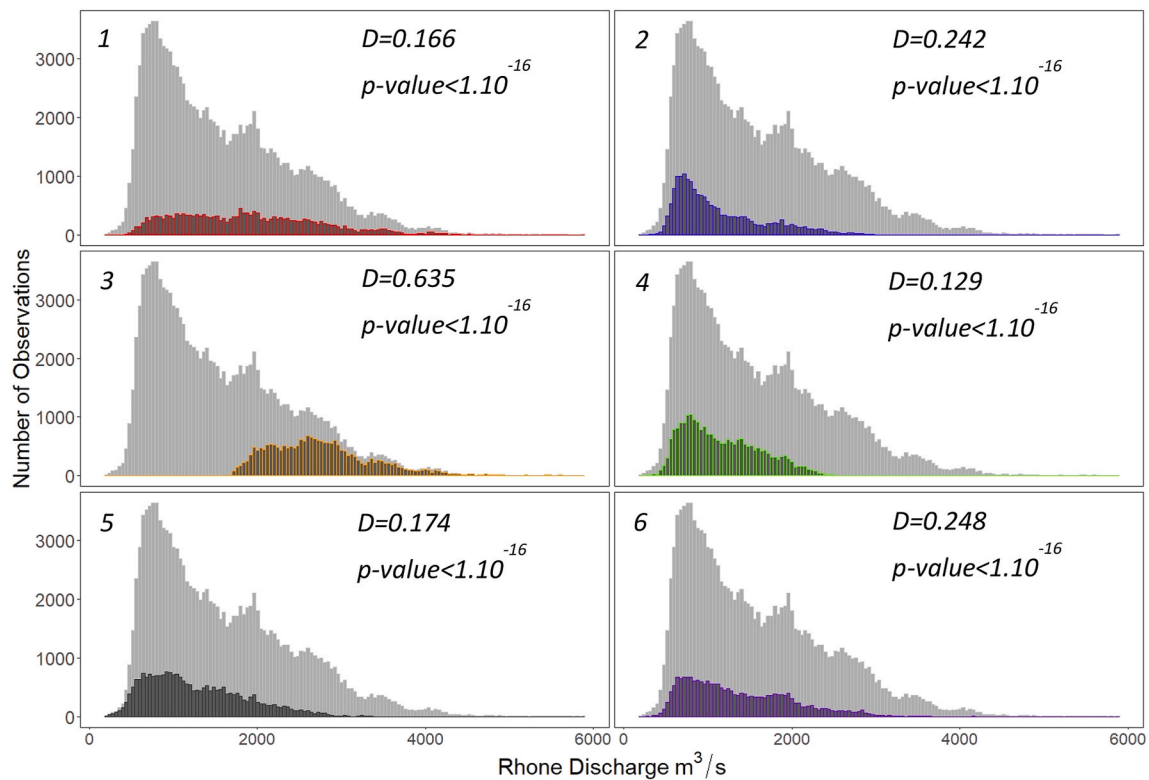
Cluster 6 usually gathers winds with  $5.7 \text{ m/s}$  average speed, and gusts of  $12.5 \text{ m/s}$  coming from the North East ( $11^\circ$ ). However, winds coming from  $340$  to  $360^\circ$  (North/North-West) are also observed. The related hourly water discharges distribution is in the lower part of the global one (median of  $1230 \text{ m}^3/\text{s}$ ) and few discharges higher than  $3000 \text{ m}^3/\text{s}$  are observed. Occurrence of cluster 6 observations is very stable all along the year, ranging between 14 and 18%. This cluster presents the largest gap between the wind speed average and the gust wind speed, and shows an increasing occurrence in the early morning. The highest gusts reach  $50 \text{ m/s}$  and occur episodically in winter with an origin from  $10$  to  $60^\circ$  (North-East). These are the strongest gusts observed among all scenarios. We interpret cluster 6 as a scenario gathering land breeze or valley flow during summer and winds channeled by Pre Alps mountains (Cros et al., 2004; Duine et al., 2017) which become stronger in winter (“orsure” according Reiter, 1975)).

### 3.4. Consequences for surface currents

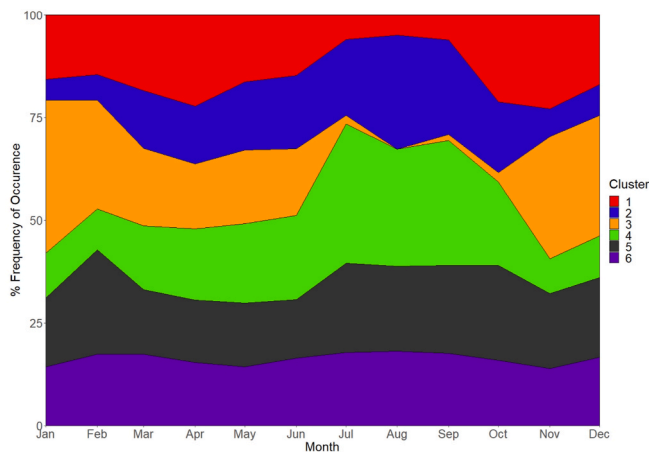
Six clear wind/discharge patterns have been identified, but did they correspond or induce different hydrodynamics responses of the surface currents in the vicinity of the Rhone River mouth? Consequences for subsurface currents observations issued from the ADCP on the MesuRho station are investigated through a least squares multiple regression. Observation membership to clusters  $C_i$  are the explanatory variables and currents in Eastward and Northward directions are the response variables.

Estimators  $X_i$  and  $Y_i$  are then used to calculate current orientation  $\theta$  (rad) and speed  $u$  (m/s) observed on each cluster with equation (1).

Confidence intervals are calculated with the robust White standard errors with “lmtest” package (White, 1980; Hothorn et al., 2019) to



**Fig. 4.** Rhône river hourly discharge (SORA, Arles) from 2009 to 2019 distribution (grey) and cluster Rhône discharge sub-distributions. Results from two-sample Kolmogorov-Smirnov test are shown. D statistic indicates how the distribution in each cluster is different from the reference distribution (all Rhône discharge values) Higher values of D indicates larger differences.



**Fig. 5.** Monthly occurrence of the 6 different scenarios over the 2009–2019 period.

avoid heteroskedasticity and underestimation of confidence intervals. The main current direction for each cluster obtained by least squares regression on memberships is presented on Fig. 6 (right) along with the global current rose (left).

Currents oriented at 280° correspond to scenario 1 and are in agreement with the more general modelling and satellite observations during similar south easterlies wind conditions showing the plume tackled to the Camargue coast (Marsaleix et al., 1998; Gangloff et al., 2017). Scenario 2 presents small currents not related to the wind direction. In this case, winds are probably too low and currents are driven by the general circulation, which has a current speed similar to those of this scenario: 10 cm/s.

In scenario 3 the current direction correspond to those at the Rhône River mouth, meaning that during high water events (discharges superior to 2500 m<sup>3</sup>/s) the river influence becomes significant.

Scenario 4, 5 and 6 seem to follow the surface Ekman transport, with a deflection to the left relative to the wind direction. Scenario 5 is the one presenting the largest interval of confidence despite having the straightest wind distribution. A closer look at the data shows that, in this scenario, the currents deeper than 1.2 m present an important heterogeneity in their direction. However, for wind average speeds superior to 15 m/s and gust wind speeds over 25 m/s this heterogeneity does no longer exist and all currents are oriented in a 150° direction. For comparison, scenario 5 paragon is an average wind speed of 12.3 m/s and gust wind speed of 18.6 m/s, values which are inferior to the two thresholds and may explain the currents discrepancies associated with this scenario.

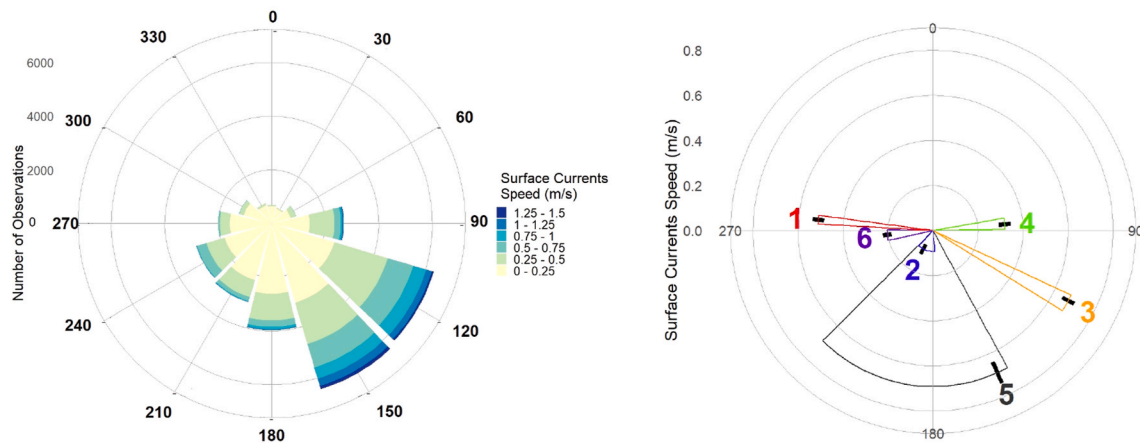
To conclude, each scenario has its own current direction and intensity, statistically different and significant.

### 3.5. Application

The main objective of this work is to define the general trends of dispersal in the GoL that can be expected in the case of artificial radionuclides release within the river. Since releases may occur at any time in a year, we modelled the dispersion of a radioactive plume in the GoL for each of the previous hydrodynamic scenario, in order to get an overview of the potential impacts, whatever the hydrodynamic and climatological conditions.

The simulation code used at IRSN for the marine area is STERNE (“Simulation du Transport et du transfert d’Eléments Radioactifs dans l’environnement marin”, or “Simulation of radionuclide transport and transfer in marine environments”). It was designed to assess the radiological impact of accidental releases affecting the marine environment. Eulerian radionuclide dispersion is calculated using a tracer advection





**Fig. 6.** Surface currents (depth < 1.5m) direction and module measured at the Mesurho (a) buoy and main direction (thick black dashes) and current speed for each scenario (b) obtained by least squares regression. Confidence intervals are for  $\alpha = 0.05$ .

diffusion equation. More details on the code can be found in [Duffa et al. \(2016\)](#).

We use the 2010 hydrodynamic outputs provided by IFREMER with its MARS3D model implemented on the North-western Mediterranean Sea ([Nicolle et al., 2009](#)). The simulations assumed a release of 1 TBq of  $^{137}\text{Cs}$  dissolved activity in the river, over a temporal window of 48 h.  $^{137}\text{Cs}$  was chosen because this radionuclide is released at each nuclear accident and is also found in authorized releases from nuclear power-plants. This radionuclide presents a high radiotoxicity ([Garnier-Laplace et al., 2011](#)) and is relatively soluble in seawater with a  $K_d$  ranging from 450 to 2000 L/kg ([Delaval et al., 2020](#)). For comparison, the estimated average direct discharge of  $^{137}\text{Cs}$  to the ocean during the Fukushima Daiichi nuclear power plants was around 5000 TBq ([Buessler et al., 2017](#)).

The simulations were done for each hydro-meteorological scenario defined on the basis of the 2009–2019 dataset and the plume extension in the GoL was modelled for each scenario. Since the hydrodynamic inputs are only available for the year 2010, we selected in this input the most representative temporal window for each scenario simulation by integrating observations memberships over a sliding window of 48h. The temporal window presenting the highest summed membership values were selected for each cluster. One exception was done for the sixth scenario, for which the temporal window with the second highest membership was chosen due to the non-homogeneity between wind observations at the buoy and wind restitution in the hydrodynamic model. Implications for this are discussed further.

The results of the 6 simulations are very different in terms of plume shape and thus affected areas ([Fig. 7](#)). Mean winds and discharges conditions over 48 h are indicated in the figure. It must be noted that these values are specific to the chosen temporal windows, and thus can be different from the parangons presented in the previous chapter.

In scenario 1 (strong marine wind with moderate discharge conditions), the plume is constrained to the coast and extends west in agreement with the currents at the buoy. This scenario has already been highlighted by [Demarcq & Wald \(1984\)](#) and [Many et al. \(2018\)](#) or modelled by [Estournel et al. \(1997\)](#). A part of the activity remains blocked in the estuary due to winds in opposition with its flowing path and an increase in sea level at the mouth limiting the power of the jet.

The lowest expansion of the plume is observed with scenario 2 (weak wind with discharge slightly under the annual mean). The plume has the lowest surface spatial expansion among the 6 plumes and is nearly stagnant and remains with a high activity. This is in agreement with the currents observed at the buoy showing really low speeds. This scenario appears mostly during summer ([Fig. 4](#)), and satellite images confirmed that the turbid plume present effectively its smallest area at this period ([Gangloff et al. \(2017\)](#)).

Scenario 3 corresponds to a high Rhone River discharge and north-westerly winds conditions. The plume presents a large area but the north-westerly wind is powerful enough to carry the plume offshore. For different wind stress simulations, [Marsaleix et al. \(1998\)](#) showed that winds around 30 km/h were sufficient to detach the plume from the coast. According to this author this threshold is independent of Rhone River discharge.

In scenario 4 (strong westerly wind and low discharge conditions), the plume extends over a large area favored by the presence of a summer stratification at low discharge. A part of the plume at the latitude of the buoy can be deflected eastwards in the Gulf of Fos, in agreement with current data at the buoy. According to [Frayse et al. \(2014\)](#) this plume shape is the first step toward an intrusion in the Bay of Marseille if this scenario is followed by south east winds conditions. To note, such intrusions occurred in summer ([Frayse et al., 2014](#)) when the probability of occurrence of this scenario are the highest.

In scenario 5, with a strong northwest wind (Mistral) and low discharge conditions the plume stands out from the coast as shown by [Demarcq & Wald \(1984\)](#) and [Gangloff et al. \(2017\)](#) and modelled by [Estournel et al. \(1997\)](#). This case is favorable to an export of the plume far away from the coast, even at low discharge conditions and moderate Mistral (but the wind speed are however above the 30 km/h threshold proposed by [Marsaleix et al. \(1998\)](#)).

Finally, the northeast wind and moderate discharge conditions of scenario 6 induces a plume over a small area, which does not affect the Gulf of Fos. This is confirmed by [Gangloff et al. \(2017\)](#) who showed that for the most northern winds above  $340^\circ$  the plume barycenter does not go further East than the Rhône River left bank. However, this scenario is really transitory and should be considered with caution. Indeed, the climatologic model indicated persistence of a south wind (similar to scenario 2) during the 48 h duration while according to buoy data, this wind lasted 6 hours. This implies that winds in this scenario are sometimes too transitory or weak to be correctly captured by the actual hydrodynamic model.

