Environnement Canada Environment Canada

Rétention de ^{137}Cs et de ^{90}Sr par les minéraux adsorbants situés au voisinage de déchets nucléaires vitrifiés

K.E. Lyon* and R.J. Patterson†

* 91 Clovelly Avenue, Toronto (Ontario) M6E 2E7

† Environnement Canada, Institut national de recherches en hydrologie, Laboratoires du chemin River, Ottawa (Ontario) K1A 1C8. Auparavant rattaché au département des sciences géologiques, Université Queen's, Kingston (Ontario) K7L 3N6.

RAPPORT N° 27 DE L'INRH

ÉTUDE N° 148, SÉRIE SCIENTIFIQUE DE LA DGEI

INSTITUT NATIONAL DE RECHERCHES EN HYDROLOGIE
DIRECTION GÉNÉRALE DES EAUX INTÉRIEURES
OTTAWA, CANADA, 1986

©Ministre des Approvisionnements et Services Canada 1986

N° de cat. En 36-502/148F

ISBN 0-662-93746-5

Table des matières

Page

RÉSUMÉ v

ABSTRACT vii

INTRODUCTION 1

TRAVAUX ANTÉRIEURS 3
- Hydrogéologie 3
- Étude des radionucléides 3

MÉTHODES 4
- Échantillons d'eau souterraine 4
- Échantillons de sédiments et leurs caractéristiques 5
- Préparation des échantillons pour le comptage 5
- Comptage des échantillons et réglage des instruments 6
- Données statistiques (comptage) et calcul de la radioactivité 6

RÉSULTATS 7
- Niveaux piézométriques et chimie 7
- Stratigraphie et sédimentologie 8
- Activité des échantillons de sédiments entiers 8
- Adsorption de ^{137}Cs et de ^{90}Sr par les fractions minérales 9
  - Quartz 9
  - Hornblende 12
  - Feldspath 12
  - Micas 14
- Activité des fractions de sédiments tamisés 15

DISCUSSION 16
- Répartition du ^{137}Cs retenu 16
- Répartition du ^{90}Sr retenu 16
- Caractéristiques des grains minéraux 16
- Rétention du ^{90}Sr 17

CONCLUSIONS 19

REMERCIEMENTS 19

RÉFÉRENCES 19

Tableaux

Page

1. Analyse chimique des eaux souterraines réalisée au moyen de la série de piézomètres RAb. 8

2. Taux de comptage et contamination radioactive des grains minéraux séparés des échantillons RA5:353, RA5:373 et 010:9 10

3. Contamination radioactive du sédiment entier et des fractions tamisées de l'échantillon RA5:353 15

4. Valeur mesurée de K_d^{Sr} pour diverses fractions minérales de l'échantillon RA1:330 . . . 17

5. Comparaison des quantités mesurées et des quantités calculées de ^{90}Sr adsorbé par les fractions minérales 18

Illustrations

Figure 1. Emplacement des laboratoires nucléaires de Chalk River et site du présent travail dans le bassin du lac Perch 2

Figure 2. Emplacement des blocs de verre, des piézomètres et des carottes sur le site 3

Figure 3. Distribution verticale des blocs de verre 3

Figure 4. Vue en plan de la migration de ^{137}Cs et de ^{90}Sr en contrebas des blocs de verre en 1963 4

Figure 5. Stratigraphie des sédiments et distribution de la radioactivité dans la carotte RA5 9

Résumé

En juin 1960, 25 hémisphères de déchets nucléaires vitrifiés de 14 cm de diamètre (blocs de verre) ont été enfouis dans un aquifère sablonneux et peu profond de la partie inférieure du bassin du lac Perch, aux Laboratoires nucléaires de Chalk River, en Ontario. La lixiviation des blocs s'est presque toute produite durant les 18 premiers mois, ce qui fait que l'expérience équivalait à une injection ponctuelle de ^{137}Cs et de ^{90}Sr. Après environ 11 ans, la majeure partie du ^{90}Sr libéré s'était déplacée horizontalement et dispersée, tandis que presque tout le ^{137}Cs ne s'était déplacé que de 0.3 m des blocs.

En 1978, on a installé trois piézomètres et extrait cinq carottes des sédiments du lieu d'enfouissement. Des grains de sable purs du point de vue minéralogique et séparés par ségrégation ont été préparés à la main puis caractérisés à l'aide de microscopes binoculaires, polarisants et électroniques à balayage, par diffraction des rayons X et par spectroscopie à rayons X dispersive. On a également mis au point une technique pour mesurer de très petites quantités de ^{137}Cs et de ^{90}Sr en comptant de petits échantillons de sédiments (de 10 à 100 mg) au moyen d'un compteur proportionnel à fenêtre mince.

Les résultats montrent que des particules de biotite altérée (biotite-vermiculite), de biotite, de muscovite, de hornblende et de feldspath séricitisé, de la grosseur des grains de sable, sont capables de retenir le ^{137}Cs pendant une période de 18 ans et que des particules de biotite-vermiculite, de biotite et de feldspath contenant de l'hématite (microline en grande partie) peuvent retenir de faibles quantités de ^{90}Sr sur une même période. Les quantités de ^{137}Cs et de ^{90}Sr adsorbées par les particules minérales variaient de l'indécelable à environ 380 et 35 becquerels par gramme de sédiment, respectivement. Toute la série des minéraux séparés par ségrégation peut être classée pondéralement selon les quantités retenues de ^{137}Cs et de ^{90}Sr. Pour le ^{137}Cs :

biotite-vermiculite >
biotite ≫
feldspath opaque ou altéré >
muscovite >
hornblende ≧
feldspath translucide ≧
quartz.

et pour le ^{90}Sr :

biotite-vermiculite ≧
biotite et feldspath contenant de l'hématite >
tous les autres minéraux (quartz, feldspath blanc, hornblende et muscovite).

Les données sur la qualité des eaux souterraines montrent que la rétention n'est aucunement le résultat de la précipitation de minéraux du strontium ou du césium. Les résultats concernant les ségrégations semblent toutefois montrer que les oxydes de fer jouent un rôle important dans la rétention du ^{90}Sr, tandis que le ^{137}Cs paraît surtout retenu comme cation entre les couches de silicates. Les résultats d'autres recherches et les calculs dans lesquels on tient compte des concentrations de ^{90}Sr dans l'eau souterraine et des valeurs expérimentales de K_d^{Sr} dans les minéraux montrent que l'adsorption de ^{90}Sr varie localement dans les sédiments, du rapidement réversible au très lentement réversible.

Abstract

In June 1960, twenty-five 14-cm diameter hemispheres of vitrified nuclear waste (glass blocks) were buried in a shallow sand aquifer in the lower Perch Lake Basin, Chalk River Nuclear Laboratories, Ontario, Canada. Almost all leaching of the glass blocks occurred during the first 18 months of emplacement, and consequently the burial experiment approximated a single-injection source of ^{137}Cs and ^{90}Sr. After about 11 years, most of the ^{90}Sr that was released had been advected and dispersed from the site, whereas the bulk of the ^{137}Cs had travelled no more than 0.3 m from the blocks.

Three piezometers were installed and five cores of sediment were collected at the glass block site in 1978. Mineralogically pure segregates of sand grains were prepared by hand and characterized using binocular, petrographic and scanning electron microscopy, X-ray diffraction, and energy-dispersive X-ray spectroscopy. A technique also was developed to measure very low levels of ^{137}Cs and ^{90}Sr by counting small (10–100 mg) sediment samples directly with a thin window, flow proportional counter.

Results show that sand-sized grains of altered biotite (biotite-vermiculite), biotite, muscovite, hornblende and sericitized feldspar are able to retain ^{137}Cs over a period of 18 years, and that grains of biotite-vermiculite, biotite and hermatite-bearing feldspar (largely microcline) can retain low levels of ^{90}Sr over the same period of time. The amounts of ^{137}Cs and ^{90}Sr sorbed by the mineral grains ranged from undetectable levels to approximately 380 and 35 becquerels/gram sediment, respectively. The complete series of mineral segregates can be ranked on a weight basis according to the amounts of retained ^{137}Cs and ^{90}Sr. For ^{137}Cs the ranking is:

biotite-vermiculite >
biotite ≫
opaque or altered feldspar >
muscovite >
hornblende ≧
translucent feldspar ≧
quartz.

and for ^{90}Sr:

biotite-vermiculite ≧
biotite and hematite-bearing feldspar >
all other mineral segregates (quartz, white feldspar, hornblende and muscovite).

Ground-water quality data indicate that none of the retention is the result of the precipitation of strontium or cesium minerals. Results for the mineral segregates, however, suggest that iron oxides play a significant role in the retention of ^{90}Sr, whereas ^{137}Cs appears to be retained principally as an interlayer cation in layer silicates. Results of other studies and calculations incorporating ground-water ^{90}Sr concentration data and experimental K_d^{Sr} values for the minerals indicate that a spectrum of adsorption sites, ranging from readily reversible to very slowly reversible, exists on the sediment for ^{90}Sr.

Rétention de ^{137}Cs et de ^{90}Sr par les minéraux adsorbants situés au voisinage de déchets nucléaires vitrifiés

K.E. Lyon et R.J. Patterson

INTRODUCTION

Une gestion sûre des déchets nucléaires nécessite une parfaite compréhension du comportement des radionucléides tels que ^{90}Sr et ^{137}Cs dans les réseaux d'écoulement des eaux souterraines. La plupart des modèles chimiques servant à simuler le transport des radionucléides dans ces réseaux comportent un coefficient de distribution (K_d) permettant d'évaluer le ralentissement des solutés par les matériaux aquifères (Wang et Anderson, 1982). Le recours à un tel coefficient suppose que l'équilibre local est promptement atteint. Les phénomènes observés sur le terrain ou en laboratoire indiquent cependant que les réactions de sorption ne sont pas toutes aisément réversibles et qu'une rétention des cations tels que ^{90}Sr et ^{137}Cs peut en particulier se produire.

Dans la présente étude, nous avons employé le terme «rétention» pour décrire une désorption relativement lente (portant sur des périodes excédant plusieurs jours) conduisant par conséquent à une sorption hors équilibre. La rétention des cations par les grains minéraux peut résulter d'un processus chimique tel que l'adsorption spécifique ou la sorption entre les feuillets des phyllosilicates, ou d'un processus physique tel que la diffusion dans les fractures intergranulaires.

Les sédiments peuvent retenir chimiquement Cs et Sr, bien que les mécanismes de rétention de ces deux éléments diffèrent. La rétention de Cs résulte de la «fixation» de très faibles quantités de la forme cationique de cet élément entre les feuillets des phyllosilicates 2:1 tels que l'illite et les micas ayant un espacement interplanaire d'environ 10 angströms. Bien que la vermiculite possède un espacement interplanaire de 14.4 angströms (Deer et coll., 1966), ce minéral est aussi un «fixateur de Cs» du fait que sa structure en feuillets s'effondre lorsqu'il y a saturation en K ou en Cs. La plupart des recherches antérieures sur la sorption de ^{137}Cs par les phyllosilicates cités ou par d'autres, récapitulées par Tamura (1964), ont été menées en laboratoire à l'aide de minéraux de référence. L'analyse des fractions minérales séparées provenant des sédiments contaminés a confirmé par la suite la grande sélectivité de la vermiculite et des phyllosilicates «10 angströms» à l'égard de ^{137}Cs (Francis et Brinkley, 1976).

La rétention du Sr par les sédiments résulte apparemment de son adsorption spécifique par des oxydes de Fe, de Mn et de Al (le terme «oxyde» est ici employé dans son sens général et inclut les oxydes hydratés et anhydres, les hydroxydes et les composés oxyhydroxydés). Tamura et Struxness (1963) et Tamura (1965) ont rapporté que l'alumine et les oxydes hydratés de Fe et de Al manifestaient une forte affinité pour Sr relativement à Na en matière d'adsorption. Par la suite, Murray (1975) et Kinniburgh et coll. (1975) ont montré que le bioxyde hydraté de Mn, les oxydes hydratés de Fe et de Al et l'hydroxyde amorphe de Al adsorbent spécifiquement des quantités très faibles de Ca et de Sr pour des valeurs du pH inférieures et supérieures aux points de charge nulle par le biais de réactions d'échange proton-métal.

Une expérience prolongée, menée aux Laboratoires nucléaires de Chalk River (L.N.C.R.) (figure 1), a fourni l'occasion d'étudier la rétention du ^{90}Sr et du ^{137}Cs. En juin 1960, 25 hémisphères de déchets nucléaires vitrifiés, d'un diamètre de 14 cm, ont été enfouis au-dessous du niveau de la nappe phréatique dans la partie inférieure du bassin du lac Perch (figure 1). Des membres du personnel d'Énergie atomique du Canada Limitée ont par la suite contrôlé l'eau souterraine et les sédiments aquifères et constaté que la plupart des radionucléides lessivés en provenance des hémisphères étaient libérés dans les 18 mois suivant l'enfouissement (Merritt, 1976). Vu la rapidité de la lixiviation, il fut possible d'assimiler ce processus de libération à une expérience de traçage par injection ponctuelle.

La présente étude, exécutée 18 ans après l'enfouissement des blocs, a essentiellement visé à identifier les principaux minéraux susceptibles de fixer ^{137}Cs et ^{90}Sr dans les sédiments voisins des blocs de verre. À cet effet, il a fallu mettre au point une méthode radioanalytique permettant la détermination simultanée de faibles quantités (inférieures à 380 Bq/g de sédiment) de ^{137}Cs et de ^{90}Sr dans de petits échantillons (10 à 20 mg) minéralogiquement purs susceptibles d'être séparés des sédiments entiers.

