HAL
open science

Processus engagés dans la rémanence, au niveau du compartiment atmosphérique, des radionucléides artificiels antérieurement déposés

Damien Piga

To cite this version:

Damien Piga. Processus engagés dans la rémanence, au niveau du compartiment atmosphérique, des radionucléides artificiels antérieurement déposés. Océan, Atmosphère. Université du Sud Toulon Var, 2010. Français. NNT : 2010TOUL0012 . tel-00609509

HAL Id: tel-00609509

https://theses.hal.science/tel-00609509v1

Submitted on 19 Jul 2011

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

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

Université du Sud Toulon Var
Ecole doctorale Sciences Fondamentales et Appliquées

Thèse en vue de l'obtention du titre de Docteur d'Université

par DAMIEN PIGA

*

Processus engagés dans la rémanence au niveau du compartiment atmosphérique des radionucléides artificiels antérieurement déposés

*

Commission d'examen :

Jean-Luc Jaffrezo (LGGE, Grenoble)
Gilles Bergametti (LISA, Créteil)
Denis Boulaud (IRSN, Le Vésinet)
José-Maria Baldasano (BSC, Barcelone)
Jacques Piazzola (LSEET, La Garde)
Serge Despiau-Pujo (LSEET, La Garde)
Olivier Masson (IRSN, Cadarache)

A ma femme,

à ma fille.

Remerciements

Je remercie tout d'abord Gilles Bergametti, Jean-Luc Jaffrezo, Denis Boulaud, José Maria Baldasano ainsi que Jacques Piazzola d'avoir accepté d'évaluer et de donner leurs avis scientifiques sur mes travaux.

Je souhaite également remercier Serge Despiau-Pujo pour avoir dirigé mes trois années de thèse et m'avoir transmis son intérêt pour ces petites particules en suspension. Lors de nos multiples entretiens et discussions, il aura été d'un conseil précieux pour cadrer l'ensemble de mes travaux.

Un grand merci à Olivier Masson pour m'avoir fait confiance toutes ces années, pour avoir su me donner envie de m'investir dans mes travaux, les avoir dirigés et encadrés, avoir partagé sa science et sa connaissance et pour m'avoir soutenu jusqu'au bout. Certaines rencontres peuvent changer une vie et la mienne aurait été tout autre sans ta confiance.

Je remercie également Philippe Renaud qui a été un chef de laboratoire exceptionnel. Je dois une grande partie de la réussite de mon étude à son soutien et sa critique scientifique.

Je voudrais remercier toutes les personnes de l'Institut qui ont de près ou de loin participer à la réalisation de mon étude. Je remercie Pascal Zavaleta et Stéphane Moreau du LEF pour avoir contribué à la réalisation de mes expériences et plus particulièrement Rodolpho Gurriaran et toute l'équipe du LMRE pour m'avoir permis de finaliser mes études.

Je souhaite également remercier toutes les équipes qui ont contribué à cette étude, notamment l'équipe du LGGE pour les mesures des filtres de la campagne de prélèvements de Dijon et l'équipe du LISA pour la fourniture d'échantillons de sol saharien.

Je remercie Philippe Fraunié et toute l'équipe du laboratoire du LSEET pour m'avoir accueilli et soutenu au moment opportun.

Pour son soutien professionnel et personnel à tout moment, pour m'avoir accompagné par tous les temps et jusque dans les endroits les plus improbables, pour m'avoir presque materné à certains moments et pour tout ce qu'il a fait pour moi, un grand merci à Pascal Paulat.

Sa patience, son écoute, son attention, son talent à résoudre tous les problèmes, son horoscope du matin devenu mythique et toutes ses qualités en font la meilleure des assistantes. Un énorme merci à Sabrina Giner.

Je tenais enfin à remercier tous les membres du LERCM pour leur partage, leur soutien, les moments fabuleux passés ensemble, et tous les échanges qui m'ont permis de m'enrichir. Merci à Laetitia d'avoir égayé les journées du labo, à Lionel pour son humour, à Franck d'avoir veillé à ma santé sportive, à Vanessa pour son éternelle bonne humeur, à Alain d'avoir renforcé le tonus de mes genoux, à Christelle, Marion, David & David, Gilles & Gillou, Fred, Vincent, Laurent, Sylvie, Philippe, et à tous ceux qui avec qui j'ai eu le plaisir de partager mes journées. Ce fut pour moi une période merveilleuse que je n'oublierai pas. Merci pour tout.

Valorisation

Communications orales

Processes involved in the persistence of ^{137}Cs in the lower atmosphere, **Piga D.**, Masson O., Despiau S., International Aerosol Conference, 29/08-03/09/2010, Helsinki, Finlande

Using radionuclides as tracers of natural process emissions, **Piga D.**, Masson O., Despiau S., Goldschmidt, *Geochimica et Cosmochimica Acta 73(13-1) 2009,* 22-26/06/2009, Davos, Suisse.

Rémanence du ^{137}Cs dans le compartiment atmosphérique, **Piga D.**, Masson O., Despiau S., 23ème Congrès Français sur les Aérosols, 16-17/01/2008, Paris.

Communications posters

Persistence of ^{137}Cs in the atmospheric compartment, **Piga D.**, Masson O., Despiau S., European Aerosol Conference, 24-29/08/2008, Thessalonique, Grèce.

Utilisation d'un radionucléide artificiel comme traceur de processus naturels d'émissions dans l'atmosphère, **Piga D.**, Masson O., Despiau S., 25ème Congrès Français sur les Aérosols, 13-14/01/2010, Paris.

Collaborations

Impact of an exceptional Saharan dust outbreak in France: PM_{10} and artificial radionuclides concentrations in air and in dust deposit. Masson O., **Piga D.**, Gurriaran R., D'Amico D. Atmospheric environment 44 (2010), 2478-2486.

Recent trends and explanation for airborne ^{137}Cs activity levels increases in France. Masson O., **Piga D.**, Mary J., Le Roux G., Gurriaran R., Renaud P., Saey L., Paulat P. Radioprotection (2009), Vol 44, n°5,327-332.

Poussières sahariennes au-dessus de la France. Metivier J-M., Masson O., **Piga D.**, Clavreul A. Conférence francophone SIG 2009, 30/09/2009-01/10/2009, Versailles.

Radionuclide labelled aerosol monitoring for resuspension studies and short to long-term post-accidental situation characterization. Masson O. **Piga D.**, Bourcier L. European Aerosol Conference, 6-11/09/2009, Karlsruhe, Germany.

Respective contribution of dust load and weighted dust concentration in enhancing airborne artificial radioactivity levels during recent Saharan dust outbreaks in France. Masson O., **Piga D.**, Paulat P., De Vismes A., Demoisson A. Goldschmidt Conference, 22-26/06/2009, Davos, Suisse.

Saharan dust over France. Metivier J-M., Masson O., **Piga D.**, Clavreul A. StatGIS 09, 17-19/06/2009, Milos Island, Grèce.

Transfert de radionucléides artificiels dans l'environnement. Ferrand, E., Besson, B., **Piga, D.**, Journée des doctorants et post-doctorants CEA, 15 juin 2009, Cadarache (13).

Recent trends and explanation for airborne ^{137}Cs activity levels increases in France. Masson O., **Piga D.**, Mary J., Le Roux G., Gurriaran R., Renaud P., Saey L., Paulat P. International Conference on Radioecology and Environmental Radioactivity, 15-20/06/2008, Bergen, Suède.

50 ans de suivi des niveaux d'activité dans les aérosols en France. Masson O., De Vismes A., Saey L., Cagnat X., Paulat P., Mekhlouche D., **Piga D.**, Aubry S., Le Prieur F., D'Amico D. Congrès SFRP 15-18/06/09, Angers.

Persistence of ^{137}Cs in atmospheric compartment : biomass burning impact. Masson O., **Piga D.**, Colloque ADEME, 08-09/12/2008, Nancy.

A tool for the survey of low level radiological and natural events in the atmosphere. Masson O., **Piga D.**, EUROSAFE 2008, 03-04/11/2008, Paris.
Transfert de radionucléides artificiels dans l'environnement. Ferrand, E., Besson, B., **Piga, D.** Journée des doctorants et post-doctorants CEA, 2 septembre 2008, Cadarache.

Relationship between origin of air masses and ^{137}Cs activities in aerosols sampled in France between 2000 and 2006. Masson O., **Piga D.**, Le Roux G., Bourcier L., Saey L., Paulat P., Cagnat X. European Aerosol Conference, 09-14/09/07, Salzbourg, Autriche.

Table des matières

INTRODUCTION GENERALE 12

PREAMBULE 12

CONTEXTE GENERAL 13

CONTEXTE DE L'ETUDE 15

OBJECTIF DE L'ETUDE 15

CHAPITRE 1 : INSTRUMENTATION ET DONNEES 17

1.1 – LE RESEAU OPERA 17
1.1.1 – LES DIFFERENTS COMPARTIMENTS OBSERVES 17
1.1.2 – LES MISSIONS DU RESEAU OPERA 18
1.1.3 – LES SITES D'OBSERVATIONS 20
1.1.4 – LES EQUIPEMENTS DES STATIONS 21
1.1.5 – LES PRELEVEMENTS 24

1.2 - LES DONNEES ISSUES DU RESEAU OPERA 24
1.2.1 – LA SPECTROMETRIE GAMMA 25
1.2.2 – LES RADIONUCLEIDES MESURES 26
1.2.2.1 – Les radionucléides naturels 27
1.2.2.2 – Les radionucléides artificiels 28
1.2.3 – LES NIVEAUX D'ACTIVITE DANS L'AIR 30

1.3 – LA CHRONIQUE OPERA 32
1.3.1 – SOURCES DE CONTAMINATIONS RADIOACTIVES 32
1.3.1.1 – Les essais nucléaires 32
1.3.1.2 - Les accidents majeurs 34
1.3.1.3 – Les incidents 36
1.3.2 – L'EVOLUTION DES NIVEAUX D'ACTIVITE DES RADIONUCLEIDES ARTIFICIELS DANS LES AEROSOLS FRANÇAIS 37
1.3.3 – LES PRINCIPAUX MECANISMES DE L'EVOLUTION DES NIVEAUX D'ACTIVITE 39
1.3.4 – LES MANIFESTATIONS DE LA REMISE EN SUSPENSION 42

1.4 –DEMARCHE DE L'ETUDE 44

CHAPITRE 2 : CARACTERISATION DES VARIATIONS DES NIVEAUX D'ACTIVITE EN ^{137}CS DANS LES AEROSOLS 45

2.1 – INFLUENCES DES PARAMETRES METEOROLOGIQUES SUR LES NIVEAUX D'ACTIVITE EN CESIUM-137 46
2.1.1 – INFLUENCE DE LA PLUVIOMETRIE 46
2.1.2 – INFLUENCE DU VENT 46
2.1.3 – RELATIONS AVEC LA TEMPERATURE 47

2.2 - RELATIONS ENTRE LES NIVEAUX D'ACTIVITE EN CESIUM-137 ET DIFFERENTS COMPOSES PARTICULAIRES 48
2.2.1 - RELATIONS AVEC LE BERYLLIUM-7 48
2.2.2 - RELATIONS AVEC LE PLOMB-210 51
2.2.3 - RELATIONS AVEC LE RAPPORT BERYLLIUM-7 ET PLOMB-210 52
2.2.4 - RELATIONS AVEC LE POTASSIUM-40 53

2.2.5 – RELATIONS AVEC LA MASSE PARTICULAIRE EN SUSPENSION 54
2.2.6 – SYNTHESE DES RELATIONS ENTRE LE ^{137}CS ET DIFFERENTS COMPOSES PARTICULAIRES.....55

2.3 – INFLUENCE DE LA CONTAMINATION DES SOLS 56

2.4 – LOCALISATION DES REGIONS IMPLIQUEES DANS LA REMANENCE DU CESIUM-137 ATMOSPHERIQUE 59
2.4.1 - LES MASSES D'AIR ET LEUR ORIGINE.....59
2.4.2 – DETERMINATION DU PARCOURS DES MASSES D'AIR.....60
2.4.3 – RELATION ENTRE L'ORIGINE DES MASSES D'AIR ET LES VARIATIONS SIGNIFICATIVES DES NIVEAUX D'ACTIVITE EN ^{137}CS DANS LES AEROSOLS.....61
2.4.3.1 – Cas des augmentations significatives du niveau d'activité en ^{137}Cs 62
2.4.3.2 – Cas des diminutions significatives du niveau d'activité en ^{137}Cs 64
2.4.4 – DETERMINATION DES NIVEAUX MOYENS D'ACTIVITE EN ^{137}CS SUIVANT L'ORIGINE DES MASSES D'AIR...66
2.4.5 – APPLICATION DE LA METHODE D'ANALYSE DES TEMPS DE RESIDENCE ET DES CHAMPS DE PROBABILITE CONDITIONNELLE 67
2.4.6 – IDENTIFICATION ET HIERARCHISATION DES REGIONS SOURCES DU ^{137}CS ATMOSPHERIQUE 69
2.4.6.1 – Données et méthode 69
2.4.6.2 – Résultats pour l'activité volumique du ^{137}Cs 71
2.4.6.3 – Application aux mesures complémentaires.....74

2.5 - CONCLUSION.....78

CHAPITRE 3 : LES PARTICULES MINERALES ET L'EROSION EOLIENNE.....80

3-1 – LES EPISODES DE POUSSIERES SAHARIENNES.....80
3.1.1 – ETAT DES CONNAISSANCES SUR LES POUSSIERES SAHARIENNES.....80
3.1.1.1 – Les mécanismes d'émission des particules : l'érosion éolienne 80
3.1.1.2 – Les principales zones d'émissions de particules minérales.....82
3.1.1.3 – Les caractéristiques des particules 83
3.1.1.4 – Le transport des particules désertiques.....85
3.1.1.5 – Le dépôt des poussières sahariennes 85
3.1.1.6 – La contamination du sol saharien.....86
3.1.2 – CARACTERISTIQUES D'UN SOL SAHARIEN : CAS DU SOL DE DOUZ (TUNISIE) 87
3.1.3 – LA DETECTION DES EPISODES DE POUSSIERES SAHARIENNES.....91
3.1.3.1 – Les modèles de prévision de transport de poussières sahariennes 91
3.1.3.2 – Les images satellites.....94
3.1.3.3 – Les mesures aux sols.....94
3.1.3.4 – Calcul de rétro-panaches 97
3.1.3.5 – Recensement et tendances des évènements de poussières sahariennes.....99
3.1.4 – ETUDE DE L'EVENEMENT DU 21 FEVRIER 2004 103
3.1.4.1 – Caractérisation en empoussièrement de l'épisode 104
3.1.4.2 – Caractérisation de l'origine de l'évènement 114
3.1.4.3 – Caractérisation radioécologique de l'évènement 116
3.1.4.4 – Conclusion de la caractérisation de l'évènement.....120
3.1.5 – GENERALITE DE L'INFLUENCE DES EPISODES SAHARIENS SUR LES NIVEAUX D'ACTIVITE.....120

3.2 - AUTRES EVENEMENTS DE TRANSPORT DE POUSSIERES MINERALES.....126

3.3 – CONCLUSION 131

CHAPITRE 4 : LES INCENDIES DE FORET 132

4.1 –L'ENVIRONNEMENT FORESTIER.....133

4.2 –LES INCENDIES 134

4.3 – DETECTION DES INCENDIES 136
4.3.1 – LES BASES DE DONNEES DE RECENSEMENT 136
4.3.2 – LES OBSERVATIONS SATELLITES 138

4.4 – DETECTION DES PANACHES D'INCENDIES 139
4.4.1 – LES OBSERVATIONS SATELLITES 139
4.4.2 – LES MODELES NUMERIQUES OPERATIONNELS 139
4.4.3 – LES MESURES AU SOL 140
4.4.4 – LES SIMULATIONS NUMERIQUES 142

4.5 – ETUDE SPECIFIQUE DES INCENDIES DE 2002 143
4.5.1 – PRESENTATION DE L'EVENEMENT 143
4.5.2 – DONNEES ET METHODES 146
4.5.2.1 – Les mesures de radioactivité 146
4.5.2.2 – La simulation numérique 148
4.5.2.3 – Les mesures d'empoussièrement 150
4.5.3 – RESULTATS 152
4.5.4 – DISCUSSION 157

4.6 – ETUDE COMPLEMENTAIRE D'AUTRES EVENEMENTS 159
4.6.1 – INCENDIES EN EUROPE DE L'EST 159
4.6.2 – INCENDIES EN PACA ET CORSE 163
4.6.2.1 – Les incendies en PACA 163
4.6.2.2 – Les incendies en Corse 165
4.6.3 – INCENDIES DU POURTOUR MEDITERRANEEN 166

4.7 - CONCLUSION 170

CHAPITRE 5 : LE BOIS DE CHAUFFAGE 171

5.1 – GENERALITES SUR LE BOIS DE CHAUFFAGE 172

5.2 - LA CONTAMINATION DU BOIS 174

5.3 – CARACTERISATION DU PROCESSUS D'EMISSION 175
5.3.1 – MATERIELS ET METHODES 175
5.3.1.1 - Les prélèvements 175
5.3.1.2 – L'installation CARINEA 177
5.3.1.3 – Les caractéristiques des différents essais 180
5.3.2 – RESULTATS 182
5.3.3 – DISCUSSION 185

5.4 – EVALUATION DE L'INFLUENCE DU NIVEAU DE VENTILATION DANS LES BASSES COUCHES DE L'ATMOSPHERE 187
5.4.1 - INTRODUCTION 187
5.4.2 – MATERIELS ET METHODES 188
5.4.2.1 – Le ^{222}Rn et ses descendants 188
5.4.2.2 – Analyse du signal de la sonde NaI 189
5.4.2.3 – Influence du vent et de la pluviométrie 193
5.4.2.4 – Relation entre le signal de la sonde NaI et les concentrations de particules en suspension 194
5.4.2.5 – La détermination du niveau de ventilation 196
5.4.3 – RESULTATS ET DISCUSSION 197

5.5 – MISE EN EVIDENCE DE L'INFLUENCE DU TRANSPORT LONGUE-DISTANCE SUR L'EVOLUTION DES NIVEAUX D'ACTIVITE EN ^{137}CS DURANT L'HIVER. 203
5.5.1 – MATERIELS ET METHODES 203
5.5.1.1 – Les sites de prélèvement 203
5.5.1.3 – Les données météorologiques 207
5.5.1.4 – La fréquence des prélèvements 211
5.5.1.5 – Les mesures 211
5.5.2 – RESULTATS 212
5.5.3 – DISCUSSION 218
5.5.4 – CONCLUSION DE L'ETUDE DE DIJON 221

5.6 – CONCLUSION 223

CHAPITRE 6 : SYNTHESE 224

6.1 – CARACTERISTIQUES DU RESEAU OPERA 224

6.2 – CARACTERISTIQUES DES DIFFERENTES STATIONS DU RESEAU OPERA 225
6.2.1 - ALENÇON 225
6.2.2 - BORDEAUX 226
6.2.3 – CHARLEVILLE-MEZIERES 226
6.2.4 – CLERMONT-FERRAND 226
6.2.5 - DIJON 227
6.2.6 – ORSAY 227
6.2.7 – PUY-DE-DOME 227
6.2.8 – LA SEYNE-SUR-MER 228

6.3 – CONCLUSION 231

CONCLUSION 232

BIBLIOGRAPHIE 236

Introduction générale

Préambule

L'exposition aux rayonnements naturels est en grande partie provoquée par les radionucléides primordiaux et leurs descendants, présents lors de la formation de la Terre et dont les périodes de décroissances radioactives sont suffisamment longues pour permettre, encore aujourd'hui, leur existence dans notre environnement. Ces radionucléides primordiaux, qualifiés de telluriques en raison de leur présence au sein de la croute terrestre, sont l'uranium-238, l'uranium-235 et le thorium-232 ainsi que le potassium-40. La radioactivité naturelle résulte également du bombardement des atomes de l'atmosphère sous l'effet de ces rayons cosmiques, donnant naissance par exemple au carbone-14, constamment renouvelé.

L'exposition aux rayonnements dits artificiels résulte quant à elle de la production de radionucléides par réaction nucléaire provoquée par l'Homme. Ces radionucléides existaient déjà lors de la création de l'Univers mais ont progressivement disparu en raison de leur période de décroissance radioactive plus courte. La découverte de la radioactivité d'origine artificielle revient à Frédéric et Irène Joliot-Curie en 1934.

Dans le même temps apparait la notion de « radioécologie », discipline dédiée à l'étude des radionucléides dans l'environnement. La radioécologie aspire dès lors à détecter la présence de radionucléides, d'origine naturelle ou artificielle, dans l'environnement, à rechercher leurs origines, à comprendre leurs processus de transfert et de concentration dans les différents écosystèmes et à évaluer l'impact des niveaux de radioactivité résultants sur l'environnement et également sur les populations.

Les différentes activités anthropiques mettant en œuvre des substances radioactives sont susceptibles de rejeter des radionucléides dans l'environnement au travers de rejets autorisés, d'incidents d'exploitation ou d'accidents, d'abandon de déchets, d'actes malveillants ou autre. Il est donc indispensable de surveiller et d'étudier le devenir des substances radioactives dans l'environnement afin de posséder une connaissance fondamentale permettant d'appréhender les conséquences de rejets de radionucléides. En France, le principal organisme public intervenant dans le domaine de la radioécologie est l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN). Dans le cadre de ses activités de recherche et d'expertise, les études de radioécologie qui y sont menées se consacrent à l'observation, l'expérimentation et la modélisation des transferts de radionucléides dans l'ensemble des compartiments de l'environnement (atmosphère, compartiment terrestre, faune, flore, milieu marin…) avec pour finalité de caractériser l'impact des substances radioactives rejetées.

La Direction de l'Environnement et de l'Intervention (DEI) au sein de l'IRSN est ainsi chargée de plusieurs missions relatives aux études radioécologiques. Cette direction assure notamment les missions de recherches et d'expertise sur l'évolution spatiale et temporelle de la radioactivité dans l'environnement au travers du Service d'Etude et de Surveillance de la Radioactivité dans l'Environnement (SESURE). Les études menées ont pour objectifs d'établir les contributions des

différentes sources de radionucléides, d'identifier et de quantifier les mécanismes physiques, chimiques et biologiques qui expliquent l'état radiologique de l'environnement et également d'évaluer la sensibilité des différents milieux affectés directement ou indirectement par des apports de radionucléides. Le SESURE intègre également le Laboratoire d'Etudes Radioécologiques en milieux Continental et Marin (LERCM) dont une des activités s'attache à mener des études expérimentales *in situ* et des recherches portant d'une part sur la description, l'analyse, la compréhension, et la prévision de la distribution et des transferts des radionucléides de leurs sources d'émissions jusqu'à l'Homme. Ces études permettent également d'anticiper, par la connaissance des évènements majeurs influant sur la distribution de la radioactivité, les valeurs maximales potentielles des niveaux de radioactivité dans l'environnement, et assurent d'autre part le développement et le maintien des connaissances sur l'état de la radioactivité dans l'environnement.

Bien que l'utilisation de la radioactivité artificielle dans les différents domaines civils et militaires soit bien maitrisée en raison des connaissances scientifiques acquises et de la culture de la sûreté nucléaire, la nécessité d'anticiper les conséquences de tout évènement radiologique impose de comprendre et de maitriser l'ensemble des processus impliqués dans l'évolution des niveaux d'activité résultants.

Contexte général

Afin d'assurer une certaine indépendance énergétique et militaire, la France dispose sur son territoire d'un grand nombre d'installations et systèmes nucléaires, à vocation civile ou relevant de la défense.

Une partie de ces installations concernent directement l'industrie électronucléaire, produisant actuellement plus de 450 TWh, soit près de 78 % de la production électrique nationale. La France est l'un des rares pays regroupant sur son territoire l'ensemble des compétences et des installations permettant la conversion, l'enrichissement, la fabrication, le traitement et le recyclage des matières nucléaires. L'industrie électronucléaire française regroupe ainsi d'une part les centrales nucléaires (actuellement 19 en fonctionnement) représentant un total de 58 réacteurs utilisant l'eau pressurisée comme fluide caloporteur, des usines du cycle du combustible, au nombre de 5 et assurant l'ensemble des opérations concomitantes à la production d'électricité, de l'extraction du minerai d'uranium à la fabrication du combustible puis de son utilisation dans le réacteur jusqu'à son traitement, son recyclage et son élimination définitive, et enfin les centres de stockage des déchets activés dans le cœur des réacteurs, résultants de l'exploitation et de l'entretien des centrales nucléaires ou issus du démantèlement des centrales nucléaires les plus anciennes.

Au parc électronucléaire français s'ajoute le secteur industriel utilisant des sources de rayonnements ionisants pour diverses applications telles que l'irradiation industrielle de dispositifs médicaux permettant leur stérilisation ou d'aliments pour améliorer leur conservation, la radiographie industrielle pour contrôler l'homogénéité des métaux et des cordons de soudure,

l'utilisation de traceurs radioactifs, le contrôle de paramètres tels que l'empoussièrement de l'air… Le secteur médical utilise également des sources de rayonnements ionisants avec près de 50 000 installations de radiodiagnostic médical et dentaire, 300 unités de médecine nucléaire et environ 400 appareils de radiothérapie recensés en France.

Dans le cadre d'activités relatives à la défense, certains sites militaires exploitent l'énergie nucléaire dans le domaine de la propulsion des sous-marins et des porte-avions et des armes des forces nucléaires stratégiques. Ces activités, administrées par le ministère de la défense, sont soumises aux mêmes normes et règlementations que les exploitations civiles et placées sous le contrôle de l'Autorité de Sureté Nucléaire de Défense (ASND).

A l'échelle internationale, de nombreux pays utilisent l'énergie nucléaire dans le cadre d'activités civiles ou militaires. Ainsi, 437 réacteurs nucléaires sont opérationnels à travers le monde, répartis dans 31 pays et produisant un total de 2 558 TWh et plusieurs autres sont en cours de construction (AIEA, 2009).

Sous le contrôle de l'Autorité de Sureté Nucléaire (ASN) pour le territoire français et des autorités compétentes dans les différents pays nucléarisés, les installations nucléaires sont autorisées à rejeter de manière contrôlée des radionucléides dans les fleuves, les mers et l'atmosphère. Les principaux radionucléides concernés par ces rejets sont : le tritium, le carbone-14, le cobalt-60, le manganèse-54, le strontium-90, le ruthérium-106, l'argent-110, l'antimoine-124 et l'antimoine-125, l'iode-129 et l'iode-131 et le césium-137 pour les effluents liquides et le tritium, le carbone-14, le krypton-85, l'iode-129 et l'iode-131 et le xénon-133 pour les effluents gazeux (IRSN, 2004). L'ordre de grandeur de la dose moyenne annuelle des expositions occasionnées par les rejets d'une centrale nucléaire en France est ainsi de 0.002 mSv. Cette valeur est à rapprocher de la dose moyenne annuelle d'exposition aux rayonnements ionisants d'origine naturelle qui, en France, est de 2 mSv.

Bien que le risque sanitaire occasionné par les rejets contrôlés des installations nucléaires soit limité et que les différents acteurs de la sureté nucléaire garantissent par leurs connaissances et leurs expertises une protection maximale de l'Homme et de l'environnement contre la dispersion de quantités significatives de matières radioactives, l'exploitation de cette ressource énergétique comporte un risque qu'il est nécessaire de prévenir et d'anticiper.

La présence d'installations et systèmes nucléaires sur le territoire français justifie dès lors de la préoccupation des différentes institutions des possibles conséquences sur l'environnement et les populations d'un rejet éventuel de matières radioactives anormal. L'accident de Tchernobyl en 1986 a également montré que les conséquences radiologiques et dosimétriques d'un tel évènement peuvent s'étendre bien au-delà du territoire national.

En adéquation avec les missions assignées à l'Institut de Radioprotection et de Sureté Nucléaire préalablement énoncées et de leurs déclinaisons au sein de son organisation, la nécessité de comprendre et d'expliquer l'évolution des concentrations des radionucléides artificiels dans l'environnement afin de pouvoir appréhender, anticiper et maitriser les conséquences d'un éventuel rejet anormal apparait de manière manifeste et légitime.