All these simulations shown that the activity plume may be maintained along the western coast of the Rhone river outlet (Scenario 1), its eastern side (Scenario 4) or can extend far away from the coast (Scenario 5). Plume of different extents can also remain nearly stable (Scenarios 2, 3 and 6) until a change of hydrodynamic conditions and thus scenario (most likely shifts from 2 to 4, 5, 6 and from 3 to 5, 6, 1).

Each cluster of hydrodynamic forcings has thus its own patterns for Rhone River plume spreading in the GoL. Their hydrodynamic variables and resulting trends were presented in the previous chapters, and these results now allow to better evaluate the risk of propagation of  $^{137}\text{Cs}$  activity. However, it is also interesting to define thresholds values for these variables, in order to be able to select the most appropriate

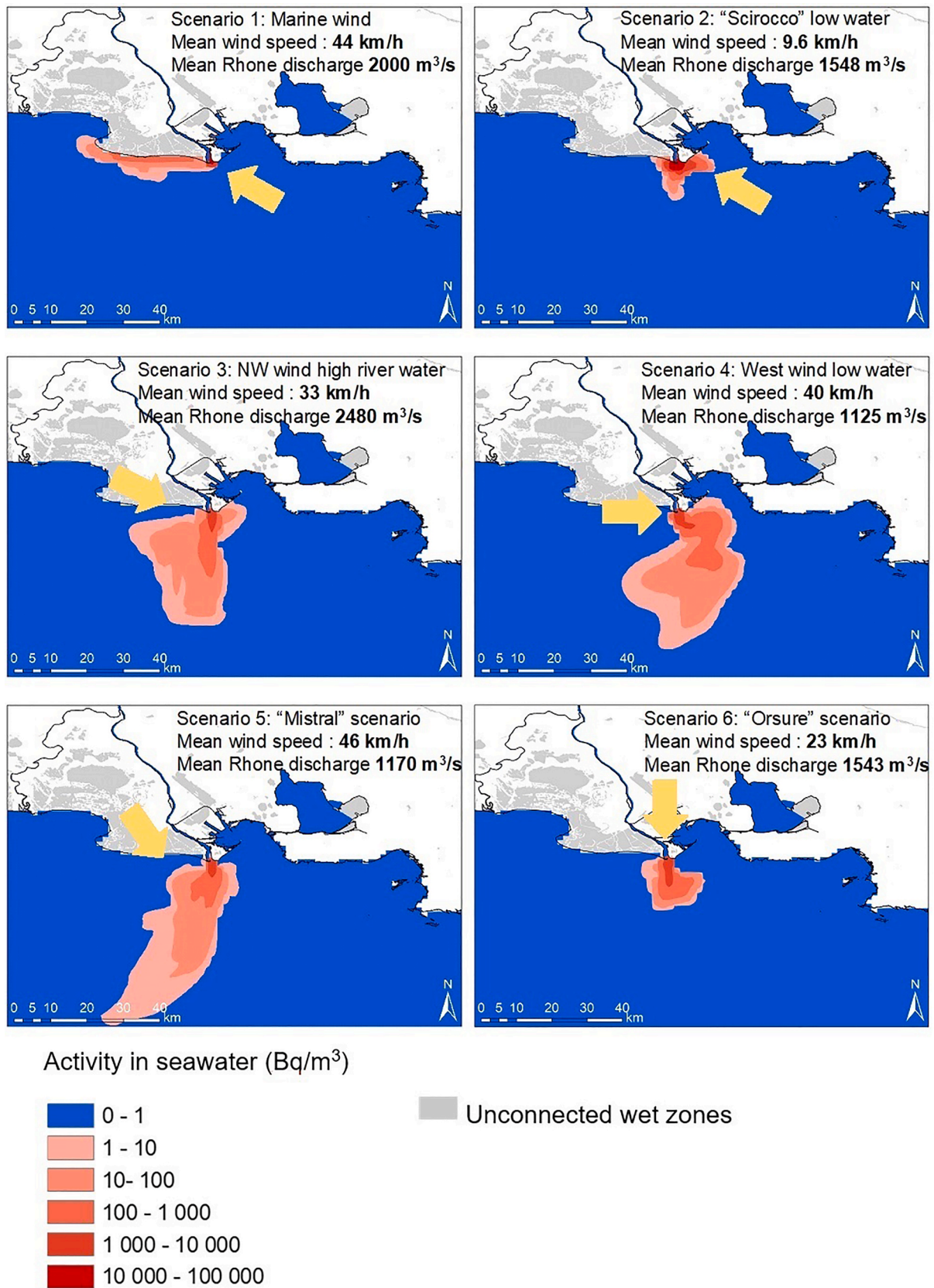


Fig. 7. Radioactive surface plume shape in the GoL under the most representatives temporal windows of the 6 scenarios for a released activity of 1TBq of <sup>137</sup>Cs in 48 h. Wind orientation is shown by the yellow arrows.

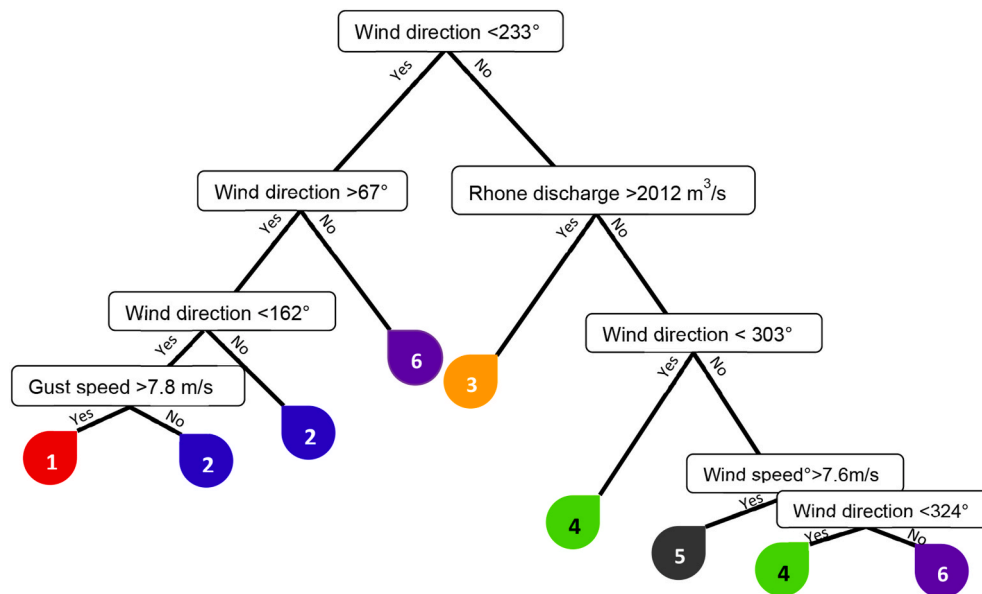


Fig. 8. Simplified decision tree for scenario identification.

scenario to apply in case of alert on accidental release of radionuclides (or any kind of chemical contaminants). To summarize the differences obtained between the scenarios, a simplified decision tree has been constructed (Fig. 8). From top to bottom it allows to outline practical separation criteria (Fig. 8).

The classification of these 6 scenarios is based on the wind (and gust) direction, wind speed and water discharge. These *in situ* conditions can thus be associated with a scenario in near real-time, as they are available at this time scale from the websites of Coriolis Cotier (wind) and Vigicrues (river flow). The tree reproduces the classification using 80% of the hydrodynamic raw data (without PCA treatment) as training, and 20% as a validation set. It allows a fast crisp classification into one of the 6 established scenario with 83% of accuracy on both trained and tested data. As an example, in case of wind direction of 270° and a river discharge of 2500 m<sup>3</sup>/s, the shape of the plume will correspond to scenario 3. Currents directions at the buoy (Coriolis Cotier) can also be used as an additional verification.

#### 4. Conclusion

In this paper, a 10-year period was considered in order to identify the main combinations of hydrodynamic forcings (wind and Rhone River discharge) using a fuzzy c-mean clustering. These combinations, called scenario summarized mean shelf behavior providing a very important information to estimate and understand the Rhone plume patterns in case of accidental release. In addition, existence of observations memberships allowed to spot the best temporal windows to run simulations covering all possible patterns.

6 scenarios have been identified and simulations showed that the plume behavior was different for each of them. These plume patterns are more or less critical in terms of radiologic risks regarding the areas affected and the dilution of the activity. If necessary, wind speed measured on one point are sufficient to extrapolate plume shape for 48 h on this zone, and the surface currents measured at the Roustan buoy will give a first idea of plume orientation. However, transitory aspects of the last scenario shows that reliability of this method could fade after 48 h. This illustrates also the need to increase climatological model precision in coastal hydrodynamic modelling. This study provided a first global picture of main Rhone River plume patterns and consequences for radionuclides accidental releases, but the methodology may be applied to other estuaries.

#### Declaration of competing interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

#### Acknowledgements

The authors are indebted to the Institute for Radiological Protection and Nuclear Safety (IRSN) and to Region Sud (Provence-Alpes-Côte d'Azur) authorities for the PhD funding. This study was conducted within the Rhône Sediment Observatory (OSR) program, a multi-partner research program funded through Plan Rhône of the European Regional Development Fund (ERDF), Agence de l'Eau Rhône Méditerranée Corse, CNR, EDF and three regional councils (Région Auvergne-Rhône-Alpes, PACA and Occitanie). The Mesurho station is part of the COAST-HF network and associates IFREMER, IRSN, CNRS, CETMEF, and CEREMA.

#### Appendix A. Supplementary data

Supplementary data to this article can be found online at <https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2021.105005>.

#### References

- Bárcena, J.F., Camus, P., García, A., Álvarez, C., 2015. Selecting model scenarios of real hydrodynamic forcings on mesotidal and macrotidal estuaries influenced by river discharges using K-means clustering. *Environ. Model. Software* 68, 70–82. <https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2015.02.007>.
- Ben-Dor, A., Shamir, R., Yakhini, Z., 2004. Clustering gene expression patterns. *J. Comput. Biol.* 6 (3–4) <https://doi.org/10.1089/106652799318274>.
- Bezdek, J.C., 1981. *Pattern Recognition with Fuzzy Objective Function Algorithms*. Springer. <https://doi.org/10.1007/978-1-4757-0450-1>.
- Boudet, L., Sabatier, F., Radakovitch, O., 2017. Modelling of sediment transport pattern in the mouth of the Rhone delta: role of storm and flood events. *Estuar. Coast Shelf Sci.* 198, 568–582. <https://doi.org/10.1016/j.ecss.2016.10.004>.
- Buesseler, K., Dai, M., Aoyama, M., Benitez-Nelson, C., Charmasson, S., Higley, K., Maderich, V., Masqué, P., Morris, P.J., Oughton, D., Smith, J.N., 2017. Fukushima daiichi-derived radionuclides in the ocean: transport, fate, and impacts. *Annual Review of Marine Science* 9 (1), 173–203. <https://doi.org/10.1146/annurev-marine-010816-060733>.
- Campello, R.J.G.B., Hruschka, E.R., 2006. A fuzzy extension of the silhouette width criterion for cluster analysis. *Fuzzy Set Syst.* 157 (21), 2858–2875. <https://doi.org/10.1016/j.fss.2006.07.006>.
- Chaimontree, S., Atkinson, K., Coenen, F., 2010. *Advanced data mining and applications Part 1*. In: *Advanced Data Mining and Applications Part, vol. 1*. Springer, p. 625.