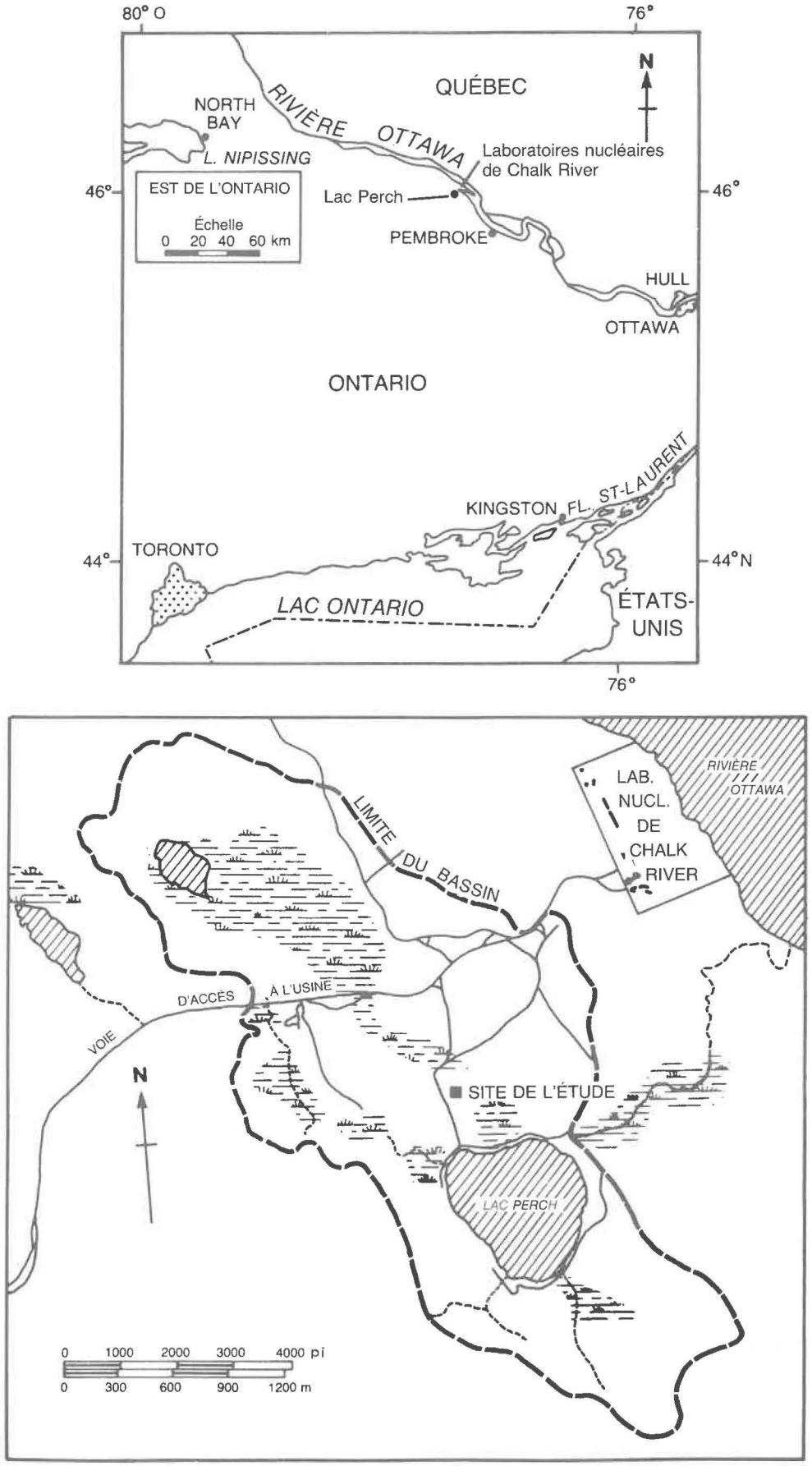

Figure 1. Emplacement des Laboratoires nucléaires de Chalk River et site du présent travail dans le bassin du lac Perch.

TRAVAUX ANTÉRIEURS

Hydrogéologie

Les sédiments superficiels de la partie inférieure du bassin du lac Perch se composent principalement de sables fins bien classés qui se sont déposés pendant une période de crue de la rivière Ottawa, à peu près entre 10 300 et 9800 av. J.-C. (Catto et coll., 1982). La minéralogie des sables montre qu'ils proviennent du socle de la province précambrienne de Grenville qui, dans cette région, se compose principalement de gneiss granitique et de granite. Les principaux minéraux présents dans les sédiments sont le quartz et le plagioclase séricitisé (albite à andésine); on y trouve aussi, en moindres proportions, du feldspath potassique séricitisé, de la biotite, de la biotite-vermiculite interstratifiée et de la hornblende (Jackson et Inch, 1980). La capacité d'échange cationique des sédiments se situe entre 0.3 et 1.75 meq/100 g; c'est le calcium qui représente le principal cation échangeable (Jackson et Inch, 1980; Patterson et Spoel, 1981).

Selon les saisons, l'eau souterraine se situe généralement à une profondeur variant de 1 à 1.5 m. Grâce à plusieurs méthodes, on a estimé que les conductivités hydrauliques horizontales des sables variaient de 1×10^{-3} à 5×10^{-3} cm/s (Cherry et coll., 1975). Les eaux souterraines peu profondes circulent à une vitesse horizontale moyenne d'environ 15 à 20 cm/jour en direction sud-est (Merritt et Parsons, 1964; Pickens et coll., 1980).

Étude des radionucléides

Les 25 blocs de verre radioactifs furent enterrés dans le site de l'étude en 1960 dans le but d'étudier les taux de lixiviation des déchets de retraitement du combustible à uranium irradié qui avaient été enrobés dans de la syénite néphélinique vitrifiée (Merritt et Parsons, 1964). Les blocs, qui contenaient chacun environ 850 GBq de ^{137}Cs, 740 GBq de ^{90}Sr, 70 GBq de ^{144}Ce et 7 GBq de ^{106}Ru, furent disposés selon une grille verticale en deux dimensions orientée à peu près perpendiculairement à la direction d'écoulement de l'eau souterraine et située à des profondeurs variant de 3.0 à 3.7 m au-dessous de la surface du sol (figures 2 et 3). Le personnel d'Énergie atomique du Canada Limitée étudia le lessivage du verre radioactif et la libération de ^{137}Cs et de ^{90}Sr dans le réseau d'écoulement des eaux souterraines en contrôlant régulièrement ces eaux

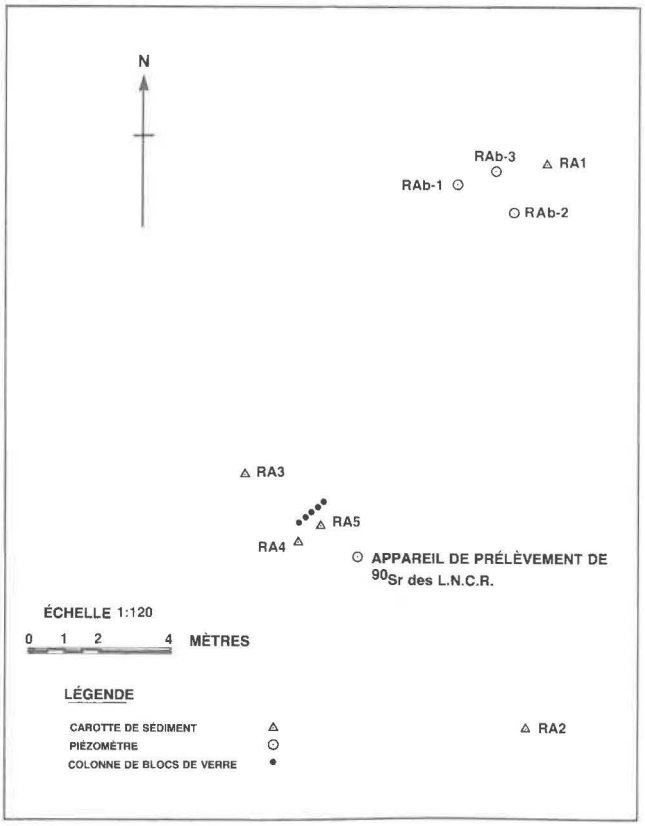

Figure 2. Emplacement des blocs de verre, des piézomètres et des carottes sur le site.

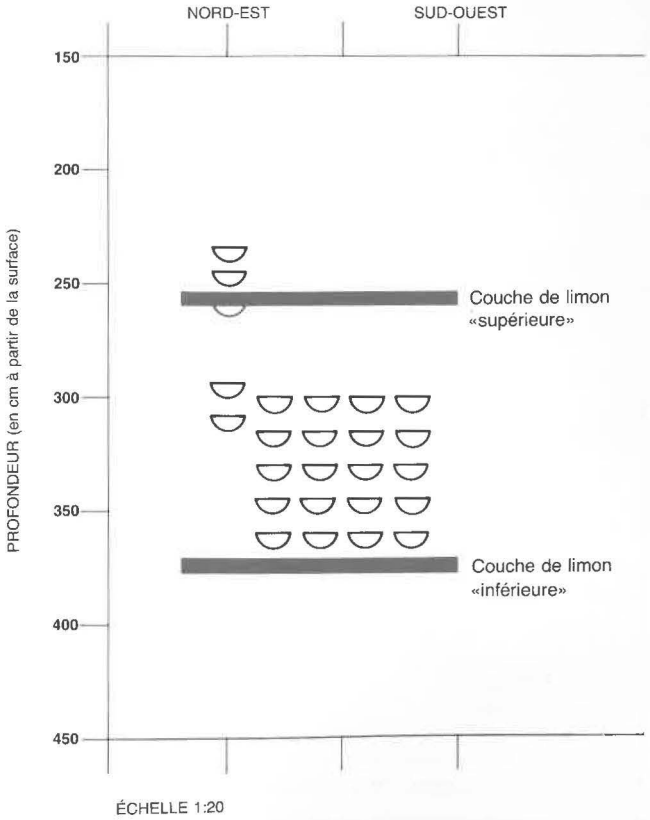

Figure 3. Distribution verticale des blocs de verre (d'après Merritt et Parsons, 1964).

ainsi que les sédiments aquifères, en procédant à l'examen direct d'un hémisphère extrait du site en 1978, en menant en laboratoire des essais de lixiviation de blocs de verre et des expériences sur colonnes de sol, enfin en établissant des modèles mathématiques à partir des résultats obtenus sur le terrain.

La concentration annuelle moyenne de ^{90}Sr dans l'eau souterraine à 1.8 m en contrebas des blocs est passée de 4.8×10^3 Bq/L (1.3×10^{-1} μCi/L) en 1960 à 4.4 Bq/L (1.2×10^{-4} μCi/L) en 1973 et 1974 (Merritt, 1976). En se fondant sur cette observation, Merritt a estimé que 94 % (52 MBq) du ^{90}Sr lessivé à partir du verre avait été libéré dans les 18 mois faisant suite à l'enfouissement. En 1963, comme le montre la figure 4, on constatait la présence d'un panache de contamination de ^{90}Sr à une distance de 11.9 m en contrebas des blocs (Merritt et Parsons, 1964). Toutefois, en 1971, on n'observait plus que de très faibles

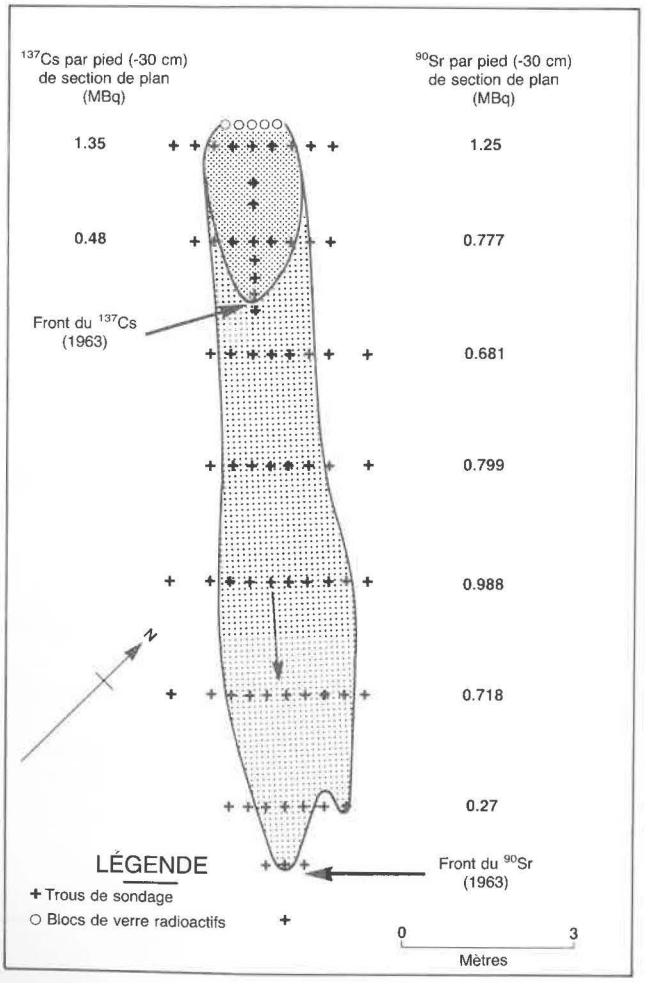

Figure 4. Vue en plan de la migration de ^{137}Cs et de ^{90}Sr en contrebas des blocs de verre en 1963 (d'après Merritt et Parsons, 1964).

quantités de cet élément en raison de son transport et de sa dispersion par l'eau souterraine (W.F. Merritt, données inédites).

Walton et Merritt (1979) ont comparé les résultats de l'analyse du sol de 1963 (figure 4) avec les résultats prédits par un modèle unidimensionnel de transport par l'eau souterraine combinant convection et dispersion en adoptant un K_d^{Sr} compris entre 4.6 et 7 mL/g. Les résultats prédits concordaient à un ordre de grandeur près avec les teneurs du sol en ^{90}Sr mesurées, bien qu'on ait relevé cependant certains écarts. Plus tard, Melnyk et coll. (1984) obtinrent une meilleure concordance des prévisions et des données recueillies sur le terrain en supposant qu'intervenaient deux mécanismes de sorption : une réaction d'échange d'ions en équilibre et une réaction de sorption d'oxyhydroxydes hors équilibre. La demi-vie de la réaction de sorption d'oxyhydroxydes fut estimée à 2.0 ± 0.2 ans.