Contexte de l'étude

Par le passé des quantités significatives de radionucléides artificiels ont été rejetés dans l'environnement lors de différents évènements. Tout ou partie de ces radionucléides a progressivement disparu, en relation avec leur période de décroissance radioactive. Suivant leurs propriétés physico-chimiques, les radionucléides restants se sont intégrés aux différents écosystèmes.

Actuellement, les mesures provenant de la surveillance de l'environnement opérée par les laboratoires de l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire sur le territoire français mettent en évidence une persistance de la contamination par les radionucléides à vie moyenne et longue dans les différents compartiments de l'environnement. Bien que ces niveaux de contamination détectés ne présentent aucun risque sanitaire pour les populations en raison des très faibles valeurs obtenues, cette persistance offre un intérêt scientifique opportun permettant d'étudier le comportement et le devenir des radionucléides artificiels dans l'environnement, en relation avec les propriétés des territoires et des matrices contaminés.

Dans le contexte radiologique actuel où les rejets des différentes activités nucléaires sont négligeables, la présence de radionucléides artificiels dans le compartiment atmosphérique apparait résulter principalement de la contribution de la réalimentation de ce compartiment à partir du compartiment terrestre via des dépôts antérieurs. Ainsi, la contribution de l'ensemble de ces processus de réalimentation permet d'expliquer la rémanence de radionucléides artificiels dans l'atmosphère. Ces mécanismes de remise en suspension, terme regroupant l'ensemble des mécanismes susceptibles d'alimenter le compartiment atmosphérique à partir d'anciens dépôts au sol ou intégrés aux différents écosystèmes, participent à la cinétique de disparition de ces radionucléides. En situation post-accidentelle ou sur le long terme, leur contribution se manifeste alors par un ralentissement de la période de retour à la situation radiologique antérieure au rejet. L'atmosphère étant un milieu favorable à la dispersion des composés particulaires ainsi qu'à leur transport, ces processus peuvent également entrainer une redistribution des radionucléides artificiels initialement déposés et provoquer un marquage dit secondaire.

Objectif de l'étude

L'objectif de ces travaux est alors d'étudier les processus engagés dans la rémanence, au niveau du compartiment atmosphérique, des radionucléides artificiels antérieurement déposés afin de comprendre et d'expliquer l'évolution de leurs concentrations dans l'atmosphère.

Pour réaliser cette étude il est initialement nécessaire d'identifier les principaux processus de remise en suspension de ces radionucléides pour pouvoir ultérieurement quantifier leur contribution respective et enfin expliquer l'état radioécologique de l'atmosphère. Au final, ces travaux permettront d'améliorer la compréhension de l'évolution spatio-temporelle des radionucléides artificiels d'intérêts, de mieux appréhender l'évolution post-accidentelle à moyen et

long termes faisant suite à un rejet atmosphérique anormalement élevé et d'affiner les prévisions sur le long terme des transferts de contamination.

Conformément aux missions attribuées à l'Institut de Radioprotection et de Sureté Nucléaire et à leurs répartitions au sein de son organisation, cette étude a été réalisée au Laboratoire d'Etudes Radioécologiques en milieux Continental et Marin. Les chroniques obtenues dans le cadre de l'observation permanente de l'état radioécologique de l'environnement (réseau OPERA), dont la gestion et l'exploitation sont assurées par les équipes du LERCM, servent de base à ces travaux. Le Laboratoire de Sondages Electromagnétiques de l'Environnement Terrestre de l'Université de Toulon-Var a également apporté sa collaboration à ces travaux au travers de son expertise sur la physique de l'aérosol.

La première partie de ce manuscrit présentera l'ensemble du matériel et des mesures utilisés dans le cadre de cette étude. L'analyse de la situation radioécologique passée et actuelle permettra ensuite de préciser et de détailler les objectifs et enfin d'énoncer la démarche que suivra cette étude pour répondre aux objectifs formulés.

CHAPITRE 1 : Instrumentation et données

Les objectifs de ce travail et la démarche scientifique retenue pour l'étude des processus responsables de la rémanence atmosphérique des radionucléides artificiels antérieurement déposés, reposent sur les données des niveaux d'activité mesurés dans l'air ambiant. Ce chapitre présentera la base de données sélectionnée au travers de l'instrumentation de collecte et des moyens analytiques déployés. L'analyse temporelle de l'évolution des niveaux d'activité dans le compartiment atmosphérique permettra ensuite de déterminer la période d'étude adaptée aux objectifs et justifiera de la sélection d'un radionucléide artificiel spécifique, le césium-137 pour réaliser cette étude. Enfin, la démarche scientifique retenue pour répondre aux interrogations suscitées sera détaillée.

1.1 – Le réseau OPERA

L'observatoire permanent de la radioactivité dans l'environnement (réseau OPERA) a été créé en 1958 pour caractériser l'évolution des niveaux des principaux radionucléides rencontrés dans l'atmosphère et acquérir des éléments de compréhension sur les mécanismes impliqués dans leurs transferts. Les données recueillies dans le cadre de ce réseau ainsi que les informations résultantes ont complété celles obtenues par d'autres réseaux de surveillance à caractère règlementaire jusqu'à la fusion récente de l'ensemble de ces réseaux pour une surveillance au sens large.

1.1.1 – Les différents compartiments observés

A ces débuts en 1958, le réseau OPERA se composait de trois stations en France métropolitaine, les stations d'Orsay, Dijon et de Charleville-Mézières (initialement placée à Verdun). Ces stations étaient dédiées à l'observation du compartiment atmosphérique. Les prélèvements réalisés par ces stations concernaient les retombées atmosphériques totales ainsi que les niveaux ambiants via la collecte des particules en suspension à hauteur d'homme. Au cours du temps et dans le contexte d'expansion du parc électronucléaire français, l'observation des niveaux d'activité dans l'environnement s'est étendue aux principaux milieux de la biosphère, constituant le réceptacle des retombées atmosphériques. Ainsi, des prélèvements de sédiments et d'espèces côtières se sont généralisés sur le littoral des côtes françaises à partir de 1984. Depuis 1993, le milieu terrestre est également observé au moyen de prélèvements de sols, de végétaux ainsi que de produits laitiers et de viandes. Enfin, ce réseau s'est étendu au domaine fluvial en 1998 avec des prélèvements d'eau et de matières en suspension. Conjointement à ces extensions, ces différents volets d'observations ont vu le nombre de leurs stations se multiplier afin d'obtenir des résultats représentatifs des principales zones géographiques, climatiques ou hydrologiques du territoire français.

Au total, plus de 35 stations ont été implantées sur tout le territoire métropolitain afin de suivre l'évolution des niveaux d'activité dans l'environnement français. La figure 1-1 illustre cette répartition en localisant les stations des différents observatoires en métropole. Le réseau OPERA s'étend également aux territoires extérieurs à la métropole avec des stations atmosphériques implantées à la Réunion et à Tahiti. Dans le cadre de notre étude, seules les données issues des prélèvements atmosphériques seront exploitées pour l'étude de la rémanence atmosphérique de radionucléides artificiels.

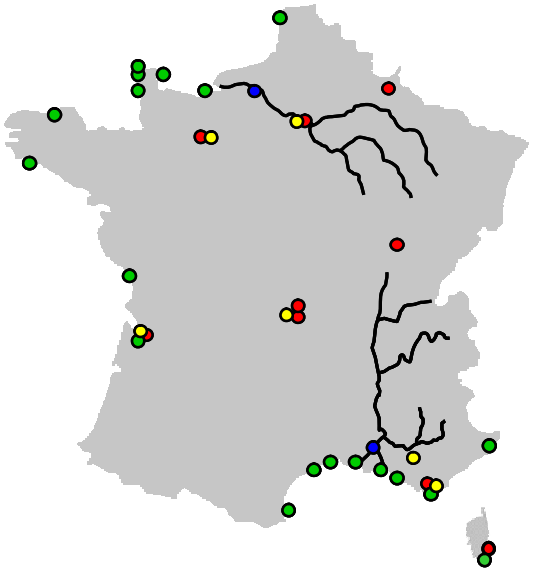


Figure 1-1 : Localisation des stations des différents observatoires de la radioactivité dans l'environnement en France métropolitaine. Les cercles vert représentent les implantations du réseau marin, en bleu celles du réseau fluvial, en jaune les stations de l'observatoire terrestre et en rouge les stations atmosphériques.

1.1.2 – Les missions du réseau OPERA

Le but initial du réseau OPERA lors de sa création en 1958 était d'identifier les essais nucléaires atmosphériques réalisés par les différentes nations via la collecte des retombées atmosphériques. L'obtention de chroniques sur des échelles de temps relativement longues a rapidement permis de dépasser cet objectif initial de renseignement en offrant l'opportunité de suivre sur le long terme les évolutions des niveaux d'activité de différents radionucléides artificiels ou naturels. Ces chroniques servent ainsi de base à de nombreuses études et projets de recherche ayant pour objectifs d'améliorer la connaissance sur les processus régissant les distributions spatio-temporelles et les transferts des radionucléides d'origine naturelle ou artificielle dans les différents milieux de l'environnement.

Un objectif complémentaire également recherché dans le cadre de ce réseau est de déterminer les niveaux d'activité constituant l'état de référence représentatif du bruit de fond ambiant dans les différents compartiments de l'environnement. Pour mener à bien cette mission, l'IRSN s'est efforcé au cours du temps d'adapter ses dispositifs de collecte, de traitements et de

mesure de manière à disposer le plus fréquemment possible de résultats significatifs et ce, malgré une constante diminution des niveaux d'activité ambiants, en raison notamment de règlementations plus restrictives concernant les rejets.

Récemment, la partie atmosphérique du réseau d'observation de la radioactivité dans l'environnement a vu son champ d'action élargi en intégrant l'ensemble des autres réseaux de surveillance déployé par l'IRSN sur le territoire français. Ces différents réseaux se différencient principalement par leur sensibilité ainsi que par leur réactivité due à la nature des équipements déployés. Le premier de ces réseaux, le réseau TELERAY dédié à la détection et à l'alerte d'accidents, est composé de sondes mesurant en temps réel et en continu le débit de dose induit par le rayonnement gamma de l'air ambiant. Les 164 balises qui le composent sont déployées près des sites nucléaires ainsi que sur les toits des préfectures de la plupart des départements français et sur quelques sommets montagneux. Sa mission première étant la surveillance en continu du débit de dose ambiant, ce réseau se doit d'être très réactif. Ce dispositif d'alerte permet une détection en temps réel des évènements significatifs avec une limite de détection de l'ordre de 10^{-1} Bq.m^{-3}. En complément de ce réseau de télésurveillance, le réseau AS composé de 44 stations, est utilisé pour caractériser une situation accidentelle. Ses stations collectent les aérosols ambiants sur des filtres journaliers avec un débit de l'ordre de 10 m^3.h^{-1}. Les filtres en fibres de cellulose (mélange de fibres de verre et de cellulose depuis 2010) sont ensuite envoyés en laboratoire pour réaliser la mesure du niveau d'activité. De part son principe de fonctionnement, ce réseau ne dispose pas d'une grande réactivité mais permet de mesurer des niveaux ambiants significativement plus faibles que le premier réseau décrit précédemment, de l'ordre de 10^{-3} à 10^{-4} Bq.m^{-3}. Ce réseau bénéficie d'une densité relativement importante ainsi que d'une proximité aux sites nucléaires et la possibilité de discrétiser un évènement avec un pas de temps journalier. Enfin, le réseau OPERA, avec des stations fonctionnant de 350m^3.h^{-1} à 700m^3.h^{-1} pour la dernière génération, offre la plus grande sensibilité avec des limites de détection pouvant être inférieures à 10^{-7} Bq.m^{-3}. Ce gain est obtenu au détriment de sa réactivité puisque les prélèvements se font sur des durées relativement longues, 5 jours en moyenne, et que la mesure des prélèvements obtenus nécessite des durées de comptage importantes, soit *a minima* 48 heures.

L'ensemble de ces réseaux permet alors d'appréhender et de caractériser une large gamme de situations allant du bruit de fond ambiant jusqu'à une situation accidentelle, grâce d'une part à un compromis variable entre la sensibilité et la réactivité et d'autre part à une optimisation de la couverture spatiale du territoire français (Figure 1-2).

Au vue de la situation radioécologique actuelle, seuls les prélèvements réalisés par les stations de collecte du réseau OPERA permettent d'obtenir régulièrement des mesures significatives. Dans la suite de notre étude, nous n'exploiterons donc que les données issues de ce réseau d'observation.

Figure 1-2 : Localisation des stations composant les différents réseaux de la surveillance atmosphérique déployés par l'IRSN (en haut à gauche: réseau TELERAY, en haut à droite: réseau AS, en bas: réseau OPERA)

1.1.3 – Les sites d'observations

Le réseau d'observation permanente de la radioactivité dans l'atmosphère est donc composé de 10 stations, dont une seule actuellement implantée dans l'hémisphère sud à Tahiti. Les mesures de cette station ne seront pas exploitées dans le cadre de ce travail dû en partie à un niveau ambiant résiduel d'origine artificielle significativement inférieur et également en raison de la diversification des processus impliqués localement dans la rémanence de cette radioactivité. Sur les dix dernières années, la moyenne du niveau ambiant résiduel d'origine artificielle y est un ordre de grandeur plus faible que la moyenne métropolitaine. La station implantée en Corse n'ayant démarrée que très récemment, les données acquises ne sont pas exploitées dans le cadre de ce travail. Notre étude se limitera ainsi aux données acquises par les 8 stations restantes implantées sur le continent. Ces stations atmosphériques ont été réparties afin d'être représentatives des grandes influences climatiques. La table 1-1 donne leurs principales caractéristiques.

	Latitude (° Nord)	Longitude (° Est)	Altitude (mètres)	Démarrage	Environnement
Alençon	48.45	0.12	144	1977	Périurbain
Bordeaux-Mérignac	44.83	-0.68	0	Mai – 1968	Urbain
Charleville-Mézières	49.78	4.63	150	Janvier – 1959	Périurbain
Clermont-Ferrand	45.73	3.1	685	Novembre - 2004	Rurale
Dijon	47.35	5.05	270	1960	Urbain
Orsay	48.7	2.18	100	1958	Périurbain
Puy-de-Dôme	45.8	2.97	1465	Novembre – 2004	Bruit de fond régional
Seyne-sur-Mer	43.1	5.88	0	Avril – 1988	Urbain

Table 1-1 : Caractéristiques des sites de prélèvement du réseau OPERA

1.1.4 – Les équipements des stations

Chacune des stations du réseau OPERA dispose d'un équipement intégré permettant la collecte des particules en suspension dans l'air ambiant. En raison du renouvellement en cours des stations de collecte du réseau OPERA, deux types de collecteurs ont été utilisés durant la période d'étude selon le site considéré. Le collecteur d'ancienne génération avec un débit moyen de 300 $Nm^3.h^{-1}$(1), et le collecteur de nouvelle génération, appelé « TGD » pour Très Grand Débit, qui fonctionne à un débit moyen de 700 $Nm^3.h^{-1}$. Une illustration de ces deux types de collecteurs est donnée dans la figure 1-3.

Ces collecteurs permettent de prélever l'ensemble des particules en suspension dans l'atmosphère par filtration, sans système de coupure. Les filtres utilisés sont constitués de 4 couches de polypropylène, de dimension 28 cm x 46.8 cm et de surface de filtration effective de 24.5 cm x 44.5 cm. Ces filtres présentent une efficacité de collecte de 99% pour les particules de diamètre aérodynamique supérieur à 150nm et un minimum d'efficacité de 95% pour les particules de 30nm (Figure 1-4), pour une vitesse de passage de l'ordre de 0.8 $m.s^{-1}$ correspondant à un débit de 300 $m^3.h^{-1}$.

(1) $Nm^3.h^{-1}$ = Normaux mètres cube par heure : volume rapporté aux conditions standards de pression et de température.

Figure 1-3 : Collecteurs d'ancienne génération (gauche) et de nouvelle génération TGD (droite).

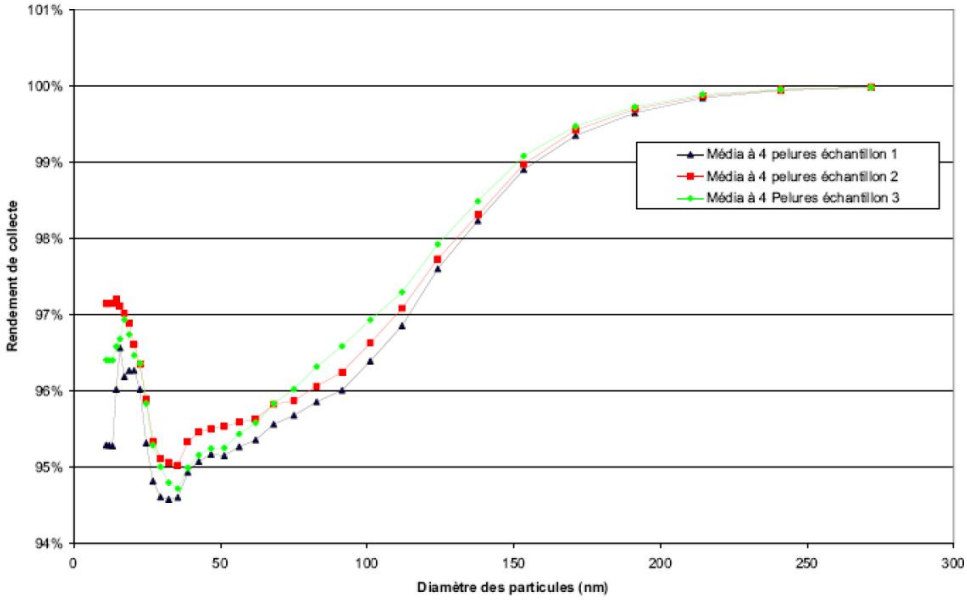


Figure 1-4 : Courbes d'efficacité des filtres de collecte en polypropylène des stations OPERA en fonction du diamètre des particules échantillonnées.

Située au-dessus du porte filtre et orientée vers le filtre de collecte, une sonde de type NaI (cristal d'iodure de sodium) réalise une mesure continue du rayonnement gamma ambiant (figure 1-5). L'objectif initial de cette mesure était de pouvoir visualiser une augmentation du rayonnement gamma au cours du prélèvement due à l'accumulation de matière sur le filtre de collecte. Cette information était destinée à l'identification d'un évènement radiologique à l'origine d'une augmentation significative du niveau d'activité au cours de la période de collecte.

Le signal d'accumulation se superposant aux variations journalières de plus fortes amplitudes liées au cycle nycthéméral de la concentration des descendants du radon, comme l'illustre la figure 1-5, cette mesure ne permet pas de délimiter ou d'identifier un épisode particulier. Cependant, la variabilité quotidienne du signal peut être utilisée pour estimer un niveau de ventilation dans les basses couches de l'atmosphère comme il en sera discuté dans la partie 5-4.

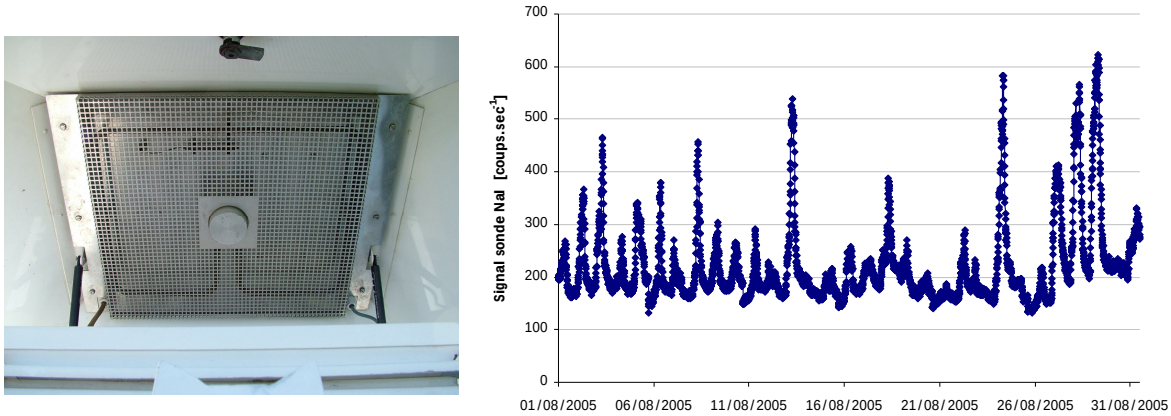


Figure 1-5 : Sonde NaI équipant les stations de collecte (gauche) et illustration du signal fourni par la sonde (droite) à la station d'Alençon entre le 1er et le 31 août 2005. Les données ont une résolution temporelle de 10 minutes et sont exprimées en nombre de coups par seconde.

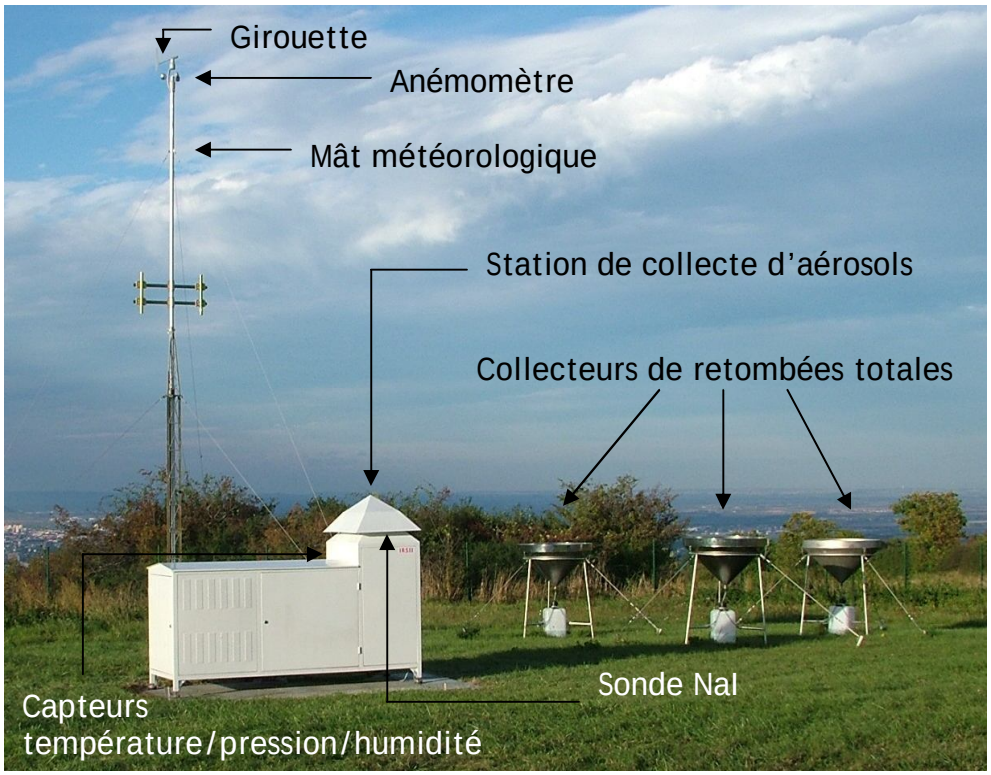


Figure 1-6 : Photographie des différents équipements composant un site de prélèvement.

En complément à la collecte d'aérosols et à la mesure du rayonnement gamma ambiant, ces stations sont également équipées de capteurs météorologiques afin de mesurer la température, la pression atmosphérique, la direction et l'intensité du vent ainsi que l'humidité relative. L'ensemble de ces données ont une résolution temporelle de 10 minutes. Les sites de prélèvements sont également équipés d'un collecteur de retombées atmosphériques totales, somme du dépôt sec et du dépôt humide. La station de La Seyne-sur-Mer est également équipée d'un collecteur découvrant afin d'isoler les retombées par temps de pluie, correspondant au dépôt humide, et permettre une

estimation de la contribution des retombées sèches sur le dépôt total. La figure 1-6 montre une photographie d'un site de prélèvement d'aérosols avec l'ensemble des équipements présentés dans cette partie.

1.1.5 – Les prélèvements

Les stations atmosphériques du réseau OPERA effectuent des prélèvements de particules en suspension à une hauteur de 1.65 m, représentative de la hauteur moyenne d'inhalation d'un adulte. Les niveaux ambiants des radionucléides artificiels étant actuellement très faibles, il est nécessaire de collecter un maximum de matière sur un même filtre pour atteindre des niveaux d'activité supérieurs aux limites de détection. Ainsi, la durée d'échantillonnage doit être la plus importante possible pour augmenter la sensibilité des mesures. A l'inverse, pour permettre une interprétation pertinente des résultats obtenus, la durée de prélèvement doit idéalement être la plus courte possible afin de discrétiser au mieux les évènements météorologiques ou radiologiques contribuant aux variations des niveaux d'activité. En raison des niveaux ambiants actuels, il est nécessaire de disposer en moyenne et en routine d'un prélèvement correspondant à la filtration d'un volume d'air d'environ 35 000 m^3 pour obtenir une mesure supérieure aux limites de détection. Les stations de prélèvement fonctionnant à un débit de 300 $m^3.h^{-1}$, ce volume correspond à une période de filtration de l'ordre de 5 jours.

Pour toutes les stations, les filtres sont remplacés les 5, 10, 15, 20, 25 et le dernier jour de chaque mois. Pour les mesures en routine, deux filtres contigus sont placés simultanément sur le détecteur afin d'optimiser le nombre de mesures significatives. La fréquence d'acquisition des niveaux de radioactivité dans les aérosols est ainsi en routine de 10 jours. Rétrospectivement, chacun des filtres peut ensuite être mesuré séparément afin de permettre une étude particulière sur une base temporelle demi-décadaire.

1.2 - Les données issues du réseau OPERA

Deux types de mesures sont réalisés sur les échantillons obtenus à partir des prélèvements des stations OPERA. Une première détermination gravimétrique est réalisée par la pesée des filtres avant et après exposition sous des conditions de température et d'humidité similaires (24 heures en étuve à 40 °C). Cette mesure, réalisée en routine depuis mars 2007, permet d'estimer la masse totale de particules en suspension prélevée durant l'échantillonnage. Le second type de mesure consiste à déterminer les niveaux d'activité de différents radionucléides présents dans l'échantillon par spectrométrie gamma.

1.2.1 – La spectrométrie gamma

La mesure de l'échantillon est confiée au Laboratoire de mesure de la radioactivité dans l'environnement (LMRE) de l'IRSN (DEI/STEME/LMRE) à Orsay (91), où les filtres sont réceptionnés et conditionnés. Ce laboratoire dispose d'une batterie de détecteurs entourés de plomb archéologique de très faible activité, eux-mêmes située dans une salle de mesure blindée par un mur de briques de plomb de faible activité intrinsèque, d'une épaisseur de 10 cm et recouvert de plaques de cuivre électrolytique de 0.5 cm d'épaisseur, le tout situé au deuxième sous-sol du bâtiment sous une dalle de béton pleine de 3 m d'épaisseur. Ce dispositif permet de limiter en partie l'impact du rayonnement cosmique sur la mesure réalisée. Pour optimiser les limites de détection, l'air des salles de mesures est ventilé et filtré en permanence à partir d'une prise d'air faite à une hauteur d'une dizaine de mètres, afin de réduire la concentration en radon et celle de ses descendants. Dans le cas d'échantillons de très faibles activités, la mesure est réalisée au Laboratoire Souterrain de Modane (LSM) où la protection vis-à-vis du rayonnement cosmique est assurée par une épaisseur de roche d'environ 1 700 m.

Chaque filtre de prélèvement est thermocomprimé puis conditionné avec un second filtre contigu dans une géométrie de 60 ml, géométrie standard du LMRE pour laquelle existe un étalon en résine équivalent eau, provenant du Laboratoire des Etalons et Intercomparaison de l'IRSN (DEI/STEME/LEI). Les filtres conditionnés sont mesurés sur l'un des 7 détecteurs du LMRE. Leurs caractéristiques en efficacité relative, résolution et bruit de fond sont reportées dans la table 1-2.