- Charmasson, S., Barker, E., Calmet, D., Pruchon, A.S., Thébault, H., 1999. Long-term variations of man-made radionuclide concentrations in a bio-indicator *Mytilus galloprovincialis* from the French Mediterranean coast. *Sci. Total Environ.* 93–103. [https://doi.org/10.1016/S0048-9697\(99\)00127-8](https://doi.org/10.1016/S0048-9697(99)00127-8), 237–238.
- Cros, B., Durand, P., Cachier, H., Drobinski, P., Fréjafon, E., Kottmeier, C., Perros, P.E., Peuch, V.H., Ponche, J.L., Robin, D., Saïd, F., Toupance, G., Wortham, H., 2004. The ESCOMPTE program: an overview. *Atmos. Res.* 69 (3–4), 241–279. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2003.05.001>.
- Delaval, A., Duffa, C., Radakovitch, O., 2020. A review on cesium desorption at the freshwater-seawater interface. *J. Environ. Radioact.* 218, 106255. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2020.106255>.
- Demarcq, H., Wald, L., 1984. La dynamique superficielle du panache de Rhône d'après l'imagerie infrarouge satellitaire. *Oceanol. Acta* 7 (2), 159–162. <http://hal.archives-ouvertes.fr/hal-00464192/>.
- Diaz, F., Bănar, D., Verley, P., Shin, Y.J., 2019. Implementation of an end-to-end model of the Gulf of Lions ecosystem (NW Mediterranean Sea). II. Investigating the effects of high trophic levels on nutrients and plankton dynamics and associated feedbacks. *Ecol. Model.* 405, 51–68. <https://doi.org/10.1016/j.ecolmodel.2019.05.004>.
- Duffa, C., Bailly, P., Caillaud, M., Charmasson, S., Renaud, P., 2016. Development of emergency response tools for accidental radiological contamination of French coastal areas. *J. Environ. Radioact.* 151, 487–494. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.04.019>.
- Duine, G.J., Hedde, T., Roubin, P., Durand, P., Lathon, M., Lohou, F., Augustin, P., Fourmentin, M., 2017. Characterization of valley flows within two confluent valleys under stable conditions: observations from the KASCADE field experiment. *Q. J. R. Meteorol. Soc.* 143 (705), 1886–1902. <https://doi.org/10.1002/qj.3049>.
- Dunn, J.C., 1974. Well-separated clusters and optimal fuzzy partitions. *J. Cybern.* 4 (1), 95–104. <https://doi.org/10.1080/01969727408546059>.
- Durrieu De Madron, X., Abassi, A., Heussner, S., Monaco, A., Aloisi, J.C., Radakovitch, O., Giresse, P., Buscaïl, R., Kerherve, P., 2000. Particulate matter and organic carbon budgets for the Gulf of Lions (NW Mediterranean). *Oceanol. Acta* 23 (6), 717–730. [https://doi.org/10.1016/S0399-1784\(00\)00119-5](https://doi.org/10.1016/S0399-1784(00)00119-5).
- Estournel, C., Kondrachoff, V., Marsaleix, P., Vehil, R., 1997. The plume of the Rhône: numerical simulation and remote sensing. *Contin. Shelf Res.* 17 (8), 899–924. [https://doi.org/10.1016/S0278-4343\(96\)00064-7](https://doi.org/10.1016/S0278-4343(96)00064-7).
- Eyrolle, F., Lepage, H., Antonelli, C., Moreau, A., Cossonnet, C., Boyer, P., Gurriaran, R., 2020. Radionuclides in Waters and Suspended Sediments in the Rhone River (France) - Current Contents, Anthropogenic Pressures and Trajectories. *Science of The Total Environment*, 137873. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.137873>.
- Falcieri, F.M., Benetazzo, A., Sclavo, M., Russo, A., Carniel, S., 2014. Po River plume pattern variability investigated from model data. *Contin. Shelf Res.* 87, 84–95. <https://doi.org/10.1016/j.csr.2013.11.001>.
- Ferraro, M.B., Giordani, P., 2015. A toolbox for fuzzy clustering using the R programming language. *Fuzzy Set Syst.* 279, 1–16. <https://doi.org/10.1016/j.fss.2015.05.001>.
- Frayse, M., Pairaud, I., Ross, O.N., Faure, V.M., Pinazo, C., 2014. Journal of geophysical Research : oceans generation processes and impacts on ecosystem functioning. *J. Geophys. Res.: Oceans* 6535–6556. <https://doi.org/10.1002/2014JC010022>.
- Fu Lai, C., Tong, L., 1994. *Fuzzy Competitive Learning* 7 (3), 539–551.
- Gangloff, A., Verney, R., Doxaran, D., Ody, A., Estournel, C., 2017. Investigating Rhône river plume (gulf of lions, France) dynamics using metrics analysis from the MERIS 300m ocean color archive (2002–2012). *Contin. Shelf Res.* 144, 98–111. <https://doi.org/10.1016/j.csr.2017.06.024>.
- Garnier-Laplace, J., Beaugelin-Seiller, K., Hinton, T.G., 2011. Fukushima wildlife dose reconstruction signals ecological consequences. *Environ. Sci. Technol.* 45 (12), 5077–5078. <https://doi.org/10.1021/es201637c>.
- Gontier, G., Grenz, C., Calmet, D., Sacher, M., 1992. The contribution of *Mytilus* sp. in radionuclide transfer between water column and sediments in the estuarine and delta systems of the Rhône river. *Estuarine, Coastal and Shelf Science* 34 (6), 593–601. [https://doi.org/10.1016/S0272-7714\(05\)80064-2](https://doi.org/10.1016/S0272-7714(05)80064-2).
- Hannah, D.M., Smith, B.P.G., Gurnell, A.M., McGregor, G.R., 2000. An approach to hydrograph classification. *Hydrol. Process.* 14 (2), 317–338. [https://doi.org/10.1002/\(SICI\)1099-1085\(20000215\)14:2<317::AID-HYP929>3.0.CO;2-T](https://doi.org/10.1002/(SICI)1099-1085(20000215)14:2<317::AID-HYP929>3.0.CO;2-T).
- Hothorn, T., Zeileis, A., Farebrother, R.W., Cummins, C., Millo, G., Mitchell, D., 2019. *Testing Linear Regression Models (Package 'lmtest')*.
- Husson, F., Josse, J., Pagès, J., 2010. *Principal component methods - hierarchical clustering-partitional clustering: why would we need to choose for visualizing data?* Technical Report-Agrocampus 1, 2–17.
- International Atomic Energy Agency, 2019. *Energy, Electricity and Nuclear Power Estimates for the Period up to 2050. Reference Data Series No. 1*.
- Jain, A.K., Murty, M.N., Flynn, P.J., 1999. Data clustering: a review. *ACM Comput. Surv.* 31 (3), 264–323. <https://doi.org/10.1145/331499.331504>.
- Kaufmann, P., Whiteman, C.D., 1999. Cluster-analysis classification of wintertime wind patterns in the Grand Canyon region. *J. Appl. Meteorol.* 38 (8), 1131–1144. [https://doi.org/10.1175/1520-0450\(1999\)038<1131:cacoww>2.0.co;2](https://doi.org/10.1175/1520-0450(1999)038<1131:cacoww>2.0.co;2).
- Kim, H.S., Kim, J.H., Ho, C.H., Chu, P.S., 2011. Pattern classification of typhoon tracks using the fuzzy c-means clustering method. *J. Clim.* 24 (2), 488–508. <https://doi.org/10.1175/2010JCLI3751.1>.
- Klawa, M., Ulbrich, U., 2003. A model for the estimation of storm losses and the identification of severe winter storms in Germany. *Nat. Hazards Earth Syst. Sci.* 3 (6), 725–732. <https://doi.org/10.5194/nhess-3-725-2003>.
- Klawonn, F., Höppner, F., 2003. What is fuzzy about fuzzy clustering? Understanding and improving the concept of the fuzzifier. In: *Advances in Intelligent Data Analysis*, vol. 1716. Springer, pp. 254–263. <https://doi.org/10.1108/ir.1999.04926fae.001>.
- Launay, M., Dugué, V., Faure, J.B., Coquery, M., Camenen, B., Le Coz, J., 2019. Numerical modelling of the suspended particulate matter dynamics in a regulated river network. *Sci. Total Environ.* 665, 591–605. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.02.015>.
- Lê, S., Josse, J., Husson, F., 2008. FactoMineR: an R package for multivariate analysis. *J. Stat. Software* 25 (1), 1–18. <https://doi.org/10.18637/jss.v025.i01>.
- Liu, Y., Li, Z., Xiong, H., Gao, X., Wu, J., 2010. Understanding of internal clustering validation measures. *Proceedings - IEEE International Conference on Data Mining, ICDM 911–916*. <https://doi.org/10.1109/ICDM.2010.35>.
- Ludwig, W., Dumont, E., Meybeck, M., 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? *Prog. Oceanogr.* 80 (3–4), 199–217. <https://doi.org/10.1016/j.pocean.2009.02.001>.
- MacQueen, J., 1965. Some methods for classification and analysis of multivariate observations. *Proceedings of the Fifth Berkeley Symposium on Mathematical Statistics and Probability* 281–297.
- Many, G., Bourrin, F., Durrieu de Madron, X., Ody, A., Doxaran, D., Cauchy, P., 2018. Glider and satellite monitoring of the variability of the suspended particle distribution and size in the Rhône ROFI. *Prog. Oceanogr.* 163, 123–135. <https://doi.org/10.1016/j.pocean.2017.05.006>.
- Marsaleix, P., Estournel, C., Kondrachoff, V., Vehil, R., 1998. A numerical study of the formation of the Rhône River plume. *J. Mar. Syst.* 14 (1–2), 99–115. [https://doi.org/10.1016/S0924-7963\(97\)00011-0](https://doi.org/10.1016/S0924-7963(97)00011-0).
- Martin, D., Pittito, F., Gil, J., Mura, M.P., Bahamon, N., Romano, C., Thorin, S., Schvartz, T., Dutrieux, É., Bocquet, Y., 2019. Long-distance influence of the Rhône River plume on the marine benthic ecosystem: integrating descriptive ecology and predictive modelling. *Sci. Total Environ.* 673, 790–809. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.04.010>.
- Meyer, D., Dimitriadou, E., Hornik, K., Weingessel, A., Leisch, F., 2019. *Package 'e1071'*.
- Millot, C., 1990. The gulf of lions' hydrodynamics. *Contin. Shelf Res.* 10 (9–11), 885–894. [https://doi.org/10.1016/0278-4343\(90\)90065-T](https://doi.org/10.1016/0278-4343(90)90065-T).
- Millot, C., 1999. Circulation in the western Mediterranean sea. *J. Mar. Syst.* 20 (1–4), 423–442. [https://doi.org/10.1016/S0924-7963\(98\)00078-5](https://doi.org/10.1016/S0924-7963(98)00078-5).
- Napoleon, D., Pavalakodi, S., 2011. A new method for dimensionality reduction using KMeans clustering algorithm for high dimensional data set. *Int. J. Comput. Appl.* 13 (7), 41–46. <https://doi.org/10.5120/1789-2471>.
- Nicolle, A., Garreau, P., Liorzou, B., 2009. Modelling for anchovy recruitment studies in the gulf of lions (western Mediterranean sea). *Ocean Dynam.* 59 (6), 953–968. <https://doi.org/10.1007/s10236-009-0221-6>.
- Pairaud, I.L., Lyard, F., Auclair, F., Letellier, T., Marsaleix, P., 2008. Dynamics of the semi-diurnal and quarter-diurnal internal tides in the Bay of Biscay. Part 1: barotropic tides. *Contin. Shelf Res.* 28 (10–11), 1294–1315. <https://doi.org/10.1016/j.csr.2008.03.004>.
- Pairaud, I.L., Gatti, J., Bensoussan, N., Verney, R., Garreau, P., 2011. Hydrology and circulation in a coastal area off Marseille: validation of a nested 3D model with observations. *J. Mar. Syst.* 88 (1), 20–33. <https://doi.org/10.1016/j.jmarsys.2011.02.010>.
- Pairaud, I., Repecaud, M., Ravel, M., Fuchs, R., Arnaud, M., Champelovier, A., Rabouille, C., Bombled, B., Toussaint, F., Garcia, F., Raimbault, P., Verney, R., Meule, S., Gaudres, P., Bonnat, A., Cadiou, J., 2016. Plateforme instrumentée de suivi des paramètres environnementaux à l'embouchure du Rhône. In: *Mesures à haute résolution dans l'environnement marin côtier*. CNRS Alpha, pp. 73–87.
- Ramze Rezaee, M., Lielieveldt, B.P.F., Reiber, J.H.C., 1998. A new cluster validity index for the fuzzy c-mean. *Pattern Recogn. Lett.* 19 (3–4), 237–246. [https://doi.org/10.1016/S0167-8655\(97\)00168-2](https://doi.org/10.1016/S0167-8655(97)00168-2).
- Reffray, G., Fraunié, P., Marsaleix, P., 2004. Secondary flows induced by wind forcing in the Rhône region of freshwater influence. *Ocean Dynam.* 54 (2), 179–196. <https://doi.org/10.1007/s10236-003-0079-y>.
- Reiter, E.R., 1975. *Weather Phenomena of the Mediterranean Basin Part I : General Description of the Meteorological Processes*. Technical report. Environmental Prediction Research Facility, Naval Postgraduate School, Monterey.
- Renner, R.M., 1993. The resolution of a compositional data set into mixtures of a fixed source compositions. *Applied Statistics* 42 (4), 615–631. <https://doi.org/10.2307/2986179>.
- Sanchez-Cabeza, J.-A., Molerio, J., Merino, J., Pujol, L., Mitchell, P.L., 1992. 137 Cs as a tracer of the Catalan current. *Oceanol. Acta* 18 (2), 221–226.
- Schwämmle, V., Jensen, O.N., 2010. A simple and fast method to determine the parameters for fuzzy c-means cluster analysis. *Bioinformatics* 26 (22), 2841–2848. <https://doi.org/10.1093/bioinformatics/btq534>.
- Selim, S.Z., Kamel, M., 1992. On the Mathematical and Numerical Properties of the Fuzzy C-Means Algorithm, vol. 49, pp. 181–191.
- Setnes, M., Babuška, R., 1999. Fuzzy relational classifier trained by fuzzy clustering. *IEEE Trans. Syst. Man Cybern. B Cybern.* 29 (5), 619–625. <https://doi.org/10.1109/3477.790444>.
- Tomczak, W., Boyer, P., Krimissa, M., Radakovitch, O., 2019. Kd distributions in freshwater systems as a function of material type , mass- volume ratio , dissolved organic carbon and pH. *Appl. Geochem.* 105, 68–77.
- Ulses, C., Estournel, C., Puig, P., Durrieu de Madron, X., Marsaleix, P., 2008. Dense shelf water cascading in the northwestern Mediterranean during the cold winter 2005: quantification of the export through the Gulf of Lion and the Catalan margin. *Geophys. Res. Lett.* 35 (7), 2–7. <https://doi.org/10.1029/2008GL033257>.
- Wang, W., Zhang, Y., 2007. On fuzzy cluster validity indices. *Fuzzy Set Syst.* 158 (19), 2095–2117. <https://doi.org/10.1016/j.fss.2007.03.004>.
- White, H., 1980. A heteroskedasticity-consistent covariance matrix estimator and a direct test for heteroskedasticity. *Econometrica* 48 (4), 817. <https://doi.org/10.2307/1912934>.
- Xie, X.L., Beni, G., 1991. A validity measure for fuzzy Clustering. *IEEE Trans. Pattern Anal. Mach. Intell.* 13 (8), 841–847.

- Xu, C., Xu, Y., Hu, J., Li, S., Wang, B., 2019. A numerical analysis of the summertime Pearl River plume from 1999 to 2010: dispersal patterns and intraseasonal variability. *J. Mar. Syst.* 192, 15–27. <https://doi.org/10.1016/j.jmarsys.2018.12.010>.
- Yadav, J., Sharma, M., 2013. A review of K-mean algorithm. *Int. J. Eng. Trends Technol.* 4 (7), 2972–2976.
- Zadeh, L.A., 1965. Fuzzy Sets \* *Information and Control* 8 353, 338–353.
- Zhang, G., Wang, Y., Zhang, J., Niu, Y., 2011. Study on flood clustering and recognition methods based on fuzzy set theory. In: 2011 Eighth International Conference on Fuzzy Systems and Knowledge Discovery (FSKD), pp. 887–891. <https://doi.org/10.1109/FSKD.2011.6019681>.

# VIII. Conclusion et perspectives

## VIII.1. Conclusion

Ce travail de thèse avait pour objectif de mieux modéliser les processus qui régissent le transfert des radionucléides dissous dans le continuum Rhône-Méditerranée. Pour ce faire, plusieurs approches et outils ont été combinés afin d'obtenir une vision d'ensemble du transfert, avec un focus sur les processus hydrodynamiques et géochimiques à l'estuaire selon différents forçages. Ces forçages peuvent être hydrométéorologiques tels que le débit du Rhône en amont ou les vents dominants en aval ou bien encore les conditions de rejets. Toute l'étude s'est concentrée sur le devenir du  $^{137}\text{Cs}$ , seul radionucléide pris en compte.

L'introduction générale et le Chapitre II montrent que dans la plupart des études précédentes la connaissance du transfert des radionucléides dans le continuum fleuve-mer n'a été obtenue que de manière compartimentée et séparée : fleuve/mer/expérimentation/terrain.