Comparé au ^{90}Sr, le transport du ^{137}Cs libéré sur le site présente des caractéristiques très différentes (figure 4). En raison de sa forte sorption par les sédiments, le ^{137}Cs n'a jamais été détecté dans les échantillons d'eau souterraine (W.F. Merritt, données non publiées). En se basant sur les résultats d'une analyse des sédiments effectuée en 1979, Walton et Merritt (1979) conclurent que plus de 90 % de la quantité totale de ^{137}Cs lessivée à partir du verre n'avait pas parcouru plus de 0.3 m (de semblables résultats avaient été obtenus lors de l'analyse du sol de 1963). On a toutefois détecté un faible panache de ^{137}Cs jusqu'à 7.5 m en contrebas des blocs. Les expériences sur colonnes de sol ont par la suite démontré que ce transport touche le matériel particulaire à grain fin (généralement d'un diamètre compris entre 0.2 et 1.0 μm) et que le phénomène de formation et de libération de ces particules est dû à un effet microbiologique (Champ et Merritt, 1981).

MÉTHODES

Échantillons d'eau souterraine

On fabriqua trois piézomètres au moyen de tuyaux de plastique ABS de 3.8 cm (D.I.) et on les mit en place à 11 m au nord-est de la grille verticale formée par les blocs de verre (figure 2). À cet endroit, le niveau de la nappe phréatique se trouvait à 1.3 m sous la surface du sol. Les intervalles sélectionnés des piézomètres furent placés à des profondeurs variant de 1.8 à 5.7 m.

On releva les niveaux d'eau en août et en septembre 1978 ainsi qu'en février 1979. On préleva de l'eau des piézomètres en août 1978 à l'aide d'une pompe péristaltique portative. On mesura également par électrode l'E_H et le pH à l'aide d'une cuve à circulation d'eau en canalisation

étanche à l'air après avoir enlevé plusieurs volumes d'eau des piézomètres. On mesura aussi la conductivité et la température des eaux souterraines ainsi que la quantité d'oxygène dissous dans ces eaux lors du prélèvement.

On préleva sur le terrain des échantillons destinés à la mesure du carbone inorganique total au moyen de seringues jetables, puis on les analysa à l'aide du dispositif de mesure du carbone total d'Oceanography International. On évalua la teneur en chlore à l'aide d'une électrode à ions sélective et le degré d'alcalinité par titration acide. Le sulfate fut mesuré par turbidimétrie en le précipitant sous forme de $BaSO_4$.

Pour le reste des analyses, on filtra en laboratoire les échantillons d'eau souterraine à travers des membranes de 0.45 μm sous une pression de N_2 (gaz). Les échantillons devant servir à la détection des cations majeurs furent acidifiés à l'aide de HCl concentré avant analyse par spectrophotométrie d'absorption atomique. On mesura les concentrations de quantités infinitésimales de cations (Sr, Ba, Rb, Cs) dans des échantillons non acidifiés par activation thermique des neutrons et par spectroscopie aux rayons gamma (Merritt, 1971).

Échantillons de sédiments et leurs caractéristiques

On préleva cinq carottes de sédiments couvrant la profondeur comprise entre 1.3 et 4.2 m, là où se trouvait le deuxième groupe de blocs de verre, selon la méthode décrite par Patterson et coll. (1978). Les carottes, placées dans des tubes de 5.08 cm de diamètre à fine paroi d'aluminium, reçurent une numérotation continue à la suite du préfixe «RA» (désignation du groupe de piézomètres des L.N.C.R. le plus proche).

La carotte RA1 fut découpée en sections de 30 cm et plus tard utilisée par Patterson et Spoel (1981) pour établir les valeurs de K_d^{Sr}. Après évacuation de l'eau par gravité, les autres carottes furent sectionnées dans le sens de la longueur à l'aide d'une lame de scie à dents carburées. Puis on recueillit des échantillons de sédiments à des intervalles choisis avant de les lyophiliser et de les préparer en vue du comptage.

On désigna chaque échantillon de sédiment en fonction de sa carotte d'origine et de la profondeur supérieure de l'intervalle retenu. Par exemple, l'échantillon RA5:353 provenait de l'intervalle de profondeur commençant à 353 cm au-dessous du sol dans la carotte RA5. On utilisa également un échantillon de sédiment provenant de l'analyse effectuée par les L.N.C.R. en 1971. Cet échantillon portait le n° 010:9 et provenait d'une profondeur comprise entre 272 et 276 cm, à 0.3 m en contrebas des blocs.

Les échantillons lyophylisés retenus pour l'analyse granulométrique furent passés au crible à secousse RO-Tap pendant 10 min. Puis, après avoir pesé les fractions tamisées, on nota les résultats sur du papier logarithmique afin d'obtenir des courbes cumulatives; on estima graphiquement les mesures des moments selon les méthodes mises au point par Folk et Ward (1957). Les lamines de limon et d'argile furent tamisées et l'on conserva la classe granulométrique inférieure à 0.0625 mm en vue de la préparation des échantillons pour le comptage.

On étudia la minéralogie des grains à l'aide d'un microscope binoculaire réfléchissant en s'intéressant à leurs caractéristiques physiques : clivage, fracture, couleur, éclat, etc. Dans la classe granulométrique comprise entre 0.42 et 0.50 mm, on préleva des échantillons de quartz, de feldspath, de biotite, de biotite-vermiculite, de muscovite et de hornblende au moyen de fines pinces de bijoutier ou d'une aiguille.

L'observation de lames minces et l'analyse par MEB-SDE (microscopie électronique à balayage-spectrométrie X à dispersion d'énergie) et par diffractométrie X permirent de déterminer d'autres caractéristiques des grains. Le MEB utilisé aux L.N.C.R. était un Cambridge Stereoscan couplé à un spectromètre Tracor Northern. Les échantillons soumis à la microscopie électronique n'avaient pas subi de traitement préalable, si ce n'est une lyophilisation et un enrobage au carbone. On eut recours à une échelle d'intensité énergétique logarithmique semi-quantitative pour distinguer les éléments plus lourds que le néon dans les quantités majeures, mineures et de l'ordre d'une trace. L'analyse par diffraction des rayons X fut effectuée à l'université Queen's à l'aide d'un diffractomètre Picker.

Préparation des échantillons pour le comptage

On prépara trois types de sédiments pour le comptage : des sédiments entiers, des fractions granulométriques et des fractions minérales séparées. Dans des flacons à échantillons bien secoués au préalable, on préleva directement à l'aide de spatules des échantillons de sédiments entiers correspondant aux intervalles stratigraphiques ainsi que des échantillons de limon et d'argile tamisés. Les matériaux ainsi prélevés furent répartis aussi uniformément que possible selon une épaisseur inférieure à 1 mm sur des disques de comptage en acier inoxydable de 3 cm de diamètre, pesés un par un au préalable. Les fractions granulométriques tamisées furent prélevées sur des fractions séparées mécaniquement à l'aide d'un dispositif de séparation des sédiments Soiltest. On répartit uniformément au centre des disques les grains des fractions minérales séparées. Après une seconde pesée, on fixa les échantillons sur les disques à l'aide de collodion flexible.

On calcula l'écart-type gaussien des pesées des échantillons et on l'utilisa par la suite pour déterminer les taux de comptage pondérés. Les sédiments sableux pesaient généralement de 40 à 100 mg, et les limons et les argiles pesaient de 20 à 35 mg. Quant aux fractions minérales séparées, leur poids variait généralement de 11 à 14 mg.

Comptage des échantillons et réglage des instruments

Les échantillons de sédiments furent comptés à l'aide d'un compteur Sharp proportionnel à faible courant bêta utilisant du gaz P-10 (90 % Ar et 10 % CH_4). Le compteur comprend deux détecteurs à fenêtres de 100 $\mu g/cm^2$; deux dispositifs de protection reliés entre eux constituent un écran anti-coïncidence. Aux L.N.C.R., le ^{41}Ar atmosphérique provenant du ^{40}Ar exposé au flux neutronique des réacteurs nucléaires de recherche constitue une source extérieure de rayonnement à faible intensité. Le comptage des échantillons de sédiments n'eut lieu que lorsqu'on jugeait les niveaux de ^{41}Ar atmosphérique non significatifs ou faibles d'après les indications d'un détecteur à scintillation NaI. En présence des faibles niveaux de ^{41}Ar, le détecteur débitait en permanence un courant de N_2 gazeux de façon à amoindrir l'effet exercé par ^{41}Ar sur les taux de comptage.

Le comptage durait d'ordinaire 2 à 4 h, jusqu'à ce qu'on ait recueilli au minimum 120 mesures. Ce laps de temps représente un compromis entre la nécessité d'obtenir des statistiques de comptage adéquates et uniformes, et donc de traiter autant d'échantillons que possible, et le désir de limiter l'incommodité propre au contrôle manuel des périodes de comptage.

Les résultats sont exprimés sous forme des taux de comptage suivants (comptages par minute, ou cpm) : brut, du mouvement propre du détecteur, corrigé et net. Pour déterminer le taux de comptage corrigé, il a suffi de soustraire le taux de comptage du mouvement propre du détecteur (déterminé à l'aide des disques de comptage à vide) du taux de comptage brut. On a alors rapporté l'ensemble des taux de comptage corrigés à un poids type de 100 mg en supposant que la qualité du comptage par détecteur des radionucléides terrestres naturels présents dans la matrice sédimentaire ne dependait pas du poids de l'échantillon. Il semble que cette hypothèse soit fondée dans le cas des faibles niveaux considérés (W.F. Merritt, communication personnelle). On calcula ensuite le taux de comptage net (cpm/100 mg) attribuable à la présence de ^{137}Cs et de ^{90}Sr en soustrayant le taux de comptage corrigé d'un échantillon de sédiment non contaminé, ou sédiment témoin. Les radionucléides terrestres naturels présents dans les sédiments, représentés par les taux de comptage corrigés des échantillons témoins, comprenaient ^{40}K, ^{87}Rb et les membres des familles radioactives ^{238}U et ^{232}Th.

Le comptage des échantillons retenus en présence ou en l'absence d'un absorbeur en aluminium recouvrant le disque à échantillon a permis de distinguer les contributions de ^{137}Cs et de ^{90}Sr aux taux de comptage nets. L'absorbeur, ou filtre, avait une épaisseur correspondant à 225 mg/cm^2, ce qui lui permettait d'arrêter toutes les particules bêta dont l'énergie était inférieure à 0.63 MeV (Friedlander et coll., 1964), et notamment les particules ^{90}Sr, ^{87}Rb et ^{137}Cs de 0.51 MeV. Les particules bêta provenant de la désintégration des produits de filtrage de ^{90}Sr, de ^{90}Y et, dans une moindre mesure, de ^{137}Cs (énergie maximale de 1.18 MeV), ainsi que de la désintégration de ^{40}K, de ^{41}Ar et des familles de radionucléides ^{238}U et ^{232}Th ont pu exercer une certaine influence sur le taux de comptage des échantillons filtrés, tout comme les particules gamma résultant de la désintégration de ^{137m}Ba, de ^{40}K, de ^{41}Ar et des familles radioactives de radionucléides ^{238}Y et ^{232}Th.

Des échantillons de sable fin non contaminé, ensemencés au moyen de radionucléides ^{137}Cs et ^{90}Sr ayant une activité connue (respectivement 53.7 ± 0.5 et 63.7 ± 0.6 Bq/g), ont servi à établir des normes d'étalonnage de ces deux éléments. On supposa que la qualité du comptage obtenu à l'aide des détecteurs de radiation dépendait du poids de l'échantillon et on prépara plusieurs fractions d'échantillons ensemencés et d'échantillons témoins dont le poids variait de 10 à 100 mg. Les taux de comptage nets des échantillons ensemencés, avec et sans filtration, ont alors permis d'obtenir des courbes d'étalonnage distinctes pour ^{137}Cs et ^{90}Sr. En l'absence de filtre, l'efficacité du comptage des deux radionucléides variait approximativement de 20 % à 30 %, selon le poids de l'échantillon, alors qu'en présence d'un filtre, elle tombait à 6 % pour ^{137}Cs et variait entre 0.2 % et 0.3 % pour ^{90}Sr.

Données statistiques (comptage) et calcul de la radioactivité

Les taux de comptage et de désintégration sont complétés par les écarts-types découlant des données statistiques sur le comptage et du caractère incertain du poids des échantillons. On établit l'écart-type du taux de comptage brut en calculant la racine carrée du nombre total de comptages divisée par le temps de comptage, en adoptant l'hypothèse d'une distribution de Poisson. Par contre, on évalua les écarts-types des taux de comptage du mouvement propre du détecteur à l'aide de l'écart-type gaussien moyen du fait de la présence occasionnelle de traces de ^{41}Ar atmosphérique.

Dans la plupart des cas, on enregistra de faibles taux de comptage et il fallut établir des niveaux critiques pour la détection (L_c) des taux nets et corrigés. Les valeurs approximatives des niveaux critiques de détection dérivaient des variances types des taux de comptage, décrites

par Lyon en 1981. On fixa à 0.10 la probabilité maximale acceptable de commettre une erreur de première catégorie (substance absente considérée comme présente).

L'impossibilité de normaliser les temps de comptage ne permit pas de calculer les limites de détection des taux de comptage de la manière rigoureuse définie par les radiochimistes (voir par exemple Currie, 1968). On mit donc au point une méthode fondée sur le calcul de la probabilité qu'un taux de comptage corrigé ou net (x), avec un écart-type (S_x), excédât le niveau critique de détection. Le calcul résultait de l'expression suivante :

$$Z = \frac{L_c - x}{S_x}$$

où Z est l'écart-type normal. La probabilité de détection correspondait alors à la distribution de la fréquence normale cumulative supérieure à Z, tirée de Snedecor et Cochran (1967).