L'analyse par spectrométrie gamma permet une mesure quantitative de plusieurs radionucléides présents dans l'échantillon prélevé. Le principe général de cette technique consiste à mesurer les émissions de photons gamma issus des désintégrations radioactives. Chaque radionucléide ayant une énergie d'émission caractéristique, les spectres en énergie obtenus permettent de quantifier leur concentration. Un exemple de spectre obtenu par spectrométrie gamma est donné dans la figure 1-7. Sur ce spectre, il est possible de distinguer le pic caractéristique du Plomb-210 à 46 keV ainsi que celui du Béryllium-7 à 477 keV et également quelques raies caractéristiques de la radioactivité naturelle ambiante à 1 460 keV pour le Potassium-40, 2 614 keV pour le Thallium-208, 911 keV pour l'Actinium-228 ou encore le Bismuth-214 à 609 keV, puisque ce détecteur ne se trouve pas dans la salle blindée qui protège de cette radioactivité ambiante. Le pic aux alentours de 662 keV correspondant à la détection du césium-137 à partir de la raie d'émission gamma du baryum-137 métastable avec lequel il est en équilibre. Les spectres obtenus par les différents détecteurs sont ensuite analysés à l'aide du logiciel Genie 2000 de Canberra. Pour finir, deux facteurs de correction sont appliqués aux activités obtenues : un facteur de correction de l'auto-atténuation, calculé à l'aide du logiciel Gammatool, et un facteur de correction de coïncidences calculé avec le logiciel GeSpeCor.

Les temps de comptage sur les détecteurs sont compris entre 160 000 et 480 000 secondes. Les limites de détection typiques ainsi obtenues sont pour le césium-137 de 0.1 $\mu Bq.m^{-3}$ et de 0.05 $\mu Bq.m^{-3}$ pour les mesures à Modane.

Nom	Fabricant	Type de détecteur	Localisation	Efficacité relative (%)	Résolution (keV)			BdF (min^{-1})
					à 59 keV	à 661 keV	à 1332 keV	
59C	Canberra	BEGe	LMRE salle blindée	59	0.6	1.2	1.7	~ 40-50 (*)
61C	Canberra	BEGe	LMRE salle blindée	61	0.6	1.2	1.7	~ 40-50 (*)
54O	Ortec	Profile X	LMRE salle blindée	54	0.6	1.2	1.7	~ 40-50 (*)
55O	Ortec	Profile X	LMRE salle blindée	55	0.6	1.2	1.7	~ 40-50 (*)
51C	Canberra	Coaxial type N avec système anti-Compton (NaI)	LMRE	51	0.9	1.4	1.8	6 (**)
64O	Ortec	Coaxial type N avec système anti-cosmique (scintillateurs plastique)	LMRE	64	0.9	1.4	1.9	10 (**)
52E	Eurysis	Coaxial type N	LSM	52	1.0	1.4	1.9	0.2 (*)

(*) : sur la gamme 30 – 1 600 keV.
(**) : sur la gamme 30 – 2 700 keV.

Table 1-2 : Caractéristiques des détecteurs du LMRE utilisés pour la mesure des filtres d'aérosols des stations OPERA.

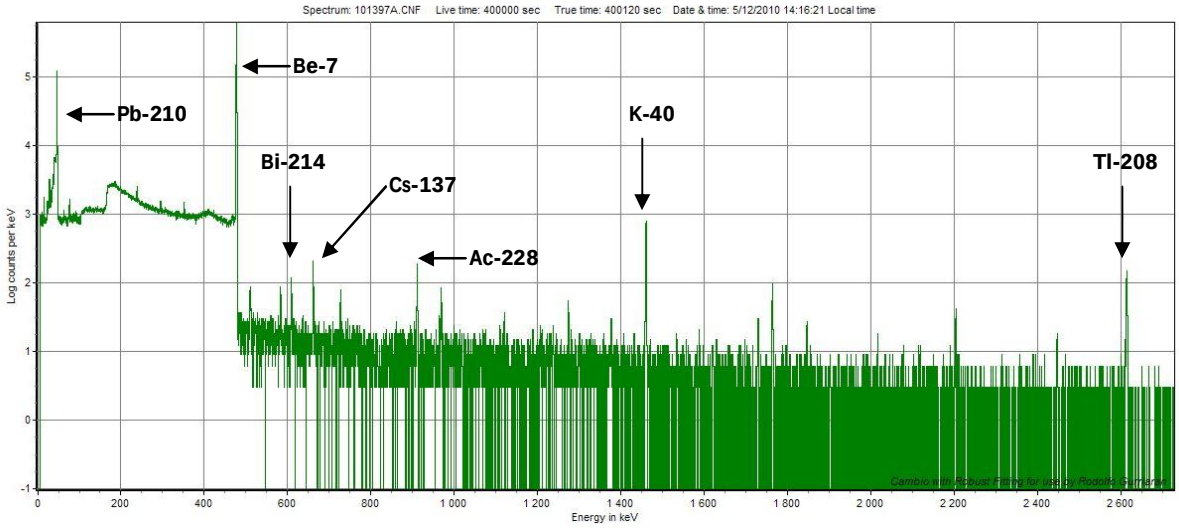


Figure 1-7 : Spectre obtenu sur la voie anti-coïncidence du système anti-Compton (51C) en 400 000 secondes.

1.2.2 – Les radionucléides mesurés

L'analyse par spectrométrie gamma permet de mesurer directement ou indirectement les niveaux d'activité de plusieurs radionucléides d'origine naturelle ou artificielle présentés ci-après. Les énergies d'émission des raies gamma données dans les parties suivantes correspondent aux pics d'énergie utilisés pour leur détection.

1.2.2.1 – Les radionucléides naturels

Le béryllium-7, radionucléide à vie courte ($T_{1/2}$ = 53.3 jours), a une raie d'émission caractéristique à 477.6 keV. Il est formé dans la haute atmosphère par des réactions de spallation[2] entre les rayons cosmiques et les molécules de N, O et C présentes dans l'atmosphère. Se formant principalement dans la stratosphère, à 67 % contre 33 % dans la troposphère, ce radionucléide est utilisé pour étudier les échanges entre ces deux couches atmosphériques (Gerasopoulos et al., 2001 ; Abe et al., 2009). Sa concentration est fonction de l'altitude et dépend également de la latitude (Kulan et al., 2006). Le taux de formation de ce radionucléide présente un cycle de 11 années à rapprocher du cycle solaire et de son activité, ces deux cycles se trouvant être en opposition de phase (Kulan et al., 2006). Le taux de formation du ^{7}Be est alors corrélé à l'intensité des rayons cosmiques à l'origine de sa formation. Après sa formation, ce radionucléide se trouve attaché aux aérosols ambiants dans le mode accumulation (Papastefanou et Ioannidou, 1996 ; Winkler et al., 1998 ; Papastefanou, 2006) et atteint la surface terrestre principalement par dépôt humide (Caillet et al., 2001 ; Likuku, 2006 ; Duenas et al., 2009). Sous nos latitudes, sa concentration dans l'air présente également un cycle annuel, avec un maximum au printemps et à l'été, dû à une fréquence plus importante des intrusions d'air stratosphérique à cette période et un mélange vertical dans les basses couches plus efficace (Ioannidou et al., 2005 ; Kulan, 2006 ; Valles et al., 2009 ; Duenas et al., 2009).

Le sodium-22 est un émetteur gamma (1 275 keV) à vie longue ($T_{1/2}$ = 2 605 ans). Ce radionucléide a principalement une origine cosmogénique et se forme par réaction de spallation entre les rayons cosmiques et l'argon dans la haute atmosphère. Sa concentration dans les basses couches peut également être utilisée pour étudier la dynamique des processus atmosphériques (Tokuyama et Igarashi, 1998 ; Jasiulionis et Wershofen, 2005).

Le potassium-40 est un élément primordial et émetteur gamma (1 460 keV) à vie très longue ($T_{1/2}$ ~ 10^9 ans). Cet isotope est trouvé à l'état de trace dans le potassium naturel puisqu'il représente, en termes de fraction molaire, 0.01% du potassium total trouvé sur la surface terrestre (Isotopic Compositions of the Elements, 2001). Le potassium est un nutriment essentiel pour la biomasse et pour l'homme. Son isotope radioactif se retrouve alors dans la majorité des types de sols et dans la végétation. Il est responsable de la majorité de la radioactivité du corps humain, soit environ 4 000 Bq chez un adulte. Il peut être utilisé comme radio-traceur de particules minérales (Hernandez et al., 2005 ; Karlson et al., 2008 ; Valles et al., 2009) ou de celles issues de la combustion de biomasse (Bourcier et al., 2010).

Le plomb-210, à vie relativement longue ($T_{1/2}$ = 22.3 ans), présente une raie d'émission gamma à 46.5 keV. Il est issu de la chaine de désintégration de l'uranium-238 présent dans les sols et est l'un des descendants du gaz radon. Son introduction dans l'atmosphère se fait par deux voies distinctes. Il est soit formé directement dans l'atmosphère par les désintégrations successives du radon-222 (3.8 jours) suite à son exhalation sous forme gazeuse à partir des sols, on parle alors de

[2] Réaction nucléaire où des fragments de décomposition sont émis lors de l'interaction entre un noyau cible et une particule incidente de grande énergie.

plomb en excès ou non supporté, soit formé dans les sols et intégrant le compartiment atmosphérique lorsque des particules de sols sont remises en suspension, on parle alors de plomb supporté. La figure 1-8 présente schématiquement cette suite de désintégration. Après sa formation, il s'attache à des aérosols majoritairement submicroniques (Winkler et al., 1998 ; Papastefanou et Ioannidou, 1996 ; Camacho et al., 2009). De part sa source de production, sa concentration diminue lorsque l'altitude croit ou au dessus des surfaces marines. Il peut alors être utilisé pour tracer les masses d'air continentales (Caillet et al., 2001 ; Likuku, 2006) et sert de base à de nombreuses études sur la dynamique des processus atmosphériques, le plus souvent en complément de radionucléides d'origine cosmogénique comme le ^{7}Be (Caillet et al., 2001 ; Ioannidou et al., 2005 ; Papastefanou, 2006 ; Likuku, 2006 ; Abe et al., 2009 ; Duenas et al., 2009).

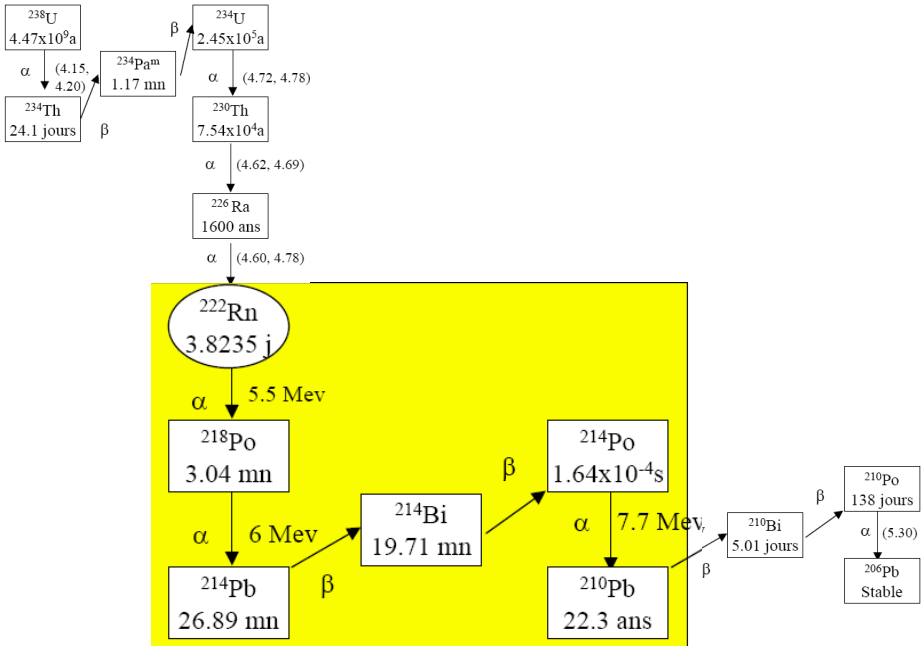


Figure 1-8 : Schéma de la chaine de désintégration du ^{222}Rn au ^{210}Pb

1.2.2.2 – Les radionucléides artificiels

L'iode-131 est un émetteur gamma (364 keV) à vie courte ($T_{1/2}$ = 8.04 jours). Il peut être produit naturellement lors de réactions spontanées se produisant dans l'uranium naturel ou avoir une origine anthropique. C'est un radionucléide important d'un point de vue sanitaire en raison de sa grande mobilité, sa grande réactivité chimique, sa bonne assimilation dans l'organisme et également son accumulation dans la glande thyroïde (AIEA, 1996 ; OCDE, 2002 ; AIEA, 2005). Des quantités importantes ont été libérées dans l'environnement lors des divers accidents nucléaires au siècle dernier. L'accident de Tchernobyl, le plus important d'entre eux, a libéré à lui seul une quantité de ^{131}I comprise entre 1.2 et 1.8 10^{18} Bq (UNSCEAR, 2000 ; OCDE, 2002 ; AIEA, 2005). Du fait de sa courte période radioactive, la quantité totale d'^{131}I déposée sur l'ensemble de la planète

a rapidement disparue (Renaud et al., 2007). Ainsi, ce radionucléide ne peut être traité dans le cadre de ces travaux s'intéressant aux processus de remise en suspension à partir d'anciens dépôts.

Le césium-134 est un émetteur bêta de période de décroissance radioactive de 2.1 années. Son introduction dans l'environnement est consécutive à l'accident de Tchernobyl en 1986 et de l'ordre de 50 10^{15} Bq (UNSCEAR, 2000 ; OCDE, 2002 ; AIEA, 2005). A l'inverse de l'^{131}I, sa période de décroissance radioactive permet de considérer un dépôt au sol plusieurs années après un rejet accidentel (Schimmack et Schultz, 2006). L'évolution des niveaux d'activité associés à ce radionucléide sera discutée ultérieurement.

Le césium-137 est un émetteur bêta (β^-) à vie relativement longue ($T_{1/2}$ = 30.07 ans). Il est mesuré indirectement par spectrométrie gamma à partir de la raie d'émission à 661,7 keV de son fils, le ^{137m}Ba ($T_{1/2}$ = 2.55 minutes) (figure 1-9). Ce radionucléide a la particularité d'être exclusivement d'origine anthropique et est produit lors de la fission de l'uranium. Ces principales voies d'introduction dans l'environnement sont les essais nucléaires atmosphériques, les rejets accidentels et à un moindre niveau le cycle du combustible (cf. partie 1.3.1). Le ^{137}Cs appartient à la classe des métaux alcalins. Dans l'environnement, son comportement chimique est très proche de celui du potassium, le ^{137}Cs et le ^{40}K pouvant dès lors être considérés comme des analogues d'un point de vue chimique. Il peut être intégré au cycle biologique de façon similaire aux nutriments essentiels à la croissance des végétaux. Dans la majorité des sols, ce radionucléide est considéré comme très peu mobile en raison de sa grande affinité avec les alumino-sillicates, de la famille des argiles, et se retrouve majoritairement dans les couches superficielles plusieurs années après son introduction (Colle et al., 2005). De manière générale, il est l'un des radionucléides les plus étudiés dans l'environnement de part sa biodisponibilité, sa période de décroissance radioactive relativement longue et sa toxicité radiologique.

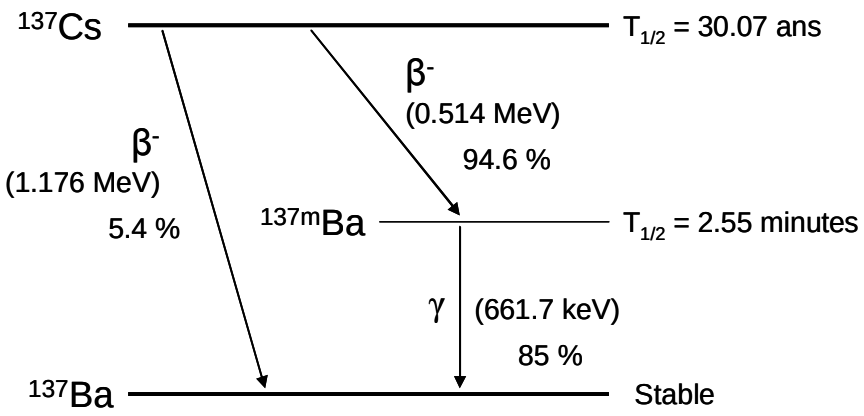


Figure 1-9 : Schéma simplifié de la chaine de désintégration du ^{137}Cs.

1.2.3 – Les niveaux d'activité dans l'air

Les niveaux d'activité dans l'air des différents radionucléides décrits précédemment peuvent varier suivant la saison, leur cycle de formation, les rejets liés aux activités anthropogéniques… Sur des échelles de temps assez longues, les niveaux d'activité des radionucléides d'origine naturelle sont relativement constants. Pour les radionucléides d'origine anthropique, leur niveau d'activité dans l'air, et dans l'environnement en général, va dépendre de l'intensité des rejets et de leur période de décroissance radioactive. Ainsi, leur niveau d'activité dans les aérosols est maximal dans les premiers temps suivant un rejet et diminue ensuite rapidement après leur introduction.

La figure 1-10 présente sur un même graphique la distribution des niveaux d'activité porté par les aérosols des principaux radionucléides mesurés dans les prélèvements réalisés par les stations du réseau OPERA. A partir de cette figure, une distinction évidente peut se faire entre les radionucléides naturels et ceux d'origine artificielle. Les activités volumiques de naturels ont une distribution très peu dispersée et centrée sur leur valeur moyenne comme le montre la distance entre les 1er et 3ème quartiles. La moyenne et la médiane sont ainsi quasiment confondues. Ces profils de distribution sont caractéristiques d'un taux de formation continu. A l'inverse, ceux d'origine artificielle présentent des distributions beaucoup plus étalées, avec des différences significatives entre les valeurs des 1er et 3ème quartiles allant jusqu'à plus d'un ordre de grandeur, des valeurs de leur moyenne très nettement supérieures à la valeur médiane de leur distribution (allant jusqu'à plus de 3 ordres de grandeur dans le cas de l'^{131}I), et une amplitude de leur distribution pouvant atteindre plus de 7 ordres de grandeur entre les deux valeurs extrêmes (cas du ^{137}Cs). Ces profils caractéristiques de distributions s'expliquent par des activités volumiques maximales mesurées consécutivement à leurs rejets dans l'environnement et une décroissance progressive en l'absence de rejet additionnel pouvant aller jusqu'à la disparition rapide du radionucléide suivant sa période de décroissance radioactive. Une distinction supplémentaire peut apparaitre en s'intéressant au nombre de mesures significatives (supérieures aux limites de détection), suivant l'origine des radionucléides et leur période de décroissance radioactive (table 1-3).

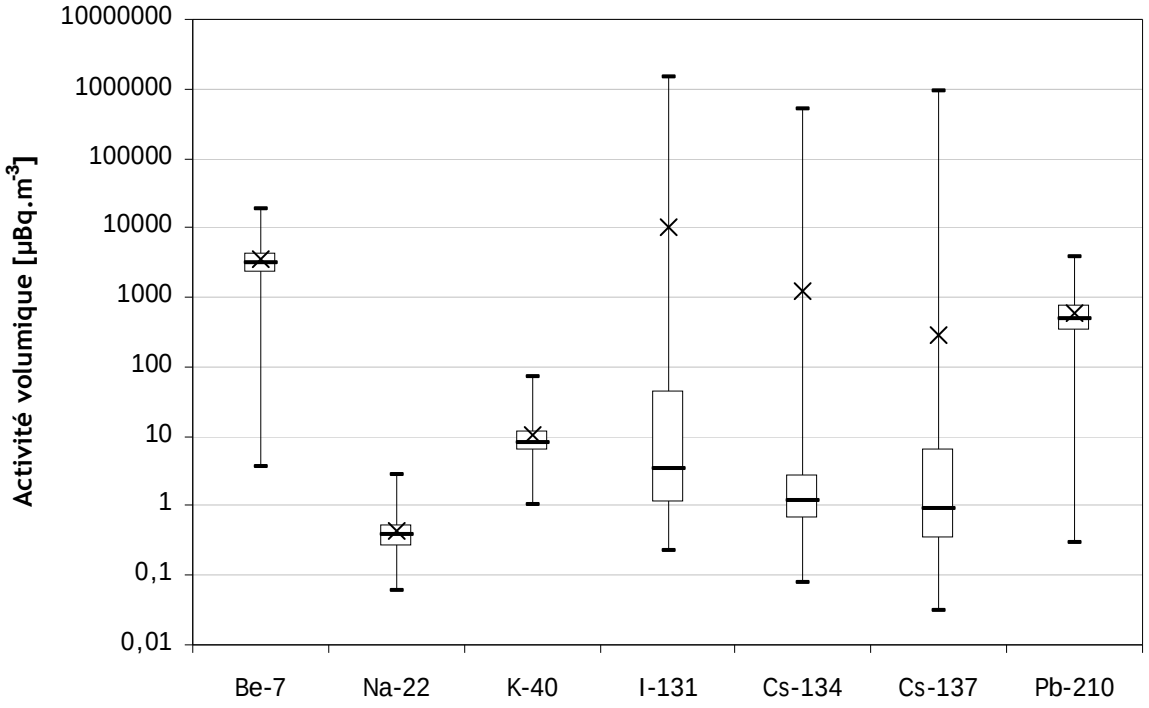


Figure 1-10 : Distributions sous formes de « boxplot » des niveaux d'activité de plusieurs radionucléides à partir de la base de données OPERA atmosphérique. Les extrémités représentent le maximum et le minimum des distributions (-), les bornes des rectangles les 1er et 3ème quartiles, la croix la valeur moyenne (x) et le tiret la valeur de la médiane (_).

Radionucléide	$T_{1/2}$	Origine	Mesures significatives
^{7}Be	53.3 jours	Naturelle (cosmogénique)	100 %
^{22}Na	2 605 ans	Principalement naturelle (cosmogénique)	79.66 %
^{40}K	~ 10^{9} ans	Naturelle (terrigène)	93.06 %
^{131}I	8.04 jours	Artificielle	7.69 %
^{134}Cs	2.06 ans	Artificielle	18.03 %
^{137}Cs	30.07 ans	Artificielle	89.78 %
^{210}Pb	22.3 ans	Naturelle (terrigène)	99.98 %

Table 1-3 : Période de décroissance radioactive, origine principale et pourcentage de mesures significatives dans l'ensemble de la base de données OPERA suivant le radionucléide considéré.

Ainsi, les radionucléides ayant une origine naturelle ont un pourcentage de mesures significatives très élevé, de 80 % à 100 %. Cette observation s'explique par leur taux de formation relativement constant à l'échelle de la base de données OPERA et la faible dispersion de leur niveau d'activité. Le ^{22}Na ayant la plus faible activité volumique moyenne correspond également au pourcentage de mesures significatives le plus faible pour les naturels. Ce résultat montre qu'à

l'échelle de temps des prélèvements, le taux de formation de ce radionucléide peut varier entrainant un niveau d'activité inférieur aux limites de détection. Pour les radionucléides d'origine artificielle, le pourcentage de mesures significatives apparait être directement fonction de la période de décroissance radioactive. L'^{131}I ayant la demi-vie la plus courte présente le plus faible taux de mesures significatives et inversement pour le ^{137}Cs. Il semble alors nécessaire d'étudier la chronologie de ces mesures significatives et leur répartition dans le temps ainsi que leur introduction dans l'environnement d'un point de vue spatio-temporel afin de pouvoir interpréter correctement ces observations.

1.3 – La chronique OPERA

La base de données OPERA permet d'étudier l'évolution des niveaux d'activité de différents radionucléides artificiels rejetés dans l'atmosphère. Il est alors possible d'identifier et de quantifier les différentes phases post-accidentelles associées à une contamination et d'évaluer son importance jusqu'au retour à la situation de référence précédent l'évènement.

1.3.1 – Sources de contaminations radioactives

Durant la seconde moitié du siècle dernier, de grandes quantités de radionucléides artificiels ont été introduites dans l'environnement en relation avec différentes activités anthropogéniques. Ces activités ont entrainé une contamination de l'ensemble des compartiments de la surface terrestre à l'échelle globale. Les principales sources de cette contamination sont les explosions atmosphériques et souterraines d'armes nucléaires ainsi que les activités industrielles liées au cycle du combustible à des fins énergétiques au travers d'accidents, d'incidents ou, dans une moindre mesure, à des rejets autorisés.

1.3.1.1 – Les essais nucléaires

Les essais nucléaires atmosphériques sont la principale cause de dispersion de produits de fission dans l'environnement. Le premier d'entre eux a eu lieu aux Etats-Unis en juillet 1945. Par la suite, 543 tirs atmosphériques ont été réalisés par les principales puissances nucléaires (Etats-Unis, Union Soviétique, Royaume-Unis, France et Chine) en différentes régions du globe, entrainant une contamination sur l'ensemble des deux hémisphères, avec un marquage plus conséquent dans l'hémisphère nord où la majorité des tirs a eu lieu (Figure 1-11). Le dernier tir nucléaire atmosphérique a été réalisé par la Chine en octobre 1980. Au total, l'ensemble des essais nucléaires atmosphériques a libéré dans l'environnement une quantité totale de ^{137}Cs de 948.10^{15} Bq (UNSCEAR, 2000).

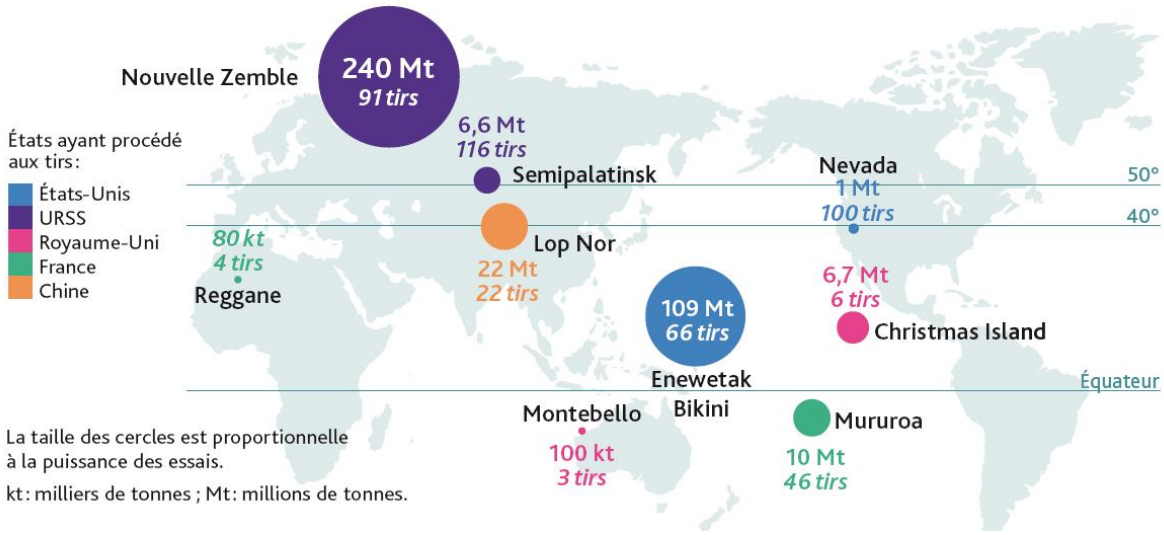


Figure 1-11 : Localisation et puissance des essais nucléaires atmosphériques

Selon la puissance mise en jeu, les particules radioactives ont pu atteindre la stratosphère. Le seuil de puissance pour ces évènements est estimé à 100 kT équivalent TNT. Ces particules sont redescendues dans les couches inférieures de la troposphère entre de 2 et 24 mois suivant les saisons et ont été entrainées par les cellules convectives d'Hadley de la même façon que les particules radioactives restées dans la troposphère. La circulation générale atmosphérique entraine alors un dépôt surfacique accentué au niveau des moyennes latitudes. Les principaux sites d'expérimentations étant localisés dans l'hémisphère Nord (figure 1-11), celui-ci totalise 75% de l'ensemble des retombées radioactives (UNSCEAR, 2000). Au final, les régions situées entre le 40° et le 50° parallèle sont les plus concernées par ces retombées. A l'intérieur des différentes bandes latitudinales, les dépôts sont principalement fonction de la pluviométrie, le dépôt humide étant le processus de rabattement le plus efficace. L'activité surfacique en ^{137}Cs à l'échelle de l'Europe apparait alors relativement homogène (figure 1-12), bien que localement des différences puissent apparaitre. Pour la France métropolitaine, les dépôts surfaciques en ^{137}Cs cumulés entre 1945 et 1980 estimés à partir des relevés des précipitations annuelles moyennes présentent une relative homogénéité et sont majoritairement compris entre 3 000 et 7000 $Bq.m^{-2}$ (Renaud et al., 2008).Les dépôts cumulés ne dépassent cette valeur que dans les régions les plus pluvieuses situées majoritairement en altitude. Au total, l'ensemble du territoire européen totalise un dépôt cumulé en ^{137}Cs issu des retombées des expérimentations nucléaires atmosphériques de 20.10^{15} Bq, soit environ 2 % du total libéré dans l'environnement suite à ces évènements (CEC, 1998).