L'approche a donc été d'utiliser les outils de modélisation du transfert de radionucléides en fleuve et en mer déjà existants à l'IRSN pour observer les conséquences des différents forçages hydrométéorologiques et cadrer l'étude. C'est l'objet des chapitres III et VII. Les autres chapitres se focalisent sur les processus hydrodynamiques et géochimiques à l'interface. Ainsi le Chapitre IV développe un box-model (DRACAR) reproduisant les processus estuariens hydrodynamiques et géochimiques pour interfacer les modèles marins et fluviaux et homogénéiser les flux d'eau, de sel et de RN dissous.

En première partie du Chapitre V, une revue exhaustive des expérimentations étudiant la désorption du césium à la transition eau douce-eau salée a montré que les paramètres régissant ce processus ne sont pas tous maîtrisés. La seconde partie du Chapitre V présente des expérimentations de laboratoire réalisées pour éliminer ces zones d'ombre et obtenir les constantes cinétiques appropriées. Le Chapitre VI synthétise les chapitres précédents pour proposer de la façon la plus réaliste le devenir d'un rejet accidentel de césium direct dans le Rhône jusqu'à la mer. Enfin le Chapitre VII observe la dispersion du terme source en mer selon différents forçages hydrométéorologiques, définis comme les plus récurrents dans le Golfe du Lion.

Les conclusions principales de ces chapitres sont reprises ci-dessous avec des perspectives à développer pour améliorer encore la modélisation sur un continuum.

### VIII.1.1. Transfert des radionucléides en milieu fluvial

Le Chapitre II a mis en évidence que les modèles hydrodynamiques fluviaux 1D simplifiés tels que la propagation des débits par l'équation de Manning-Strickler sont insuffisants pour répondre aux variations de débits engendrées par les contraintes d'ouvrages et

l'influence de la hauteur de la marée. Ces erreurs sur les débits se propagent aux concentrations et temps de transfert des radionucléides dans le fleuve et sont plus critiques à bas débits. Des développements et améliorations telles que la résolution des équations de Barré de Saint-Venant 1D et leur résolution avec le schéma de Preissman ont déjà été éprouvées avec succès sur d'autres modèles et sont en cours sur le modèle Casteaur. Elles devraient significativement améliorer les différentes sorties du modèle tels que les débits, hauteurs d'eau et concentrations de RN dissous et particulaires. Par la suite, une utilisation adéquate de traceurs dissous tels que ceux utilisés dans cette thèse permettrait de calibrer le modèle. Le fleuve étant la partie amont du continuum ce gain de précision est amené à se propager et bénéficiera à la modélisation de l'ensemble du continuum puisqu'une partie des sorties du modèle fleuve définissent l'état de l'interface notamment le débit.

### VIII.1.1. Hydrodynamique estuarienne

Les box-model peuvent être utilisés pour mieux représenter les processus qui modifient les flux d'éléments chimiques dans un estuaire. Le modèle DRACAR développé ici est particulièrement adapté aux estuaires à coin salé comme le Rhône et pour les apports de polluants dissous réactifs en milieu estuarien notamment le césium. Ce box-model consiste à résoudre les équations de bilans d'eau, de sel et d'énergie en ayant une connaissance *a priori* de la structure de salinité. L'approche peu coûteuse en données fournit des résultats fiables sur la salinité dans l'estuaire ( $NSE > 0,9$ ) indiquant que les principaux processus estuariens sont reproduits.

Sur le Rhône, la structure reproduit l'avancée du coin salé avec une erreur moyenne de 3200 mètres pour un coin salé allant de 0 à 36 km et fournit des profils de salinité simplifiés. En revanche, la géométrie simplifiée et le régime permanent du box-model échouent à capturer les effets transitoires dans le temps et la nature des échanges dans un point précis de l'estuaire.

D'après le modèle, au-dessous d'un débit de 1700 m<sup>3</sup>/s le coin salé commence à remonter sur une hauteur significative. Les résultats montrent que les échanges entre le coin salé et le panache interne du Rhône sont peu diffusifs et se font principalement par entrainement. Ainsi, le coin salé apporte de l'eau salée à l'estuaire de l'ordre de 0 à 30% du débit du Rhône. En conséquence, le panache interne se salinise jusqu'à 7 de salinité moyenne à très bas débits et 14 juste avant l'embouchure. Enfin, un calcul du « flushing time » (temps de résidence d'une particule dans le panache) nous indique que les radionucléides peuvent rester jusqu'à 96 h dans le panache interne de l'estuaire du Rhône. De manière générale, la longueur du coin salé, ses apports d'eau salée et le temps de résidence augmentent de manière exponentielle avec la baisse de débit. L'applicabilité de cette méthode pour d'autres estuaires est discutée en VIII.2.

### VIII.1.2. Désorption du césium dans un gradient de salinité

Selon notre synthèse bibliographique et nos expérimentations, la désorption du césium n'est pas une fonction linéaire de la salinité mais se produit à partir d'une salinité « seuil » pour s'activer. Ainsi, d'après notre modèle à deux cinétiques, les échanges du Cs sur les sites 1 des particules (assimilés à des sites de surface de faible affinité) ont une cinétique rapide (inférieure à l'heure) qui est la même pour toutes les salinités de 0 à 37. Ceci avait déjà été documenté dans la synthèse bibliographique. En revanche, les sites 2 (assimilés aux zones inter feuillettes des particules d'argiles) se chargent lentement en eau douce ( $T_{1/2}$ , dépendant des MES) et le Cs fixé ne serait relargué qu'à partir d'une salinité « seuil » de 3 à 4, sans possibilité de réadsorption sur ces sites. Néanmoins ce résultat ne semble pas vérifié sur d'autres particules comme celles de la Loire. Cette existence de deux sites particuliers implique celle d'un effet vieillissement (ageing effect), c'est-à-dire qu'une contamination prolongée en eau douce favorise le stockage du césium dans les sites 2 des particules et réduit l'intensité de désorption. Ainsi, les particules du Rhône peuvent désorber quasi immédiatement 60% de leur contenu en eau salée si la sorption en eau douce ne dure qu'une heure, contre moins de 20% si la phase de sorption a duré 1 mois. L'évaluation de la quantité désorbable reste donc extrêmement compliquée.

### VIII.1.3. Transfert des radionucléides dans le continuum Rhône Méditerranée

Le Chapitre V montre que plusieurs caractéristiques du continuum Rhône-Méditerranée limitent le passage du césium de la phase particulaire à dissoute via l'estuaire :

- Le coin salé intermittent et de faibles dimensions,
- Les concentrations faibles de matière en suspensions en conditions de coin salé,
- Les sites 2 sur les particules plus réfractaires à la désorption (comparés à la Loire par exemple).

Ces conditions estuariennes génèrent un gain de 3 à 17 % d'activité en phase dissoute, qui peut alors atteindre à l'embouchure 93 à 99% de l'activité totale pour des débits <700 m<sup>3</sup>/s. Pour des débits plus élevés les particules désorbent plus en aval et, selon ces conditions de débits, 0 à 20% de leur activité est perdue dans le premier kilomètre après l'embouchure. Potentiellement ces particules peuvent désorber 99% de leur activité, mais cette désorption maximale est théorique et modulée à la baisse par deux processus : la répartition de l'activité entre les sites 1 et 2 (dépendants du temps de sorption et des concentrations de MES) ainsi que la sédimentation que nous n'avons pas quantifié dans cette étude. Dans le cas d'une contamination récente et pour des débits entre 700 et 1750 m<sup>3</sup>/s, 25 à 35% de l'activité est encore en phase particulaire après l'embouchure sans qu'il soit possible de prédire son devenir. Pour des débits supérieurs, 35 à 99% de l'activité est encore en phase particulaire. Ainsi, selon la répartition du césium entre les sites 1 et 2 et le temps de résidence des particules dans le panache une désorption plus ou moins intense est possible.

Ces incertitudes poussent à utiliser un modèle sédimentaire plus ou moins simplifié (de box-model côtier à des modèles numériques) pour suivre le devenir des particules après l'embouchure suite aux dépôts/remise en suspension. Le modèle de fractionnement utilisé pourrait être une simple approche  $K_d$  à condition que l'implication des sites 2 dans la désorption soit négligeable, sinon l'équilibre n'est pas atteint directement ce qui invalide



l'hypothèse du Kd. D'après nos résultats, ces sites sont peu impliqués pour des concentrations de MES rhodaniennes inférieures à 170 mg/L et une contamination datant de 7 jours ou moins. Au-delà, il faudrait passer à des modèles dynamiques à deux cinétiques en fleuve puis en mer comme celui de (Simonsen, 2019).

L'autre intérêt de modélisation sédimentaire est que malgré une immobilisation partielle de la phase particulaire par sédimentation sur la zone du delta, la désorption reste cependant possible depuis le sédiment (Kambayashi et al., 2021; Takata et al., 2021).

#### VIII.1.4. Vulnérabilité du continuum en été dans un contexte de changement climatique

Nos résultats sur la distribution du césium à l'embouchure accroissent la criticité des scénarios hydroclimatiques 2 (brise de sud de 4,5m/s en moyenne) et 4 (vents d'ouest de 7,2 m/s en moyenne) du chapitre VI puisqu'ils sont associés à des scénarios d'étiage (débits médians de 950 et 1070 m<sup>3</sup>/s respectivement). Près de 100% de l'activité arrive en phase dissoute à l'embouchure avec ces scénarios. Ces observations sont d'autant plus critiques que le scénario 2 a été identifié comme étant « peu diluant » (panache bloqué peu après l'embouchure) ou se déplaçant vers des zones plus vulnérables dans le cas du scénario 4 (déplacement vers l'est). Or, il se trouve que ces conditions d'étiage et donc de présence de coin salé sont amenées à être plus fréquentes et intenses (diminution de 10 à 50 % des débits d'étiage à Beaucaire) dans les décennies à venir d'après l'Agence de l'eau Rhône Méditerranée Corse (2016). La remontée du coin salé est aussi favorisée par l'élévation du niveau de la mer.

#### VIII.1.5. De l'intérêt de coupler des modèles

J'ai insisté en introduction sur le fait que coupler des modèles de transfert de polluants augmentait sensiblement les capacités de prédiction et l'anticipation dans un contexte de rejet accidentel.

Un autre aspect est que le couplage entre plusieurs modèles homogénéise leurs entrées-sorties et exige une justesse sur des sorties supplémentaires en plus de celles d'intérêt. Dans notre exemple, les sorties recherchées pour Casteaur étaient les concentrations dissoutes et particulaires en radionucléides. Si l'on cherche à l'interfacier plus en aval (estuaire ou mer), cela nécessite en plus de connaître les débits et les hauteurs d'eau.

Nous avons déjà évoqué que calibrer un modèle avec plusieurs variables augmentait considérablement sa précision. Cette approche contraint aussi les coefficients de calibration. Des modèles plus généraux et des coefficients plus contraints facilitent la comparaison des modèles (Ganju et al., 2016) et la répliquabilité des études.

Coupler les modèles signifie aussi de coupler et de propager leurs incertitudes. En hiérarchisant les incertitudes sur le continuum, on met en évidence les différents verrous scientifiques sur le transfert de radionucléides (ou autres polluants) dans ce continuum. On peut donc cibler les verrous qui génèrent le plus d'incertitudes et s'atteler à faire progresser la connaissance sur ces aspects. On peut aussi observer quelles incertitudes

vont être amplifiées suite à une pression (changement climatique ou utilisation de la ressource en eau sur les débits).

Par exemple, nous avons mis en évidence que sur le continuum Rhône Méditerranée que la connaissance de variables amont tels que le débit, les concentrations en MES et l'état de la répartition dissous/particulaire étaient primordiales pour décrire le devenir du césium. Ceci est dû à la variabilité hydrologique du bassin versant du Rhône et de son estuaire, influencé par le débit mais peu dépendant des états de la mer. Néanmoins, en appliquant cette méthodologie sur un autre continuum ou un autre polluant les paramètres clefs du transfert dans le continuum pourraient être différents.

## VIII.2. Perspectives : application à d'autres systèmes estuariens et d'autres contaminants réactifs

Dans cette thèse DRACAR a été appliqué sur le Rhône mais d'autres estuaires nucléarisés sont susceptibles d'avoir des conditions plus propices pour la désorption du césium que l'estuaire du Rhône (cf fig I.8). La désorption est facilitée si :

- La salinité dans l'estuaire est supérieure à la salinité seuil de désorption, et ce pour une large gamme de conditions (débits/marées).
- Le flushing time est élevé, en particulier s'il est de l'ordre de grandeur ou supérieur aux  $T_{1/2}$  des différents sites des particules.
- Peu de sédimentation ou temporaire.

Les deux premiers points sont quantifiables avec DRACAR. Le troisième point demande des développements supplémentaires même s'il peut être approximé avec l'équation (VI-5). DRACAR a été utilisé sur un estuaire à coin salé mais il peut être appliqué à d'autres types d'estuaires en suivant la méthodologie décrite en Figure VIII-1 et qui est celle appliquée dans la thèse aux chapitres IV, V et VI. Elle consiste à définir la nature de l'estuaire étudié à l'aide de la classification de (Geyer and MacCready, 2014) présentée en Figure I-3. On décrit ensuite les dimensions du box model. Pour les estuaires mélangés c'est l'excursion tidale  $L_t$  qui définit la longueur tandis que pour les estuaires avec une stratification c'est la longueur du coin salé  $L$  et sa profondeur  $h_1$  qui définissent le box-model. Plusieurs formules existent selon la morphologie de l'estuaire et les données à disposition. Le box-model est ensuite résolu avec les hypothèses adéquates sur la structure de salinité. Les sorties du box-model permettent enfin de calculer la dilution des contaminants dans l'estuaire et le flushing time.