Lorsqu'un échantillon de sédiment présente des taux de comptage nets filtrés et non filtrés statistiquement significatifs, il est possible de calculer l'activité de ^{137}Cs et de ^{90}Sr présents dans l'échantillon en solutionnant deux équations déduites de plusieurs relations communes. Les équations ont été décrites par Lyon (1981) et comprennent des termes liés à la qualité du comptage, au taux de comptage net filtré et non filtré des échantillons et au rapport entre taux net filtré et taux net non filtré des échantillons étalons. La concentration des deux radionucléides s'exprime en désintégrations par minute par 100 mg de sédiment sec (dpm/100 mg).

Le niveau approximatif de détection des deux radionucléides était de 10 dpm/100 mg (2 Bq/g), ce qui correspond à 5.2×10^{-13} g de ^{137}Cs par gramme de sédiment sec et 3.2×10^{-13}g de ^{90}Sr par gramme de sédiment sec.

L'unique obstacle majeur à l'évaluation des quantités de ^{137}Cs et de ^{90}Sr dans les sédiments au moyen d'un compteur proportionnel à faible débit bêta consiste dans les très faibles taux de comptage obtenus lorsque l'absorbeur en aluminium est en place. Cela restreint la précision des taux obtenus ainsi que celle de la courbe d'étalonnage de ^{90}Sr avec filtration. Dans la plupart des cas, la probabilité que le taux de comptage filtré net ou corrigé dépassât le niveau critique de détection s'établissait à moins de 90 %. Par conséquent, en attribuant une valeur nulle à ces taux, on aurait risqué d'affecter les taux de comptage non filtrés d'un biais injustifié. Dans la présente étude, on décida que n'importe quel taux de comptage corrigé excédant son niveau critique de détection (probabilité de détection supérieure à 50 %) servirait au calcul du taux de comptage net. On considéra les taux de comptage n'obéissant pas à ce critère comme non détectés, en leur attribuant une valeur nulle. De la même manière, on ne tint pas compte des taux de comptage nets filtrés possédant une probabilité de détection supérieure à 0.5 lors du calcul ultérieur de l'activité de ^{137}Cs et de ^{90}Sr.

On supposa que les échantillons (à taux de comptage net filtré non détecté, mais à taux de comptage net non filtré détecté) contenaient uniquement du ^{137}Cs. Il est toutefois possible que ces échantillons aient contenu du ^{90}Sr; une méthode a d'ailleurs été mise au point pour exprimer cette possibilité (Lyon, 1981). La probabilité calculée d'une activité de ^{90}Sr supérieure à 0 dpm/100 mg était dans chaque cas inférieure à 0.5, comme l'indiquent les tableaux de données.

On analysa à l'aide d'un spectromètre gamma Ge (Li) deux échantillons entiers de sédiments (RA5:353 et RA5:373) d'un poids approximatif de 18 g, puis on les divisa mécaniquement avant de les analyser avec un compteur à faible émission bêta. Les niveaux de ^{137}Cs déterminés à l'aide de cet appareil sont supérieurs de 20 % à 55 % environ aux niveaux déterminés au moyen du spectromètre Ge (Li). Cette différence apparente peut résulter d'une erreur systématique des courbes d'étalonnage ou d'une distorsion minéralogique liée à la préparation des échantillons.

RÉSULTATS

Niveaux piézométriques et chimie

Sur le site, en août et en septembre 1978 et en février 1979, les gradients hydrauliques verticaux dans l'intervalle de profondeur de 1.8 à 5.7 m étaient variables, avec un maximum de 0.0106 entre les intervalles sélectionnés des trois piézomètres. Cela correspond à une vitesse verticale ascendante d'environ 6 cm/jour pour une porosité de 0.38 du sédiment (Lyon, 1981), soit seulement le tiers de la vitesse horizontale moyenne de l'eau souterraine sur le site.

Le tableau 1 contient les résultats analytiques des échantillons d'eau souterraine prélevés sur le terrain. La chimie de ces eaux est conforme à celle des eaux peu profondes dans l'ensemble du bassin du lac Perch.

L'eau prélevée à l'aide du piézomètre intermédiaire (RAb-2) avait une résistance ionique de 10^{-3} et les valeurs calculées des indices de solubilité indiquaient une sous-saturation en calcite, en strontianite et en célestite. Sur la base de cette sous-saturation et des analyses au MEB-SDE qui prouvent l'absence de dépôts minéraux sur les grains de sédiments, la précipitation des phases solides ne peut rendre compte de la rétention de ^{90}Sr ou des pertes de Cs.

Tableau 1. Analyse chimique des eaux souterraines réalisée au moyen de la série de piézomètres RAb

Paramètre*	Piézomètre			
	RAb-1	RAb-2		RAb-3
Intervalle d'échantillonnage (cm au-dessous de la surface)	180–220	330–370		530–570
Date d'échantillonnage	1978-08-01	1978-08-01	1978-08-24	1978-08-02
Température (°C)			8.6	8.0
Conductivité (μS/cm)	62	–	54	82
pH	5.4	–	5.5	6.4
E_H (V)	<0.3	0.44	0.55	0.27
H_2S (gaz)	Présent	Absent	Absent	Présent
Oxygène dissous†	0.2	1.2	–	0.1
Fe	0.3	0.1	<0.1	2.0
Mn	0.06	0.07	<0.05	0.06
Ca	6.5	5.5	7.5	12.5
Mg	1.6	1.8	2.2	3.6
Sr	3.5×10^{-2}	3.3×10^{-2}	3.7×10^{-2}	5.3×10^{-2}
Ba	1.6×10^{-2}	1.5×10^{-2}	1.8×10^{-2}	1.2×10^{-2}
Na	2.6	2.2	2.5	2.7
K	0.6	0.7	0.7	1.7
Rb	4.6×10^{-4}	1.8×10^{-3}	2.0×10^{-3}	1.4×10^{-3}
Cs	$<1 \times 10^{-6}$	5×10^{-6}	$<1 \times 10^{-6}$	$<1 \times 10^{-6}$
C.I.T.‡	11.0	11.3	11.5	12.6
Alcalinité (meq/L)	–	–	0.11	–
SO_4	–	–	18	–
Cl	7.8	5.6	–	21.6

* En milligrammes par litre en l'absence d'unité précisée, à l'exception du pH.
† La mesure peut inclure l'oxygène dissous ayant diffusé à travers le tube de prélèvement Tygon.
‡ Carbone inorganique total.

Le fer dissous dans l'eau prélevée à l'aide du piézomètre intermédiaire a une concentration inférieure ou égale à 0.1 mg/L, ce qui reflète probablement l'influence limitative d'une phase solide d'oxyde de fer. L'analyse au MEB-SDE des sédiments du site n'a pas permis d'identifier de sulfure de fer authigène.

Stratigraphie et sédimentologie

Le sol du site appartient au sous-groupe du podzol orthique humo-ferrique (classification canadienne des sols) et l'horizon Bf atteint une profondeur maximale de 1.5 m.

Selon la terminologie de Reineck et Singh (1973), la stratification sédimentaire dans l'intervalle carotté de 1.3 à 4.2 m sous la surface est grossièrement interstratifiée. Elle consiste en ensembles straticulés de sable fin bien classé d'une épaisseur de 50 cm ou plus séparés par de minces lamines (1 mm) de limon et d'argile. La figure 5 illustre la stratigraphie observée dans la carotte RA5.

Certaines sections de carottes présentent des laminations du sable, régulières et très distinctes. Ces laminations, d'une épaisseur d'ordinaire inférieure à 1 cm, comportent des couches riches en éléments mafiques (biotite et hornblende) à grain fin et des couches riches en minéraux clairs à grain plus gros, ce qui évoque un milieu côtier. D'autres sections de carottes présentent des laminations du sable moins distinctes et plus épaisses (jusqu'à 5 cm), souvent délimitées par les variations de la teneur en limon. Cette stratification entrecroisée évoque l'action d'un faible courant migrant ou les rides provoquées par les vagues.

Les carottes RA3, RA4 et RA5 renfermaient une couche massive à grain moyen riche en feldspath, de 2 à 11 cm d'épaisseur. Il s'agissait de la seule couche contenant des galets.

Activité des échantillons de sédiments entiers

On procéda au comptage des échantillons de sédiments entiers provenant des carottes RA2, RA4 et RA5 afin de déterminer la distribution stratigraphique de la contamination par ^{137}Cs et par ^{90}Sr au voisinage des blocs. Les échantillons correspondant à l'intervalle de profondeur compris entre 330 et 360 cm de la carotte RA3, prélevés

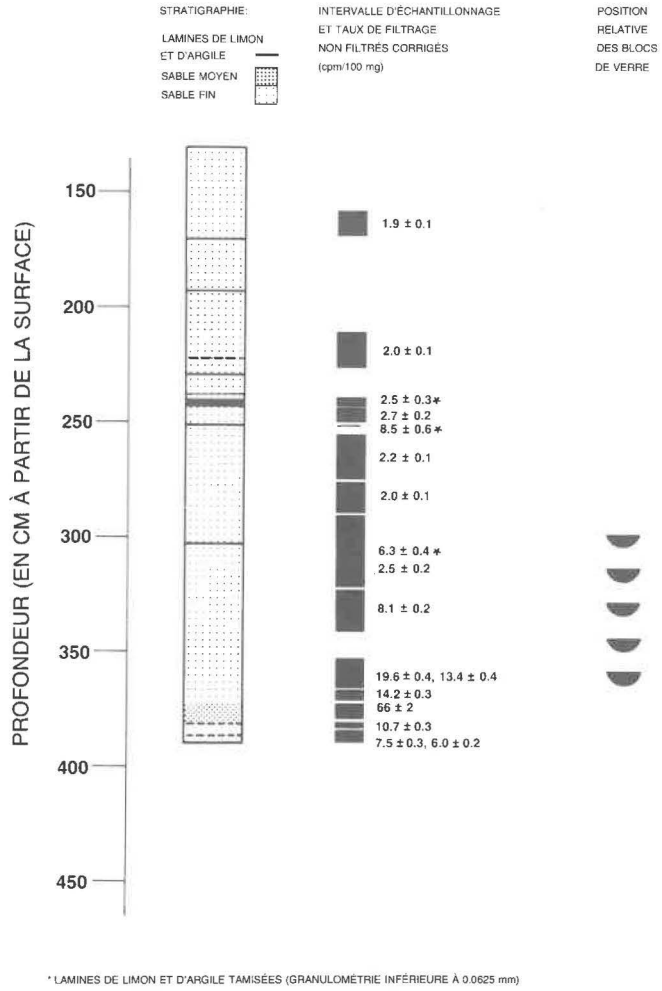

Figure 5. Stratigraphie des sédiments et distribution de la radioactivité dans la carotte RA5.

en contre-haut des blocs, ont servi à établir les taux de comptage du mouvement propre. Dans ce cas, le taux de comptage non filtré corrigé sur 2 h variait entre 1.3 ± 0.1 et 2.0 ± 0.2 cpm/100 mg. Ces taux n'étaient imputables qu'aux radionucléides terrestres naturels.

Les taux de comptage des sédiments provenant des autres carottes indiquent que, dans le cas de RA2, la contamination (26 cpm/100 mg) a été limitée à une lamine d'argile épaisse de 1 cm, située à 2.6 m de profondeur, alors que dans le cas de RA4, les lamines de limon situées dans l'intervalle de profondeur compris entre 3.2 et 4.1 m présentaient de faibles niveaux de contamination (jusqu'à 26 cpm/100 mg). C'est la carotte RA5 (figure 5), située à seulement 40 cm en contrebas des blocs, qui présentait les niveaux de contamination les plus élevés. On trouva des échantillons de sable contaminé à des profondeurs variant entre 2.9 m et la base de la carotte, l'échantillon le plus actif (66 cpm/100 mg) provenant de la couche de sable à minéraux clairs et grain moyen. Entre 2.5 et 3.0 m sous la surface, les lamines de limon présentaient des niveaux de contamination plus élevés que le sable fin adjacent. La carotte RA5 correspondant aux plus hauts niveaux de contamination, on s'attacha par la suite plus particulièrement aux sédiments qui en provenaient.

Adsorption de ^{137}Cs et de ^{90}Sr par les fractions minérales

On détermina la répartition de ^{137}Cs et de ^{90}Sr adsorbés d'après la minéralogie dans deux échantillons de sédiments contaminés : RA5:353 (profondeur de 353 à 367 cm) et RA5:373 (profondeur de 373 à 380 cm). On prépara des fractions séparées de quartz, de plusieurs feldspaths, de biotite, de biotite-vermiculite, de muscovite et de hornblende en vue du comptage de la fraction variant entre 0.42 et 0.50 mm de chaque échantillon de sédiment. On disposait de taux de comptage témoins variant de 0 (non décelés) à 7 cpm/100 mg après le comptage des radionucléides naturels des grains minéraux non contaminés tirés de la même fraction granulométrique de RA3:346. Ce furent le feldspath potassique, la muscovite et la biotite qui donnèrent les taux de comptage témoins non filtrés les plus élevés (supérieurs à 5 cpm/100 mg), ce qui traduisait probablement la présence de ^{40}K. Par altération en vermiculite, la biotite perd son potassium intercalaire, ce qui explique le faible taux de comptage non filtré de la biotite-vermiculite (2.6 cpm/100 mg).

Les taux de comptage et les quantités de ^{137}Cs et de ^{90}Sr adsorbées par l'ensemble des fractions minérales séparées préparées apparaissent au tableau 2.