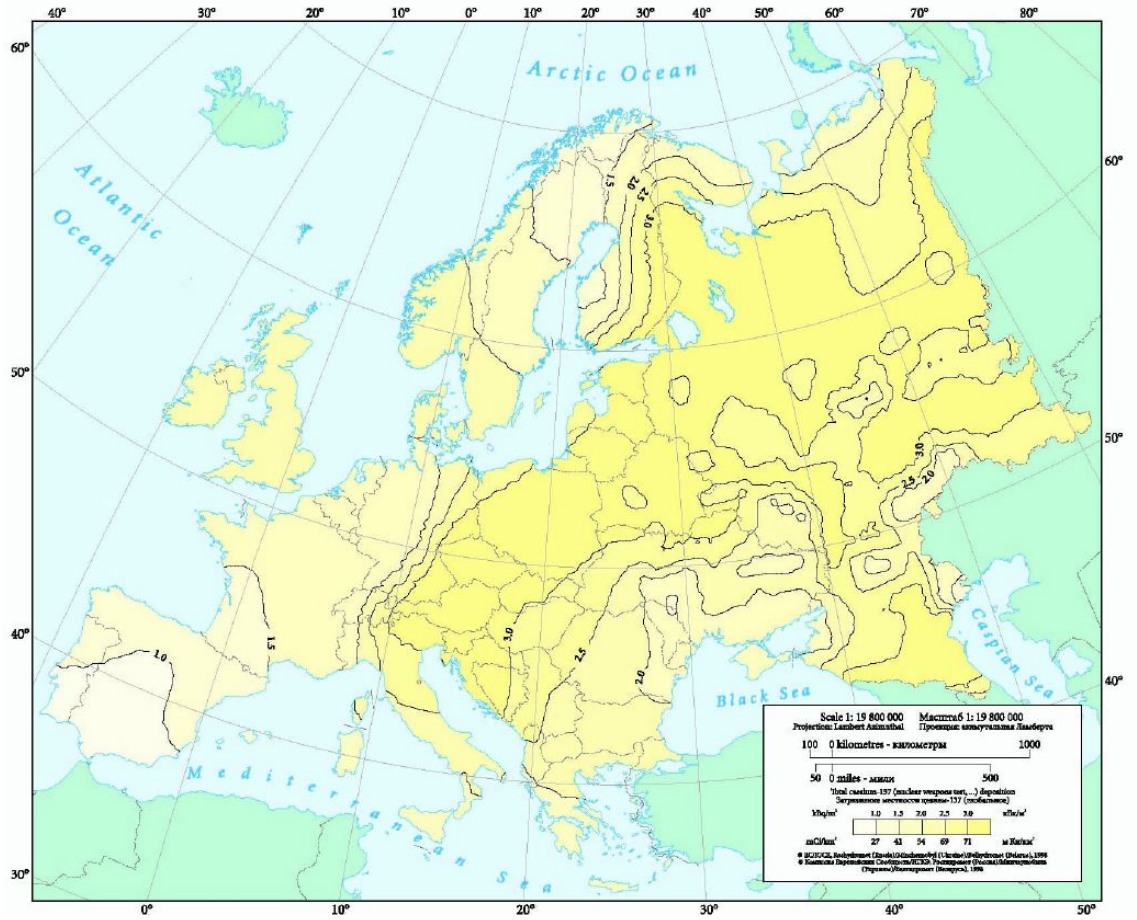


Figure 1-12 : Carte de l'activité surfacique en ^{137}Cs à l'échelle de l'Europe en mai 1986 suite aux retombées radioactives des expérimentations atmosphériques (CEC, 1998).

1.3.1.2 - Les accidents majeurs

Plusieurs accidents sur des installations civiles et militaires impliquant des rejets radioactifs significatifs dans l'environnement se sont produits au cours du siècle dernier.

Les accidents de Kyshtym en ex-URSS et de Windscale au Royaume-Unis, tous deux en 1957, sont les deux principaux accidents impliquant des installations militaires. Sur le site soviétique, 26.6 TBq (26.6 10^{12} Bq) de ^{137}Cs ont été dispersés sur une surface d'environ 20 000 km^2 suite à l'explosion d'une cuve de stockage (Myttenaere, 1992 ; UNSCEAR, 1993). Pour le site de Windscale, actuel Sellafield, la libération de 22 TBq de ^{137}Cs dans l'environnement fait suite à un incendie dans l'usine de retraitement. Cet accident est l'un des premiers à avoir entrainé une contamination à l'extérieur des frontières du pays responsable.

L'accident de Tchernobyl en Ukraine est le plus grave impliquant une installation nucléaire civile. Le 26 avril 1986, une succession d'erreurs humaines a entrainé la destruction du cœur du réacteur de la tranche n°4. La majorité des rejets radioactifs a eu lieu au moment de l'explosion du réacteur et ont duré jusqu'au 5 mai 1986. L'activité totale de l'ensemble des radionucléides rejetés par cet accident est estimée entre 5 et 14 10^{18} Bq (AIEA, 1996 ; UNSCEAR, 2000 ; AIEA, 2001 ; AIEA, 2005). Les gaz inertes représentent la moitié de l'activité totale rejetée et n'ont entrainé aucun

dépôt au sol (Renaud et al., 2007). Les éléments de faible volatilité se sont déposés à proximité du site de Tchernobyl et n'ont pas été détectés sur le territoire français. Inversement, les éléments facilement volatils comme les isotopes de l'iode et du césium sont les principaux radionucléides qui ont pu être transportés sur de longues distances et avoir un impact environnemental et de surcroit dosimétrique à l'échelle de l'Europe. Parmi ces radionucléides, seuls ceux ayant une période de décroissance radioactive de l'ordre de la durée de leur transport présentent un réel intérêt du point de vue de leur impact radioécologique. Ainsi, l'iode-131, le césium-134 et le césium-137 sont les trois radionucléides les plus préoccupants à l'échelle de l'Europe occidentale avec des rejets respectifs de $1.76.10^{18}$ Bq, 47.10^{15} Bq et 85 10^{15} Bq (IAEA, 2005).

Une fois émis dans l'atmosphère, ces radionucléides sont transportés par les masses d'air suivant les conditions synoptiques qui prévalaient pendant les rejets. Les pays européens figurent parmi les plus touchés par la dispersion des rejets. La figure 1-13 illustre les principales trajectoires suivies par ces panaches à l'échelle européenne.

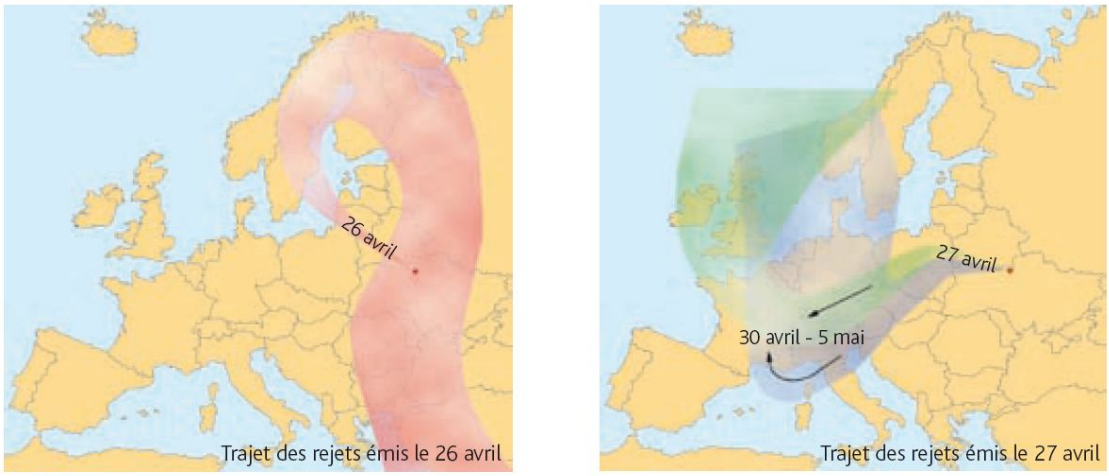


Figure 1-13 : Principales trajectoires suivies par les panaches correspondant aux rejets successifs consécutifs à l'accident de Tchernobyl. A : rejets émis le 26 avril et atteignant la Scandinavie le 28 avril (explosion). B : rejets émis le 27 avril et atteignant la France a partir du 30 avril a la suite de l'incendie (Renaud et al., 2007).

Les niveaux d'activité de l'air ambiant augmentent très fortement lors du passage des masses d'air contaminées. A titre d'exemple, le niveau d'activité ambiant en ^{137}Cs dans les aérosols en France est multiplié par 10^6. Associées à des précipitations, elles vont entrainer au sol un dépôt surfacique important. En résulte une contamination des sols très hétérogène sur l'ensemble des territoires impactés, représentative de la combinaison du parcours des masses d'air et de la pluviométrie. La région où le dépôt surfacique a été maximal est la région à proximité immédiate de Tchernobyl. A la suite de l'accident, une zone de 30 km autour du site, appelé zone d'exclusion, est devenue totalement interdite à toute activité humaine. La contamination surfacique en ^{137}Cs y dépasse les 1 480 000 $Bq.m^{-2}$. A l'échelle de l'Europe, de vastes territoires ont également été contaminés par les dépôts consécutifs à l'accident avec des activités surfaciques en ^{137}Cs

supérieures à 40 000 Bq.m^{-2} (figure 1-14). Les trois pays les plus touchés sont la Fédération de Russie, la Biélorussie et l'Ukraine avec 30, 23 et 18 % respectivement des dépôts sur l'Europe (De CEC, 1998). Des régions de dimensions plus réduites peuvent également être recensées en Scandinavie, en Europe centrale, en Autriche, au nord de la Grèce ainsi qu'en Suisse, dans le nord de l'Italie et dans l'est de la France. La péninsule ibérique est la région européenne la moins marquée par cet accident.

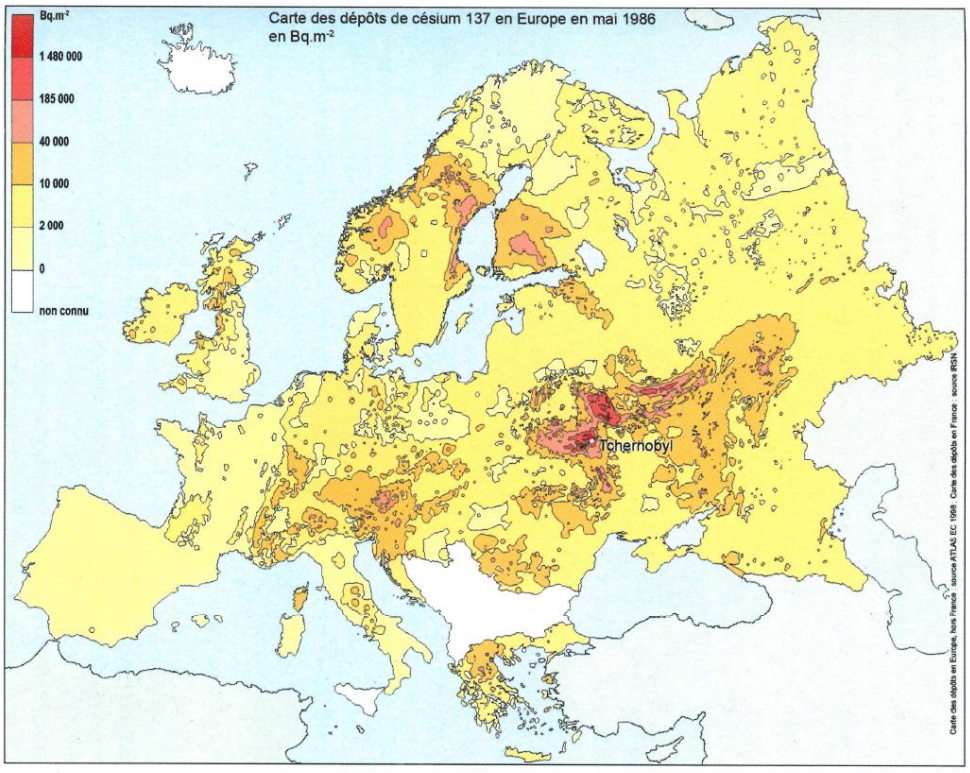


Figure 1-14 : Carte européenne des dépôts de ^{137}Cs après l'accident de Tchernobyl (CEC, 1998 ; Renaud et al., 2005).

Dans une moindre mesure, la dispersion des rejets suite à l'accident s'est étendue à l'échelle hémisphérique puisque les masses d'air contaminées ont été détectées jusqu'en Amérique du Nord et au Japon (AIEA, 2005 ; OCDE, 2002). Toutefois, les dépôts y ont été très faibles. La quantité totale de ^{137}Cs déposé à l'échelle de l'hémisphère Nord est estimée à 70 PBq (10^{15} Bq) (UNSCEAR, 2000) dont 64 PBq en Europe (CEC, 1998).

1.3.1.3 – Les incidents

Un incident est par définition un évènement n'ayant qu'un impact limité dans l'espace et le temps sur les niveaux d'activité dans l'air et un impact radioécologique négligeable à l'extérieur du site d'exploitation. Ainsi, sur l'ensemble de la chronique OPERA atmosphérique, des augmentations de l'activité volumique de l'air apparaissent en relation avec ces évènements. L'incinération accidentelle en 1998 d'une source de ^{137}Cs dans une aciérie d'Algésiras en Espagne illustre ce type

d'évènement. L'activité de la source est estimée à environ 10^{12} Bq (Papastefanou et al., 2005). Cet évènement a entrainé momentanément une augmentation d'un facteur 10^3 de l'activité volumique de l'air en France au regard du niveau ambiant alors très faible. Un évènement de même nature au maximum de la période des retombées des expérimentations nucléaires atmosphériques serait passé inaperçu. Cette observation montre qu'il est important de considérer la chronique OPERA dans son ensemble afin d'apprécier, le plus justement possible, toutes variations du niveau d'activité au regard des conditions ambiantes.

1.3.2 – L'évolution des niveaux d'activité des radionucléides artificiels dans les aérosols en France

La majorité des évènements décrits précédemment a eu un impact sur les niveaux d'activité atmosphériques. La chronique OPERA atmosphérique permet d'avoir un aperçu des contributions respectives de ces évènements (figure 1-15).

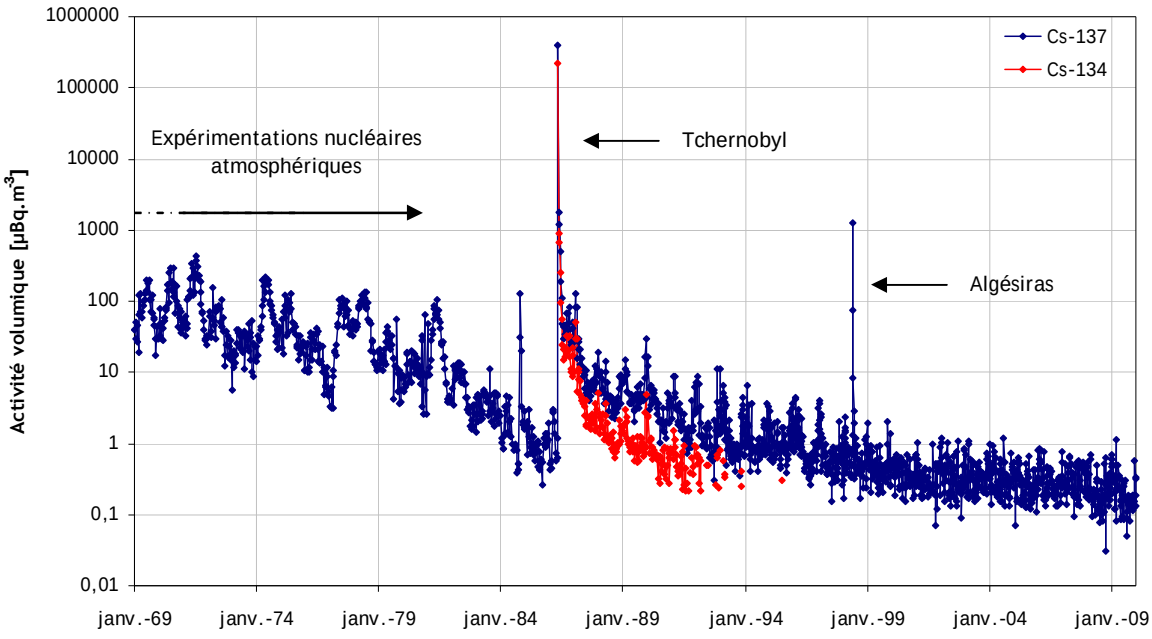


Figure 1-15 : Activités volumiques décadaires du ^{134}Cs et ^{137}Cs dans les aérosols entre 1969 et 2009 au niveau de l'ensemble des stations OPERA. Les principaux évènements ayant contribués aux augmentations significatives sont indiqués.

Au regard des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols, l'activité ambiante moyenne a été maximale durant la période des essais nucléaires atmosphériques, aux alentours de 100 µBq.m^{-3}. De 1954 à 1962, période où la puissance mise en jeu lors des essais était maximale, le niveau ambiant était alors de 1 000 µBq.m^{-3}. Sur la figure 1-15, la plupart des augmentations de l'activité en ^{137}Cs avant 1980 correspond à la signature d'un tir atmosphérique. La détection de ces augmentations significatives liée à ces évènements permet de confirmer le transport longue

distance des particules radioactives rejetées dans l'environnement lors de l'explosion des armes nucléaires dans l'atmosphère. A la suite de chacun des tirs, une période de décroissance des niveaux d'activité en ^{137}Cs, caractéristique de la phase de dépôt, peut être observée. En moyenne et en l'absence de nouveau rejet, deux années sont nécessaires pour retrouver un niveau ambiant égal à la situation antérieure à l'évènement. Après l'arrêt total des expérimentations nucléaires atmosphériques, les niveaux d'activité en ^{137}Cs décroissent jusqu'à atteindre une valeur moyenne de l'ordre de 1 $\mu Bq.m^{-3}$. Le ^{134}Cs n'étant pas impliqué dans les rejets liés à ces essais nucléaires, il n'est pas détecté sur les filtres de collecte d'aérosols durant l'ensemble de cette période. En revanche, des niveaux d'activité en ^{131}I sont détectés consécutivement à la plupart des tirs recensés, correspondant à leurs retombées troposphériques.

En 1986, l'accident de Tchernobyl entraine une augmentation des niveaux d'activité du ^{134}Cs et ^{137}Cs, dépassant pour chacun d'eux et sur une courte durée 0.1 $Bq.m^{-3}$. Suite à la période de rejet, la décroissance des niveaux d'activité est très rapide. La plus forte décroissance sera observée pour l'^{131}I (non représenté sur la figure 1-15 en raison de sa courte période de désintégration). Ainsi, ce radionucléide n'a contribué que très brièvement aux niveaux d'activité déposés. Pour le ^{134}Cs et ^{137}Cs, la décroissance est également très rapide et fonction de leur demi-vie respective. Disposant de mesures en ^{137}Cs antérieures à l'accident, il apparait que le bruit de fond ambiant se trouve fortement marqué par cet évènement. Pour le ^{137}Cs, le retour à un niveau moyen similaire à la situation antérieure à l'accident prend une dizaine d'année tandis que la disparition du ^{134}Cs dans le compartiment atmosphérique met presque 8 ans, soit environ 4 fois sa demi-vie.

Sur cette chronique apparait également l'incident d'Algésiras en 1998. De part sa nature, cet évènement entraine une augmentation exclusive du niveau d'activité en ^{137}Cs, dépassant les 2000 $\mu Bq.m^{-3}$ au début du moi de juin 1998. A l'inverse de l'accident de Tchernobyl, la quantité rejetée n'est pas suffisante pour modifier durablement le bruit de fond ambiant et son impact sur les niveaux d'activité en ^{137}Cs ne perdure pas au-delà d'une vingtaine de jours. Ainsi, la contribution de cet évènement sur les dépôts surfacique en ^{137}Cs est négligeable.

Malgré la très forte diminution des niveaux d'activité en ^{137}Cs au cours des dernières décennies jusqu'à un niveau actuel qualifié de traces, nécessitant une constante amélioration des techniques de prélèvement et de mesures, ce radionucléide artificiel reste présent dans notre atmosphère. Bien que le ^{134}Cs puisse encore exceptionnellement être détecté dans certaines matrices terrestres, son absence du compartiment atmosphérique ne permet pas de l'étudier dans le cadre de ces travaux. Ainsi, des trois radionucléides recensés pour leur impact radioécologique en France, seul le ^{137}Cs présente une période de décroissance radioactive suffisamment longue pour être encore détecté et quantifié dans l'atmosphère. L'étude des processus impliqués dans la rémanence de radionucléides artificiels antérieurement déposés se fera uniquement sur la base des mesures de ce radionucléide dans le compartiment atmosphérique. Par la suite et pour l'ensemble de cette étude, nous traiterons donc exclusivement du ^{137}Cs qui est le radionucléide d'intérêt pour son impact radiologique sur le long terme.

1.3.3 – Les principaux mécanismes de l'évolution des niveaux d'activité

Les retombées stratosphériques représentent 78 % des retombées totales des tirs atmosphériques, contre 10 % pour les troposphériques et 12 % pour les retombées locales. Cette proportion associée au temps de résidence moyen dans la stratosphère des particules radioactives expliquent le temps d'épuration moyen de l'atmosphère de deux ans, estimé dans ce cas comme le temps nécessaire pour revenir au niveau ambiant antérieur au rejet. Après l'arrêt des essais atmosphériques en 1980, les niveaux d'activité en ^{137}Cs ne cessent de diminuer, illustrant l'épuration progressive du compartiment atmosphérique. De nos jours, l'intégralité du ^{137}Cs initialement rejeté dans l'atmosphère suite à ces évènements s'est déposée sur la surface terrestre.

Suite aux rejets de l'accident de Tchernobyl, une première période de décroissance très rapide des niveaux d'activité moyens est observée. Entre 1986 et 1988, le niveau annuel moyen en ^{137}Cs passe de plus de 11 000 à 5.63 $\mu Bq.m^{-3}$ (figure 1-16). Cette phase est appelée phase post-accidentelle à court et moyen terme, le court terme étant la première phase de décroissance observée sur la figure 1-15 de l'ordre de quelques jours et le moyen terme étant la phase suivante de l'ordre de 2 ans. L'ensemble de ces deux phases est également appelé la phase de dépôt dû à la prépondérance de ce processus sur les variations du niveau d'activité durant cette période.

Au lieu de poursuivre la tendance observée durant les deux premières années consécutives à l'accident, la diminution du niveau moyen d'activité en ^{137}Cs ralentit ultérieurement. Cette tendance est clairement observée jusqu'au début des années 2000. Ce changement dans l'évolution du niveau d'activité moyen entre ces deux premières phases est imputable à deux phénomènes de natures totalement différentes. D'une part, le compartiment atmosphérique s'épure progressivement. Bien que la nature et l'intensité des processus de dépôt restent inchangées, leur efficacité vis-à-vis du rabattement du ^{137}Cs est de moins en moins efficace puisque la quantité encore présente dans l'atmosphère est de plus en plus faible. D'autre part, la contribution de l'ensemble des processus de remise en suspension est de même amplitude que les niveaux résiduels. Il en résulte alors une variabilité des niveaux d'activité. Comme pour les processus de dépôt, la nature de ces processus et leur intensité restent globalement constantes au cours du temps. Simplement, la quantité de ^{137}Cs au sein des matrices soumises aux processus de remise en suspension augmente sous l'effet du dépôt continu issu du compartiment atmosphérique. En faisant l'hypothèse réaliste d'une vitesse d'accumulation plus importante que la vitesse de migration dans les sols, la quantité de particules porteuses de ^{137}Cs remises en suspension dans l'atmosphère augmente ainsi progressivement, de la même manière qu'augmente la quantité déposée. Toutefois, la contribution des processus de dépôt sur les niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols reste prépondérante puisque la tendance à la décroissance continue d'être observée jusqu'au début des années 2000. Le retour à la situation radiologique antérieure à l'accident de Tchernobyl prend ainsi une dizaine d'année. L'ensemble de cette période est ainsi qualifiée de post-accidentelle à long terme. En l'absence de manifestation des processus de remise en suspension, la période durant laquelle le bruit de fond se trouve modifié et le délai de retour à la situation radioécologique antérieure auraient pu être plus courts.

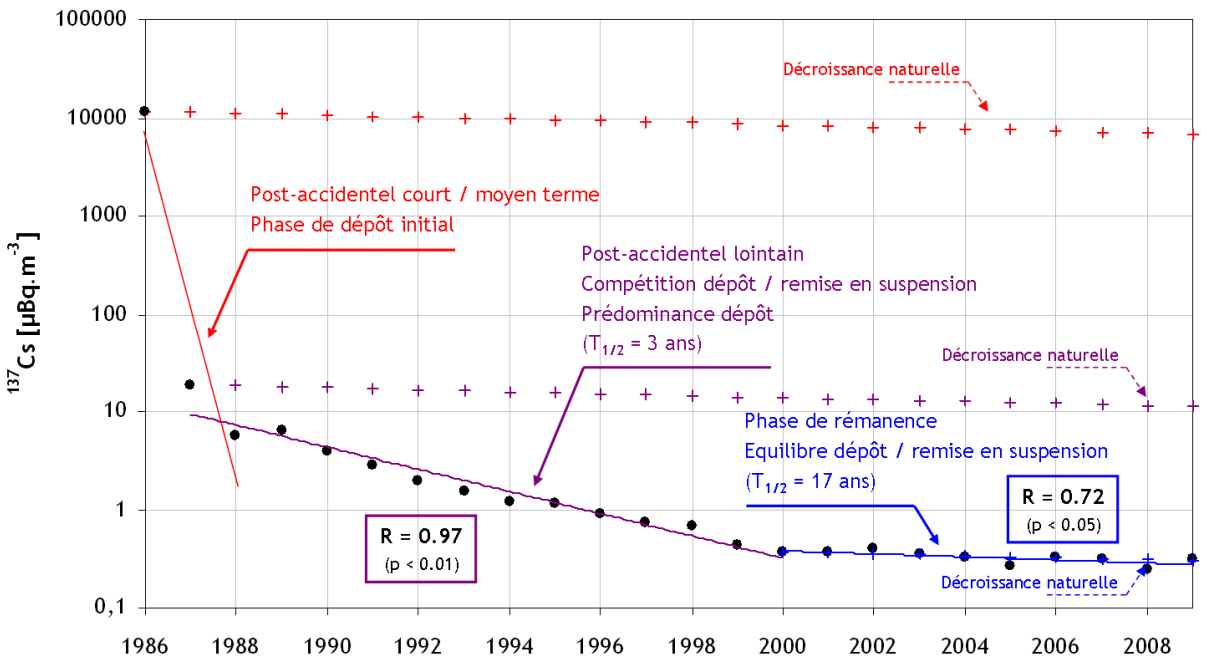


Figure 1-16 : Evolution de l'activité annuelle moyenne en ^{137}Cs dans les aérosols en France métropolitaine de 1986 à 2009 (cercles noirs) avec le tracé des tendances de décroissances exponentielles (courbes pleines de couleurs) et le coefficient de corrélation associé. La contribution de l'incident d'Algésiras sur la moyenne de l'année 1998 n'est pas prise en compte. Les différentes couleurs de tracés illustrent les différentes phases décrites dans le paragraphe correspondant. Les croix représentent la décroissance radioactive du ^{137}Cs ($T_{1/2}$ = 30.07 ans) à partir du début de chacune des phases.