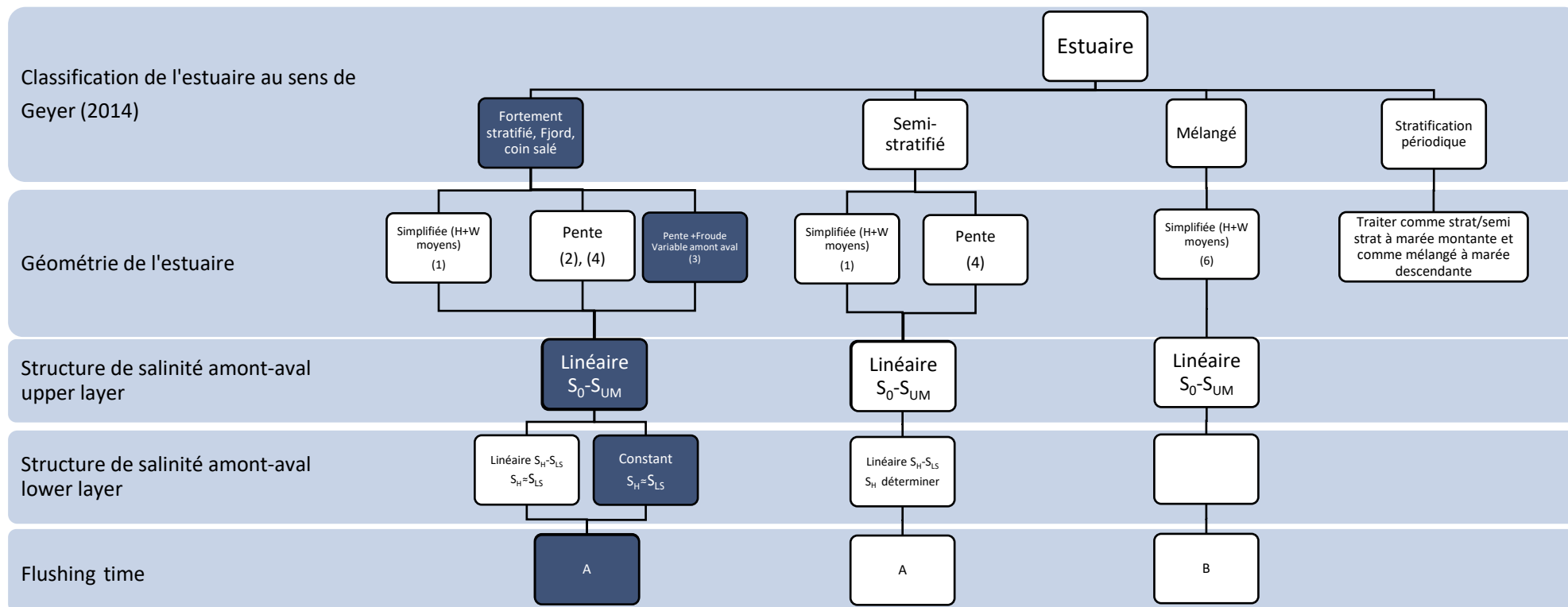


Figure VIII-1 : Arbre décisionnel pour calculer les principaux paramètres régissant la réactivité d'un estuaire pour les éléments dissous. Les numéros d'équations entre parenthèses font référence aux équations du Tableau V-1. Les cases foncées correspondent à la méthodologie suivie dans cette thèse

Tableau VIII-1 : Equations utilisées pour définir la structure du box-model estuarien (Longueur L et profondeur de la stratification (adimensionnée) dans le cas des estuaires avec une stratification) (1-7) et flushing time (A-B).

N°	Equation	Auteurs	Commentaires
1	$\frac{d\varphi}{d\chi} = \frac{F_0^2}{\varphi^3 - F_0^2} \left( \frac{1}{1 - \varphi} \right)$	(Schijf and Schonfeld, 1953)	Voir IV.3.2
2	$\frac{d\varphi}{d\chi} = \frac{F_0^2}{\varphi^3 - F_0^2} \left( 1 + r \frac{\varphi}{1 - \frac{\chi S_0}{C_i} - \varphi} \right)$	(Krvavica and Ružić, 2020)	Voir IV.3.2
3	$\frac{d\varphi}{d\chi} = \frac{F(\chi)_0^2}{\varphi^3 - F(\chi)_0^2} \left( 1 + r \frac{\varphi}{1 - \frac{\chi S_0}{C_i} - \varphi} \right)$	Cette étude	Voir IV.3.2
4	$\frac{L}{H_0} = \varepsilon(1 + S_0)^{\delta_1} Fr^{\delta_2} \left( \frac{\rho_{LL}}{\rho_0} \right)^{\delta_3} \left( \frac{Q_{ut}}{Q_r} \right)^{\delta_4} \left( \frac{Q_{LL}}{Q_r} \right)^{\delta_5}$	(Verri et al., 2021)	$\varepsilon, \delta_1, \delta_2, \delta_3, \delta_4, \delta_5$ à calibrer
5	$L = 0.024 \left( \frac{c^4}{\bar{u}} \right)^{1/3} \frac{H_0^2}{(K_S K_M^2)^{1/3}}$	(MacCready, 2007)	
6	$L = \frac{K_H}{\bar{u}}$	(MacCready, 2007)	
A	$\left( \frac{S_{LL} - S_{UL}}{S_{LL}} \right) \frac{V}{Q_r}$	(Officer, 1980)	
B	$\frac{(\bar{S} - S_0)(S_{LS} - \bar{S})}{\bar{S}(S_{LS} - S_0)} \frac{V}{Q_r}$	(Officer, 1980)	$\bar{S}$ salinité moyenne dans l'estuaire en l'absence de stratification significative

## VIII.2.6. Applicabilité à d'autres contaminants

### VIII.2.6.a. Gradient de salinité

DRACAR (ou d'autres box model similaires) produisent des sorties de salinités et de flushing time utiles pour des problématiques de contaminations du milieu marin par les estuaires pour d'autres polluants. En effet, les radionucléides du Tableau VIII-2 suivent des cinétiques de désorption différentes sur un gradient de salinité, et des essais de modélisation sur ces nucléides ou sur d'autres sites permettraient sans doute de mieux définir les paramètres forçants.

Tableau VIII-2 : Valeurs expérimentales d'intensité de désorption des particules (%) pour différents radionucléides et continnuums.

	Continuum considéré /% désorption	<sup>137</sup> Cs et <sup>134</sup> Cs	<sup>89</sup> Sr	<sup>109</sup> Cd	<sup>65</sup> Zn	<sup>54</sup> Mn	<sup>58</sup> Co
Reynolds & Gloyna, (1964)	Guadalupe-Baie de San Antonio	56	57.5				
Clanton, (1968)	Guadalupe-Baie de San Antonio	44	44				
Ferrer 1983	Rhône Méditerranée		98			10-30	15-20
Ouaniche 1984		40	98			40	40
Bale, (1987)	Tamar-Manche	80		65	45		
(El-Assy et al., 1991)	Canal de Suez-Méditerranée	69	86				10
Ciffroy et al., (2001)	Loire-Atlantique	75		91	52	15	11
Onodera et al., 2017	Abukama+Natsui -Ocean Pacifique	30					

Par ailleurs, des expérimentations de laboratoire montrent que des polluants organiques tels que les tributylétain (Langston and Pope, 1995), les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (H.A.P) (Wu and Sun, 2010) ou les chlorobenzènes (Gess and Pavlostathis, 1997) se désorbent de manière plus efficace en eau salée qu'en eau douce.

#### VIII.2.6.b. Effet vieillissement

Pour la modélisation du continuum, nos résultats montrent que prendre en compte l'historique de contamination des particules dans la zone fluviale est primordial pour prédire le devenir du césium en milieu marin par le biais d'un modèle à deux cinétiques. Cet historique de contamination intègre l'effet vieillissement et les changements d'équilibre.

La désorption du césium en eau salée n'est pas exactement gouvernée par les mêmes mécanismes que d'autres métaux, car son comportement géochimique n'est similaire qu'à celui des éléments de la première colonne du tableau de Mendeleiev (tels que K, Rb, Na). Néanmoins, on peut supposer par analogie que si l'effet vieillissement est significatif pour ces métaux pour une désorption d'eau douce, il le sera aussi pour une désorption en eau salée.

Ainsi, Garnier et al. (2006) montrent que le cobalt, le manganèse, le fer, le cadmium et le zinc sont eux aussi sensibles à l'effet vieillissement pour la désorption en eau douce d'une manière similaire au césium (augmentation du Kd entre 0,5 et 1 ordre de grandeur si l'on passe d'un temps de sorption de 1h à 31 jours) sur les particules de la Loire.<sup>2</sup> Hatje et al., (2003) observent un impact important entre une sorption de 0,5 h et 7 jours pour le manganèse et le cobalt. L'impact est beaucoup plus marginal pour le fer, le cadmium et zinc. Ces résultats suggèrent que l'impact de l'effet vieillissement doit être investigué pour d'autres radionucléides et renforcent la pertinence de l'utilisation de modèles cinétiques pour représenter les concentrations des radionucléides en eaux douces, saumâtres et salées.

L'effet vieillissement semble aussi jouer un rôle dans la désorption des molécules organiques puisque Wu and Sun (2010) modélisent la sorption-désorption du phénanthrène en eau salée avec un modèle géochimique similaire à V.4 (un équilibre rapide + une fraction irréversible).



# Références

- Agence de l'eau Rhône Méditerranée Corse. (2016). Impacts Du Changement Climatique Dans Le Domaine De L'Eau. Retrieved from <https://www.actu-environnement.com/media/pdf/news-30801-bilan-connaissances-changement-climat-eau-rmc.pdf>
- Arita, M., Jirka, G.H. and Asce, M. (1988). Two-Layer Model of Saline Wedge. I: Entrainment and Interfacial Friction. *Journal of Hydraulic Engineering*, 113(10), 1229–1246.
- Bahadur, R., Amstutz, D.E. and Samuels, W.B. (2013). Water Contamination Modeling— A Review of the State of the Science. *Journal of Water Resource and Protection*, 05(02), 142–155. <https://doi.org/10.4236/jwarp.2013.52016>
- Balls, P.W. (1994). Nutrient Inputs to Estuaries from Nine Scottish East Coast Rivers; Influence of Estuarine Processes on Inputs to the North Sea. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*. <https://doi.org/10.1006/ecss.1994.1068>
- Benes, P., Cernik, M. and Lam Ramos, P. (1992). Factors affecting interaction of radiocesium with freshwater solids. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 1(2), 201–218.
- Boudet, L., Sabatier, F. and Radakovitch, O. (2017). Modelling of sediment transport pattern in the mouth of the Rhone delta: Role of storm and flood events. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 198, 568–582. <https://doi.org/10.1016/j.ecss.2016.10.004>
- Boudet, Laurie. (2017). *Modélisation du transport sédimentaire lié aux crues et aux tempêtes à l'embouchure du Rhône*. Aix-Marseille.
- Bouquet, B. (2020). *Usage des outils otolithométriques, microchimiques et génétiques pour une estimation de la connectivité fonctionnelle entre les populations piscicoles du Rhône et de ses affluents : le cas du chevaine, *Squalius cephalus* (Linnaeus 1758)*. Aix-Marseille.
- Bravard, J.P. and Clémens, A. (2008). *Le Rhône en 100 questions*. Villeurbanne.
- BRL. (2001). *Acquisition, Mise en forme et Stockage des paramètres non radioécologiques du Prototypé CASTEAUR sur le Rhône de Cresy Malville à la Mer*.
- Burchard, H., Bolding, K., Feistel, R., Gräwe, U., Klingbeil, K., MacCready, P., ... van der Lee, E.M. (2018). The Knudsen theorem and the Total Exchange Flow analysis framework applied to the Baltic Sea. *Progress in Oceanography*, 165(May), 268–286. <https://doi.org/10.1016/j.pocean.2018.04.004>
- Calmet, D. and Fernandez, J. (1990). Caesium distribution in northwest Mediterranean seawater, suspended particles and sediments. *Continental Shelf Research*, 10(9–11), 895–913.

- Carpenter, M.H., Kennedy, C.A., Bijl, H., Viken, S.A. and Vatsa, V.N. (2005). Fourth-order Runge-Kutta schemes for fluid mechanics applications. *Journal of Scientific Computing*, 25(1), 157–194. <https://doi.org/10.1007/s10915-004-4637-3>
- Chaif, H., Coppin, F., Bahi, A. and Garcia-Sanchez, L. (2021). Influence of non-equilibrium sorption on the vertical migration of <sup>137</sup>Cs in forest mineral soils of Fukushima Prefecture. *Journal of Environmental Radioactivity*, 232(March). <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2021.106567>
- Charmasson, S., Barker, E., Calmet, D., Pruchon, A.S. and Thébault, H. (1999). Long-term variations of man-made radionuclide concentrations in a bio-indicator *Mytilus galloprovincialis* from the French Mediterranean coast. *Science of the Total Environment*, 237–238, 93–103. [https://doi.org/10.1016/S0048-9697\(99\)00127-8](https://doi.org/10.1016/S0048-9697(99)00127-8)
- Chatwin, P.C. (1976). Some remarks on the maintenance of the salinity distribution in estuaries. *Estuarine and Coastal Marine Science*, 4(5), 555–566. [https://doi.org/10.1016/0302-3524\(76\)90030-X](https://doi.org/10.1016/0302-3524(76)90030-X)
- Chazot, S., Mahé, M. and Fenart, P. (2014). *Etude de la gestion quantitative et des débits du rhone en periode de « basses eaux »*.
- Chen, J., Li, Y., Yin, K. and Jin, H. (2004). Amino acids in the Pearl River Estuary and adjacent waters: Origins, transformation and degradation. *Continental Shelf Research*, 24(16), 1877–1894. <https://doi.org/10.1016/j.csr.2004.06.013>
- Chiffolleau, J.F., Cossa, D., Auger, D. and Truquet, I. (1994). Trace metal distribution, partition and fluxes in the Seine estuary (France) in low discharge regime. *Marine Chemistry*, 47(2), 145–158. [https://doi.org/10.1016/0304-4203\(94\)90105-8](https://doi.org/10.1016/0304-4203(94)90105-8)
- Ciffroy, P., Garnier, J. and Khanh, M. (2001). Kinetics of the adsorption and desorption of radionuclides of Co, Mn, Cs, Fe, Ag and Cd in freshwater systems: experimental and modelling approaches, 55, 71–91.
- Ciffroy, P., Garnier, J.M. and Benyahya, L. (2003). Kinetic partitioning of Co, Mn, Cs, Fe, Ag, Zn and Cd in fresh waters (Loire) mixed with brackish waters (Loire estuary): Experimental and modelling approaches. *Marine Pollution Bulletin*, 46(5), 626–641. [https://doi.org/10.1016/S0025-326X\(02\)00517-9](https://doi.org/10.1016/S0025-326X(02)00517-9)
- Ciffroy, P., Garnier, J.M. and Khanh Pham, M. (2001). Kinetics of the adsorption and desorption of radionuclides of Co, Mn, Cs, Fe, Ag and Cd in freshwater systems: Experimental and modelling approaches. *Journal of Environmental Radioactivity*, 55(1), 71–91. [https://doi.org/10.1016/S0265-931X\(01\)00026-1](https://doi.org/10.1016/S0265-931X(01)00026-1)
- Cindrić, A.M., Garnier, C., Oursel, B., Pižeta, I. and Omanović, D. (2015). Evidencing the natural and anthropogenic processes controlling trace metals dynamic in a highly stratified estuary: The Krka River estuary (Adriatic, Croatia). *Marine Pollution Bulletin*, 94(1–2), 199–216. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2015.02.029>
- Clanton. (1968). *Sorption and release of strontium-89 and cesium-137 by recent sediments of the guadalupe river of texas*. University of Texas at Austin.
- CNR. (2005). *Conférence de consensus sur le débit du Rhône à Beaucaire pour la crue de Décembre 2003*.
- Conan, P. and Millot, C. (1995). Variability of the Northern Current off Marseilles, western Mediterranean Sea, from February to June 1992. *Oceanologica Acta*, 18(2), 193–205.
- Dagg, M., Benner, R., Lohrenz, S. and Lawrence, D. (2004). Transformation of dissolved and particulate materials on continental shelves influenced by large rivers: Plume processes. *Continental Shelf Research*, 24(7–8), 833–858. <https://doi.org/10.1016/j.csr.2004.02.003>