Quartz

Les grains de quartz furent identifiés au microscope réfléchissant d'après leur couleur, leur éclat vitreux et leur texture superficielle glaciaire. La plupart des grains étaient de forme anguleuse à subanguleuse et avaient un haut degré de sphéricité (Powers, 1953). Certains grains semblaient contenir des taches superficielles peu étendues, ou de l'ordre d'une trace, d'oxyde de fer rouge orange. Dans de rares cas, on put observer un plan de fracture recouvert d'oxyde de fer. L'analyse pétrographique d'une lame mince préparée à partir d'une fraction de grains de quartz révéla que la plupart des grains étaient monocristallins à extinction roulante. Les analyses diffractométriques montrèrent que les échantillons ne contenaient que des quantités minimes ou infimes de feldspath.

L'examen au microscope électronique à balayage montra que les grains de quartz présentaient une texture superficielle glaciaire bien développée, et notamment des cassures conchoïdales (Krinsley et Donahue, 1968; Krinsley

Tableau 2. Taux de comptage et contamination radioactive des grains minéraux séparés des échantillons RA5:353, RA5:373 et 010:9 (étude de 1971)

Numéro d'échantillon*	Type de comptage†	Type de comptage (comptages ÷ min)	Poids (mg)	Taux de comptage corrigé (cpm/100 mg)	Probabilité de détection ‡	Taux de comptage net (cpm/100 mg)	Probabilité de détection ‡	^{137}Cs (dpm/100 mg) §	^{90}Sr (dpm/100 mg) §
353-Q1	NF	750 ÷ 788	12.66	2.13 ± 0.35	1.00	N.D.	0.12	N.D.	N.D.
	F	99 ÷ 121	12.66	N.D.	0.00	N.D.	0.00		
373-Q1	NF	1118 ÷ 946	10.92	4.57 ± 0.41	1.00	2.79 ± 0.82	0.97	9.4 ± 2.7	N.D.
	F	167 ÷ 161	10.92	N.D.	0.49	N.D.	0.49	(P = 1.00)	(P = 0.33)
373-Q2	NF	168 ÷ 126	14.32	4.54 ± 0.74	1.00	2.76 ± 1.02	0.83	—	—
373-Q3	NF	230 ÷ 131	15.03	7.14 ± 0.77	1.00	5.36 ± 1.05	1.00	3 ± 12	15 ± 10
	F	148 ÷ 136	15.03	0.95 ± 0.61	0.70	0.95 ± 0.61	0.70	(P = 0.55)	(P = 0.83)
373-H1	NF	640 ÷ 139	13.54	29.0 ± 1.4	1.00	29.0 ± 1.4	1.00	99.9 ± 5.5	N.D.
	F	133 ÷ 145	13.54	N.D.	0.07	N.D.	0.00	(P = 1.00)	(P = 0.36)
353-F4 (rose	NF	365 ÷ 144	12.82	14.4 ± 1.1	1.00	9.40 ± 1.12	1.00	N.D.	29.7 ± 3.6
translucide)	F	149 ÷ 120	12.82	2.31 ± 0.81	0.97	2.31 ± 0.81	0.97	(P = 0.32)	(P = 1.00)
353-F6 (rose	NF	340 ÷ 156	11.75	12.7 ± 1.0	1.00	7.69 ± 1.10	1.00	26.0 ± 3.8	N.D.
translucide)	F	668 ÷ 647	11.75	N.D.	0.43	N.D.	0.43	(P = 1.00)	(P = 0.12)
353-K1 (orange	NF	662 ÷ 169	9.77	33.1 ± 1.6	1.00	27.8 ± 1.8	1.00	58.3 ± 9.1	32.3 ± 6.3
opaque)	F	1409 ÷ 1206	9.77	2.28 ± 0.38	1.00	2.28 ± 0.38	1.00	(P = 1.00)	(P = 1.00)
373-K1 (orange	NF	1258 ÷ 134	10.14	85.9 ± 2.8	1.00	80.6 ± 2.9	1.00	217 ± 20	48 ± 15
opaque)	F	219 ÷ 164	10.14	3.84 ± 0.91	1.00	3.84 ± 0.91	1.00	(P = 1.00)	(P = 1.00)
353-F2 (blanc	NF	268 ÷ 143	12.76	9.34 ± 0.93	1.00	7.51 ± 1.17	1.00	25.7 ± 4.1	N.D.
translucide)	F	1550 ÷ 1564	12.76	N.D.	0.06	N.D.	0.01	(P = 1.00)	(P = 0.47)
353-F5 (blanc	NF	214 ÷ 123	12.28	8.61 ± 1.00	1.00	6.78 ± 1.23	1.00	23.1 ± 4.2	N.D.
translucide)	F	127 ÷ 128	12.28	N.D.	0.30	N.D.	0.05	(P = 1.00)	(P = 0.47)

* Q — quartz; H — hornblende; F, P, K — feldspaths; B — biotite; V — biotite-vermiculite; M — muscovite.
† NF — non filtré; F — filtré.
‡ Probabilité que le taux de comptage dépasse le niveau critique de détection.
§ P — Probabilité que l'activité ne soit pas nulle.
N.D. — Non décelé.

Tableau 2 (suite)

Numéro d'échantillon	Type de comptage	Type de comptage (comptages ÷ min)	Poids (mg)	Taux de comptage corrigé (cpm/100 mg)	Probabilité de détection	Taux de comptage net (cpm/100 mg)	Probabilité de détection	^{137}Cs (dpm/100 mg)	^{90}Sr (dpm/100 mg)
353-F7 (blanc translucide)	NF	508 ÷ 145	12.90	21.9 ± 1.2	1.00	20.0 ± 1.4	1.00	68.8 ± 5.3	N.D.
	F	149 ÷ 159	12.90	N.D.	0.10	N.D.	0.01	(P = 1.00)	(P = 0.41)
373-P1 (blanc translucide)	NF	627 ÷ 150	12.88	27.2 ± 1.3	1.00	25.3 ± 1.5	1.00	86.9 ± 5.7	N.D.
	F	133 ÷ 140	12.88	N.D.	0.14	N.D.	0.01	(P = 1.00)	(P = 0.39)
373-F3 (blanc translucide)	NF	564 ÷ 166	13.13	20.7 ± 1.1	1.00	18.9 ± 1.3	1.00	64.7 ± 4.9	N.D.
	F	636 ÷ 652	13.13	N.D.	0.07	N.D.	0.01	(P = 1.00)	(P = 0.42)
010:9-F1 (blanc translucide)	NF	226 ÷ 158	12.08	6.19 ± 0.82	1.00	4.37 ± 1.09	1.00	14.8 ± 3.7	N.D.
	F	123 ÷ 127	12.08	N.D.	0.21	N.D.	0.03	(P = 1.00)	(P = 0.48)
353-F3 (blanc opaque)	NF	693 ÷ 184	12.14	25.4 ± 1.2	1.00	23.6 ± 1.4	1.00	80.1 ± 5.3	N.D.
	F	857 ÷ 794	12.14	1.10 ± 0.34	0.83	N.D.	0.09	(P = 1.00)	(P = 0.40)
373-P2 (blanc opaque)	NF	1917 ÷ 151	18.38	65.4 ± 1.6	1.00	63.5 ± 1.8	1.00	215 ± 19	14 ± 15
	F	233 ÷ 160	18.38	2.44 ± 0.52	1.00	1.58 ± 0.90	0.61	(P = 1.00)	(P = 0.83)
353-B1	NF	2046 ÷ 127	13.40	115.1 ± 2.9	1.00	107.8 ± 2.9	1.00	354 ± 19	16 ± 12
	F	169 ÷ 136	13.40	2.21 ± 0.73	0.98	2.21 ± 0.73	0.98	(P = 1.00)	(P = 0.91)
373-B1	NF	5271 ÷ 85	15.76	389.1 ± 6.2	1.00	381.9 ± 6.2	1.00	1291 ± 42	51 ± 14
	F	331 ÷ 157	15.76	7.36 ± 0.75	1.00	7.36 ± 0.75	1.00	(P = 1.00)	(P = 1.00)
353-V1	NF	6215 ÷ 173	11.56	304.9 ± 5.1	1.00	302.3 ± 5.1	1.00	799 ± 40	208 ± 26
	F	392 ÷ 131	11.56	17.7 ± 1.3	1.00	16.0 ± 1.6	1.00	(P = 1.00)	(P = 1.00)
373-V1	NF	5228 ÷ 45	17.64	655 ± 10	1.00	652 ± 10	1.00	2266 ± 72	72 ± 23
	F	455 ÷ 138	17.64	13.33 ÷ 0.89	1.00	11.7 ± 1.2	1.00	(P = 1.00)	(P = 1.00)
373-M1	NF	1917 ÷ 151	7.00	51.6 ± 2.7	1.00	44.8 ± 2.8	1.00	144.4 ± 9.8	N.D.
	F	233 ÷ 160	7.00	2.8 ± 1.3	0.87	N.D.	0.30	(P = 1.00)	(P = 0.31)

et Doornkamp, 1973). Aucun des grains examinés ne présentait de signes nets de dissolution chimique ou de précipitation. En général, de nombreuses particules adhéraient aux grains de quartz, et l'analyse spectrale de l'intensité aux rayons X révéla que la plupart de ces particules, de composition variable, s'apparentaient à la farine glaciaire. On détecta également sur les grains une substance à forte teneur en fer (probablement l'oxyde de fer).

Le tableau 2 indique les taux de comptage et les niveaux de contamination radioactive des quatre fractions de quartz. Les taux de comptage nets non filtrés leur correspondant sont les plus bas de tous les taux des fractions minérales préparées, à la seule exception de l'une des fractions de feldspath. L'échantillon 373-Q3 qui correspond au taux de comptage net non filtré le plus élevé (5.4 cpm/100 mg) est le seul à contenir probablement du ^{90}Sr (15 ± 10 dpm/100 mg). Les surfaces de tous les grains de cette fraction présentaient des traces ou de petites taches rouge orange probablement dues à la présence d'oxyde de fer.

Hornblende

Les grains de hornblende furent triés en fonction de leur clivage caractéristique (leur clivage s'effectue selon des angles de 56° et 124°), de leur éclat vitreux et de leur couleur noire. La plupart des grains de hornblende observés au microscope réfléchissant présentaient des traces de limon brun et d'argile. La hornblende représentait moins de 1 % de l'ensemble de la fraction granulométrique examinée.

On ne prépara qu'une seule fraction séparée de hornblende contaminée, contenant approximativement 100 dpm de ^{137}Cs/100 mg (tableau 2). Evans (1954) avait déjà indiqué que les fractions de hornblende provenant des sédiments de la partie inférieure du bassin du lac Perch avaient fixé du Cs. On n'a pas encore expliqué le mécanisme de rétention, mais on peut l'apparenter à une dissolution incongruente des minéraux.

Feldspath

Le feldspath se distingue surtout grâce à son clivage, à son éclat pouvant aller du vitreux au nacré, à sa couleur et à sa cassure irrégulière à conchoïdale. Les grains retenus étaient translucides à opaques, subanguleux à subarrondis, et présentaient une sphéricité élevée (Powers, 1953). Dans la plupart des cas, on sépara les grains en deux groupes principaux en fonction de leur couleur : rose et orange; blanc. Les sédiments contenaient des feldspaths ressemblant au quartz, mais il fut impossible de les trier de façon sûre à l'aide du microscope réfléchissant. Environ 20 % des grains de feldspath sélectionnés présentaient des traces superficielles d'oxyde de fer ou de limon-argile.

Feldspaths roses et orange

Les grains de feldspath du groupe rose et orange renfermaient tous de petites inclusions d'hématite rouge brillante, toujours visibles en lame mince. L'ensemble des grains de feldspath rose et orange formaient moins de 10 % de l'ensemble des feldspaths sélectionnés. Environ 50 % des grains opaques roses et orange étaient des fragments de roche contenant des minéraux mafiques en quantité minime ou infime.

L'examen de lames minces de l'échantillon 353-F4 (tableau 2) montra que les grains roses translucides étaient généralement constitués de microcline. Un quart des grains présentaient une macle polysynthétique à la manière du plagioclase (surtout de l'oligoclase avec un peu d'albite). L'examen des lames minces montra également que les grains opaques avaient subi une altération importante. Il s'avéra difficile d'identifier les grains altérés : on put cependant identifier parmi eux quelques grains de plagioclase sodique.

Le degré de translucidité ou d'opacité des grains de feldspath rose et orange était lié à la présence de séricite et de produits d'altération allant du blanc au brun orange à grain très fin qui ne purent être identifiés avec certitude. Le degré de séricitisation était proportionnel au degré de développement des autres produits d'altération. Dans les échantillons modérément altérés, les produits d'altération très fins se localisaient principalement le long des plans de clivage et des microfractures. Il semble que la matière brun orange soit due à la présence de minuscules inclusions d'hématite en exsolution ou de produits d'altération de l'hématite.

Feldspaths blancs

L'expression «feldspath blanc» s'applique aux grains dont la translucidité va de l'opaque au presque transparent et à l'incolore. Comme pour les feldspaths roses et orange, le degré de translucidité ou d'opacité dépendait de la présence en plus ou moins grande quantité de séricite et de produits d'altération à grain très fin non identifiés. Dans l'ensemble, moins de 10 % des grains de feldspath étaient blancs opaques.

L'analyse des lames minces de feldspaths blancs montra qu'il s'agissait surtout d'oligoclase, tandis que l'étude du signe et de l'angle de l'axe optique semblait dénoter une composition d'environ An_{20}. On décela la présence de microcline dans toutes les lames minces (quoiqu'en moindre abondance dans les échantillons les plus altérés) ainsi que

d'albite. Les produits d'altération masquaient la plupart des propriétés optiques des grains opaques. Le plagioclase n'était pas zoné et l'on put déceler la présence d'un peu d'antiperthite. Dans chaque lame mince, quelques grains contenaient des inclusions d'hématite, mais aucun des grains ne présentait la coloration caractéristique des feldspaths roses et orange. On trouva de l'épidote dans certains grains, ce qui est un signe de saussuritisation.