A partir du début des années 2000, l'évolution des niveaux d'activité suit une nouvelle tendance. L'activité annuelle moyenne en ^{137}Cs se stabilise aux alentours de 0.3 µBq.m^{-3}. Le niveau moyen de cette période est le plus faible jamais mesuré depuis la création de l'observatoire OPERA. L'acquisition de mesures significatives n'est alors rendu possible que par l'amélioration régulière des techniques de prélèvement et de mesure. Cette nouvelle tendance trouve également son explication dans la compétition entre les processus de dépôt et de remise en suspension. Comme précédemment, les caractéristiques intrinsèques de ces processus restent inchangées. En revanche, l'ensemble du ^{137}Cs initialement présent dans le compartiment atmosphérique s'est déposé au sol au cours des périodes précédentes. Le compartiment atmosphérique n'est ainsi plus le réservoir prépondérant du ^{137}Cs au profit du compartiment terrestre. Les différents processus de remise en suspension qui y prennent place réalimentent le compartiment atmosphérique. Les particules mises en suspension sont ensuite de nouveau déposées au sol suivant les différents mécanismes de dépôt. Cette nouvelle tendance de décroissance très lente avec un niveau d'activité moyen quasiment constant est ainsi la manifestation d'un équilibre entre l'efficacité des deux processus antagonistes. Ayant atteint un niveau ambiant plus faible que celui antérieur à l'accident de Tchernobyl, cette période n'est plus qualifiée de post-accidentelle. Elle est nommée phase de rémanence puisque le ^{137}Cs présent dans l'atmosphère n'est plus issu directement des rejets consécutifs à l'accident mais

provient de l'ensemble des dépôts surfaciques ayant pour origine l'ensemble des évènements décrits précédemment.

Pour chacune des trois phases, la période d'épuration effective moyenne de l'atmosphère en ^{137}Cs est calculée. L'évolution du niveau d'activité moyen en ^{137}Cs dans l'atmosphère suivant une tendance exponentielle (figure 1-16), cette période se calcule comme le temps moyen nécessaire pour que le niveau d'activité moyen diminue de moitié, à l'image de la décroissance radioactive, d'après la formule :

$A(t) = A_0.\exp(-\lambda.t)$, avec $\lambda = \ln(2)/T_{1/2}$

A_0 : activité en ^{137}Cs [µBq.m^{-3}] mesurée au début de la phase considérée,

$A(t)$: activité en ^{137}Cs [µBq.m^{-3}] mesurée à l'instant t ,

$T_{1/2}$: période effective d'épuration du compartiment considéré.

La moyenne de l'ensemble des périodes effectives d'épuration à l'intérieur de chaque phase est calculée pour rendre compte des possibles différences interannuelles et est reportée sur la figure 1-16. Le recours à ce calcul présente certaines limites et peut être discuté. L'approximation de décroissance exponentielle ne peut être validée que pour la seconde et troisième phase avec des coefficients de corrélation et une significativité satisfaisants. La première phase étant composée de 3 points, l'approximation par une décroissance exponentielle n'a pas été utilisée. Toutefois, en gardant à l'esprit les précautions d'usage de ces calculs et leurs limites, ces résultats permettent de discuter sur les différences d'évolution des trois phases observées.

Au cours de la seconde période qualifiée de post-accidentel lointain, cette période d'épuration est relativement courte ($T_{1/2}$ = 3 ans). Cette période estimée sur la base des moyennes annuelles des mesures décadaires est très loin de la période de décroissance radioactive du ^{137}Cs égale à 30.07 ans.

Au cours de la dernière phase, dite de rémanence, la période d'épuration effective moyenne de l'atmosphère est égale à 17 ans. Bien que l'atmosphère ne soit plus le réservoir principal du ^{137}Cs et qu'il soit concevable que la contribution des processus de remise en suspension ne présente pas de variation interannuelle significative, la période d'épuration calculée se rapproche de la période de décroissance radioactive mais reste inférieure. Cette différence peut s'expliquer par la combinaison de processus de dépôt toujours moins efficaces vis-à-vis du ^{137}Cs présent à l'état de traces dans l'atmosphère, justifiant de l'allongement de cette période d'épuration de l'atmosphère en comparaison des périodes précédentes, ainsi que par une moindre disponibilité du ^{137}Cs déposé sur la surface terrestre face à la remise en suspension en raison de sa migration dans les premières couches des sols et à son transfert dans les différents compartiments de la biosphère.

En l'absence de processus de dépôt quels qu'ils soient, la période d'épuration effective du compartiment atmosphérique devrait être égale à la période de décroissance radioactive du ^{137}Cs. L'évolution du niveau d'activité en ^{137}Cs due à sa seule désintégration est représentée sur la figure 1-16 à partir du début de chacune des phases identifiées. De façon évidente pour les deux

premières phases où le dépôt est le processus prépondérant conditionnant les variations du niveau d'activité en ^{137}Cs dans le compartiment atmosphérique, ces tracés sont très éloignés des mesures réalisées avec une décroissance observée beaucoup plus rapide. En revanche, durant la dernière phase dite de rémanence, le tracé des moyennes annuelles des mesures tend à se rapprocher du tracé de la décroissance physique du ^{137}Cs et se confond même pour la majorité des points de mesures. Cette observation vient confirmer les explications apportées précédemment concernant l'équilibre entre les contributions des processus de dépôt et de remise en suspension. Il est alors possible d'affirmer que l'intégralité du ^{137}Cs rejeté initialement s'est déposée au cours des deux premières phases et que la totalité du ^{137}Cs mesurée dans les aérosols et se déposant à la surface terrestre durant la phase de rémanence a pour origine la remise en suspension issue de dépôts antérieurs résultant des différents évènements ayant contribué significativement à la contamination de surface en ^{137}Cs.

Depuis la création du réseau OPERA atmosphérique en 1969, il est alors possible pour la toute première fois d'étudier la contribution des processus de remise en suspension sur les variations des niveaux d'activité de radionucléides artificiels dans les aérosols sans la contrainte de considérer une contribution additionnelle d'origine atmosphérique. A la vue des ces observations et commentaires, cette étude peut être réalisée en s'appuyant sur les mesures effectuées depuis janvier 2000.

1.3.4 – Les manifestations de la remise en suspension

Bien que la moyenne annuelle des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols apparaisse relativement constante depuis le début des années 2000, les mesures décadaires effectuées au niveau de chacune des stations composant le réseau OPERA présentent une variabilité significative. Cette variabilité peut être décomposée en variabilité spatiale avec des différences significatives observées entre les résultats des différentes stations de prélèvement pour une même période de mesures, ainsi qu'en variabilité temporelle avec des différences significatives observées sur un site de prélèvement au cours de temps (figure 1-17).

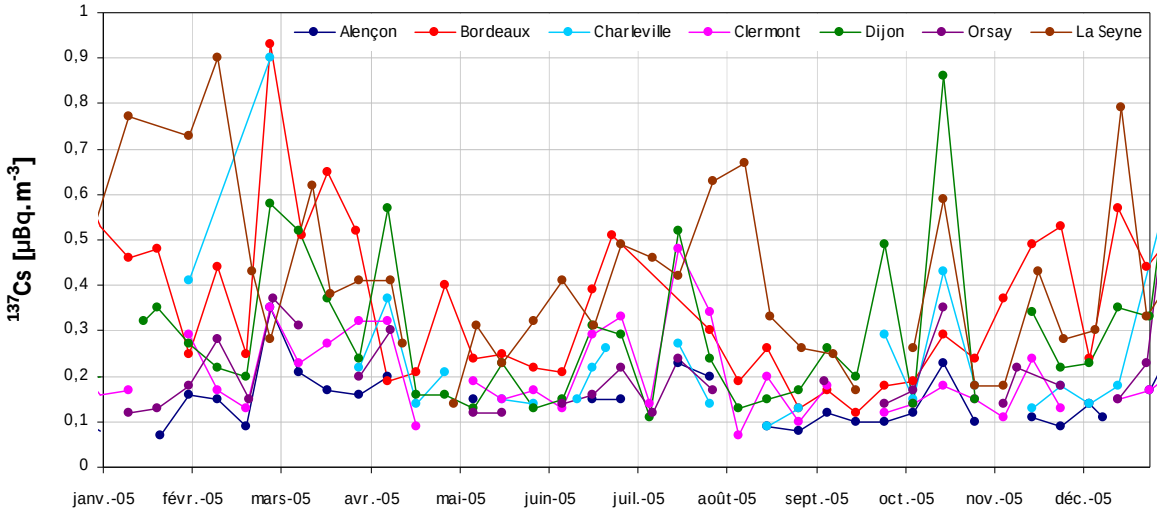


Figure 1-17 : Chronique des mesures des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols collectés aux différentes stations du réseau OPERA atmosphérique au cours de l'année 2005.

La chronique des niveaux d'activité en ^{137}Cs sur chacune des stations du réseau OPERA obtenue pour l'année 2005 est représentative des chroniques annuelles depuis 2000. Il apparait alors des périodes où les niveaux d'activité en ^{137}Cs augmentent ou diminuent significativement, des variations simultanées sur l'ensemble des stations ou des variations isolées, des périodes où les niveaux d'activité sont inférieurs aux limites de détection et des périodes consécutives où les niveaux d'activité restent constants. Toutes ces tendances observées résultent ainsi des contributions combinées des processus de remise en suspension de particules porteuses de ^{137}Cs dans l'atmosphère, des processus de transport de ces particules jusqu'aux stations du réseau OPERA et des processus de dépôt tout au long de ce transport. Il apparait au final des variations spatio-temporelles significatives à l'échelle décadaire.

Suivant l'échelle de temps considérée, les processus de remise en suspension vont ainsi avoir une manifestation différente : équilibrés par les processus de dépôt à l'échelle de l'année, les processus de remise en suspension vont entrainer une rémanence du ^{137}Cs dans le compartiment atmosphérique et un bruit de fond ambiant relativement constant puisque l'intégralité des particules en suspension provient des dépôts antérieurs ; à l'échelle des périodes de prélèvement des stations du réseau OPERA, soit dix jours en moyenne, les processus de remise en suspension vont entrainer une variabilité significative avec des augmentations allant jusqu'à un ordre de grandeur en comparaison au bruit de fond ambiant. Cette variabilité est alors la manifestation de la diversité des processus impliqués dans la rémanence atmosphérique du ^{137}Cs et de leur efficacité, et va être utilisée dans le cadre de ces travaux pour les identifier et quantifier leur contribution respective.

1.4 -Démarche de l'étude

L'objectif principal de cette étude est d'apporter les éléments de réponse nécessaires à la compréhension de l'évolution actuelle des niveaux d'activité de radionucléides artificiels dans le compartiment atmosphérique, dans le contexte de dépôts anciens, faisant suite aux différents évènements décrits dans les paragraphes précédents, et en l'absence de rejets significatifs contribuant à leur rémanence. Ces éléments de réponse doivent permettre d'expliquer la variabilité spatio-temporelle des niveaux d'activité observée à l'échelle de temps des prélèvements en détaillant les processus à l'origine de la présence de radionucléides artificiels dans le compartiment atmosphérique et permettre également de comprendre le maintien d'un bruit de fond ambiant dans le contexte actuel. L'ensemble de ces résultats permettra *in fine* de mieux appréhender les situations post-accidentelles en apportant un ensemble de connaissances utiles à la compréhension de l'évolution des niveaux d'activité de radionucléides artificiels dans l'atmosphère.

Cette étude va ainsi se décliner en plusieurs parties. Tout d'abord, nous localiserons géographiquement les régions où vont se manifester les processus impliqués dans la rémanence du ^{137}Cs dans l'atmosphère. Nous identifierons ensuite ces processus à l'intérieur de ces régions puis les étudierons afin de déterminer leur contribution respective sur les niveaux d'activité mesurés au niveau des stations de prélèvement du réseau OPERA pour *in fine* comprendre leur évolution dans le contexte actuel et pouvoir mieux appréhender des situations futures.

Au moyen de relations établies entre les niveaux d'activité en ^{137}Cs et différents composés présents dans l'atmosphère ainsi qu'avec différentes situations météo-climatiques particulières, le second chapitre de cette étude aura pour finalité la localisation des territoires où les processus impliqués dans la rémanence de ce radionucléide artificiel se manifestent. L'application de méthodes d'analyse statistiques basées sur le calcul de rétro-trajectoires associées aux périodes de mesures du ^{137}Cs permettra ensuite une hiérarchisation de ces territoires et permettra de mettre en évidence les principales caractéristiques des processus à étudier.

Les trois chapitres suivants seront ensuite consacrés à l'étude spécifique des principaux processus de remise en suspension de particules porteuses de ^{137}Cs prenant place dans les territoires précédemment identifiés et influant sur les niveaux d'activité de ce radionucléide dans l'air. Ces études reposeront sur la caractérisation approfondie de cas particuliers. Par analogie, les caractéristiques de ces processus permettront d'évaluer leur contribution respective sur l'ensemble de la chronique issue de la base de données OPERA.

Enfin, le dernier chapitre de cette étude sera une synthèse des différents résultats obtenus. Les différences entre les stations de prélèvement du réseau OPERA seront expliquées au regard de la contribution et des caractéristiques des différents processus étudiés dans les parties précédentes.

CHAPITRE 2 : Caractérisation des variations des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols

Le premier objectif de cette étude est de caractériser les variations significatives du niveau d'activité en ^{137}Cs afin de pouvoir identifier les caractéristiques spécifiques des principaux processus impliqués dans sa rémanence atmosphérique et de localiser les territoires où ces derniers se manifestent. Dans un premier temps, nous étudierons l'influence des conditions météorologiques locales sur les niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs. Nous déterminerons également des correspondances entre les variations de l'activité volumique en ^{137}Cs et d'autres composés particulaires, pouvant être utilisés comme des traceurs de formation ou de transport d'aérosols dans les basses couches de l'atmosphère. Ensuite, la relation entre la contamination des sols et les niveaux moyens observés dans l'air permettra une discussion sur la contribution locale de la remise en suspension. La contribution d'un transport longue distance sera étudiée dans une dernière partie au travers de plusieurs méthodes d'analyses basées sur la détermination du parcours des masses d'air.

Au cours de ce chapitre, plusieurs coefficients de régression linéaire sont calculés pour mettre en évidence de potentielles relations. Ces calculs se basent sur le tracé de droites dites des moindres carrés, c'est-à-dire qu'elles minimisent la somme des carrés des erreurs entre les droites calculées et la variable estimée. Le coefficient de corrélation linéaire rend alors compte de la qualité de l'ajustement de cette droite et fournit une indication quantitative sur la relation entre les deux variables considérées. La significativité de la relation linéaire est ensuite estimée par un test de Student permettant de déterminer si la relation établie est statistiquement acceptable ou, dans le cas contraire, si celle-ci résulte du hasard.

2.1 – Influences des paramètres météorologiques sur les niveaux d'activité en césium-137

Les variations du niveau d'activité volumique en ^{137}Cs dans l'air ambiant sont conditionnées par l'intensité des termes sources, influant sur le nombre de becquerels injecté dans l'atmosphère, et d'autre part, par des facteurs météorologiques agissant sur les conditions de dispersion et sur les processus de dépôt. Cette partie étudie l'influence des différents paramètres météorologiques afin d'évaluer leur implication dans les variations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs.

2.1.1 – Influence de la pluviométrie

L'influence de la pluviométrie sur les niveaux d'activité en ^{137}Cs a été étudiée au moyen des mesures fournies par Météo-France pour la période de janvier 2000 à décembre 2006 au niveau des sites instrumentés les plus proches des stations OPERA. Les mesures sur filtres étant réalisées sur une base décadaire (10 jours), l'intensité des précipitations a été intégrée sur la période d'échantillonnage. Le nombre de jours avec précipitations durant la période de prélèvement a également été considéré afin de rendre compte dans une certaine mesure des différents types de précipitations.

De manière attendue, des corrélations négatives sont observées entre le cumul de pluie durant la période d'échantillonnage et le niveau d'activité en ^{137}Cs dans l'air ambiant (Table 2-1). La même tendance se dégage lors de la prise en compte du nombre de jours de pluie durant la période de prélèvement. Ces observations confirment l'efficacité du dépôt humide sur le rabattement des aérosols et son implication dans les diminutions significatives des niveaux d'activité.

2.1.2 – Influence du vent

L'influence du vent est évaluée au travers des mesures effectuées par les capteurs météorologiques des stations OPERA décrits dans la partie 1.1.4. Le vent peut avoir un effet antagoniste sur les concentrations en aérosols dans les basses couches de l'atmosphère. Dans le cas d'un sol aride, le frottement du vent au-delà d'une certaine intensité sur la surface du sol, peut entrainer le soulèvement de particules dans l'atmosphère (Cf. 3.1.1). Pour les particules mises ou

déjà en suspension, la présence de vent a ensuite un effet dispersif sur leur concentration. Pour étudier son influence sur les niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs, la moyenne de son module a été calculée sur chaque période de prélèvement. Afin de ne pas multiplier le nombre de figures, l'ensemble des stations est représenté sur un même graphique après avoir calculé une valeur index pondérée par la moyenne obtenue à chaque station sur la période d'étude (Figure 2-1). Ce recours à une valeur index permet une meilleure visualisation de l'ensemble des stations qui est rendue difficile par les différents régimes de vent rencontrés au niveau de chaque station.

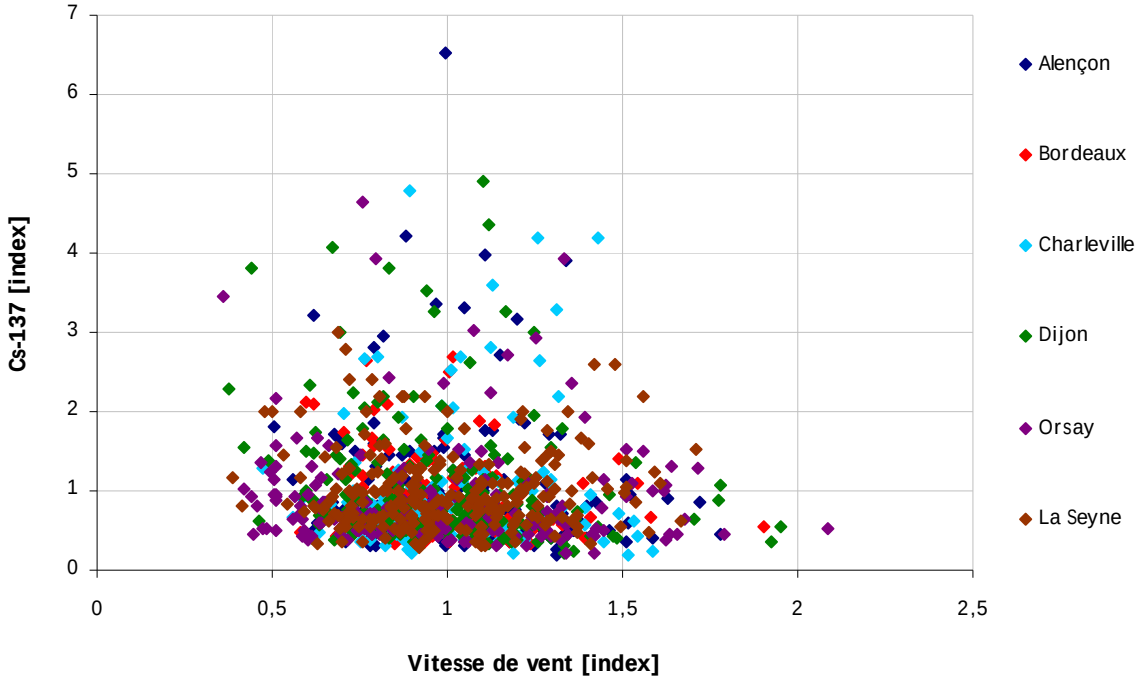


Figure 2-1 : Niveaux d'activité en ^{137}Cs en fonction de l'intensité moyenne du vent pour chacune des stations du réseau OPERA. Les valeurs sont pondérées par la moyenne sur la période d'étude pour chaque station.

Les coefficients de corrélation obtenus (Table 2-1) ne permettent pas d'établir de relation entre l'intensité du vent et les niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs. Sur la figure 2-1, on observe tout de même un plus grand nombre d'augmentations significatives pour les vitesses de vent faibles. Cette tendance indique qu'à l'échelle locale, l'effet de dispersion du vent est prédominant en comparaison de son influence sur la remise en suspension de particules.

2.1.3 – Relations avec la température

La température conditionne l'épaisseur de la couche limite atmosphérique et les mouvements verticaux, lesquels influent fortement sur la dispersion des aérosols. Les variations de température conditionnent également certains comportements pouvant être impliqués dans l'émission de particules dans l'atmosphère.

L'influence de la température est étudiée par sa moyenne durant la période de prélèvement au niveau de chaque station du réseau OPERA. Le calcul de régressions avec les variations des niveaux d'activité en ^{137}Cs met en évidence une corrélation négative pour 4 stations du réseau OPERA avec des coefficients de corrélation compris entre R = - 0.31 et - 0.47 ($p < 0.01$) pour Dijon et Bordeaux respectivement (Table 2-1).

Les augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans l'air ambiant présentent donc une saisonnalité et se manifestent majoritairement en hiver. Cette observation implique de considérer les processus d'émission de particules dans l'atmosphère au cours de la saison hivernale afin d'établir leur contribution sur la rémanence du ^{137}Cs atmosphérique et d'étudier l'influence de la diminution des conditions de dispersion caractéristique de la saison hivernale. Cette étude sera réalisée au cours du chapitre 5.

	Cumul pluie	Jours pluie	Température	Vitesse du vent
Alençon	-0.22	-0.16	-0.13	-0.08
Bordeaux	-0.13	-0.32	-0.47	-0.28
Charleville	-0.25	-0.42	-0.37	0.14
Dijon	-0.23	-0.05	-0.31	-0.20
Orsay	-0.34	-0.43	-0.32	0.06
La Seyne	-0.04	-0.16	-0.12	-0.01

Table 2-1 : Coefficient de corrélation entre les niveaux d'activité en ^{137}Cs et les différents paramètres météorologiques étudiés pour chaque station du réseau OPERA. Les coefficients de corrélation dont le degré de confiance est supérieur à 95 % sont reportés en bleu et ceux supérieurs à 99% en rouge.

2.2 - Relations entre les niveaux d'activité en césium-137 et différents composés particulaires

2.2.1 - Relations avec le béryllium-7

Le béryllium-7 est un radionucléide naturel formé dans les hautes couches de l'atmosphère (cf. partie 1.2.2.1). En comparant les séries chronologiques de ce radionucléide et celles du ^{137}Cs, obtenues au niveau des stations OPERA, il apparait que la relation entre ces deux radionucléides évolue au cours du temps. Ainsi trois périodes peuvent être distinguées.

Tout d'abord, lors de la période des expérimentations nucléaires atmosphériques à des fins militaires, les variations annuelles des niveaux d'activité de ces deux radionucléides se trouvent être en phase (Figure 2-2). Cette relation montre que le ^{137}Cs possède, durant cette période, une origine similaire à celle du ^{7}Be, c'est-à-dire une origine stratosphérique (Bouisset et al., 2004). Due à l'énergie libérée lors des expérimentations nucléaires atmosphériques, une majeure partie du

^{137}Cs émis dans l'environnement est directement injectée dans la stratosphère. Ce ^{137}Cs ne retourne alors dans la troposphère que lors des intrusions d'air stratosphérique qui sont caractérisées par une augmentation du niveau d'activité en ^{7}Be dans les basses couches de l'atmosphère. Ces intrusions d'air stratosphérique présentent un maximum au printemps et un minimum en hiver. Durant cette période allant jusqu'au début des années 1980, le compartiment atmosphérique et notamment la stratosphère se trouve être le principal réservoir du ^{137}Cs.

Au cours du temps et après l'arrêt des expérimentations nucléaires atmosphériques, le stock atmosphérique de ^{137}Cs diminue et les maximums saisonniers d'activité du ^{7}Be, reliés aux intrusions d'air stratosphérique, ne correspondent plus à des maximums d'activité du ^{137}Cs dans les basses couches. Après l'accident de Tchernobyl en 1986, les variations des niveaux d'activités volumiques du ^{137}Cs et du ^{7}Be se trouvent même être en opposition de phase (Figure 2-2) (Bouisset et al., 2004), les minimums d'activité en ^{137}Cs coïncidant avec les maximums d'activité en ^{7}Be. Cette nouvelle relation indique tout d'abord que la haute atmosphère n'est plus le principal réservoir du ^{137}Cs et surtout que les aérosols apportés par les intrusions d'air stratosphérique, correspondant aux maximums de l'activité volumique du ^{7}Be, sont moins porteurs de ^{137}Cs que les aérosols des basses couches. Ainsi, à l'inverse de la période des retombées globales, les intrusions d'air stratosphérique sont associées à des intrusions d'air propre. Durant cette période post-accidentelle, les principaux réservoirs de ^{137}Cs semblent alors être la troposphère et le compartiment terrestre via les différents processus de remise en suspension.

A partir du début des années 2000, les variations de ces deux radionucléides ne présentent plus aucune relation (Figure 2-2). Cette observation montre que le ^{137}Cs mesuré dans les aérosols au niveau des stations du réseau OPERA ne provient plus du stock atmosphérique totalement épuisé. La concentration de ce radionucléide dépend dès lors de l'efficacité des différents processus de remise en suspension des particules déposées et des processus de dépôt et en aucune façon des intrusions d'air stratosphérique.

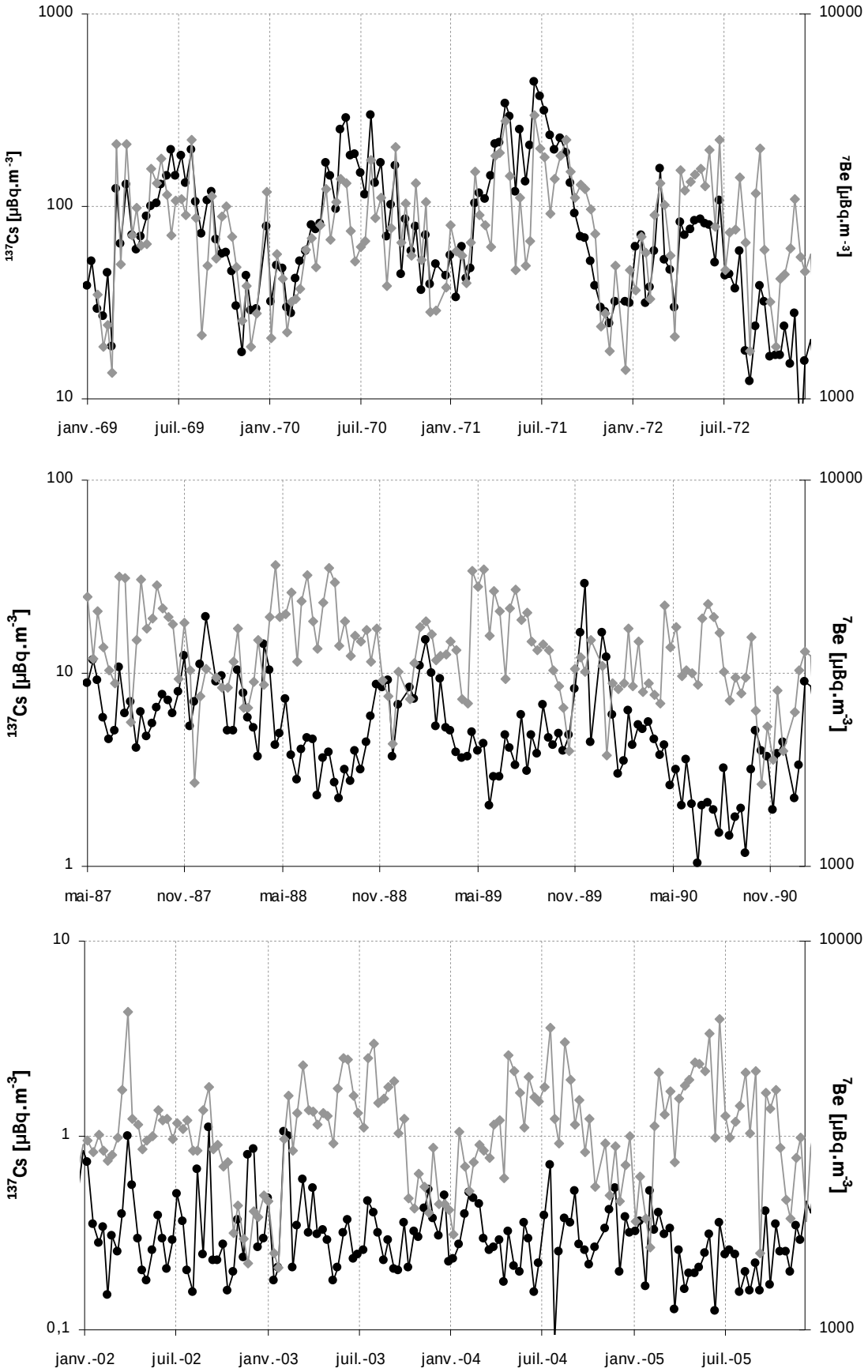


Figure 2-2 : Evolution de l'activité volumique en ^{137}Cs (courbe noire) et ^{7}Be (courbe grise) pour les différentes périodes décrites dans le texte.