- Delaval, A., Duffa, C., Pairaud, I. and Radakovitch, O. (2021). A fuzzy classification of the hydrodynamic forcings of the Rhone River plume: An application in case of accidental release of radionuclides. *Environmental Modelling and Software*, 140(February), 105005. <https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2021.105005>
- Delaval, A., Duffa, C. and Radakovitch, O. (2020). A review on cesium desorption at the freshwater-seawater interface. *Journal of Environmental Radioactivity*, 218, 106255. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2020.106255>
- Demarcq, H. and Wald, L. (1984). La dynamique superficielle du panache du Rhône d'après l'imagerie infrarouge satellitaire. *Oceanologica Acta*, 7(2), 159–162. Retrieved from <http://hal.archives-ouvertes.fr/hal-00464192/>
- Diaz, F., Bănar, D., Verley, P. and Shin, Y.J. (2019). Implementation of an end-to-end model of the Gulf of Lions ecosystem (NW Mediterranean Sea). II. Investigating the effects of high trophic levels on nutrients and plankton dynamics and associated feedbacks. *Ecological Modelling*, 405(May), 51–68. <https://doi.org/10.1016/j.ecolmodel.2019.05.004>
- Djogić, R., Pižeta, I. and Branica, M. (2001). Electrochemical determination of dissolved uranium in Krka river estuary. *Water Research*, 35(8), 1915–1920. [https://doi.org/10.1016/S0043-1354\(00\)00459-0](https://doi.org/10.1016/S0043-1354(00)00459-0)
- Doxaran, D., Froidefond, J.M., Castaing, P. and Babin, M. (2009). Dynamics of the turbidity maximum zone in a macrotidal estuary (the Gironde, France): Observations from field and MODIS satellite data. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 81(3), 321–332. <https://doi.org/10.1016/j.ecss.2008.11.013>
- Duchêne, V. (2014). On the Rigid-Lid Approximation for Two Shallow Layers of Immiscible Fluids with Small Density Contrast. *Journal of Nonlinear Science*, 24(4), 579–632. <https://doi.org/10.1007/s00332-014-9200-2>
- Duffa, C., Bailly, P., Caillaud, M., Charmasson, S. and Renaud, P. (2016). Development of emergency response tools for accidental radiological contamination of French coastal areas. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 151, 487–494. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.04.019>
- Dufois, F. (2008). Modélisation du transport particulaire dans le Golfe du Lion en vue d'une application au devenir des traceurs radioactifs issus du Rhône.
- Dürr, H.H., Laruelle, G.G., van Kempen, C.M., Slomp, C.P., Meybeck, M. and Middelkoop, H. (2011). Worldwide Typology of Nearshore Coastal Systems: Defining the Estuarine Filter of River Inputs to the Oceans. *Estuaries and Coasts*, 34(3), 441–458. <https://doi.org/10.1007/s12237-011-9381-y>
- Dyer, K.R. (1995). Sediment transport processes in estuaries. *Developments in Sedimentology*, 53(C), 423–449. [https://doi.org/10.1016/S0070-4571\(05\)80034-2](https://doi.org/10.1016/S0070-4571(05)80034-2)
- Dyer, K.R. (1997). *Estuaries A Physical Introduction*. (Wiley, Ed.) (2nd Editio).
- Dyer, K.R. and New, A.L. (1986). Intermittency in estuarine Mixing. In *Estuarine Variability* (pp. 321–339). Elsevier Ltd.
- Dzikowski, M. and Jobard, S. (2012). Mixing law versus discharge and electrical conductivity relationships: Application to an alpine proglacial stream. *Hydrological Processes*, 26(18), 2724–2732. <https://doi.org/10.1002/hyp.8366>
- El-Assy, N., Fattah, A.T.A. and Essa, M.W.A. (1991). Adsorption-desorption equilibria of some radionuclides in sediment-seawater system. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 152(1), 31–35.
- Estournel, C., Kondrachoff, V., Marsaleix, P. and Vehil, R. (1997). The plume of the Rhone:

- Numerical simulation and remote sensing. *Continental Shelf Research*, 17(8), 899–924. [https://doi.org/10.1016/S0278-4343\(96\)00064-7](https://doi.org/10.1016/S0278-4343(96)00064-7)
- Eyrolle, F. (2016). *Origine, comportement et devenir des radionucléides en milieu aquatique*.
- Eyrolle, F., Ducros, L., Le Dizès, S., Beaugelin-Seiller, K., Charmasson, S., Boyer, P. and Cossonnet, C. (2018). An updated review on tritium in the environment. *Journal of Environmental Radioactivity*, 181(November), 128–137. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.11.001>
- Eyrolle, F., Lepage, H., Antonelli, C., Morereau, A., Cossonnet, C., Boyer, P. and Gurriaran, R. (2020). Radionuclides in waters and suspended sediments in the Rhone River (France) - Current contents, anthropic pressures and trajectories. *Science of The Total Environment*, 137873. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.137873>
- Faure, J. (2019). *MAGE Résolution des équations de Barré de Saint-Venant 1 D en réseaux complexes Documentation théorique et notice d'emploi*. Villeurbanne.
- Ferrer, M.. (1983). *Etude expérimentale du comportement de huit radionucléides artificiels dans le cours terminal du Rhône*. Bordeaux.
- Figuerola, S.M., Lee, G. hong and Shin, H.J. (2019). The effect of periodic stratification on floc size distribution and its tidal and vertical variability: Geum Estuary, South Korea. *Marine Geology*, 412(November 2018), 187–198. <https://doi.org/10.1016/j.margeo.2019.03.009>
- Fraysse, M., Pairaud, I., Ross, O.N., Faure, V.M. and Pinazo, C. (2014). Journal of Geophysical Research: Oceans Generation processes and impacts on ecosystem functioning. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 6535–6556. <https://doi.org/10.1002/2014JC010022>
- Gangloff, Aurelien. (2018). Devenir des apports solides du Rhône dans le Golfe du Lion : étude de la dynamique du panache turbide du Rhône en réponse aux forçages hydrométéorologiques Aurelien Gangloff To cite this version : HAL Id : tel-01797368 Devenir des apports solides du Rhône.
- Gangloff, Aurélien, Verney, R., Doxaran, D., Ody, A. and Estournel, C. (2017). Investigating Rhône River plume (Gulf of Lions, France) dynamics using metrics analysis from the MERIS 300m Ocean Color archive (2002–2012). *Continental Shelf Research*, 144(July), 98–111. <https://doi.org/10.1016/j.csr.2017.06.024>
- Ganju, N.K., Brush, M.J., Rashleigh, B., Aretxabaleta, A.L., del Barrio, P., Grear, J.S., ... Vaudrey, J.M.P. (2016). Progress and Challenges in Coupled Hydrodynamic-Ecological Estuarine Modeling. *Estuaries and Coasts*, 39(2), 311–332. <https://doi.org/10.1007/s12237-015-0011-y>
- Garnier, J.M., Ciffroy, P. and Benyahya, L. (2006). Implications of short and long term (30 days) sorption on the desorption kinetic of trace metals (Cd, Zn, Co, Mn, Fe, Ag, Cs) associated with river suspended matter. *Science of the Total Environment*, 366(1), 350–360. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2005.07.015>
- Garnier, J.M. and Guieu, C. (2003). Release of cadmium in the Danube estuary: Contribution of physical and chemical processes as determined by an experimental approach. *Marine Environmental Research*, 55(1), 5–25. [https://doi.org/10.1016/S0141-1136\(02\)00107-1](https://doi.org/10.1016/S0141-1136(02)00107-1)
- Garvine, R.W. and Whitney, M.M. (2006). An estuarine box model of freshwater delivery to the coastal ocean for use in climate models. *Journal of Marine Research*, 64(2), 173–194. <https://doi.org/10.1357/002224006777606506>

- Gess, P. and Pavlostathis, S.G. (1997). Desorption of chlorinated organic compounds from a contaminated estuarine sediment. *Environmental Toxicology and Chemistry*, 16(8), 1598–1605. [https://doi.org/10.1897/1551-5028\(1997\)016<1598:DOCOCF>2.3.CO;2](https://doi.org/10.1897/1551-5028(1997)016<1598:DOCOCF>2.3.CO;2)
- Geyer, W. R. and Ralston, D.K. (2012). *The Dynamics of Strongly Stratified Estuaries. Treatise on Estuarine and Coastal Science* (Vol. 2). Elsevier Inc. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-374711-2.00206-0>
- Geyer, W. Rockwell and MacCready, P. (2014). The estuarine circulation. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 46, 175–197. <https://doi.org/10.1146/annurev-fluid-010313-141302>
- Gil-Diaz, T. (2019). *Comportement biogéochimique d'antimoine (Sb) et de tellure (Te) dans le milieu côtier : vers des scénarios de dispersion des radionucléides de Sb et de Te en cas de rejets accidentels de centrale nucléaires*. Bordeaux.
- Gontier, G., Grenz, C., Calmet, D. and Sacher, M. (1992). The contribution of Mytilus sp. in radionuclide transfer between water column and sediments in the estuarine and delta systems of the Rhône river. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 34(6), 593–601. [https://doi.org/10.1016/S0272-7714\(05\)80064-2](https://doi.org/10.1016/S0272-7714(05)80064-2)
- Hansen, D. V and Rattray, M. (1966). New dimensions in estuary classification, *XI*(3), 8.
- Hatje, V., Payne, T.E., Hill, D.M., McOrist, G., Birch, G.F. and Szymczak, R. (2003). Kinetics of trace element uptake and release by particles in estuarine waters: Effects of pH, salinity, and particle loading. *Environment International*, 29(5), 619–629. [https://doi.org/10.1016/S0160-4120\(03\)00049-7](https://doi.org/10.1016/S0160-4120(03)00049-7)
- Hearn, C.J. and Robson, B.J. (2002). On the effects of wind and tides on the hydrodynamics of a shallow mediterranean estuary. *Continental Shelf Research*, 22(18–19), 2655–2672. [https://doi.org/10.1016/S0278-4343\(02\)00119-X](https://doi.org/10.1016/S0278-4343(02)00119-X)
- Hierro, A., Martín, J.E., Olías, M., García, C. and Bolivar, J.P. (2013). Uranium behavior during a tidal cycle in an estuarine system affected by acid mine drainage (AMD). *Chemical Geology*, 342, 110–118. <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2013.01.021>
- Holliday, L.M. and Liss, P.S. (1976). The behaviour of dissolved iron, manganese and zinc in the Beaulieu Estuary, S. England. *Estuarine and Coastal Marine Science*, 4(3), 349–353. [https://doi.org/10.1016/0302-3524\(76\)90066-9](https://doi.org/10.1016/0302-3524(76)90066-9)
- Hordoir, R., Polcher, J., Brun-Cottan, J.C. and Madec, G. (2008). Towards a parametrization of river discharges into ocean general circulation models: A closure through energy conservation. *Climate Dynamics*, 31(7–8), 891–908. <https://doi.org/10.1007/s00382-008-0416-4>
- Hornik, K., Maechler, M. and Billvenables@gmail.com, M.B.V. (2019). Package ‘polynom.’
- IAEA. (2004). *Sediment distribution coefficients and concentrations factors for biota in the marine environment*. Vienna.
- Ibañez, C., Pont, D. and Prat, N. (1997). Characterization of the Ebre and Rhone estuaries: A basis for defining and classifying salt-wedge estuaries. *Limnology and Oceanography*, 42(1), 89–101. <https://doi.org/10.4319/lo.1997.42.1.0089>
- Ippen, A.T. and Harleman, D.R.. (1961). *One-dimensional Analysis of salinity intrusion in estuaries*.
- Jacq, V., Albert, P. and Delorme, R. (2005). Le mistral Quelques aspects des connaissances actuelles. *La Météorologie*, 50, 30–38.
- Jouanneau, J.. and Latouche, C. (1981). The Gironde Estuary. *Contributions to Sedimentary Geology*, 10, 115.