Les données d'observation disponibles démontrent que les produits d'altération présents dans toutes les lames de feldspaths examinés sont dus à des processus métamorphiques ou hydrothermiques et non à une altération récente. Parmi les données recueillies, on a inclus la présence de saussurite et de séricite, ainsi que l'absence de limites bien définies entre les feldspaths altérés et les feldspaths non altérés. Il semble que la présence de limites bien définies caractérise les processus d'altération par les agents atmosphériques (Rodgers et Holland, 1979; Walker et coll., 1978).

Analyse MEB-SDE des feldspaths

L'analyse MEB-SDE des surfaces des grains de feldspath orange et rose fit apparaître d'importantes variations de la composition élémentaire, dénotant la présence d'albite, de perthite et de microcline. Sur un ensemble de cinq grains de feldspath blanc examinés de la même façon, quatre grains semblaient contenir plus de Ca que de Na et de K. Cette observation ne concorde pas avec les résultats de l'analyse des lames minces des fractions de feldspath blanc et l'on ne sait si la prédominance apparente de Ca à la surface des minéraux provient de la géométrie de la source de rayons X ou d'une véritable altération chimique. Les spectres de la matrice des feldspaths ne permirent pas d'identifier les produits d'altération; on nota cependant que toutes les surfaces des grains renfermaient du Fe.

Plusieurs des grains de feldspath extraits des échantillons de la carotte RA3 et d'autres carottes de sédiments de la partie inférieure du bassin du lac Perch furent observés au MEB-SDE, mais on remarqua qu'un seul d'entre eux présentait une surface nettement dépolie. Aucune des surfaces des grains de feldspath provenant de la carotte RA3 ne semblait avoir été sensiblement adoucie par un revêtement dû à la précipitation.

La surface de tous les feldspaths examinés au MEB était parsemée de particules; c'est la surface de l'échantillon 010:9-F1 qui en comportait le plus, soit environ 5 % de la surface totale. Les spectres de la matrice des grains interféraient avec ceux des particules, de sorte qu'il était difficile de déterminer la composition de ces dernières. L'ampleur des variations de la composition semble indiquer que la plupart des particules sont de la farine glaciaire. Cependant, de nombreuses particules avaient une composition similaire à celle de la matrice à laquelle elles adhéraient, ce qui évoque la possibilité d'une fragmentation de surface.

Niveaux de ^{137}Cs et de ^{90}Sr dans les feldspaths

Les niveaux de ^{137}Cs et de ^{90}Sr adsorbés par les fractions de feldspath rose et orange allaient de l'indétectable à 217 ± 20 dpm/100 mg et 48 ± 15 dpm/100 mg respectivement (tableau 2). La présence d'un plus grand pourcentage de grains rouge orange dans l'échantillon 373-K1 (30 % contre 10 % dans l'échantillon 353-K1) constituait la seule différence apparente entre les échantillons orange opaques provenant des deux intervalles de carotte. Alors qu'il semble que l'on ait décelé la présence du radioisotope ^{90}Sr dans une seule fraction de feldspath blanc (373-P2), les huit fractions de ce minéral contenaient du ^{137}Cs (23 ± 4 à 215 ± 19 dpm/100 mg).

Il se peut que la présence de ^{90}Sr dans les feldspaths roses et orange soit due à la minéralogie granulaire primaire ou, plus probablement, à la présence d'oxydes. Les grains des fractions roses translucides étaient constitués principalement de microcline et, en quantités moindres, de plagioclase, tandis que les fractions blanches sans quantité détectable de ^{90}Sr étaient surtout constituées de plagioclase et, accessoirement, de microcline. Le fait que les échantillons colorés contenaient une plus grande quantité d'hématite ou présentaient un plus haut degré d'altération de ce minéral permet de croire que la sorption fut principalement due à la présence d'oxydes de fer.

Quelle que soit leur couleur, les fractions de feldspath opaque fortement altéré contenaient plus de ^{137}Cs adsorbé que les fractions translucides (tableau 2). On ne peut évaluer l'influence des produits d'altération à grain très fin non identifiés sur la sorption de ^{137}Cs, mais ils ont pu jouer un rôle considérable pour peu qu'ils aient contenu de la séricite et de la zéolite. On pourrait s'attendre à ce que la séricite, à cause de sa structure, retienne des quantités infinitésimales de ^{137}Cs en tant que cation intercalaire. Certaines zéolites ont une forte capacité d'adsorption du Cs et leur grande sélectivité fait qu'elles fixent cet élément plus volontiers que le Sr (Berak, 1963). Le plagioclase, quelle que soit son origine, contient généralement un peu de séricite (Moorehouse, 1959) et est donc susceptible de retenir et d'adsorber un peu de Cs dans la plupart des sédiments.

C'est Evans (1954) qui fut le premier à observer la rétention du Cs dans les grains de feldspath de la partie inférieure du bassin du lac Perch; il signala que les solutions de H_2O_2, de $CaCl_2$ ou de Na_2CO_3 ne désorbaient pas facilement des quantités notables de ^{134}Cs et de ^{137}Cs.

Micas

On tria les grains de biotite en fonction de leur couleur noire et de leur forme plate caractéristique. La plupart des surfaces des grains avaient un aspect terne, alors que les plans récemment clivés (001) avaient un éclat vitreux. L'éclat terne est certainement dû à l'altération chimique de la surface des grains. On tria la biotite-vermiculite (la présence de vermiculite fut confirmée par la diffraction des rayons X) en se basant sur la couleur de l'altération superficielle. La surface des grains de biotite-vermiculite allait du vert foncé au bronze; quelques grains présentaient même un assortiment de toutes les couleurs.

Les grains de muscovite extraits des sédiments du site d'enfouissement des blocs de verre étaient transparents ou translucides, en fonction de la présence d'inclusions minuscules ou de produits d'altération. L'échantillon de sédiment RA5:353 ne contenait pas assez de muscovite dans la classe granulométrique comprise entre 0.42 et 0.50 mm pour permettre la préparation d'une fraction séparée de ce minéral.

À l'exception de l'échantillon 373-V1, seuls quelques grains dans l'ensemble des fractions de mica contenaient des taches visibles d'oxyde de fer. L'échantillon 373-V1 présentait un revêtement d'oxyde de fer sur 5 % environ de sa surface totale.

À la différence de presque toutes les autres fractions de minéraux préparées pour le comptage, on nota une différence entre les grains de biotite et les grains de biotite-vermiculite provenant des deux intervalles d'échantillonnage de RA5. Les grains provenant de RA5:373 étaient plus altérés, ce qui se traduisait en effet par une plus grande proportion de biotite vert foncé et par une coloration bronze plus prononcée de la biotite-vermiculite. Notons aussi que, dans cet échantillon, les grains de biotite et de biotite-vermiculite étaient présents en proportions à peu près égales, alors que dans l'échantillon RA5:353, celle-ci était beaucoup moins abondante que celle-là. Il semble que l'altération plus marquée de l'échantillon RA5:373 ait résulté d'un phénomène de triage des sédiments primaires. Patterson (1979) a constaté que l'altération active de la biotite par les agents atmosphériques dans la partie inférieure du bassin du lac Perch se limitait apparemment aux deux premiers mètres de la section. De plus, les grains fins de biotite présents dans les deux intervalles de la carotte RA5 n'étaient pas plus altérés que les gros grains, ce qui se serait sans doute produit en cas d'altération climatique active.

Analyse MEB-SDE des micas

Les spectres de rayons X de la surface des grains de biotite et de biotite-vermiculite indiquèrent que, sous l'effet de l'altération, cette surface s'était appauvrie en Cl et en K tout en s'enrichissant en Ca, Mg, Fe, Ti et Cr, ce qui concorde avec la transformation de la biotite en vermiculite. À quelques exceptions près, les spectres de rayons X des particules se trouvant à la surface des grains de biotite et de biotite-vermiculite étaient très semblables aux spectres de la matrice correspondante. Les microphotographies ont indiqué que ces particules provenaient de la surface des grains soumis à un processus physique de fragmentation et que les grains avaient commencé à s'ouvrir le long des plans de clivage. Ces béances, de même que la présence de particules issues de la surface des minéraux, ont permis d'augmenter la surface active et la capacité d'adsorption des grains de biotite et de biotite-vermiculite au delà de ce que l'on pourrait attendre en ne tenant compte que de la forme des grains.

Les grains de muscovite ne comportaient pas de revêtement superficiel visible d'oxyde de Fe, mais les spectres de la matrice démontrèrent la présence de petites quantités de Fe. Sous un grossissement de × 5000, les arêtes des grains de muscovite semblent partiellement ouvertes, sans que ce phénomène soit aussi prononcé que pour la biotite et la biotite-vermiculite.

Niveaux de ^{137}Cs et de ^{90}Sr dans les micas

Les niveaux de ^{137}Cs adsorbé par la biotite-vermiculite sont à peu près le double des niveaux de ^{137}Cs adsorbé par la biotite dans chacun des intervalles stratigraphiques (tableau 2). Dans le cas de l'échantillon de sédiment RA5:373, la fraction de biotite avait adsorbé, en poids, plus de ^{137}Cs (1291 dpm/100 mg) que la fraction de muscovite (144 dpm/ 100 mg). Cette donnée concorde avec les observations selon lesquelles l'altération de la biotite, y compris l'ouverture des arêtes des grains, a été plus prononcée que celle de la muscovite. Sawhney (1970) a montré que les propriétés de sorption des phyllosilicates 2:1 dépendent pour une grande part de la superficie des arêtes des minéraux «effilochés» (feuillets intercalaires à bords dilatés formant des «zones de sorption en biseau»). L'analyse de l'échantillon 373-V1 qui contenait les grains les plus visiblement altérés et possédait la plus haute teneur en ^{137}Cs (2266 ± 72 dpm/100 mg) a encore confirmé l'importance de l'altération.

La biotite et la muscovite peuvent s'altérer en vermiculite en perdant le K intercalaire, remplacé par de l'hydroxyde de Al. Bien qu'il soit généralement admis que l'altération des gros grains de mica touche d'abord les arêtes

et gagne ensuite le centre des grains, Jackson et coll., (1973) ont observé que la diffusion cationique et le dépôt d'oxydes de Fe et de Al le long des plans de clivage sont facilités par la présence de pores et de microfractures de surface. Les feuillets intercalaires dilatés de la vermiculite se prêtent bien au dépôt des cations alcalino-terreux hydratés comme le Sr.

Les grains de biotite-vermiculite provenant de l'endroit où se trouvent les blocs de verre semblent avoir une plus grande capacité de rétention de ^{90}Sr que les grains de biotite (tableau 2). Ce n'est que dans le cas des fractions extraites de l'échantillon de sédiment RA5:353 que l'on peut établir une corrélation significative entre le degré d'altération de la biotite en vermiculite et la quantité de ^{90}Sr adsorbé (16 ± 12 dpm/100 mg pour la biotite comparé à 208 ± 26 dpm/100 mg pour la biotite-vermiculite). Il se peut que certaines des différences entre les fractions de biotite et les fractions de biotite-vermiculite soient dues à la présence d'oxydes; toutefois, la fraction 373-V1 qui contenait les grains les plus altérés et les plus riches en fer n'avait pas beaucoup fixé de ^{90}Sr. Ces remarques portent à croire que d'autres mécanismes de rétention ont pu jouer un rôle important dans le cas des micas. En fait, il est possible que la sorption irrégulière des feuillets intercalaires de ^{137}Cs ait provoqué l'effondrement irrégulier de ces feuillets. Cette sorption a pu aussi isoler les zones contenant des feuillets intercalaires ayant des cations alcalino-terreux comme le Sr. Douglas (1977) a décrit ce mécanisme d'isolement.

Activité des fractions de sédiments tamisés

L'échantillon RA5:353, après tamisage en plusieurs fractions granulométriques «Phi», fut divisé mécaniquement et compté. On tamisa aussi un intervalle stratigraphiquement équivalent de la carotte RA3 (346 à 367 cm) de façon à obtenir des fractions de granulométrie correspondante pour mesurer les taux de comptage témoins. Le tableau 3 donne les taux de comptage nets et les niveaux de ^{137}Cs et ^{90}Sr des fractions tamisées de l'échantillon RA5:353.

Bien que la fraction de limon et d'argile et la fraction de sable grossier et très grossier (granulométrie supérieure à 0.5 mm) aient constitué chacune moins de 0.3 % en poids de l'échantillon RA5:353, leurs taux de comptage pondérés étaient trois fois supérieurs à ceux des fractions de granulométrie intermédiaire. Cette observation concorde avec les résultats concernant les fractions minéralogiques et avec les autres études portant sur les sédiments de la partie inférieure du bassin du lac Perch (Jackson et Inch, 1980; Patterson et Spoel, 1981); elle peut s'expliquer par la plus grande abondance de minéraux micacés dans la fraction la plus grossière comme dans la fraction la plus fine et par la surface spécifique plus importante des grains de cette dernière. L'examen microscopique des fractions granulométriques des sédiments voisins des blocs de verre dénote une répartition similaire des minéraux micacés. La plus grande abondance de grains de biotite dans les fractions plus fines explique probablement le taux de comptage

Tableau 3. Contamination radioactive du sédiment entier et des fractions tamisées de l'échantillon RA5:353

Granulométrie (mm)	Type de comptage *	Taux de comptage net (cpm/100 mg)	Probabilité de détection †	^{137}Cs ‡ (dpm/100 mg)	^{90}Sr ‡ (dpm/100 mg)	Poids de l'échantillon (%)	Comptage net pondéré (cpm/[% poids] × [100 mg])
Sédiment entier	NF	11.83 ± 0.37	1.00	52.7 ± 3.1	2.1 ± 1.7	100	11.83 ± 0.37
	F	0.25 ± 0.10	0.84	(P = 1.00)	(P = 0.88)		
>0.5	NF	35.95 ± 0.66	1.00	137.6 ± 5.4	23.2 ± 2.6	0.261	0.09 ± 0.00
	F	1.67 ± 0.14	1.00	(P = 1.00)	(P = 1.00)		
0.25-0.5	NF	14.40 ± 0.41	1.00	–	–	26.972	3.88 ± 0.11
	F						
0.125-0.25	NF	10.56 ± 0.18	1.00	46.1 ± 3.2	2.7 ± 2.2	63.115	6.66 ± 0.11
	F	0.26 ± 0.12	0.84	(P = 1.00)	(P = 0.88)		
0.0625-0.125	NF	13.50 ± 0.36	1.00	–	–	9.383	1.27 ± 0.03
<0.0625	NF	32.33 ± 0.76	1.00	147.2 ± 7.8	1.6 ± 4.6	0.268	0.09 ± 0.00
	F	0.46 ± 0.26	0.70	(P = 1.00)	(P = 0.64)		
Ensemble des fractions tamisées						99.999	11.99 ± 0.16

* NF – non filtré; F – filtré.
† Probabilité que le taux de comptage net dépasse le niveau critique de détection.
‡ P – Probabilité d'activité non nulle.

témoin plus élevé (4.3 cpm/100 mg) de la fraction limon et argile de RA3:346.