2.2.2 - Relations avec le plomb-210

A l'inverse du ^{7}Be étudié précédemment, le ^{210}Pb peut être utilisé pour tracer une origine continentale des masses d'air en raison de son origine principalement tellurique (cf. partie 1.2.2.1). La comparaison des niveaux d'activité en ^{137}Cs et ^{210}Pb dans les aérosols peut alors nous renseigner sur la provenance du premier.

La figure 2-3 représente les niveaux d'activité en ^{137}Cs au niveau des différentes stations du réseau OPERA en fonction des niveaux d'activité en ^{210}Pb entre janvier 2000 et décembre 2008. Pour l'ensemble des stations, une tendance semble se dégager entre ces deux radionucléides avec des augmentations proportionnelles et des coefficients de corrélation linéaire variant entre $R = 0.27$ ($p < 0.01$) pour la station de la Seyne-sur-Mer et $R = 0.65$ ($p < 0.01$) pour la station de Clermont-Ferrand (Table 2-2). Pour l'ensemble des données, le coefficient de corrélation est de $R = 0.49$ ($p < 0.01$).

La plus faible corrélation observée pour la station de La Seyne-sur-Mer met en évidence une climatologie différente ainsi qu'une moindre influence des advections de masses d'air continentales sur les variations des niveaux d'activité en ^{137}Cs. Pour les autres stations, bien que la réciproque ne soit pas vérifiée, la majorité des augmentations significatives du niveau de ^{137}Cs semble associée à des augmentations du niveau de ^{210}Pb consécutives à des advections de masses d'air continentales.

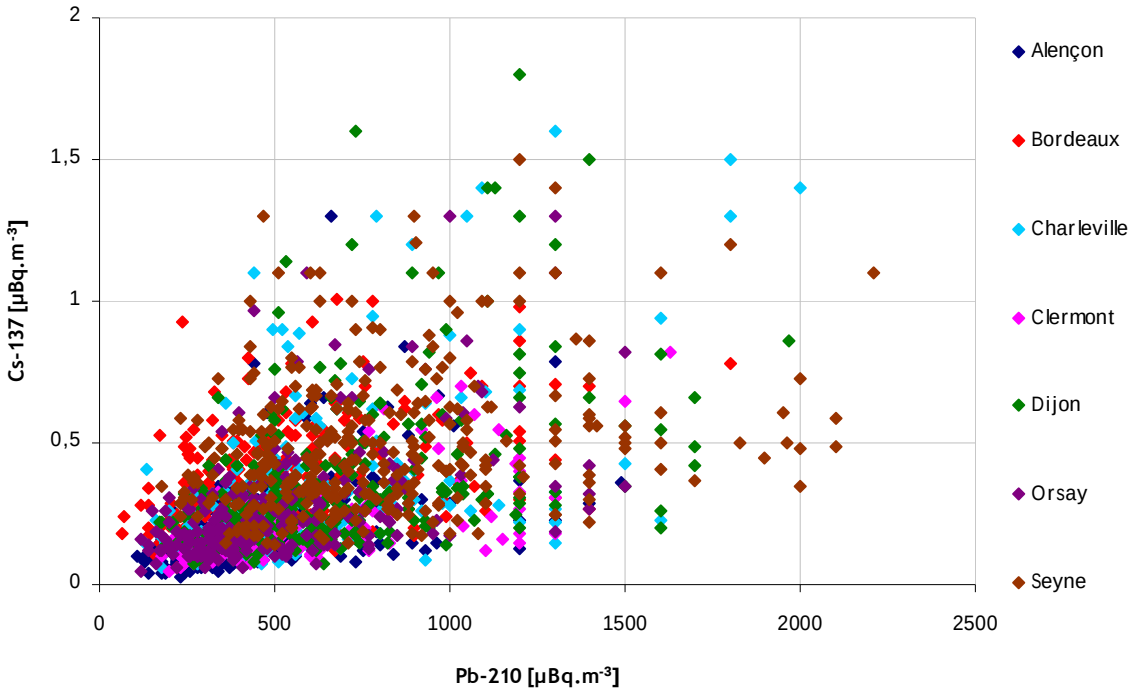


Figure 2-3 : Relation entre les niveaux d'activité en ^{137}Cs et en ^{210}Pb pour l'ensemble des stations du réseau OPERA entre janvier 2000 et décembre 2008.

2.2.3 - Relations avec le rapport béryllium-7 et plomb-210

Le rapport des niveaux d'activité entre le béryllium-7 et le plomb-210 permet également de renseigner sur l'origine des masses d'air en raison des origines différentes de ces deux radionucléides (Likuku, 2006). Les augmentations de ce rapport sont associées à des influences océaniques tandis que les diminutions sont associées à des influences continentales en relation avec les observations faites ci-dessus.

La comparaison des niveaux d'activité en ^{137}Cs avec les valeurs de ce rapport font apparaitre une tendance (Figure 2-4) où les augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs se caractérisent par des diminutions du rapport des niveaux d'activité entre le ^{7}Be et le ^{210}Pb et inversement. Ces observations permettent ainsi de compléter la partie précédente en mettant également en évidence que les advections de masses d'air océaniques entrainent des diminutions des niveaux d'activité en ^{137}Cs. Le coefficient de corrélation linéaire obtenu pour l'ensemble des données du réseau OPERA, $R = -0.36$ ($p < 0.01$), montre que la réciproque ne peut pas être vérifiée. Ainsi, des masses d'air continentales, caractérisées par une augmentation de ce rapport, peuvent être associées à des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs faibles mais en aucun cas les masses d'air océaniques ne peuvent être associées à des augmentations significatives de ce radionucléide.

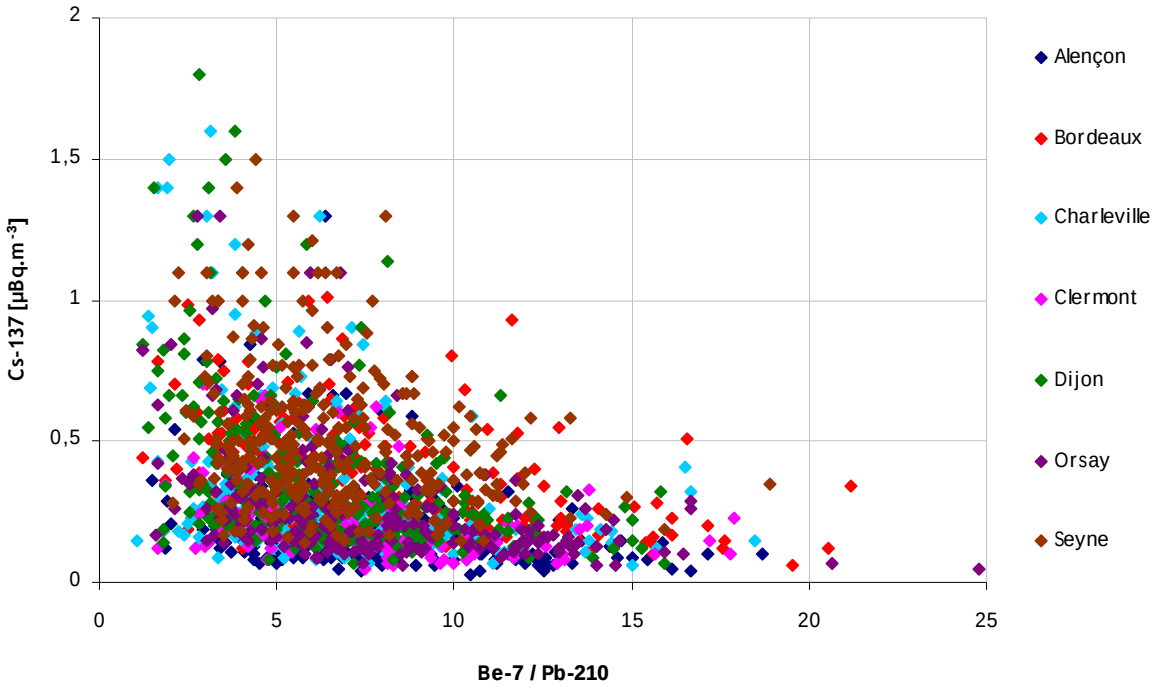


Figure 2-4 : Relation entre les niveaux d'activité en ^{137}Cs et le rapport des niveaux d'activité entre le ^{7}Be et le ^{210}Pb pour l'ensemble des stations du réseau OPERA entre janvier 2000 et décembre 2008.

2.2.4 - Relations avec le potassium-40

Le ^{40}K est un radionucléide naturel principalement présent dans le sol et la biomasse et pouvant être utilisé comme un traceur d'émission de particules issues de matrices naturelles (sol, bois, végétaux…) se trouvant dans le compartiment terrestre (cf. partie 1.2.2.1).

La figure 2-5 représente les niveaux d'activité en ^{137}Cs au niveau des différentes stations du réseau OPERA en fonction des niveaux d'activité en ^{40}K entre janvier 2000 et décembre 2008. Pour l'ensemble des stations et sans exception (Table 2-2), une relation linéaire est observée entre ces deux radionucléides avec un coefficient de corrélation pour l'ensemble des données du réseau OPERA de $R = 0.59$ ($p < 0.01$).

Ces résultats indiquent une origine partiellement commune de ces deux radionucléides. Cependant, bien que le ^{40}K soit présent dans l'ensemble des sols et de la biomasse, son rapport avec le ^{137}Cs n'est pas constant dans ces matrices dû principalement à l'hétérogénéité des dépôts consécutifs aux retombées de Tchernobyl à l'échelle de l'Europe (cf. figure 1-14) . Ainsi, même si les particules en suspension porteuses de ^{137}Cs proviennent de matrices de nature identique, celles-ci pourront contribuer de façon différente aux variations de niveaux d'activité en ^{40}K et en ^{137}Cs. Ainsi, Wershofen et Arnold (2005) utilisent le rapport des niveaux d'activité de ces deux radionucléides pour caractériser la contamination de la matrice émettrice de particules porteuses de ^{137}Cs et donner une indication sur la région source ainsi que sur le processus de remise en suspension (cf. 2.4.6.3).

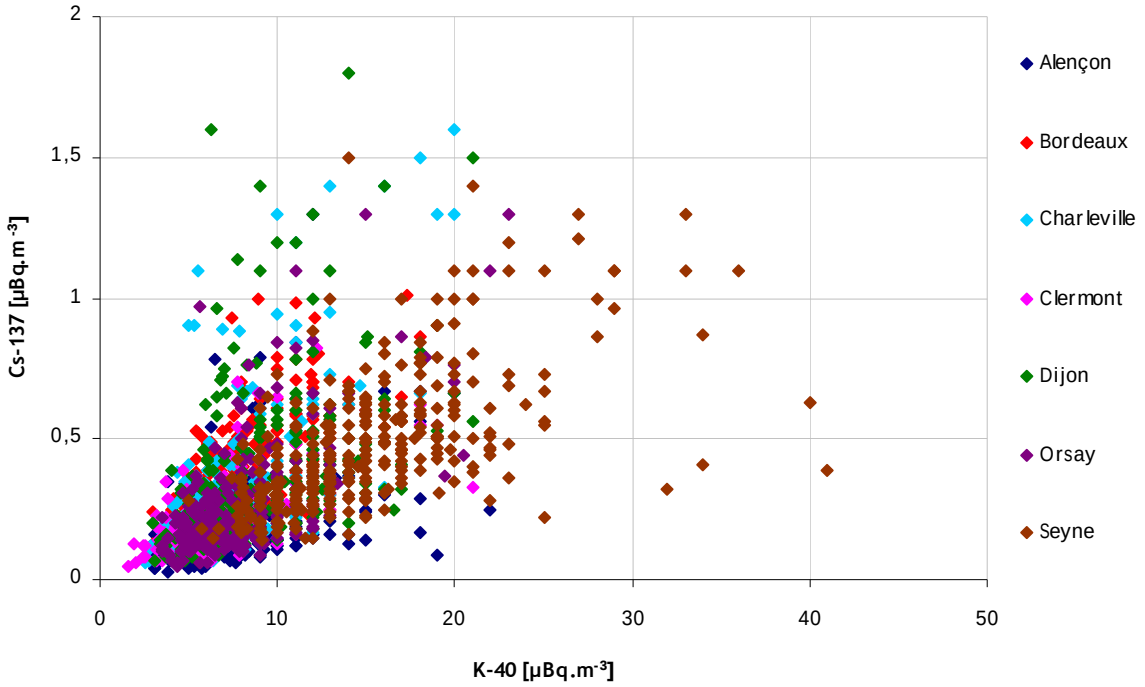


Figure 2-5 : Relation entre les niveaux d'activité en ^{137}Cs et en ^{40}K pour l'ensemble des stations du réseau OPERA entre janvier 2000 et décembre 2008.

2.2.5 – Relations avec la masse particulaire en suspension

Le ^{137}Cs atmosphérique mesuré au niveau des stations du réseau OPERA se présente sous forme particulaire et fixé sur les aérosols ambiants. Cette partie s'intéresse à la relation entre la masse particulaire en suspension dans l'atmosphère et les niveaux d'activité en ^{137}Cs.

La masse totale de particules en suspension (TSP[3]) est estimée au niveau de chaque station du réseau OPERA par pesée des filtres. Elle représente la masse d'aérosols collectée sur les filtres durant la période d'échantillonnage rapportée au volume prélevé. Elle s'exprime en unité de masse par unité de volume et est mesurée depuis mars 2007. La mise en relation de cette mesure avec l'activité volumique en ^{137}Cs est présentée dans la figure 2-6.

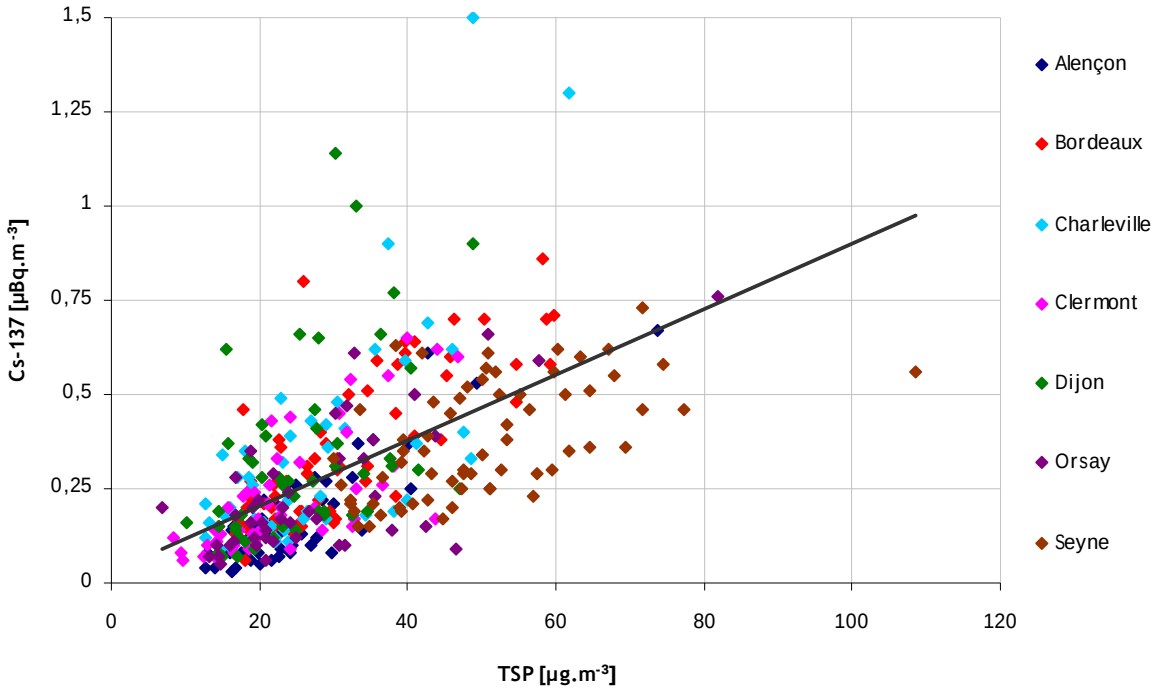


Figure 2-6 : Relation entre les niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs et la masse de particules en suspension (TSP) pour l'ensemble des stations du réseau OPERA.

La régression linéaire présentée sur la figure 2-6 donne un coefficient de corrélation pour l'ensemble des stations de R = 0.61 ($p < 0.01$) permettant d'établir une relation linéaire entre ces deux grandeurs de la forme :

$$A_{vol.}^{Cs-137} = \alpha.TSP + \beta$$

$A_{vol.}^{Cs-137}$: activité volumique du ^{137}Cs exprimée en µBq.m^{-3},

TSP : masse totale de particules en suspension en µg.m^{-3},

α : coefficient de la régression linéaire de valeur 8.7 10^{-3} exprimée en Bq.g^{-1},

β : constante de la régression linéaire de valeur 2.9 10^{-2} exprimée en µBq.m^{-3}.

[3] TSP : de l'anglais Total Suspended Particles

Le calcul de cette régression linéaire fait apparaitre le coefficient α exprimé en unité d'activité par unité de masse. Ce coefficient est ainsi homogène à une activité massique en ^{137}Cs des aérosols prélevés. Nous déterminons ainsi que l'activité massique moyenne des aérosols prélevés par les stations du réseau OPERA est de 8.7 $Bq.kg^{-1}$. Cette nouvelle grandeur permet une discussion sur les caractéristiques des particules remise en suspension suivant la matrice ou la région d'origine à l'image des travaux de Wershofen et Arnold (2005) utilisant le rapport des niveaux d'activité entre le ^{137}Cs et le ^{40}K.

Sur la figure 2-6, les augmentations significatives de l'activité volumique en ^{137}Cs correspondent ainsi à des augmentations de l'empoussièrement dans les basses couches. Une partie des processus de remise en suspension du ^{137}Cs est donc caractérisée par une injection importante de particules dans l'atmosphère contribuant à augmenter la masse totale de particules en suspension.

2.2.6 – Synthèse des relations entre le ^{137}Cs et différents composés particulaires

Les niveaux d'activité volumique du ^{137}Cs sur l'ensemble du réseau OPERA présentent des tendances avec différents composés particulaires permettant d'associer ses variations significatives aux différentes origines des masses d'air. Ce radionucléide est associé à des particules issues du compartiment terrestre, que se soit du sol ou de la biomasse.

Les observations faites pour l'ensemble des données de la base OPERA peuvent également s'appliquer à chacune des stations. Bien que les coefficients des droites de régression linéaire varient d'une station à l'autre, les tendances et les relations entre les variations des niveaux d'activité en ^{137}Cs et les composés particulaires étudiés restent comparables malgré des climatologies différentes.

	^{7}Be	^{210}Pb	($^{7}Be/^{210}Pb$)	^{40}K	TSP
Alençon	0.28	0.47	-0.32	0.44	0.86
Bordeaux	-0.01	0.40	-0.45	0.65	0.79
Charleville	0.13	0.55	-0.34	0.63	0.71
Clermont	0.24	0.65	-0.37	0.63	0.72
Dijon	-0.04	0.46	-0.43	0.45	0.47
Orsay	0.13	0.54	-0.41	0.64	0.71
La Seyne-sur-Mer	0.07	0.27	-0.26	0.60	0.55
OPERA	0.18	0.49	-0.36	0.59	0.61

Table 2-2 : Coefficient de corrélation entre les niveaux d'activité en ^{137}Cs et les différents composés particulaires étudiés pour chaque station du réseau OPERA. Les coefficients de corrélation dont le degré de confiance est supérieur à 95 % sont reportés en bleu et ceux supérieurs à 99% en rouge.

2.3 – Influence de la contamination des sols

La mise en relation de la densité de dépôt au sol avec le niveau d'activité dans les aérosols permet d'apprécier l'influence d'une remise en suspension à l'échelle locale. Les dépôts cumulés de ^{137}Cs sur le territoire français de 1945 à 1980 dus aux retombées globales des essais atmosphériques sont estimés à partir des précipitations moyennes annuelles fournies par Météo-France. La contribution des retombées de l'accident de Tchernobyl est également estimée à partir d'une relation « pluie-dépôt » avec une résolution temporelle plus fine, permettant de limiter le dépôt à la durée de survol des territoires par le panache. Les estimations utilisées sont issues de Renaud et al. (2007) et présentées dans la table 2-3.

	Alençon	Bordeaux	Charleville-M.	Clermont-F.	P.d.D.	Dijon	Orsay	La Seyne
Dépôt sol [Bq.m^{-2}]	2967	3589	3006	2488	2787	3415	2435	3382
Activité air [µBq.m^{-3}]	0.20	0.37	0.33	0.23	0.48	0.36	0.27	0.49

Table 2-3 : Estimation du dépôt au sol en ^{137}Cs et moyenne des niveaux d'activité dans les aérosols (2000-2009) au niveau de chaque station du réseau OPERA.

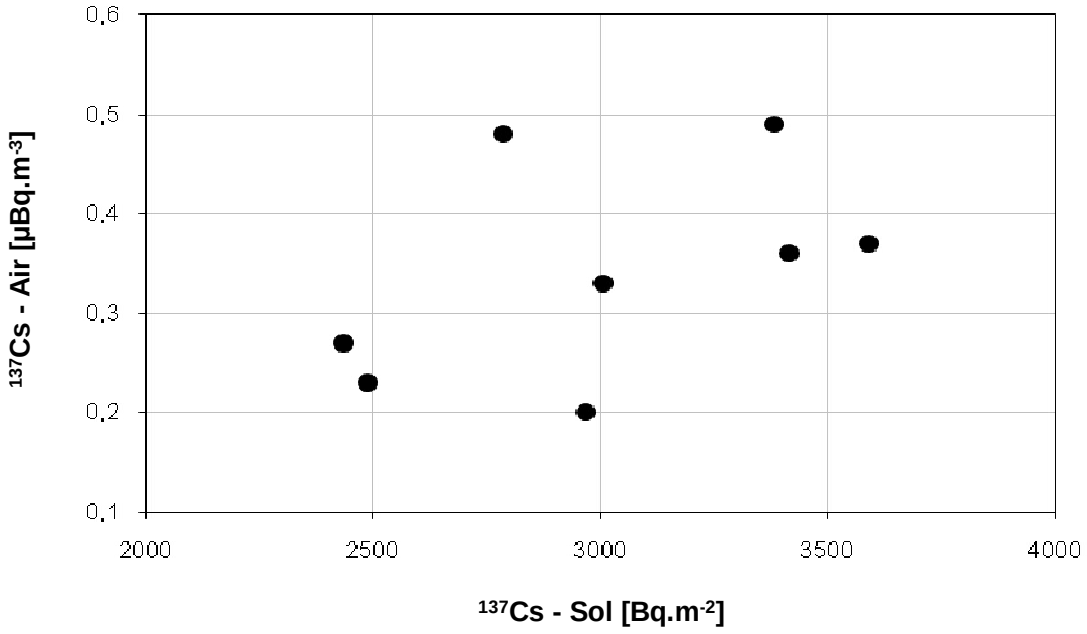


Figure 2-7 : Moyenne de l'activité en ^{137}Cs dans les aérosols en fonction de la densité de dépôt au niveau de chaque site de prélèvement

La confrontation de ces estimations avec l'activité moyenne dans les aérosols sur la période d'étude est présentée sur la figure 2-7 et permet d'établir une relation linéaire entre ces deux mesures, avec un coefficient de corrélation de R = 0.48 ($p < 0.25$), de la forme :

$$A_{air}^{Cs-137} = \alpha . A_{sol}^{Cs-137} + \beta$$

A_{air}^{Cs-137} : activité volumique moyenne du ^{137}Cs exprimée en $Bq.m^{-3}$,
A_{sol}^{Cs-137} : densité de dépôt en ^{137}Cs exprimée en $Bq.m^{-2}$,
α : coefficient de la régression linéaire de valeur $1.6\ 10^{-10}$ exprimée en m^{-1},
β : constante de la régression linéaire de valeur $-1.4\ 10^{-7}$ exprimée en $Bq.m^{-3}$.

Dans cette relation apparait le coefficient de régression linéaire α exprimé en [m^{-1}]. Ce coefficient est équivalent au coefficient de remise en suspension K, utilisé dans plusieurs études afin de quantifier la contribution de la remise en suspension à l'échelle locale sur les niveaux ambiants (Anspaugh, 1975 ; Garland, 1982 ; Garland et Pomeroy, 1994 ; Rapport ECP-5, 1995 ; Rosner et Winkler, 2001). Ce coefficient est défini par la relation :

$$\mathrm{K} = \frac{C_{air}}{C_{sol}}$$

K : coefficient de remise en suspension en m^{-1},
C_{air} : concentration du contaminant dans l'air en $Bq.m^{-3}$,
C_{sol} : densité de dépôt au sol en $Bq.m^{-2}$

D'après sa définition, l'utilisation de ce coefficient pour quantifier la remise en suspension suppose que l'intégralité de la contamination atmosphérique résulte de processus de remise en suspension locaux et que l'advection de contamination doit pouvoir être négligée. Cette hypothèse est facilement discutable dans le cadre de notre étude puisqu'elle ne peut être vérifiée que sur des surfaces où le dépôt est homogène et prépondérant vis-à-vis des surfaces plus lointaines qui pourraient entrainer un transport de contamination longue distance. Nous n'utiliserons donc pas ce coefficient pour quantifier la contribution de l'ensemble des processus de remise en suspension locaux sur les niveaux d'activité en ^{137}Cs mais simplement pour discuter de la valeur obtenue au regard de celles reportées dans la littérature (Table 2-4).

La valeur moyenne de ce coefficient pour chaque station sur l'ensemble de la chronique de 2000 à 2009 est donnée dans la table 2-4. Ce coefficient de remise en suspension est ainsi de l'ordre de 10^{-10} m^{-1} pour l'ensemble des données disponibles. Cet ordre de grandeur correspond aux valeurs reportées dans la littérature pour un calcul de ce coefficient sur le « long terme » aussi bien dans les régions proches, dont le dépôt au sol est comparable aux sites de notre étude, que dans les régions plus fortement impactées par les retombées de l'accident de Tchernobyl, comme dans la zone d'exclusion des 30 km.

Source	Site	Date	K [m^{-1}]
Garland et Pomeroy, 1994	Conlig (Royaume-Unis)	1992	$5.0\ 10^{-10}$
Rapport ECP-5, 1995	Suède (8 sites) [a]	1991	$2.7 – 9.0\ 10^{-10}$ [b]
	Zone d'exclusion de Tchernobyl (3 sites) [c]	1992 - 1994	$2.0 – 4.4\ 10^{-10}$ [b]
	Novozybkov (Russie)	1992 - 1994	$7.7\ 10^{-10}$
	Mikulichi – Kovali (Biélorussie)	1992 - 1994	$3.1 - 6.3\ 10^{-10}$
Garger et al., 1997	Tchernobyl (Ukraine)	1991	$8.0\ 10^{-10}$
Fogh et al., 1999	Riso – Roskilde (Danemark)	1990 - 1993	$3.6\ 10^{-10}$
Rosner et Winkler, 2001	Munich – Neuherberg (Allemagne)	1998	$1.4\ 10^{-10}$
Cette étude	Alençon	2000 - 2009	$0.7\ 10^{-10}$
	Bordeaux	2000 - 2009	$1.0\ 10^{-10}$
	Charleville	2000 - 2009	$1.1\ 10^{-10}$
	Clermont	2004 - 2009	$0.9\ 10^{-10}$
	Puy-de-Dôme	2004 - 2009	$1.7\ 10^{-10}$
	Dijon	2000 - 2009	$1.1\ 10^{-10}$
	Orsay	2000 - 2009	$1.1\ 10^{-10}$
	La Seyne-sur-Mer	2000 - 2009	$1.4\ 10^{-10}$
	Réseau OPERA	2000 - 2009	$1.6\ 10^{-10}$

a : Sites de Kiruna, Umea, Östersund, Ursvik, Grindsjön, Visby, Göteborg et Ljungbyhed.
b : gamme de valeurs pour les différents sites.
c : sites de Kopachi, Beach-Pripyat et Zapolye.