- Takehi, S., Kaeriyama, H., Ambe, D., Ono, T., Ito, S. ichi, Shimizu, Y. and Watanabe, T. (2016). Radioactive cesium dynamics derived from hydrographic observations in the Abukuma River Estuary, Japan. *Journal of Environmental Radioactivity*, 153, 1–9. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2015.11.015>
- Kambayashi, S., Zhang, J. and Narita, H. (2021). Significance of Fukushima-derived radiocaesium flux via river-estuary-ocean system. *Science of The Total Environment*, 793, 148456. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.148456>
- Kelley, D., Clarks, R. and Layton, C. (2020). *Package “oce.”*
- Kennedy, V.S. (1984). THE Estuary As a Filter. In V.S. Kennedy (Ed.), *Estuarine Research Federation's seventh biennial conference* (p. 511). <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/C2013-0-10968-3>
- Klinkhammer, G.P. and McManus, J. (2001). Dissolved manganese in the Columbia River estuary: Production in the water column. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 65(17), 2835–2841. [https://doi.org/10.1016/S0016-7037\(01\)00650-0](https://doi.org/10.1016/S0016-7037(01)00650-0)
- Knudsen, M. (1900). Ein hydrographischer Lehrsatz. *Annalen Der Hydrographie Und Maritimen Meteorologie*, 28, 316–320.
- Krvavica, N. and Ružić, I. (2020). Assessment of sea-level rise impacts on salt-wedge intrusion in idealized and Neretva River Estuary. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 234(December 2019). <https://doi.org/10.1016/j.ecss.2020.106638>
- Krvavica, N., Travaš, V. and Ožanić, N. (2016). A field study of interfacial friction and entrainment in a microtidal salt-wedge estuary. *Environmental Fluid Mechanics*, 16(6), 1223–1246. <https://doi.org/10.1007/s10652-016-9480-1>
- Lajaunie-Salla, K. (2016). *Modélisation de la dynamique de l'oxygène dissous dans l'estuaire de la Gironde*. Bordeaux.
- Lanceleur, L., Schäfer, J., Blanc, G., Coynel, A., Bossy, C., Baudrimont, M., ... Strady, E. (2013). Silver behaviour along the salinity gradient of the Gironde Estuary. *Environmental Science and Pollution Research*, 20(3), 1352–1366. <https://doi.org/10.1007/s11356-012-1045-3>
- Langston, W.J. and Pope, N.D. (1995). Determinants of TBT adsorption and desorption in estuarine sediments. *Marine Pollution Bulletin*, 31(1–3), 32–43. [https://doi.org/10.1016/0025-326X\(95\)91269-M](https://doi.org/10.1016/0025-326X(95)91269-M)
- Launay, M., Dugué, V., Faure, J.B., Coquery, M., Camenen, B. and Le Coz, J. (2019). Numerical modelling of the suspended particulate matter dynamics in a regulated river network. *Science of the Total Environment*, 665, 591–605. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.02.015>
- Launay, Marina. (2014). *Flux de matières en suspension, de mercure et de PCB particulières dans le Rhône, du Léman à la Méditerranée*. Claude Bernard Lyon 1.
- Legates, D.R. and McCabe Jr, G.J. (1999). Evaluating the use of “goodness-of-fit” measures in hydrologic and hydroclimatic model validation. *Water Resources Research*, 35(1), 233–241.
- Legović, T., Žutić, V., Gržetić, Z., Cauwet, G., Precali, R. and Viličić, D. (1994). Eutrophication in the Krka estuary. *Marine Chemistry*, 46(1–2), 203–215. [https://doi.org/10.1016/0304-4203\(94\)90056-6](https://doi.org/10.1016/0304-4203(94)90056-6)
- Levasseur, L. and Doutriaux, E. (1992). 5 . - Le coin salé du Grand Rhône et les travaux de creusement du seuil de Terrin, 15–17.
- Lucas, L. V. and Deleersnijder, E. (2020). *Timescale methods for simplifying*,

*understanding and modeling biophysical and water quality processes in coastal aquatic ecosystems: A review. Water (Switzerland)* (Vol. 12). <https://doi.org/10.3390/w12102717>

- Ludwig, W., Dumont, E., Meybeck, M. and 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(3–4), 199–217. <https://doi.org/10.1016/j.pocean.2009.02.001>
- Lujanienė, G. and Šilobritienė, B. (2004). Behaviour of Radiocesium in Marine Environment. *Environmental ...*, 2(2), 23–32. Retrieved from [http://www.researchgate.net/publication/228695423\\_Behaviour\\_of\\_Radiocesium\\_in\\_Marine\\_Environment/file/e0b4951cd83db2b6bb.pdf](http://www.researchgate.net/publication/228695423_Behaviour_of_Radiocesium_in_Marine_Environment/file/e0b4951cd83db2b6bb.pdf)
- MacCready, P. (1999). Estuarine adjustment to changes in river flow and tidal mixing. *Journal of Physical Oceanography*, 29(4), 708–726. [https://doi.org/10.1175/1520-0485\(1999\)029<0708:EATCIR>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0485(1999)029<0708:EATCIR>2.0.CO;2)
- MacCready, P. (2004). Toward a unified theory of tidally-averaged estuarine salinity structure. *Estuaries*, 27(4), 561–570. <https://doi.org/10.1007/BF02907644>
- MacCready, P. (2007). Estuarine adjustment. *Journal of Physical Oceanography*, 37(8), 2133–2145. <https://doi.org/10.1175/JPO3082.1>
- MacCready, P., Banas, N.S., Hickey, B.M., Dever, E.P. and Liu, Y. (2009). A model study of tide- and wind-induced mixing in the Columbia River Estuary and plume. *Continental Shelf Research*, 29(1), 278–291. <https://doi.org/10.1016/j.csr.2008.03.015>
- MacCready, P. and Geyer, W.R. (2009). Advances in Estuarine Physics. *Annual Review of Marine Science*, 2(1), 35–58. <https://doi.org/10.1146/annurev-marine-120308-081015>
- Machado, A.A. de S., Spencer, K., Kloas, W., Toffolon, M. and Zarfl, C. (2016). Metal fate and effects in estuaries: A review and conceptual model for better understanding of toxicity. *Science of the Total Environment*, 541, 268–281. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2015.09.045>
- Maillet, G. (2005). *Relations sédimentaires récentes et actuelles entre un fleuve et son delta en milieu microtidal: Exemple de l'embouchure du Rhône*. Aix-Marseille.
- Margvelashvily, N., Maderich, V. and Zheleznyak, M. (1999). Simulation of radionuclide fluxes from the Dnieper-Bug Estuary into the Black Sea. *Journal of Environmental Radioactivity*, 43(2), 157–171. [https://doi.org/10.1016/S0265-931X\(98\)00089-7](https://doi.org/10.1016/S0265-931X(98)00089-7)
- Marion, C. (2010). Dynamique et bilans des transferts particuliers de radioéléments d'origine anthropique et naturelle dans le Golfe du Lion: cas particulier des apports rhodaniens, 436.
- Martin, D., Pititto, F., Gil, J., Mura, M.P., Bahamon, N., Romano, C., ... Bocquenet, Y. (2019). Long-distance influence of the Rhône River plume on the marine benthic ecosystem: Integrating descriptive ecology and predictive modelling. *Science of the Total Environment*, 673, 790–809. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.04.010>
- Martin, J.M. and Thomas, A.J. (1990). Origins, concentrations and distributions of artificial radionuclides discharged by the Rhône River to the Mediterranean Sea. *Journal of Environmental Radioactivity*, 11(2), 105–139. [https://doi.org/10.1016/0265-931X\(90\)90056-2](https://doi.org/10.1016/0265-931X(90)90056-2)
- Millot, C. (1990). The Gulf of Lions' hydrodynamics. *Continental Shelf Research*, 10(9–11), 885–894. [https://doi.org/10.1016/0278-4343\(90\)90065-T](https://doi.org/10.1016/0278-4343(90)90065-T)
- Millot, C. (1999). Circulation in the Western Mediterranean Sea. *Journal of Marine*

- Monismith, S.G., Burau, J. and Stacey., M. (1996). Stratification Dynamics and Gravitational Circulation in Northern San Francisco Bay. *San Francisco Bay: The Ecosystem. Ecosystem, J. T. Hollibaugh, Ed.*, (American Association for the Advancement of Science), 123–153.
- Morereau, A., Lepage, H., Claval, D., Cossonnet, C., Ambrosi, J.P., Mourier, B., ... Eyrolle, F. (2020). Trajectories of technogenic tritium in the Rhône River (France). *Journal of Environmental Radioactivity*, 223–224(August). <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2020.106370>
- Morereau, Amandine. (2020). *Reconstitution à partir d'archives sédimentaires des concentrations et des sources de radionucléides ayant transité dans le Rhône et la Loire au cours de l'ère nucléaire*. Aix-Marseille.
- Morris, A.W. (1985). Estuarine Chemistry And Survey Strategy. In P. Head (Ed.), *Practical Estuarine Chemistry: A Handbook* (p. 338). Cambridge University Press.
- Mukai, H., Tamura, K., Kikuchi, R., Takahashi, Y., Yaita, T. and Kogure, T. (2018). Cesium desorption behavior of weathered biotite in Fukushima considering the actual radioactive contamination level of soils. *Journal of Environmental Radioactivity*, 190–191(April), 81–88. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.05.006>
- Needoba, J.A., Peterson, T.D., Riseman, S., Wilkin, M. and Baptista, A.M. (2015). Estuarine Biogeochemical Dynamics of Nutrients and Organic Carbon in the Columbia River: Observing Transformations Using a Biogeochemical Sensor Network. In *American Geophysical Union, Fall Meeting 2015*.
- Nicolle, A., Garreau, P. and Liorzou, B. (2009). Modelling for anchovy recruitment studies in the Gulf of Lions (Western Mediterranean Sea). *Ocean Dynamics*, 59(6), 953–968. <https://doi.org/10.1007/s10236-009-0221-6>
- Nyffeler, U.P., Li, Y.H. and Santschi, P.H. (1984). a Kinetic Approach To Describe Trace-Element Distribution Between Particles and Solution in Natural Aquatic Systems. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 48(7), 1513–1522. [https://doi.org/10.1016/0016-7037\(84\)90407-1](https://doi.org/10.1016/0016-7037(84)90407-1)
- O'Donnell, J., Dam, H.G., Bohlen, W.F., Fitzgerald, W., Gay, P.S., Houk, A.E., ... Howard-Strobel, M.M. (2008). Intermittent ventilation in the hypoxic zone of western Long Island Sound during the summer of 2004. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 113(9), 1–13. <https://doi.org/10.1029/2007JC004716>
- Officer, C.B. (1980). Box Models Revisited. *Marine Science (Plenum)*, 11, 65–114. [https://doi.org/10.1007/978-1-4757-5177-2\\_4](https://doi.org/10.1007/978-1-4757-5177-2_4)
- Okumura, M., Kerisit, S., Bourg, I.C., Lammers, L.N., Ikeda, T., Sassi, M., ... Machida, M. (2018). Radiocesium interaction with clay minerals: Theory and simulation advances Post-Fukushima. *Journal of Environmental Radioactivity*, 189(April), 135–145. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.03.011>
- Ollivier, P. (2006). *Interface continent-océan : géochimie du Rhône (flux et bilan d'érosion) et transfert d'eaux souterraines en Camargue (apports des isotopes du radium)*. Aix-Marseille.
- Onishi, Y., Serne, R., Arnold, E., Cowen, C. and Thompson, F. (1981). *Critical review: Radionuclide Transport, Sediment Transport, and Water Quality Mathematical Modeling; and Radionuclide Adsorption/desorption Mechanisms*. Richland.
- Onishi, Y. and Trent, D.S. (1982). *Mathematical Simulation of Sediment and Radionuclide Transport in Estuaries*.

- Onodera, M., Kirishima, A., Nagao, S., Takamiya, K., Ohtsuki, T., Akiyama, D. and Sato, N. (2017). Desorption of radioactive cesium by seawater from the suspended particles in river water. *Chemosphere*, *185*, 806–815. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2017.07.078>
- OSR. (2014). *Caractérisation bio-physico-chimique et traçage des sédiments et des polluants associés*.
- Oughton, D.H., Børretzen, P., Salbu, B. and Tronstad, E. (1997). Mobilisation of <sup>137</sup>Cs and <sup>90</sup>Sr from sediments: Potential sources to arctic waters. *Science of the Total Environment*, *202*(1–3), 155–165. [https://doi.org/10.1016/S0048-9697\(97\)00112-5](https://doi.org/10.1016/S0048-9697(97)00112-5)
- Painchaud, J., Lefavre, D. and Therriault, J.-C. (1987). Box model analysis of bacterial fluxes in the St. Lawrence Estuary. *Marine Ecology Progress Series*, *41*, 241–252. <https://doi.org/10.3354/meps041241>
- Pairaud, I.L., Gatti, J., Bensoussan, N., Verney, R. and Garreau, P. (2011). Hydrology and circulation in a coastal area off Marseille: Validation of a nested 3D model with observations. *Journal of Marine Systems*, *88*(1), 20–33. <https://doi.org/10.1016/j.jmarsys.2011.02.010>
- Pardé, M. (1925). Le régime du Rhône. *Revue de Géographie Alpine*, *13*(3), 459–547.
- Periáñez, R. (2004). Testing the behaviour of different kinetic models for uptake/release of radionuclides between water and sediments when implemented in a marine dispersion model. *Journal of Environmental Radioactivity*, *71*(3), 243–259. [https://doi.org/10.1016/S0265-931X\(03\)00172-3](https://doi.org/10.1016/S0265-931X(03)00172-3)
- Periáñez, R. (2005). Modelling the transport of suspended particulate matter by the Rhone River plume (France). Implications for pollutant dispersion. *Environmental Pollution*, *133*(2), 351–364. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2004.05.021>
- Periáñez, R., Brovchenko, I., Jung, K.T., Kim, K.O. and Maderich, V. (2018). The marine kd and water/sediment interaction problem. *Journal of Environmental Radioactivity*, *192*(March), 635–647. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.02.014>
- Perillo, G. (1995). Definitions and Geomorphologic Classifications of Estuaries. In *Developments in Sedimentology* (pp. 17–47). [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/S0070-4571\(05\)80022-6](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/S0070-4571(05)80022-6)
- Peters, H. (1999). Spatial and temporal variability of turbulent mixing in an estuary. *Journal of Marine Research*, *57*(6), 805–845. <https://doi.org/10.1357/002224099321514060>
- Poggioli, A.R. and Horner-Devine, A.R. (2015). The sensitivity of salt wedge estuaries to channel geometry. *Journal of Physical Oceanography*, *45*(12), 3169–3183. <https://doi.org/10.1175/JPO-D-14-0218.1>
- Poggioli, A.R. and Horner-Devine, A.R. (2018). Two-layer hydraulics at the river-ocean interface. *Journal of Fluid Mechanics*, *856*(August), 633–672. <https://doi.org/10.1017/jfm.2018.688>
- Poulier, G., Launay, M., Le Bescond, C., Thollet, F., Coquery, M. and Le Coz, J. (2019). Combining flux monitoring and data reconstruction to establish annual budgets of suspended particulate matter, mercury and PCB in the Rhône River from Lake Geneva to the Mediterranean Sea. *Science of the Total Environment*, *658*, 457–473. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2018.12.075>
- Radakovitch, O., Sakho, I., Hanot, B., Dussouillez, P., Sabatier, F., Sabatier-Delanghe, D. and Tal, M. (2014). *Rapport final sur la validation et l'exploitation de l'équipement scientifique du bac de Barcarin*.