On trouve des niveaux relativement élevés de ^{137}Cs à la fois dans les fractions les plus grossières et dans les fractions les plus fines. Toutefois, on ne trouve de ^{90}Sr enrichi que dans la fraction grossière. La raison de l'absence de niveaux relativement élevés de ^{90}Sr dans la fraction fine n'est pas claire car, à la détection, les échantillons tamisés des lamines de limon et d'argile (granulométrie inférieure à 0.0625 mm) extraits de la carotte RA5 contenaient d'ordinaire nettement plus de ^{90}Sr que de ^{137}Cs. Selon certains auteurs (Jackson et Inch, 1980; Catto, 1978), les couches de limon et d'argile du bassin du lac Perch contiennent parfois plus de mica-vermiculite et de chlorite interstratifiés que la fraction limon et argile des sédiments sablonneux. Cette différence minéralogique n'explique toutefois pas entièrement la répartition de la contamination par ^{90}Sr selon la granulométrie.

DISCUSSION

Répartition du ^{137}Cs retenu

Pour chacun des deux échantillons de sédiments RA5:353 et RA5:373, on peut classer pondéralement la série complète des fractions minérales en fonction de la quantité mesurée de ^{137}Cs adsorbé (tableau 2) comme suit :

biotite-vermiculite >
biotite ≫
feldspath opaque ou altéré >
muscovite >
hornblende ≧
feldspath translucide ≧
quartz.

C'est la première fois qu'on détermine l'ordre d'adsorption du ^{137}Cs par les principaux minéraux des sédiments de la partie inférieure du bassin du lac Perch; il concorde avec le classement partiel des grains traités chimiquement (H_2O_2, $CaCl_2$ et $NaCO_3$), proposé par Evans (1954) : feldspath≫ hornblende ≫ quartz (peut-être contaminé par du feldspath).

La biotite et la biotite-vermiculite ne sont que des constituants relativement mineurs des sédiments de la partie inférieure du bassin du lac Perch, mais elles jouent un rôle disproportionné en ce qui concerne la sorption de ^{137}Cs. Comme l'ont observé Jackson et Inch (1980), la présence de biotite et de biotite-vermiculite explique en grande partie les variations observées de la contamination par ^{137}Cs, exprimée en poids, selon les unités stratigraphiques, les échantillons de sédiments et les fractions granulométriques. Cela ne signifie cependant pas que la majeure partie du ^{137}Cs contenue dans le sédiment entier soit nécessairement associée à la biotite et à la biotite-vermiculite. Jackson et Inch (1980) estiment que la majeure partie du ^{137}Cs est adsorbée par le feldspath, particulièrement abondant. Cette hypothèse semble raisonnable, mais ne s'applique pas à la classe granulométrique comprise entre 0.42 et 0.50 mm. Dans cette fraction, le feldspath translucide (qui est pondéralement l'avant-dernier agent d'adsorption du ^{137}Cs et qui est moins séricitique que le feldspath opaque) représente 80 % de l'ensemble des feldspaths.

La majeure partie du ^{137}Cs libéré des blocs de verre a été retenue par les sédiments situés à proximité de ces blocs; elle n'a pas été adsorbée électrostatiquement et se prête mal aux échanges avec d'autres cations. Dix-neuf ans après l'enfouissement des blocs, 90 % de la quantité totale de ^{137}Cs libérée n'avait pas parcouru plus de 0.3 m (Walton et Merritt, 1979). En outre, d'autres chercheurs (Evans, 1954; Jackson et Inch, 1980) ont présenté des résultats expérimentaux selon lesquels les sédiments contaminés de la partie inférieure du bassin du lac Perch seraient dans l'incapacité de désorber des quantités notables de ^{137}Cs.

Répartition du ^{90}Sr retenu

La rétention du ^{90}Sr par les sédiments à proximité des blocs de verre a été beaucoup moins nette que celle du ^{137}Cs. Onze ans après l'enfouissement des blocs, il était impossible de définir clairement un panache d'eau souterraine contaminée à cause de l'advection et de la dispersion du ^{90}Sr hors du site (W.F. Merritt, données inédites). Neuf seulement des vingt fractions minérales de la présente étude contenaient des quantités détectables de ^{90}Sr; le niveau mesuré le plus élevé était inférieur d'un ordre de grandeur au plus haut niveau de ^{137}Cs (tableau 2). Néanmoins, on peut classer pondéralement les fractions minérales en fonction de la quantité de ^{90}Sr retenu comme suit :

biotite-vermiculite ≧
biotite et feldspath contenant de l'hématite >
tous les autres minéraux (quartz, feldspath blanc, hornblende et muscovite).

Comme pour les adsorbants du ^{137}Cs, il s'agit là du premier ordre d'adsorption du ^{90}Sr déterminé pour l'ensemble des minéraux les plus abondants des sédiments de la partie inférieure du bassin du lac Perch.

Caractéristiques des grains minéraux

On ne peut pas classer les adsorbants du ^{90}Sr en autant de catégories que ceux du ^{137}Cs. L'analyse des

données incite à croire que cette différence tient au fait que la sorption du ^{90}Sr dépend davantage des caractéristiques sédimentaires moins spécifiquement minérales. Ainsi, la rétention de ^{90}Sr semble être liée à la présence ou à l'absence de revêtements d'oxyde de Fe et peut-être de Mn et de Al qui peuvent se trouver sur n'importe quel minéral. Par exemple, la fraction quartzeuse de la carotte RA5 qui contenait du ^{90}Sr mesurable comportait aussi une quantité infinitésimale visible d'oxyde de Fe sur les grains. De la même façon, les feldspaths porteurs de ^{90}Sr étaient colorés par l'hématite ou contenaient des grains très fins d'hématite ou de ses produits d'altération. La corrélation apparente entre le ^{90}Sr retenu et les oxydes métalliques a été confirmée récemment par les résultats de recherches en laboratoire sur les sédiments contaminés de la partie inférieure du bassin du lac Perch (Jackson et Inch, 1983). Les données prouvent qu'il existe une forte corrélation entre la quantité de ^{90}Sr et les quantités de Fe, de Mn et de Al que l'on peut extraire à l'aide d'hydrochlorure hydroxylamine 0.1 *M* acidifié. Les revêtements d'oxyde de fer observés au microscope réfléchissant ne se prêtaient pas à l'analyse au MEB-SDE.

Les microfractures et les revêtements de farine glaciaire sont deux autres caractéristiques communes à plus d'une phase minérale et susceptibles de favoriser la rétention. Les microfractures des grains causeraient ainsi la sorption hors équilibre de quantités infinitésimales de solutés par suite de processus de diffusion contrôlée. Krinsley et Hyde (1971) ont observé que les grains de quartz issus des environnements glaciaires sont caractérisés par un grand nombre de fissures (de 0.1 μm à 0.25 μm de large) que l'on peut observer au microscope électronique à balayage, en mode d'émission cathodoluminescente. Les grains du bassin du lac Perch ont certainement été fracturés durant leur transport glaciaire. Pourtant, comme certaines des fractions de quartz et de feldspath présentaient des niveaux indétectables de ^{137}Cs ou de ^{90}Sr, il semble que les microfractures ne sont pas courantes ou si elles le sont, qu'elles ne donnent pas lieu à une rétention notable.

L'analyse au MEB-SDE a montré que la plupart des particules adhérant aux grains de quartz, de feldspath et de hornblende étaient sans doute des composants de la farine glaciaire. On suppose que les particules adhérentes n'ont pas exercé d'effet notable sur les taux de comptage, car la fraction de feldspath (010:9-F1) qui en contenait le plus grand nombre correspond au taux de comptage le plus faible de toutes les fractions feldspathiques. Notons aussi, comme dans le cas des microfissures, que l'activité indétectable de certaines fractions semble indiquer que ce facteur n'est pas important.

Rétention du ^{90}Sr

Des expériences en laboratoire ont montré, que la majeure partie, mais non la totalité, du ^{90}Sr adsorbé par les sédiments contaminés de la partie inférieure du bassin du lac Perch se prêtait bien à la désorption (Ophel et coll., 1972; Ophel, 1973; Jackson et Inch, 1980; Pickens et coll., 1981; Killey, 1982). En outre, les différences entre la répartition prévue et la répartition observée du ^{90}Sr adsorbé sur le site d'enfouissement des blocs de verre en 1963 prouvent qu'il s'est produit une certaine sorption hors équilibre (Walton et Merritt, 1979; Melnyk et coll., 1984).

Les calculs tenant compte des données recueillies dans la présente étude permettent de croire que le ^{90}Sr qui demeure encore à proximité des blocs de verre représente une petite proportion du ^{90}Sr adsorbé à l'origine qui se prêtait mal aux échanges avec d'autres cations. On peut comparer les niveaux mesurés de ^{90}Sr retenu avec les niveaux prévus de ^{90}Sr adsorbé calculés à partir des valeurs de K_d^{Sr} établies par Patterson et Spoel (1981) et des concentrations historiques de ^{90}Sr dans l'eau souterraine du site d'enfouissement. On peut formuler le rapport entre ces variables de la façon suivante :

$$(XSr) = K_d^{Sr} (Sr) \qquad (1)$$

(XSr) étant la quantité de Sr adsorbé par gramme de minéral adsorbant et (Sr) la concentration en équilibre par millilitre de solution.

Patterson et Spoel (1981) ont eu recours à une technique d'essai par portions en laboratoire afin de déterminer les valeurs de K_d^{Sr} pour diverses fractions minérales du sédiment non contaminé de la carotte RA1. Des fractions pesant entre 63 et 98 mg furent triées manuellement et dosées pendant 48 h avec de l'eau provenant du piézomètre RAb-2, ensemencée avec une quantité infinitésimale de ^{85}Sr. Le tableau 4 résume les valeurs mesurées de K_d^{Sr} pour différentes fractions de minéraux. Le tableau 5 donne les quantités de ^{90}Sr adsorbé calculées à l'aide de l'équation 1,

Tableau 4. Valeur mesurée de K_d^{Sr} pour diverses fractions minérales de l'échantillon RA1:330.

Fraction minérale	K_d^{Sr}* (mL/g)
Quartz avec un peu de feldspath	0.4
Feldspaths mélangés (surtout blancs)	4.7
Biotite	3.7
Biotite altérée en vermiculite	37
Muscovite	2.6

*Patterson et Spoel (1981).

Tableau 5. Comparaison des quantités mesurées et des quantités calculées de ^{90}Sr adsorbé par les fractions minérales

Fraction minérale	Quantité mesurée dpm/100 mg)*	Quantité calculée en se basant sur une concentration de 290 dpm/mL† de l'eau souterraine (dpm/100 mg)	Quantité calculée en se basant sur une concentration de 5.3×10^{-1} dpm/mL‡ de l'eau souterraine (dpm/100 mg)
Quartz	N.D.	12	0.02
Quartz avec traces d'oxyde de Fe	15 ± 10	–	–
Feldspaths mélangés (surtout blancs)	–	140	0.25
Feldspath rose translucide et orange opaque	N.D.; 29.7 ± 3.6 32 ± 6: 48 ± 15	–	–
Feldspath blanc translucide et opaque	N.D.; 14 ± 15	–	–
Biotite	16 ± 12; 51 ± 14	110	0.20
Biotite-vermiculite	208 ± 26. 72 ± 23	1100	2.0
Muscovite	N.D.	75	0.14

* N.D. – Non décelé. On a relevé une seule mesure pour chaque valeur notée sauf pour le quartz (N.D. – 2 mesures) et le feldspath blanc translucide et opaque (N.D. – 6 mesures).
† Concentration moyenne de l'eau souterraine en 1960.
‡ Concentration moyenne de l'eau souterraine en 1977.

les valeurs K_d^{Sr} reportées (tableau 4) et les concentrations de l'eau souterraine de ^{90}Sr pour les valeurs de 290 dpm/mL (1.3×10^{-1} μCi/L) et de 5.3×10^{-1} dpm/mL (2.4×10^{-4} μCi/L). La valeur élevée de la concentration correspond à la concentration moyenne en ^{90}Sr de l'eau souterraine prélevée en 1960 dans un piézomètre situé à 1.8 m en contrebas des blocs (Merritt, 1976). La valeur faible représente la concentration moyenne en ^{90}Sr de l'eau prélevée en 1977 (Walton et Merritt, 1979). Elle est représentative des concentrations annuelles moyennes en ^{90}Sr depuis 1966. Le tableau 5 donne aussi les quantités mesurées de ^{90}Sr adsorbé qui ont été determinées au cours de la présente étude (tableau 2).