Table 2-4 : Comparaison des valeurs du coefficient de remise en suspension K [m-1] pour les stations du réseau OPERA et pour les données rencontrées dans la littérature. Seules les mesures effectuées après 1990 sont reportées.

Au regard du coefficient de corrélation linéaire calculé entre les niveaux d'activité dans les aérosols mesurés sur l'ensemble des sites de prélèvement étudiés et la densité de dépôt estimée sur ces sites, aucune relation ne se dégage entre ces deux grandeurs. Une observation supplémentaire peut être apportée au regard de ces données. Les stations de Clermont-Ferrand et du Puy-de-Dôme présentent des densités de dépôt relativement proches (2488 – 2787 $Bq.m^{-2}$), avec une légère augmentation pour le site d'altitude due à une pluviométrie plus importante. En revanche, les niveaux d'activité moyens entre ces deux sites de prélèvement varient du simple au double (0.23 – 0.48 $Bq.m^{-3}$). Le site du Puy-de-Dôme se trouvant régulièrement en atmosphère libre, il est alors plus régulièrement influencé par un transport longue-distance de particules voyageant en altitude. A l'inverse le site de Clermont-Ferrand se trouve à l'intérieur de la couche limite atmosphérique et donc, en comparaison, plus influencé par tous les processus locaux d'émission et de réémission. Cette différence tend à indiquer que le transport longue-distance participerait aux augmentations significatives du niveau d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols tandis que les processus locaux contribueraient davantage aux niveaux moyens.

2.4 – Localisation des régions impliquées dans la rémanence du césium-137 atmosphérique

Les différentes observations faites dans les parties précédentes de ce chapitre laissent supposer que le transport longue-distance influe sur les variations du niveau d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols, qu'il s'agisse de diminutions ou d'augmentations significatives. La contribution du transport longue-distance sur les niveaux d'activité en ^{137}Cs est alors estimée en évaluant la dépendance entre les variations du niveau d'activité et l'origine des masses d'air.

2.4.1 - Les masses d'air et leur origine

L'atmosphère peut être décomposée en plusieurs sous-ensembles de volumes à l'intérieur desquels les paramètres physiques sont supposés homogènes. Ces sous-ensembles sont appelés des masses d'air. Leurs caractéristiques sont acquises par l'influence qu'exerce la surface terrestre sur les couches inférieures de l'atmosphère. Pour les météorologues, ces caractéristiques sont en général la température, l'humidité et la pression. Dans notre étude, les caractéristiques retenues pour différencier les masses d'air seront principalement rattachées à la nature des aérosols qui la composent. L'influence de la surface terrestre se manifestera principalement au travers des différentes émissions de particules dans les basses couches de l'atmosphère. Les caractéristiques d'une masse d'air imprimée par le survol d'une région du globe ne sont pas définitivement acquises et évoluent au cours de ses différents déplacements. Définir son origine peut sembler être une aberration. Dans cette partie et pour l'ensemble du document, nous définirons donc avec un certain abus de langage, et par simplification, l'origine d'une masse d'air comme la région du globe qui aura principalement influé sur ses caractéristiques propres qui la distinguent des autres masses d'air.

La circulation des masses d'air à la surface du globe résulte principalement de mouvements à grande échelle de l'atmosphère. Ces mouvements tendent à équilibrer les différences de températures et de pression rencontrées. Ainsi, les masses d'air circulent à la surface du globe portées par les vents engendrés par ces différents déséquilibres. En connaissant l'état de l'atmosphère en tous points du globe, il est possible de déterminer le mouvement de ces masses d'air. Les réseaux d'observations des paramètres météorologiques ne permettent pas d'obtenir cette information avec une résolution spatiale suffisante et satisfaisante. En revanche, des modèles de prévisions et d'analyse, offrant une meilleure résolution, peuvent être utilisés. Grâce à leurs bases de données, il est possible de retracer le parcours emprunté par les masses d'air et ainsi de leur associer une origine.

2.4.2 – Détermination du parcours des masses d'air

Le modèle Hybrid Single-Particle Langrangian Integrated Trajectory (HYSPLIT) (Draxler et Rolph, 2003) développé par la National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) a été utilisé pour retracer les parcours empruntés par les masses d'air arrivant en un point du globe et ainsi définir leur origine pour une durée de transport donnée. Ce modèle est disponible à partir du site de l'Air Ressources Laboratory (ARL) (http://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php). Pour cette étude, nous avons utilisé la version téléchargée qui permet une plus grande liberté sur le contrôle des paramètres d'entrée du modèle ainsi que sur le format des fichiers de sorties.

A l'aide de ce modèle, le parcours des masses d'air peut être représenté par une trajectoire unique. Nous appellerons ce parcours dans la suite du document la « rétro-trajectoire ». Ce concept limite la masse d'air à un volume infinitésimal isolé, qui ne peut échanger avec son environnement (Stohl et al., 2002). Les phénomènes de dispersion et de mélange sont alors exclus. Cette simplification revient ainsi à retracer le parcours d'une seule particule se trouvant à l'intérieur d'une masse d'air en ne considérant que l'advection. Pour améliorer la représentativité de ce concept et intégrer les différents processus de mélange et de diffusion qui constituent au final la masse d'air, le concept de « rétro-panache » peut être préféré comme proposé dans Stohl et al. (2003). Ce concept revient à suivre le parcours emprunté par un grand nombre de particules avant d'arriver en un point du globe. La figure 2-8 présente une illustration des résultats obtenus suivant ces deux concepts.

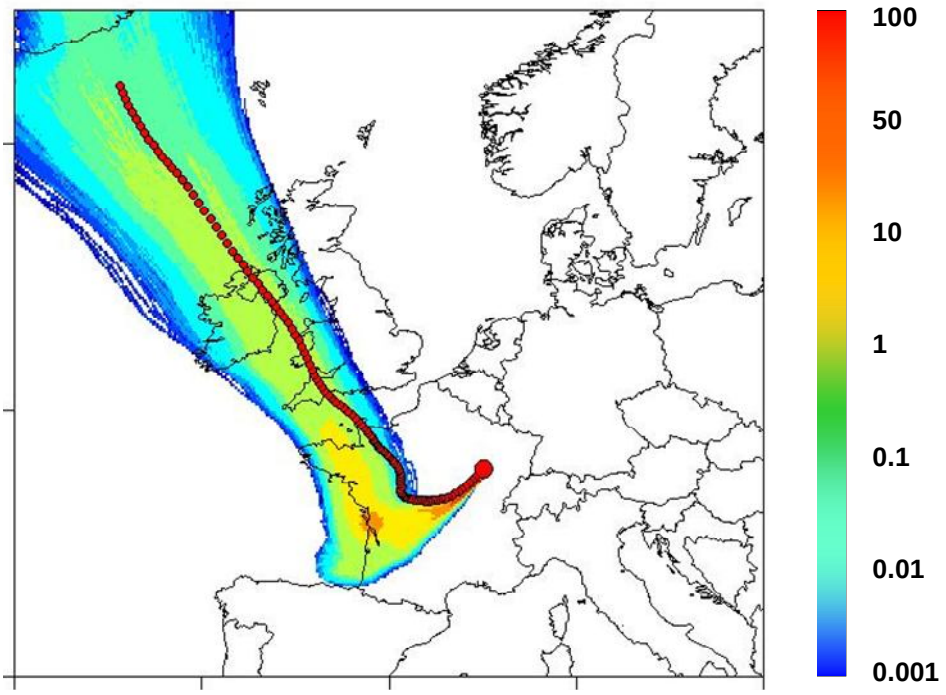


Figure 2-8 : Comparaison du parcours d'une masse d'air suivant les concepts de « rétro-trajectoire » (cercles rouges) et de « rétro-panache » (couleurs de fond). L'échelle de couleurs représente le pourcentage du total des particules arrivant à la station de prélèvement passant sur chacun des pixels du domaine d'étude.

Cette figure, représentative de la majorité des cas rencontrés, montre que le tracé d'une simple rétro-trajectoire représente le chemin privilégié emprunté par le plus grand nombre de particules et obtenu à l'aide du tracé du rétro-panache. Dans le cas d'une étude s'intéressant à un épisode particulier, il est alors préférable de retenir le concept de rétro-panache afin de représenter de manière plus précise les régions qui auront influencées sa composition. En revanche, dans le cas d'une étude considérant un grand nombre de cas, il sera préférable d'utiliser le concept de rétro-trajectoire afin de limiter les temps de calcul qui augmentent très rapidement lors de la simulation de rétro-panaches. De plus, le tracé d'un grand nombre de rétro-trajectoires limitera les incertitudes liées aux limites de ce concept.

Afin de réaliser ces différents tracés, le modèle HYSPLIT nécessite de disposer de données météorologiques associées aux périodes étudiées. Pour notre étude, nous utilisons les données FNL et GDAS issues du modèle NCEP Global Data Assimilation System et disponibles sur le serveur web de l'Air Resources Laboratory de la NOAA (Rolph, 2003). De plus amples informations sur ces données météorologiques peuvent également y être trouvées, comme les différents champs calculés ou les résolutions spatio-temporelles des différents modèles sources.

2.4.3 – Relation entre l'origine des masses d'air et les variations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols

Afin d'étudier le transport de composés atmosphériques et de localiser leurs principales sources, plusieurs méthodes d'analyses ont été développées. La majorité d'entre elles combinent des mesures effectuées sur des prélèvements atmosphériques avec le calcul de rétro-trajectoires. Ces méthodes vont de la simple classification des masses d'air en fonction de leur vitesse de déplacement ou des territoires survolés (Miller, 1987 ; Sogacheva et al., 2007) à des classifications plus complexes, introduisant des méthodes d'analyses statistiques (Han et al., 2007; Lai et al., 2007; Riccio et al., 2007; Zhao et al., 2007; Begum et al., 2005; Zhou et al., 2004; Luppu et Maenhaut, 2002; Charron et al., 1998) ou des algorithmes spécifiques (Borge et al., 2007 ; Riccio et al., 2007). Une revue de l'ensemble de ces méthodes est réalisée par Stohl (1998).

Chaque niveau de complexification des méthodes d'analyse de rétro-trajectoires requiert un développement des outils informatiques utilisés ainsi qu'un allongement des temps de calculs. Dans un premier temps, afin de tester l'hypothèse selon laquelle les variations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols seraient imputables à un transport longue-distance, nous appliquons une simple méthode de classification des masses d'air, basée sur le calcul des rétro-trajectoires, afin de définir une relation entre les augmentations et les diminutions significatives respectivement, du niveau d'activité en ^{137}Cs et l'origine des masses d'air associées.

2.4.3.1 – Cas des augmentations significatives du niveau d'activité en ^{137}Cs

A partir des mesures réalisées entre janvier 2000 et décembre 2006 par le réseau OPERA, nous sélectionnons pour chacune des stations les périodes pour lesquelles la mesure du niveau d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols est supérieure au centile 90 de la distribution (Table 2-5). Les rétro-trajectoires des masses d'air arrivant au niveau de chaque station durant ces périodes sont tracées à l'aide du modèle HYSPLIT.

Afin d'être représentatif des multiples origines des masses d'air durant le temps de prélèvement des aérosols correspondant à une mesures d'activité, nous choisissons de tracer une rétro-trajectoire toutes les 24 heures durant la période correspondante. En moyenne, 10 rétro-trajectoires pour une mesure du niveau d'activité en ^{137}Cs sont obtenues. Le modèle HYSPLIT est paramétré pour que la hauteur d'arrivée des rétro-trajectoires se situe à 100 m au dessus du sol afin de pouvoir être représentatif des prélèvements réalisés par les stations du réseau OPERA. La durée durant laquelle la rétro-trajectoire va être calculée est également un paramètre important de cette simulation. Il est nécessaire de visualiser un temps de parcours suffisamment long pour pouvoir déterminer l'origine de cette masse d'air et évaluer la possible contribution d'un transport longue-distance. Toutefois, l'incertitude liée à la position de la masse d'air va croître avec le temps de parcours simulé. Pour l'ensemble de cette étude et des suivantes, nous choisissons un temps de parcours des masses d'air de 5 jours, qui nous parait être un juste compromis des deux remarques précédentes. Compte tenu de la vitesse moyenne de déplacement de ces masses d'air, cette durée correspond à des parcours de plusieurs centaines voire milliers de kilomètres, suffisants pour déterminer une origine lointaine. De plus, au-delà d'un certain temps, le mélange entre les différentes masses d'air est tel que la simplification de leur représentation par un point perd toute significativité. Pour illustrer ces tracés, la figure 2-9 représente dix rétro-trajectoires obtenues pour la station de Dijon pour la période de mesures allant du 1er au 10 juillet 2002 et pour un niveau d'activité en ^{137}Cs associé de 0.25 $\mu Bq.m^{-3}$. Sur cette figure, les marques se trouvant sur le tracé des rétro-trajectoires sont espacées de 12 heures. Ainsi, il est possible d'estimer la vitesse de déplacement des masses d'air et leur temps de résidence moyen au dessus d'un territoire.

Après avoir réalisé le tracé de l'ensemble des rétro-trajectoires associées à des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols supérieurs au centile 90 pour chacune des stations du réseau OPERA, la provenance des masses d'air est répartie en 8 secteurs de 45° représentés sur la figure 2-9. L'origine de ces 8 secteurs de provenance des masses d'air est ensuite transposée à chacune des stations étudiées et le nombre de masses d'air dans chacun des secteurs est comptabilisé.

Dans le cas le plus simple d'une rétro-trajectoire rectiligne, la classification de son origine dans l'un des 8 secteurs est évidente. En revanche, dans de nombreux cas, le parcours des masses d'air passe d'un secteur à l'autre. Son origine est alors attribuée au secteur dans lequel son temps de résidence est maximal. Pour les masses d'air passant par un ensemble de secteurs et dont le parcours est trop complexe, aucune origine ne leur est attribuée et celles-ci sont comptabilisées dans la rubrique « non classées ».

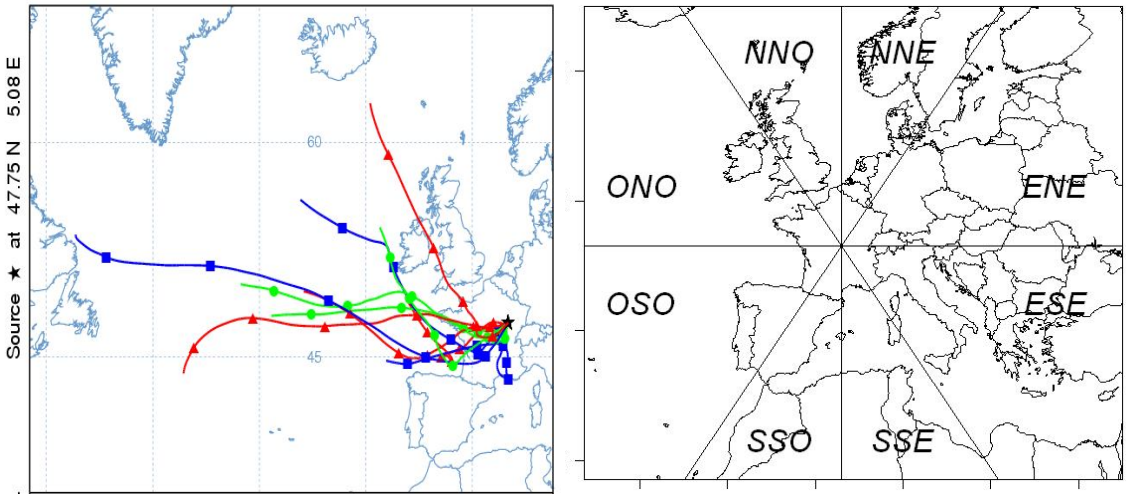


Figure 2-9 : Gauche : tracés de rétro-trajectoires arrivant à la station de Dijon entre le 01/07/2002 et 10/07/2002 et associées à un niveau d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols de 0.25 µBq.m^{-3}. Droite : Délimitation des 8 secteurs de 45° utilisés pour déterminer la provenance des masses d'air en tenant compte de la projection utilisée.

L'ensemble des résultats est représenté sous forme de graphiques radar ou roses de contamination (Figure 2-10). L'axe vertical représente l'axe Nord-Sud, permettant une visualisation directe de l'origine des masses d'air associées aux augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols. Les résultats des stations de Clermont-Ferrand et du Puy-de-Dôme ne sont pas reportés du fait d'un nombre de mesures, et donc d'une représentation statistique, trop faible. Les valeurs obtenues sont reportées dans la table 2-5.

Pour l'ensemble des stations, mis à part celle de Bordeaux, les augmentations significatives du niveau d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols sont associées à des masses d'air ayant voyagées majoritairement dans le secteur Est-Nord-Est. Les niveaux d'activité en ^{137}Cs supérieurs au centile 90 de chaque distribution peuvent être mis en relation avec des advections de masses d'air continentales. Pour ces stations, le transport longue distance participe donc de façon prépondérante aux augmentations des niveaux d'activité. Les masses d'air survolant des territoires où la densité de dépôt en ^{137}Cs est plus importante, se chargeraient ainsi en particules porteuses de ^{137}Cs, en relation avec l'importance des dépôts.

Pour la station de Bordeaux, les masses d'air associées aux augmentations significatives du niveau d'activité en ^{137}Cs présentent une répartition différente. Le secteur prédominant est le secteur Nord-Nord-Ouest et la répartition entre les différents secteurs apparait plus homogène. Ce résultat singulier peut s'interpréter comme la manifestation d'une prédominance des processus de remise en suspension locaux vis-à-vis du transport longue-distance, mis en évidence pour les autres stations, en raison d'un dépôt au sol plus important lié à une pluviométrie plus fréquente et plus intense dans cette région.

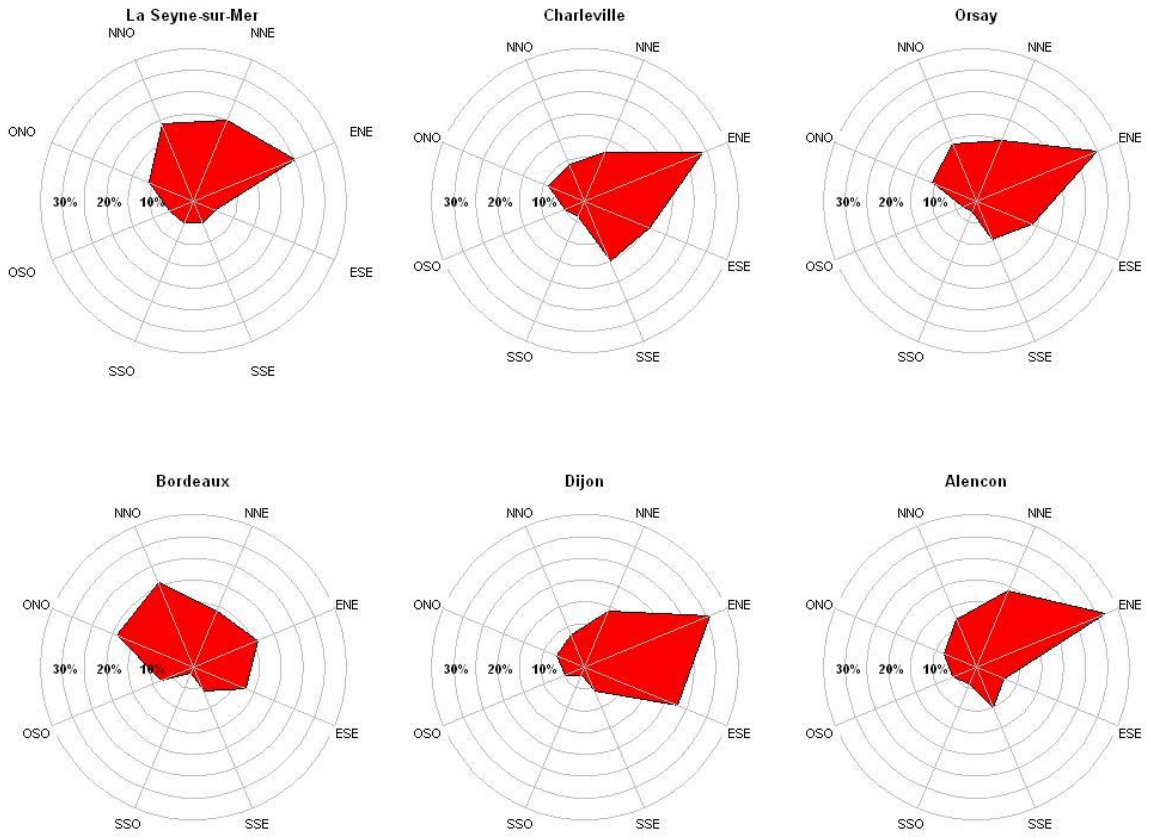


Figure 2-10 : Roses de contamination représentant en pourcentage l'origine des masses d'air pour les périodes où l'activité mesurée dans les aérosols à chaque station du réseau OPERA est supérieure au centile 90.

2.4.3.2 – Cas des diminutions significatives du niveau d'activité en ^{137}Cs

La même méthodologie est appliquée aux diminutions significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols en utilisant les périodes de mesures entre 2000 et 2006 où les niveaux d'activité en ^{137}Cs sont inférieurs au centile 10 de chaque distribution pour le calcul des rétro-trajectoires. Les résultats de cette classification sont présentés dans la figure 2-11 sous forme de roses de contamination et les valeurs obtenues sont reportées dans la table 2-5.

Sans exception, il apparait alors que les diminutions significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs sont associées à des masses d'air ayant voyagé majoritairement dans le secteur Ouest-Nord-Ouest. Ces diminutions sont ainsi associées à des advections de masses d'air océaniques subissant un lessivage conséquent et qui n'ont pu se charger en particules marquées en ^{137}Cs durant le survol des surfaces marines.

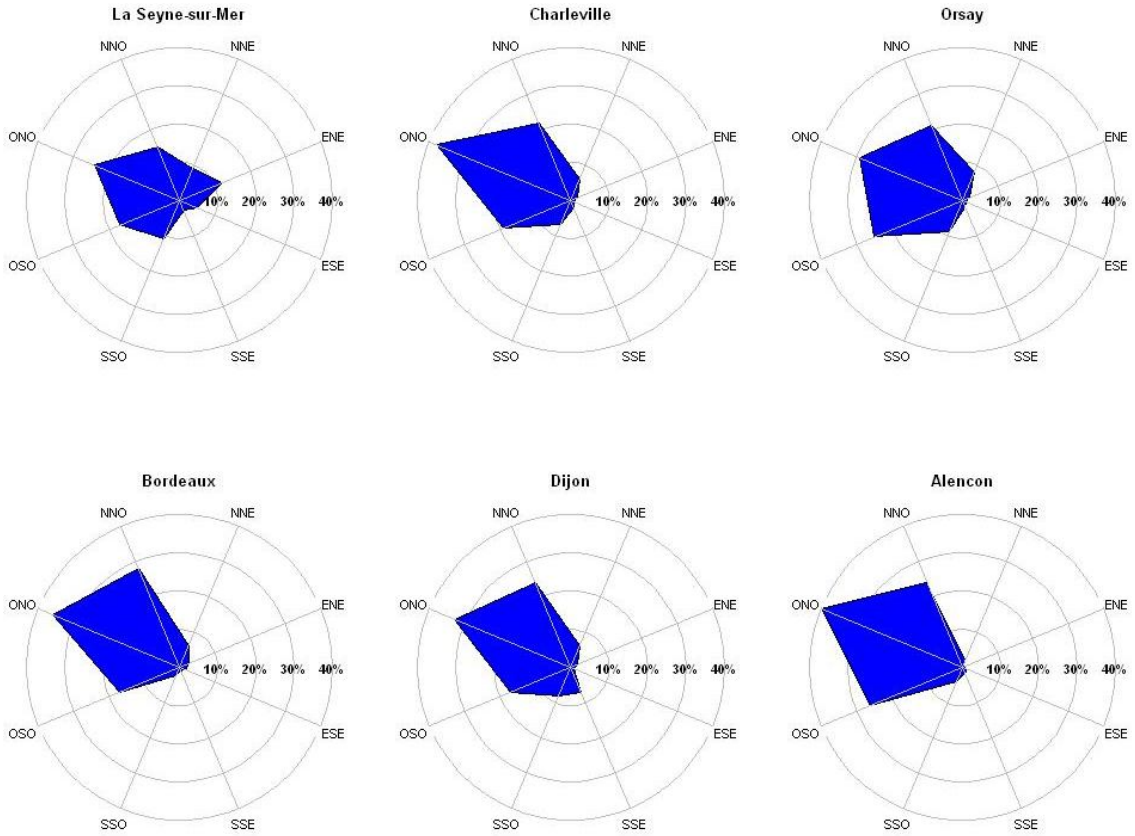


Figure 2-11 : Roses de contamination représentant en pourcentage l'origine des masses d'air pour les périodes où l'activité mesurée dans les aérosols à chaque station du réseau OPERA est inférieure au centile 10.

	Centile 90 [Bq.m^{-3}]	Secteur associé	Centile 10 [Bq.m^{-3}]	Secteur associé	Pourcentage non classées (Centiles 90 - 10)
Alençon	0.34	ENE (32 %)	0.08	ONO (40 %)	2 – 0.5 %
Bordeaux	0.59	NNO (21 %)	0.18	ONO (36 %)	1.5 – 5.5 %
Charleville	0.68	ENE (29 %)	0.14	ONO (38 %)	1 – 3 %
Dijon	0.68	ENE (31 %)	0.16	ONO (33 %)	4 – 2 %
Orsay	0.48	ENE (30 %)	0.13	ONO (29 %)	0.5 – 3 %
La Seyne	0.90	ENE (25 %)	0.27	ONO (24 %)	2 - 4 %

Table 2-5 : Valeurs des centiles 10 et 90 des distributions des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols pour chaque station du réseau OPERA et secteurs associés aux dépassements de ces centiles avec le pourcentage de masses d'air comptabilisé dans ce secteur (valeur entre parenthèses) et pourcentages des masses d'air non classées.

2.4.4 – Détermination des niveaux moyens d'activité en ^{137}Cs suivant l'origine des masses d'air

Pour déterminer si les masses d'air continentales entrainent des niveaux d'activité plus élevés que les masses d'air océaniques, il est nécessaire de considérer l'ensemble de la chronique des mesures du ^{137}Cs à chaque station et d'estimer une activité moyenne associée aux différentes origines de ces masses d'air. L'intégralité des rétro-trajectoires quotidiennes des six stations étudiées, entre janvier 2000 et décembre 2006, associées aux périodes de mesures significatives du ^{137}Cs, a été calculée. Cette étude se base ainsi sur plus de 14 000 rétro-trajectoires. Seules les périodes de mesures où les rétro-trajectoires ne changent pas de provenance durant l'intégralité de la décade sont considérées. Afin d'en augmenter le nombre et d'améliorer la représentation statistique des résultats, la provenance des masses d'air est découpée en 4 secteurs de 90° avec pour axes principaux les 4 points cardinaux. Sur près de 1300 périodes de mesures significatives considérées initialement, seules 212 ont été retenues. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 2-12 sous forme de graphique radar et de boites à moustache.