- Radakovitch, Olivier, Delaval, A., Boyer, P., Duffa, C., Giner, F. and Mourier, D. (2021). *Transfert particulaire-dissous des radioisotopes à l'embouchure*.
- Rahaman, W., Kumar, S. and Raghav, S. (2010). Dissolved Mo and U in rivers and estuaries of India : Implication to geochemistry of redox sensitive elements and their marine budgets. *Chemical Geology*, 278(3–4), 160–172. <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2010.09.009>
- Ralston, D.K. and Geyer, W.R. (2019). Response to Channel Deepening of the Salinity Intrusion, Estuarine Circulation, and Stratification in an Urbanized Estuary. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 124(7), 4784–4802. <https://doi.org/10.1029/2019JC015006>
- Ralston, D.K., Geyer, W.R. and Lerczak, J.A. (2008). Subtidal salinity and velocity in the Hudson River estuary: Observations and modeling. *Journal of Physical Oceanography*, 38(4), 753–770. <https://doi.org/10.1175/2007JPO3808.1>
- Ralston, D.K., Geyer, W.R. and Lerczak, J.A. (2010). Structure, variability, and salt flux in a strongly forced salt wedge estuary. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 115(6), 1–21. <https://doi.org/10.1029/2009JC005806>
- Reffray, G., Fraunié, P. and Marsaleix, P. (2004). Secondary flows induced by wind forcing in the Rhône region of freshwater influence. *Ocean Dynamics*, 54(2), 179–196. <https://doi.org/10.1007/s10236-003-0079-y>
- Reiter, E.R. (1975). *Weather phenomena of the mediterranean basin Part I: General description of the meteorological processes*. Monterey.
- Reynolds and Gloyna. (1964). UPTAKE AND RELEASE OF RADIONUCLIDES BY STREAM SEDIMENTS. *WCPF*, 36(3), 279–280.
- Rice, A.E., Whitney, M.M., Garvine, R.W. and Huq, P. (2008). Energetics in Delaware bay: comparison of two box models with observations. *Journal of Marine Research*, 66(6), 873–898. <https://doi.org/10.1357/002224008788064568>
- Roberts, K.L., Kessler, A.J., Grace, M.R. and Cook, P.L.M. (2014). Increased rates of dissimilatory nitrate reduction to ammonium (DNRA) under oxic conditions in a periodically hypoxic estuary. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 133, 313–324. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2014.02.042>
- Rode, M., Suhr, U. and Wriedt, G. (2007). Multi-objective calibration of a river water quality model — Information content of calibration data, 4, 129–142. <https://doi.org/10.1016/j.ecolmodel.2006.12.037>
- Rolland, B. (2006). *Transfert des radionucléides par voie fluviale : conséquences sur les stocks sédimentaires rhodaniens et les exports vers la Méditerranée*. Aix-Marseille.
- Sadaoui, M., Ludwig, W., Bourrin, F. and Raimbault, P. (2016). Controls , budgets and variability of riverine sediment fluxes to the Gulf of Lions ( NW Mediterranean Sea ). *Journal of Hydrology*, 540, 1002–1015. <https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2016.07.012>
- Sakho, I., Dussouillez, P., Delanghe, D., Hanot, B., Raccasi, G., Tal, M., ... Radakovitch, O. (2019). Suspended sediment flux at the Rhone River mouth (France) based on ADCP measurements during flood events. *Environmental Monitoring and Assessment*, 191(8). <https://doi.org/10.1007/s10661-019-7605-y>
- Samanta, S. and Dalai, T.K. (2018). Massive production of heavy metals in the Ganga (Hooghly) River estuary, India: Global importance of solute-particle interaction and enhanced metal fluxes to the oceans. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 228, 243–258. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2018.03.002>



- Sanchez-Cabeza, J.-A., Molero, J., Merino, J., Pujol, L. and Mitchell, P.I. (1992). 137 Cs as a tracer of the Catalan current. *Oceanologica Acta*, 18(2), 221–226.
- Sarin, M.M. and Church, T.M. (1994). Behaviour of uranium during mixing in the Delaware and Chesapeake estuaries. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 39(6), 619–631. [https://doi.org/10.1016/S0272-7714\(06\)80013-2](https://doi.org/10.1016/S0272-7714(06)80013-2)
- Savey, P., Pommier, M. and Marvaud, P. (1967). Observations et mesures effectuées sur les coins salés du grand et du petit Rhône. *La Houille Blanche -International Water Journal*, (2).
- Schijf, J.B. and Schonfeld, J.C. (1953). Theoretical considerations on the motion of salt and fresh water. *Proc. of the Minn. Int. Hydraulics Conv.*, 321–333.
- Seitzinger, S.P., Mayorga, E., Bouwman, A.F., Kroeze, C., Beusen, A.H.W., Billen, G., ... Harrison, J.A. (2010). Global river nutrient export: A scenario analysis of past and future trends. *Global Biogeochemical Cycles*, 24(2). <https://doi.org/10.1029/2009GB003587>
- Sheldon, J.E. and Alber, M. (2002). A Comparison of Residence Time Calculations Using Simple Compartment Models. *Coastal and Estuarine Research Federation, Part B: Dedicated Issue: Freshwater Inflow: Science, Policy, Management: Symposium Papers from the 16th Biennial Estuarine Research Federation Conference (Dec., 2002)*, 25(6), 1304–1317.
- Shiller, A.M. (1996). The effect of recycling traps and upwelling on estuarine chemical flux estimates. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 60(17), 3177–3185. [https://doi.org/10.1016/0016-7037\(96\)00159-7](https://doi.org/10.1016/0016-7037(96)00159-7)
- Siclet, F., Guesmia, M., Ciffroy, P., Reyss, J.L., Fontugne, M., Lepetit, G., ... Drouadaine, L. (2002). Radionuclides in the Loire River estuary (France): Sources, transport and fate. *Radioprotection*, 37(C1), 761–767. <https://doi.org/10.1051/radiopro/2002200>
- Sierra, J.P., Sánchez-Arcilla, A., González Del Río, J., Flos, J., Movellán, E., Mösso, C., ... Romero, I. (2002). Spatial distribution of nutrients in the Ebro estuary and plume. *Continental Shelf Research*, 22(2), 361–378. [https://doi.org/10.1016/S0278-4343\(01\)00061-9](https://doi.org/10.1016/S0278-4343(01)00061-9)
- Simonsen, M. (2019). *Marine transport modeling of radionuclides using a dynamic speciation approach*.
- Simpson, J.H., Brown, J., Matthews, J. and Allen, G. (1990). Tidal straining, density currents, and stirring in the control of estuarine stratification. *Estuaries*, 13(2), 125–132. <https://doi.org/10.2307/1351581>
- Sorgard, E., Martinsen, T. and Aas, E. (1990). Drag coefficient at a stationary salt wedge. *Journal of Geophysical Research*, 95(C5), 7337. <https://doi.org/10.1029/jc095ic05p07337>
- Stommel, H. and Farmer, H.G. (1952). *On the Nature of Estuarine Circulation*.
- Sun, Q., Whitney, M.M., Bryan, F.O. and Tseng, Y. heng. (2017). A box model for representing estuarine physical processes in Earth system models. *Ocean Modelling*, 112, 139–153. <https://doi.org/10.1016/j.ocemod.2017.03.004>
- Sunda, W.G. (1988). Trace metal interactions with marine phytoplankton. *Biological Oceanography*, 6(5–6), 411–442. <https://doi.org/10.1080/01965581.1988.10749543>
- Swarzenski, P.W., Porcelli, D., Andersson, P.S. and Smoak, J.M. (2003). *The behavior of U- and Th-series nuclides in the estuarine environment. Uranium-series Geochemistry* (Vol. 52). <https://doi.org/10.2113/0520577>

- Swihart, B. and Lindsey, J. (2020). *Package 'rmutil.'*
- Taft, J., Elliott, A. and Taylor, W. (1978). Box model analysis of Chesapeake Bay ammonium and nitrate fluxes. *Estuarine Interactions*, 1156130. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/B978-0-12-751850-3.50014-5>
- Takata, H., Wakiyama, Y., Niida, T., Igarashi, Y., Konoplev, A. and Inatomi, N. (2021). Importance of desorption process from Abukuma River's suspended particles in increasing dissolved <sup>137</sup>Cs in coastal water during river-flood caused by typhoons. *Chemosphere*, 281(May), 130751. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2021.130751>
- Testa, J.M. and Kemp, W.M. (2008). Variability of biogeochemical processes and physical transport in a partially stratified estuary: A box-modeling analysis. *Marine Ecology Progress Series*, 356, 63–79. <https://doi.org/10.3354/meps07264>
- Thill, A. (2006). Agrégation des particules: structure, dynamique et simulation. Application au cas d'un écoulement stratifié: l'estuaire du Rhône.
- Thill, A., Moustier, S., Garnier, J.M., Estournel, C., Naudin, J.J. and Bottero, J.Y. (2001). Evolution of particle size and concentration in the Rhône river mixing zone: Influence of salt flocculation. *Continental Shelf Research*, 21(18–19), 2127–2140. [https://doi.org/10.1016/S0278-4343\(01\)00047-4](https://doi.org/10.1016/S0278-4343(01)00047-4)
- Tolmazin, D. (1985). Changing Coastal oceanography of the Black Sea. I: Northwestern Shelf. *Progress in Oceanography*, 15(4), 217–276. [https://doi.org/10.1016/0079-6611\(85\)90038-2](https://doi.org/10.1016/0079-6611(85)90038-2)
- Twigt, D.J., De Goede, E.D., Zijl, F., Schwanenberg, D. and Chiu, A.Y.W. (2009). Coupled 1D-3D hydrodynamic modelling, with application to the Pearl River Delta. *Ocean Dynamics*, 59(6), 1077–1093. <https://doi.org/10.1007/s10236-009-0229-y>
- Ulses, C., Estournel, C., Bonnin, J., Durrieu de Madron, X. and Marsalei, P. (2008). Impact of storms and dense water cascading on shelf-slope exchanges in the Gulf of Lion (NW Mediterranean). *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 113(2), 1–18. <https://doi.org/10.1029/2006JC003795>
- Ulses, C., Estournel, C., Puig, P., Durrieu de Madron, X. and Marsaleix, P. (2008). Dense shelf water cascading in the northwestern Mediterranean during the cold winter 2005: Quantification of the export through the Gulf of Lion and the Catalan margin. *Geophysical Research Letters*, 35(7), 2–7. <https://doi.org/10.1029/2008GL033257>
- Valle-Levinson, A. (2010). Definition and classification of estuaries. *Contemporary Issues in Estuarine Physics*, 1–11. <https://doi.org/10.1017/CBO9780511676567.002>
- Verri, G., Mahmoudi Kurdistani, S., Coppini, G. and Valentini, A. (2021). Recent advances of a box model to represent the estuarine dynamics: time-variable estuary length and eddy diffusivity. *Journal of Advances in Modeling Earth Systems*, 1–21. <https://doi.org/10.1029/2020ms002276>
- Verri, G., Pinaridi, N., Bryan, F., Tseng, Y. heng, Coppini, G. and Clementi, E. (2020). A box model to represent estuarine dynamics in mesoscale resolution ocean models. *Ocean Modelling*, 148(February). <https://doi.org/10.1016/j.ocemod.2020.101587>
- Viličić, D., Legović, T. and Žutić, V. (1989). Vertical distribution of phytoplankton in a stratified estuary. *Aquatic Sciences*, 51(1), 31–46. <https://doi.org/10.1007/BF00877779>
- Vives i Batlle, J., Aoyama, M., Bradshaw, C., Brown, J., Buesseler, K.O., Casacuberta, N., ... Nishikawa, J. (2018). Marine radioecology after the Fukushima Dai-ichi nuclear accident: Are we better positioned to understand the impact of radionuclides in marine ecosystems? *Science of the Total Environment*, 618(November 2017), 80–92.

<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.11.005>

- Vives i Batlle, J., Bryan, S. and McDonald, P. (2008). A process-based model for the partitioning of soluble, suspended particulate and bed sediment fractions of plutonium and caesium in the eastern Irish Sea. *Journal of Environmental Radioactivity*, 99(1), 62–80. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2007.06.012>
- Wang, D.P. (2006). Tidally generated internal waves in partially mixed estuaries. *Continental Shelf Research*, 26(12–13), 1469–1480. <https://doi.org/10.1016/j.csr.2006.02.015>
- Wang, W. and Zhang, Y. (2007). On fuzzy cluster validity indices. *Fuzzy Sets and Systems*, 158(19), 2095–2117. <https://doi.org/10.1016/j.fss.2007.03.004>
- Ward, N.D., Megonigal, J.P., Bond-Lamberty, B., Bailey, V.L., Butman, D., Canuel, E.A., ... Windham-Myers, L. (2020). Representing the function and sensitivity of coastal interfaces in Earth system models. *Nature Communications*, 11(1), 1–14. <https://doi.org/10.1038/s41467-020-16236-2>
- Watanabe, K., Kasai, A., Antonio, E.S., Suzuki, K., Ueno, M. and Yamashita, Y. (2014). Influence of salt-wedge intrusion on ecological processes at lower trophic levels in the Yura Estuary, Japan. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 139, 67–77. <https://doi.org/10.1016/j.ecss.2013.12.018>
- Wen, L.S., Santschi, P.H., Gill, G.A., Paternostro, C.L. and Lehman, R.D. (1997). Colloidal and particulate silver in river and estuarine waters of Texas. *Environmental Science and Technology*, 31(3), 723–731. <https://doi.org/10.1021/es9603057>
- Wolanski E., Andutta F., D.E. (2012). Estuarine Hydrology. In F.R.W. Bengtsson L., Herschy R.W. (Ed.), *Encyclopedia of Lakes and Reservoirs*. Springer. [https://doi.org/https://doi.org/10.1007/978-1-4020-4410-6\\_77](https://doi.org/https://doi.org/10.1007/978-1-4020-4410-6_77)
- Wu, W. and Sun, H. (2010). Sorption-desorption hysteresis of phenanthrene - Effect of nanopores, solute concentration, and salinity. *Chemosphere*, 81(7), 961–967. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2010.07.051>
- Xie, X. and Li, M. (2019). Generation of internal lee waves by lateral circulation in a coastal plain estuary. *Journal of Physical Oceanography*, 49(7), 1687–1697. <https://doi.org/10.1175/JPO-D-18-0142.1>
- Yang, M. and Sañudo-Wilhelmy, S.A. (1998). Cadmium and manganese distributions in the Hudson River estuary: Interannual and seasonal variability. *Earth and Planetary Science Letters*, 160(3–4), 403–418. [https://doi.org/10.1016/S0012-821X\(98\)00100-9](https://doi.org/10.1016/S0012-821X(98)00100-9)
- Zambrano-Bigiarini, M. (2020). *Package ‘hydroGOF.’*
- Zebracki, M., Cagnat, X., Gairoard, S., Cariou, N., Eyrolle-Boyer, F., Boulet, B. and Antonelli, C. (2017). U isotopes distribution in the Lower Rhone River and its implication on radionuclides disequilibrium within the decay series. *Journal of Environmental Radioactivity*. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.09.004>
- Zhou, N., Westrich, B., Jiang, S. and Wang, Y. (2011). A coupling simulation based on a hydrodynamics and water quality model of the Pearl River Delta, China. *Journal of Hydrology*, 396(3–4), 267–276. <https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2010.11.019>