On ne peut évidemment faire des comparaisons précises entre les quantités mesurées de ^{90}Sr adsorbé par les fractions de la carotte RA5 et les quantités calculées à partir de l'équation 1, des valeurs de K_d^{Sr} et des concentrations en ^{90}Sr. Les sédiments provenant de la carotte RA5 (situés à 0.4 m en contrebas des blocs de verre) ont probablement été exposés à de plus hauts niveaux de ^{90}Sr que ceux qui avaient été mesurés dans le carottier en 1960 (à 1.8 m en contrebas). Notons aussi que Patterson et Spoel (1981) n'avaient pas indiqué la granulométrie des fractions destinées aux essais par portions. Un examen visuel des grains de ces fractions au moment de leur préparation permit de constater qu'ils étaient en moyenne plus petits que les grains provenant de la carotte RA5, de sorte qu'on aurait pu s'attendre à ce qu'ils aient adsorbé une plus grande quantité pondérée de ^{90}Sr.

Les quantités mesurées de ^{90}Sr dans les fractions minérales sont très inférieures aux quantités prédites à l'aide des résultats de K_d^{Sr} et de la concentration de l'eau souterraine en 290 dpm/mL de ^{90}Sr observée en 1960 (comparer les colonnes 2 et 3 du tableau 5). Comme la valeur de la concentration de l'eau souterraine est probablement une estimation prudente du niveau maximal d'exposition auquel ont été soumis les sédiments, les données permettent de croire que, dans le cas de la biotite et de la biotite-vermiculite, moins de 20 % du ^{90}Sr vraisemblablement adsorbé peu après l'enfouissement et le lessivage des blocs est encore retenu.

En comparaison des résultats fondés sur la concentration moyenne en ^{90}Sr de 1960, les quantités mesurées de ^{90}Sr retenu sont beaucoup plus élevées que celles qui ont été calculées en se basant sur la concentration de l'eau souterraine en ^{90}Sr en 1977, soit 5.3×10^{-1} dpm/mL (comparer les colonnes 2 et 4 du tableau 5). L'importance de ces différences permet de conclure que le ^{90}Sr encore fixé sur le quartz (avec des traces d'oxyde de Fe), sur le

feldspath rose et orange, sur la biotite et sur la biotite-vermiculite est très fortement adsorbé et ne se prête pas bien aux échanges, d'autant plus que les sédiments ont été exposés aux eaux souterraines diluées pendant plus de 10 ans.

Les résultats de la présente étude concordent avec les observations des autres chercheurs selon lesquelles les sédiments des L.N.C.R. comprennent plusieurs sites, qui dépendent du niveau de réversibilité et sont propices à la sorption du ^{90}Sr. Alors que tout le ^{90}Sr adsorbé au cours d'expériences par portions de trois jours se prête bien aux échanges (Killey, 1982), 20 % à 50 % seulement du ^{90}Sr adsorbé pendant des périodes de contact d'environ 20 à 25 ans peut être éliminé par un traitement de désorption à l'aide d'une solution de $CaCl_2$ ou de $SrCl_2$ (Jackson et Inch, 1983 et 1980; Killey, 1982). Killey, dans une communication personnelle, a également noté que la désorption lente hors équilibre de ^{90}Sr donne des valeurs apparentes de K_d^{Sr} plus élevées dans les parties anciennes du panache de contamination. Les travaux de ces chercheurs indiquent que la majeure partie du ^{90}Sr retenu par les sédiments est associée à des oxydes de Fe, de Mn et de Al. De plus, les résultats de la modélisation des données pédologiques recueillies sur le site d'enfouissement des blocs de verre en 1963 s'améliorent lorsqu'on fait intervenir un double mécanisme de sorption (Melnyk et coll., 1984).

CONCLUSIONS

L'étude aboutit aux conclusions suivantes :

1. Le radionucléide ^{137}Cs, fortement retenu par les sédiments, ne se prête pas bien aux échanges avec d'autres cations. Les phases minérales importantes qui retiennent le césium sont les phyllosilicates, principalement la biotite-vermiculite et la biotite. Les feldspaths qui contiennent des produits d'altération tels que la séricite exercent également une rétention notable.

2. Comparé au ^{137}Cs le ^{90}Sr est beaucoup moins bien retenu et sa répartition dans les sédiments est moins tributaire de la nature des minéraux. Les minéraux les plus adsorbants sont la biotite-vermiculite et la biotite. Les résultats de cette étude et d'autres études indiquent que les sédiments présentent une gamme de sites de sorption du ^{90}Sr allant du facilement réversible au très lentement réversible. Le ^{90}Sr retenu est associé pour une grande part à des oxydes, et notamment à des oxydes de Fe.

REMERCIEMENTS

Nous tenons à remercier le Programme de soutien à la recherche sur les ressources en eau d'Environnement Canada et Énergie atomique du Canada Limitée pour leur contribution financière au présent travail. Nous exprimons notre gratitude particulière à R.E. Jackson, de l'Institut national de recherches en hydrologie, d'Environnement Canada, et aux membres du Secteur de la recherche environnementale, Laboratoires nucléaires de Chalk River, Énergie atomique du Canada Limitée, notamment à W.F. Merritt (en retraite).

RÉFÉRENCES

Berak, L. 1963. The sorption of microstrontium and microcesium on the silicate minerals and rocks. Nuclear Research Institute of the Czechoslovak Academy of Science, UJV-528-63, Prague, Tchécoslovaquie, 38 p.

Catto, N.R. 1978. The Late Quaternary Geology of the Chalk River Region, Ontario and Quebec. Mémoire de B.Sc., Université Queen's, Kingston (Ont.), 321 p.

Catto, N.R., R.J. Patterson et W.A. Gorman. 1982. The Late Quaternary Geology of the Chalk River region, Ontario and Quebec. Can. J. Earth Sci. 19: 1218-1231.

Champ, D.R. et W.F. Merritt. 1981. Particulate transport of cesium in groundwater. Exposé présenté à la Deuxième réunion annuelle de la Canadian Nuclear Society, Ottawa, Canada, juin 1981. Énergie atomique du Canada Limitée, AECL-7440, 4 p.

Cherry, J.A., R.E. Jackson, D.C. McNaughton, J.F. Pickens et H. Woldetensae. 1975. Physical hydrogeology of the lower Perch Lake Basin. Dans Hydrological Studies on a Small Basin on the Canadian Shield, préparé par P.J. Barry, Énergie atomique du Canada Limitée, AECL-5041/I, Chalk River (Ont.), p. 625-680.

Currie, L.A. 1968. Limits for qualitative detection and quantitative determination — application to radiochemistry. Anal. Chem. 40: 586-593.

Deer, W.A., R.A. Howie et J. Zussman. 1966. *An Introduction to the Rock-Forming Minerals*. Longman Group Ltd., Londres, Angleterre, 528 p.

Douglas, L.A. 1977. Vermiculites. Dans Minerals in Soil Environments. Préparé par J.B. Dixon et S.B. Weed, Soil Sci. Soc. Am., Madison, WI, p. 259-292.

Evans, E.J. 1954. Properties of disposal area soil. Travail inédit. Énergie atomique du Canada Ltée, Chalk River (Ont.).

Folk, R.L. et W.C. Ward. 1957. Brazos River bar, a study in the significance of grain-size parameters. J. Sediment. Petrol. 27: 3-27.

Francis, C.W. et F.S. Brinkley. 1976. Preferential adsorption of ^{137}Cs to micaceous minerals in contaminated freshwater sediment. Nature, 260: 511-513.

Friedlander, G., J.W. Kennedy et J.M. Miller. 1964. *Nuclear and Radiochemistry*. John Wiley and Sons Ltd., New York, N.Y., 585 p.

Jackson, M.L., S.Y. Lee, J.L. Brown, I.B. Sachs et J.K. Syers. 1973. Scanning electron microscopy of hydrous metal oxide crusts intercalated in naturally weathered micaceous vermiculite. Soil Sci. Soc. Am., Proc. 37: 127-131.

Jackson, R.E. et K.J. Inch. 1980. Hydrogeochemical processes affecting the migration of radionuclides in a fluvial sand aquifer at the Chalk River Nuclear Laboratories. Rapport n° 7 de l'INRH, Ottawa (Ont.), 58 p.

Jackson, R.E. et K.J. Inch. 1983. Partitioning of ^{90}Sr among aqueous and mineral, species in a contaminated aquifer. Environ. Sci. Technol. 17(4): 231-237.

Killey, R.W.D. 1982. Groundwater transport of reactive contaminants near the CRNL waste management area: some realities. Dans International Conference on Radioactive Waste Management, Winnipeg (Man.), Can. Nucl. Society, p. 502-509.

Kinniburgh, D.G., J.K. Syers et M.L. Jackson. 1975. Specific adsorption of trace amounts of calcium and strontium by hydrous oxides of iron and aluminum. Soil Sci. Soc. Am. Proc. 39: 464-470.

Krinsley, D.H. et J. Donahue. 1968. Environmental interpretation of sand grain surface textures by electron microscopy. Geol. Soc. Am. Bull. 79: 743-748.

Krinsley, D.H. et P.W. Hyde. 1971. Cathodoluminescence studies of sediments. Scanning Electron Microsc. 1971, Partie 1, p. 409-416.

Krinsley, D.H. et J.C. Doornkamp. 1973. *Atlas of Quartz Sand Textures*. Cambridge University Press, Cambridge, Angleterre, 91 p.

Lyon, K.E. 1981. Retention of ^{137}Cs and ^{90}Sr by mineral sorbents in a shallow sand aquifer. Thèse de M.Sc., Université Queen's, Kingston (Ont.), Canada, 262 p.

Melnyk, T.W., F.B. Walton et L.H. Johnson. 1984. High-level waste glass burial test: leaching and migration of fission products. Dans Nuclear and Chemical Waste Management, vol. 5, Pergamon Press Ltd., p. 49-62.

Merritt, W.F. 1971. Identification and measurement of trace elements in fresh water by neutron activation. Dans Proc. of the international symposium on identification and measurement of environmental pollutants, Conseil national de recherches du Canada, Ottawa (Ont.), p. 358-362.

Merritt, W.F. 1976. The leaching of radioactivity from highly radioactive glass blocks buried below the water table: Fifteen years of results. Énergie atomique du Canada Limitée, AECL-5317, Chalk River (Ont.), 10 p.

Merritt, W.F. et P.J. Parsons. 1964. The safe burial of high-level fission product solutions incorporated into glass. Health Phys. 10: 655-664.

Moorehouse, W.W. 1959. *The Study of Rocks in Thin Section*. Harper & Row, Publishers, New York, N.Y., 514 p.

Murray, J.W. 1975. The interaction of metal ions at the manganese dioxide — solution interface. Geochim. Cosmochim. Acta, 39: 505-519.

Ophel, I.L. 1973. The environmental capacity of freshwaters for waste radionuclides. Dans Environmental Behaviour of Radionuclides Released in the Nuclear Industry, IAEA-SM-172/45, Vienne, Autriche, p. 613-624 (Énergie atomique du Canada Limitée, AECL-4742, Chalk River, Ont.).

Ophel, I.L., C.D. Fraser et J.M. Judd. 1972. Strontium concentration factors in biota and bottom sediments of a freshwater lake. Dans Radioecology Applied to the Protection of Man and His Environment, Commission of the European Communities, EUR-4800, Luxembourg, p. 509-530.

Patterson, R.J. 1979. Progress report for the project "Geochemical controls on the mobility of radionuclides in the shallow groundwater flow system, Chalk River, Ont." Département des sciences géologiques, Université Queen's, Kingston (Ont.), 27 p.

Patterson, R.J. et T. Spoel. 1981. Laboratory measurements of the strontium distribution coefficient K_d^{Sr} for sediments from a shallow sand aquifer. Water Resour. Res. 17(3): 513-520.

Patterson, R.J., S.K. Frape, L.S. Dykes et R.A. McLeod. 1978. A Coring and squeezing technique for the detailed study of subsurface water chemistry. Can. J. Earth Sci. 15: 162-169.

Pickens, J.F., W.F. Merritt et J.A. Cherry. 1980. Field determination of the physical transport parameters in a sandy aquifer. Dans The Use of Nuclear Techniques in Water Pollution Studies, IAEA, Vienne, Autriche, p. 239-265.

Pickens, J.F., R.E. Jackson, K.J. Inch et W.F. Merritt. 1981. Measurement of distribution coefficients using a radial-injection dual-tracer test. Water Resour. Res. 17(3): 529-544.

Powers, M.C. 1953. A new roundness scale for sedimentary particles. J. Sed. Pet. 23: 117-119.

Reineck, H.E. et I.B. Singh. 1973. *Depositional Sedimentary Environments*. Springer-Verlag, New York, N.Y., 439 p.

Rodgers, G.P. et H.D. Holland. 1979. Weathering products within microcracks in feldspars. Geology, 7: 278-280.

Sawhney, B.L. 1970. Potassium and cesium ion selectivity in relation to clay mineral structure. Clays Clay Miner. 18: 47-52.

Snedecor, G.W. et W.G. Cochran. 1967. *Statistical Methods*. Iowa State University Press, Ames, IA, 594 p.

Tamura, T. 1964. Reactions of cesium-137 and strontium-90 with soil minerals and sesquioxides. Eighth International Congress of Soil Chemistry, 3: 465-478.

Tamura, T. 1965. Selective sorption reactions of strontium with soil minerals. Nucl. Saf. 7: 99-103.

Tamura, T. et E.G. Struxness. 1963. Reactions affecting strontium removal from radioactive wastes. Health Phys. 9: 667-704.

Walker, T.R., B. Waugh et A.J. Crone. 1978. Diagenesis in first-cycle desert alluvium of Cenozoic age, southwestern United States and northwestern Mexico. Geol. Soc. Am. Bull. 89: 19-32.

Walton, F.B. et W.F. Merritt. 1979. Long-term extrapolation of laboratory glass leaching data for the production of fission product release under actual groundwater conditions. Dans Scientific Basis for Nuclear Waste Management, vol. 2. Préparé par G.J. McCarthy, Plenum Press, New York, N.Y., p. 155-166.

Wang, H.F. et M.P. Anderson. 1982. *Introduction to Groundwater Modeling, Finite Difference and Finite Element Methods*. W.M. Freeman and Company, San Francisco (Californie).