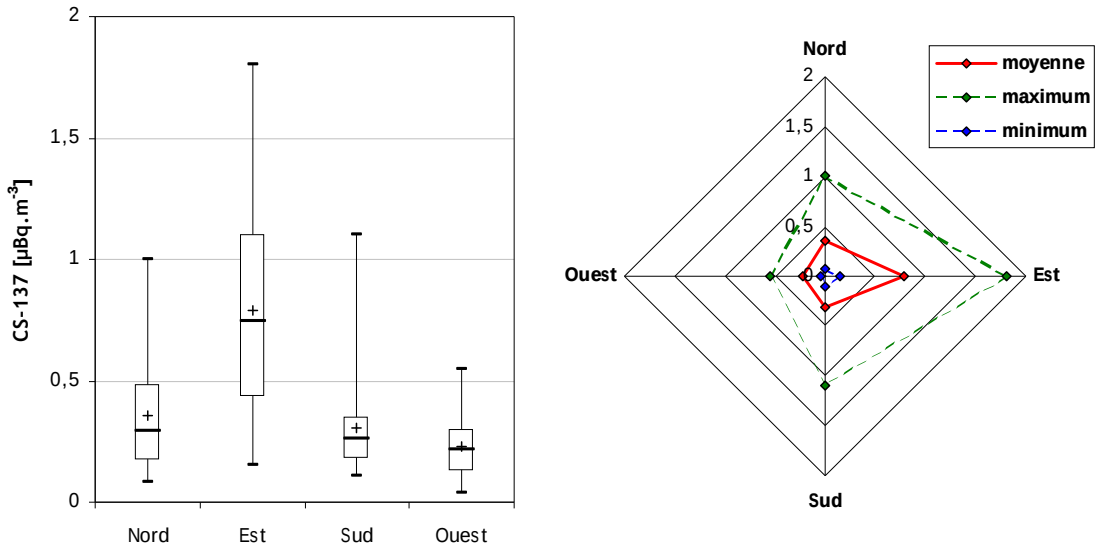


Figure 2-12 : Boites à moustaches de la distribution des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols associés aux différentes origines des masses d'air pour l'ensemble des stations OPERA (gauche) et niveaux d'activité moyens en ^{137}Cs dans les aérosols associés aux différentes origines des masses d'air pour l'ensemble des stations OPERA (droite).

Les masses d'air continentales, en provenance de l'est, ont un niveau d'activité moyen (0.79 µBq.m^{-3}) significativement plus élevé que les autres masses d'air. A l'opposé, les masses d'air océaniques présentent l'activité moyenne la plus faible (0.23 µBq.m^{-3}). Ces résultats permettent de conclure que le transport longue-distance, au travers de la relation avec l'origine des masses d'air, influe sur les niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols.

2.4.5 – Application de la méthode d'analyse des temps de résidence et des champs de probabilité conditionnelle

Pour contourner les limites de cette simple méthode d'analyse des rétro-trajectoires (classification visuelle et dépendante de l'opérateur, non prise en compte des trajectoires complexes…), ainsi que pour identifier plus précisément les régions participant à la rémanence du ^{137}Cs dans l'atmosphère, une nouvelle méthode est appliquée. Cette méthode, issue des travaux d'Ashbaugh (1983) et Ashbaugh et al. (1985), est nommée « analyse des temps de résidence ». Elle se base sur un grand nombre de rétro-trajectoires composées de plusieurs segments, séparés par un incrément temporel spécifique et caractérisés par leur position dans un domaine d'étude défini.

Si N est le nombre total de segments des rétro-trajectoires et n_{ij} le nombre d'intersections des rétro-trajectoires sur la cellule (i,j) du domaine d'étude pendant la période d'étude, la probabilité pour qu'une masse d'air aléatoire réside dans la cellule (i,j) est définie par :

$$\mathrm{P}[A_{ij}] = \frac{n_{ij}}{N}.$$

Ensuite, si m_{ij} est le nombre d'intersections des rétro-trajectoires sur la cellule (i,j) mais uniquement pour celles associées à un niveau d'activité en ^{137}Cs supérieur à une valeur seuil prédéfinie, alors la probabilité du temps de résidence de telles masses d'air dans la cellule (i,j) relative à la période d'étude considérée est donnée par :

$$\mathrm{P}[B_{ij}] = \frac{m_{ij}}{N}.$$

La différence entre les deux champs de probabilité définis ci-dessus permet de renseigner sur les principales régions participant aux augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans l'atmosphère. Toutefois, ces deux champs de probabilité ayant une valeur maximale au niveau de la station de prélèvement, en raison de la convergence des rétro-trajectoires en ce point, Ahsbaugh et al. (1985) définissent la probabilité conditionnelle de l'évènement Bij connaissant Aij, s'écrivant :

$$\mathrm{P}[B_{ij} | A_{ij}] = \frac{\mathrm{P}[B_{ij}]}{\mathrm{P}[A_{ij}]} = \frac{m_{ij}}{n_{ij}}.$$

Le champ de probabilité obtenu permet alors de déterminer les régions qui statistiquement participent aux variations significatives des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs, au-delà de la valeur seuil prédéfinie. Afin de réduire l'incertitude associée aux cellules traversées par un faible nombre de segments de rétro-trajectoires (n_{ij}) entrainant des valeurs de probabilités importantes, une fonction de pondération $W(n_{ij})$ est appliquée lorsque le nombre d'intersections sur une cellule donnée est inférieur à une valeur arbitraire prédéfinie, en comparaison de l'ensemble des cellules (Han et al., 2007 ; Lai et al., 2007 ; Begum et al., 2005). Cette fonction de pondération est définie comme suit :

$$W(n_{ij}) = \begin{cases} 1.00, & n_{ij} > 2.n_{moy}, \\ 0.75, & n_{moy} < n_{ij} \leq 2.n_{moy}, \\ 0.50, & n_{moy}/2 < n_{ij} \leq n_{moy}, \\ 0.15, & n_{ij} \leq n_{moy}/2, \end{cases}$$

n_{moy} : nombre moyen d'intersections des rétro-trajectoires sur l'ensemble des cellules du domaine d'étude.

Pour les niveaux d'activité volumique supérieurs au percentile 90, et inférieurs au percentile 10 respectivement, de la distribution en ^{137}Cs entre janvier 2000 et décembre 2006 à la station d'Orsay, les champs de probabilité conditionnelle calculés selon la méthode décrite sont présentés dans la figure 2-13 à titre d'exemple.

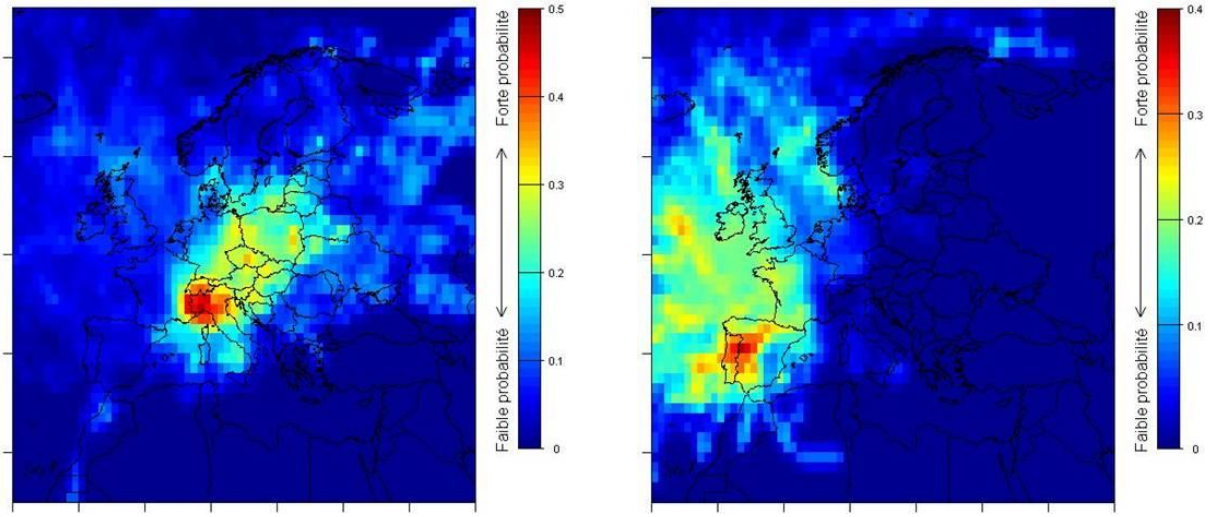


Figure 2.13 : Champs de probabilité conditionnelle pour les niveaux d'activité supérieurs au percentile 90 (gauche) et inférieurs au percentile 10 (droite) de la distribution des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs à la station d'Orsay entre janvier 2000 et décembre 2006.

Les résultats obtenus mettent en évidence que les augmentations significatives des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs sont associées à des masses d'air provenant majoritairement de l'est de l'Europe, en faisant apparaitre un couloir de contribution dirigé vers les territoires les plus fortement marqués par les retombées de l'accident de Tchernobyl. A l'inverse, les diminutions significatives sont associées à des masses d'air ayant résidé principalement sur les surfaces océaniques. Ces observations confirment l'intérêt apporté au transport longue-distance sur les variations significatives des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs et permettent également de faire converger notre intérêt en direction des régions continentales.

Bien que fournissant des résultats plus satisfaisants que la première méthode utilisée, cette méthode des « champs de probabilité conditionnelle » ne permet pas de d'isoler de régions spécifiques où prennent place les processus engagés dans la rémanence du ^{137}Cs atmosphérique. Ainsi, Vasconcelos et al. (1996) dans leur étude, montrent que cette méthode d'analyse n'offre

qu'une faible résolution radiale, bien que sa résolution angulaire soit satisfaisante. La seconde limite de cette méthode réside dans son application à une seule partie de la distribution des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs, définie par la valeur seuil retenue. Elle ne permet donc pas de considérer quantitativement les variations des niveaux d'activité.

2.4.6 – Identification et hiérarchisation des régions sources du ^{137}Cs atmosphérique

Pour compléter cette partie dédiée à la localisation des régions impliquées dans la rémanence du ^{137}Cs atmosphérique, nous appliquons une dernière méthode d'analyse des rétro-trajectoires. Cette méthode, appelée méthode d'analyse statistique des champs de contribution, a été initialement développée par Seibert et al. (1994) puis améliorer par Stohl (1996). Ces méthodes sont utilisées par de nombreux auteurs pour identifier les principales régions impliquées dans les émissions de polluants atmosphériques (Charron et al., 1998 ; Zhou et al., 2004 ; Han et al., 2007; Lai et al., 2007; Riccio et al., 2007; Zhao et al., 2007). Elles permettent de considérer l'intégralité de la base de données utilisée et de considérer quantitativement les variations observées.

2.4.6.1 – Données et méthode

Comme pour la méthode des champs de probabilité conditionnelle, la première étape est de définir un domaine d'étude maillé dans lequel sera pris en compte l'ensemble des rétro-trajectoires étudiées. Ensuite, pour chacune des cellules (i,j) du domaine, une valeur moyenne de contribution, homogène à une concentration, est calculée en utilisant l'équation suivante :

$$\overline{C}_{ij} = \frac{1}{\sum_{l=1}^{M} \tau_{ij}^{l}} \sum_{l=1}^{M} \log(C_l)\tau_{ij}^{l} \ ,$$

$\overline{C}_{ij}$: contribution logarithmique moyenne dans la cellule (i,j) homogène à C_l,

l : index de la trajectoire,

M : nombre total de trajectoires,

τ_{ij}^{l} : temps passé dans la cellule (i,j) par la rétro-trajectoire *l*,

C_l : niveau d'activité mesuré à l'arrivée de la rétro-trajectoire *l* exprimé en µBq.m^{-3} ou concentration du polluant étudié.

Une valeur importante de $\overline{C}_{ij}$ implique que les parcelles d'air traversant la cellule (i,j) auront, en moyenne, une activité importante à leur arrivée à la station considérée (Seibert et al., 1994 ; Stohl et al., 1998). Cependant, Stohl (1996) montre que cette distribution égalitaire sur tous les segments de la rétro-trajectoire associée entraine une sous-estimation des gradients potentiels des champs de contribution réels. Il propose alors une amélioration de cette méthode en effectuant une redistribution des niveaux d'activité sur les segments de chaque rétro-trajectoire tout en considérant l'information issue de la méthode d'analyse de Seibert et al. (1994). Stohl (1996) donne ainsi l'exemple suivant pour illustrer sa méthode. Il suppose un ensemble de rétro-trajectoires toutes différentes les unes des autres à l'exception près que toutes traversent une même cellule

spécifique. Toutes ces rétro-trajectoires sont associées à de faibles concentrations à leur arrivée au site de prélèvement sauf une. Aucune source de contribution n'est alors localisée le long des différentes rétro-trajectoires « propres » et spécifiquement dans la cellule qu'elles partagent avec la rétro-trajectoire polluée. Cette dernière doit donc s'être chargée ailleurs sur son trajet et cette information peut être utilisée pour effectuer une redistribution le long des rétro-trajectoires. Cette nouvelle méthode permet alors de mettre en évidence des régions de contribution spécifique qui se trouvaient sous-estimées par la méthode précédente.

Pour une rétro-trajectoire donnée, la redistribution suggérée par Stohl (1996) le long de cette dernière est calculée suivant l'équation :

$$C_{kl} = C_l \frac{X_{kl} N_l}{\sum_{j=1}^{N_l} X_{jl}} = C_l \frac{X_{kl}}{\overline{X_l}}, \quad k=1,\ N_l$$

l : index de la trajectoire,

k : index du segment de la rétro-trajectoire *l*,

C_{kl} : niveau d'activité redistribué sur le segment *k* de la rétro-trajectoire *l*,

C_l : niveau d'activité mesuré à l'arrivée de la rétro-trajectoire *l* exprimé en µBq.m^{-3} ou concentration du polluant étudié,

X_{kl} : contribution moyenne de la cellule traversée par le segment *k* de la rétro-trajectoire *l*,

N_l : nombre total de segments composant la rétro-trajectoire *l*,

$\overline{X_l}$: moyenne des contributions des cellules traversées par les N_l segments de la rétro-trajectoire *l*, donnée par : $\overline{X_l} = (\sum_{j=1}^{N_l} X_{jl}) / N_l$.

Cette redistribution est appliquée successivement à chacune des rétro-trajectoires individuellement. Une fois cette redistribution effectuée pour l'ensemble des rétro-trajectoires, un nouveau champ de contribution est calculé suivant l'équation :

$$\overline{C_{ij}} = \frac{1}{\sum_{l=1}^{M} \sum_{k=1}^{N_l} \tau_{ij}^{kl}} \sum_{l=1}^{M} \sum_{k=1}^{N_l} \log(C_{kl}) \tau_{ij}^{kl},$$

τ_{ij}^{kl} : temps de résidence du segment *k* de la rétro-trajectoire *l* dans la cellule (i,j).

Cette nouvelle équation est alors identique à l'équation de la méthode de Seibert et al. (1994), à la différence que C_{kl} est utilisée à la place de C_l et donc que la sommation est effectuée à la fois sur le nombre de rétro-trajectoires et également sur le nombre de segments de chaque rétro-trajectoire. A partir de ce nouveau champ de contribution, une seconde redistribution des niveaux d'activité est effectuée le long de chacune des rétro-trajectoires conduisant à l'obtention d'un nouveau champ de contribution. Cette procédure est ensuite répétée jusqu'à ce que la moyenne des différences entre les champs de contribution de deux itérations successives soit inférieure à une valeur seuil prédéfinie. Dans le cadre de cette étude, cette valeur seuil est fixée à 2 %.

Une fois cette valeur seuil atteinte, les variations de petites échelles qui ne sont pas nécessairement significatives statistiquement sont éliminées en appliquant un filtre de lissage et en imposant que les valeurs obtenues restent dans un intervalle de confiance de 95 %. Le filtre retenu est un opérateur en 9 points dont les coefficients sont donnés par la matrice 3 x 3 suivante:

$$\Lambda = \begin{bmatrix} 0.06 & 0.1 & 0.06 \\ 0.1 & 0.36 & 0.1 \\ 0.06 & 0.1 & 0.06 \end{bmatrix}$$

Les cellules totalisant un nombre de segments de rétro-trajectoires inférieur à 40 sont également éliminées afin de limiter les erreurs dues à une faible représentativité statistique.

Pour l'application de cette méthode, l'ensemble des rétro-trajectoires est calculé pour chacune des stations de plaine du réseau OPERA (Alençon, Bordeaux, Charleville-Mézières, Clermont-Ferrand, Dijon, Orsay et La Seyne sur Mer) avec un pas de temps de 12 heures (00 et 12 UTC) entre le 10 janvier 2000 et le 30 avril 2009. Cette méthode d'analyse statistique s'applique ainsi à près de 47 000 tracés de rétro-trajectoires. Ces rétro-trajectoires sont calculées sur 120 heures avec un point d'arrivée à 100 m au dessus des stations de prélèvement. Les segments des rétro-trajectoires calculées ont un incrément temporel de 1 heure et sont localisés par leurs coordonnées dans un domaine de résolution spatiale de 1° x 1° compris entre 75°N - 25°N de latitude et 20°W - 50°E de longitude. Cette méthode est initialement appliquée à la base de données OPERA des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs puis à des mesures complémentaires afin de mettre en évidence les spécificités des différentes régions identifiées.

2.4.6.2 – Résultats pour l'activité volumique du ^{137}Cs

Le champ de contribution calculé à partir de la méthodologie établie par Stohl (1996) pour les niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs est présenté dans la figure 2-14. Bien qu'ayant la même dimension qu'une activité volumique, ce champ de contribution ne représente pas l'activité volumique en ^{137}Cs dans l'air à l'échelle du domaine étudié mais la contribution de chacune de ces régions sur les niveaux d'activité en ^{137}Cs mesurés au niveau des stations du réseau OPERA. Statistiquement, il est alors possible d'estimer l'activité en ^{137}Cs d'une masse d'air arrivant sur une des stations du réseau OPERA en n'ayant pour seule connaissance préalable que son parcours au travers du domaine étudié. Cette activité résultante se calcule alors comme la moyenne des contributions de chacune des cellules traversées tout au long de son parcours. Cette application de prévision des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les masses d'air n'est pas l'objectif de cette étude mais permet une meilleure compréhension des résultats.

Les différences obtenues entre les cellules du domaine sont utilisées pour établir une hiérarchie entre les régions participant à la rémanence du ^{137}Cs dans l'atmosphère. Celles pour lesquelles les contributions sont les plus élevées sont alors désignées comme les régions contribuant le plus significativement à cette rémanence au niveau des stations du réseau OPERA. Dans cette étude, le choix a été fait de ne pas supprimer les cellules n'ayant aucune contribution sur les

niveaux d'activité due à l'absence d'intersection avec les rétro-trajectoires. Celles-ci sont représentées de la même manière que les cellules n'ayant qu'une très faible contribution puisque, quel qu'en soit la cause, ces régions n'exercent aucune influence sur les niveaux ambiants en ^{137}Cs mesurés en France. Ainsi, les régions présentant les plus faibles contributions sont désignées comme ne contribuant que très faiblement à la remise en suspension du ^{137}Cs.

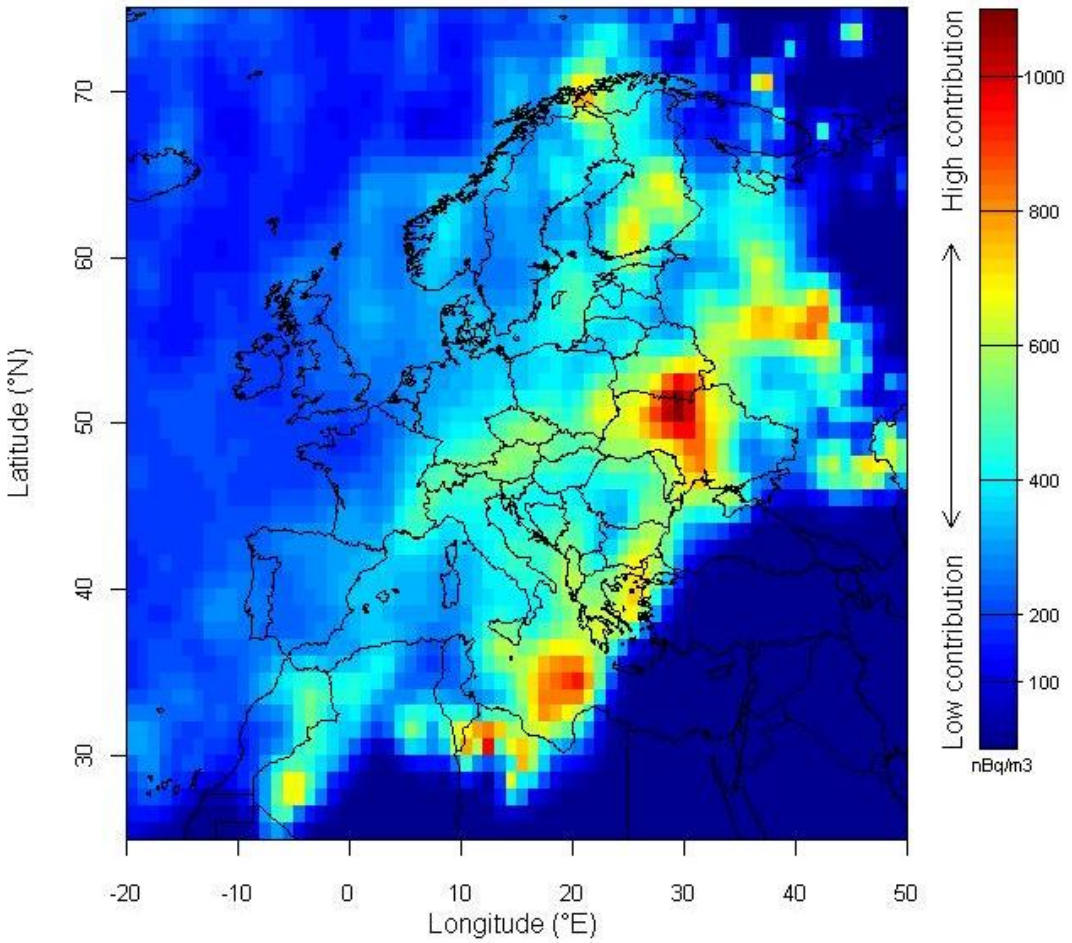


Figure 2-14 : Champ de contribution de l'activité volumique en ^{137}Cs, exprimé en $nBq.m^{-3}$, pour l'ensemble des stations de plaine du réseau OPERA.

Avec une vue globale, les principales régions contribuant à la rémanence du ^{137}Cs se répartissent sur les régions continentales, en opposition aux régions océaniques, confirmant les résultats des méthodes précédentes. Dans ces régions continentales, la principale région identifiée se trouve à proximité de la zone de Tchernobyl, à la frontière entre l'Ukraine et la Biélorussie. Cette région s'étend vers le sud de l'Ukraine et correspond aux territoires les plus fortement impactés par les retombées de l'accident (cf. figure 1-14). Une seconde extension de cette région s'observe sur la Fédération de Russie et correspond également à des dépôts de ^{137}Cs importants, supérieurs à 185 $kBq.m^{-2}$.

Trois autres régions, correspondantes à des dépôts surfaciques importants en ^{137}Cs, sont également identifiées pour leur contribution significative. La première, située à la frontière avec le Kazakhstan, correspond à un dépôt au sol compris entre 10 et 40 $kBq.m^{-2}$, et fait partie de la zone étendue autour de Tchernobyl fortement impactée par les retombées de cet accident. La seconde se situe sur la moitié sud de la Finlande et correspond à des dépôts surfaciques pouvant être supérieurs à 40 $kBq.m^{-2}$. La troisième se situe dans la région des Balkans où peu de données de contamination de surface sont disponibles, au regard des autres territoires. Toutefois, les mesures disponibles sur la Grèce présentent des niveaux de contamination comparables à la péninsule Scandinave, permettant de rapprocher cette région aux précédentes.

Avec une contribution moyenne, de l'ordre de 600 $nBq.m^{-3}$, les régions de l'Autriche et de la République Tchèque, où la contamination de surface excède par endroit les 40 $kBq.m^{-2}$, se distinguent des régions alentours, sans toutefois présenter des contributions aussi importantes que les régions citées précédemment.

Ces observations mettent en évidence que les territoires les plus fortement marqués par les dépôts en 137Cs sont directement impliqués dans sa rémanence atmosphérique, plus de 20 ans après son dépôt initial. Dans ces régions, la remise en suspension de ce radionucléide peut être associée à l'érosion éolienne, aux incendies ou aux activités anthropogéniques (Garland et Pomeroy, 1994 ; ECP-5 report; 1995; Garger et al., 1998; Wagenpfeil et al., 1999; Kashparov et al., 2000; Wagenpfeil et Tschiersch, 2001; Wotawa et al., 2006; Yoschenko et al., 2006 [a,b]; Lujianiene et al., 2007).

Trois autres régions extérieures au continent eurasien sont identifiées sur la figure 2-14. La plus importante se situe au dessus de la Mer Méditerranée, dans la partie sud de la Mer Ionienne, la seconde est localisée dans le nord de la Libye, à proximité de la frontière Tunisienne et la dernière dans la région frontalière entre l'Algérie, le Maroc et la Mauritanie. A la différence des régions identifiées précédemment, la contamination de surface de ces régions est principalement due aux retombées globales des essais nucléaires atmosphériques et se trouve être significativement plus faible que pour les régions du continent européen (UNSCEAR 2000, annexe C). Leur contribution à la rémanence du ^{137}Cs dans les aérosols en France n'est donc pas associée à un dépôt surfacique important comme nous l'avons conclu pour les régions fortement impactées par les retombées de l'accident de Tchernobyl.

Pour comprendre comment des régions, présentant une différence aussi marquée dans les dépôts surfaciques en ^{137}Cs, peuvent avoir une contribution comparable dans la rémanence atmosphérique de ce radionucléide, les propriétés spécifiques associées à chacune des grandes régions identifiées sont recherchées au moyen de mesures complémentaires.

2.4.6.3 – Application aux mesures complémentaires

L'activité massique en ^{137}Cs, définie dans la partie 2.1.4 comme le rapport du niveau d'activité volumique en ^{137}Cs et de la masse totale de particules en suspension, peut être utilisée pour caractériser les particules mises en suspension suivant le processus ou la région impliquée. L'idée sous-jacente à l'utilisation de cette mesure complémentaire peut s'exprimer ainsi : pour un processus de remise en suspension de particules de nature et d'intensité identiques, l'activité volumique en ^{137}Cs est proportionnelle à la contamination de la matrice émettrice. Si une différence dans l'activité volumique en ^{137}Cs est observée, cette différence est alors imputable à une différence de contamination de la matrice émettrice, qui se reporte alors sur la contamination des particules mises en suspension et qui se manifeste par une différence dans l'activité massique de ces particules. Les régions identifiées dans la partie précédente présentant une différence marquée dans leur contamination de surface, nous étudions alors la possibilité que les particules issues de ces régions présentent des activités massiques en ^{137}Cs différentes.

La pesée des filtres de collecte n'étant réalisée que depuis mars 2007, la mesure de l'activité massique des aérosols n'est disponible qu'à partir de cette date. La méthode d'analyse statistique des champs de contribution appliquée à cette mesure ne permet donc pas de considérer les mêmes évènements que lors de l'analyse appliquée à l'activité volumique en ^{137}Cs. Cette différence dans l'étendue temporelle de la base de données peut faire apparaitre un biais dans la comparaison des résultats obtenus.

Le ^{40}K, radionucléide naturel décrit dans la partie 1.2.2.1, est un radionucléide primordial dont l'activité massique est indépendante de la taille de l'agrégat considéré, dans la gamme de taille pouvant être mise en suspension et transportée (cf. partie 3.1.2). Ce radionucléide se trouve ainsi directement intégré aux particules. En comparant les variations de son activité volumique avec celles de la masse totale de particules en suspension, il apparait alors une relation de proportionnalité entre ces deux mesures avec un coefficient de corrélation statistiquement significatif de $R = 0.89$ ($p < 0.01$) (figure 2-15). Cette corrélation permet ainsi d'établir une relation entre ces deux mesures de la forme :

$$TSP = \alpha . A_{vol.}^{K-40} + \beta$$

TSP : masse totale de particules en suspension exprimée en $\mu g.m^{-3}$,
$A_{vol.}^{K-40}$: activité volumique en ^{40}K exprimée en $\mu Bq.m^{-3}$,
α : coefficient de la régression linéaire de valeur 3.29 exprimé en $\mu g.\mu Bq^{1}$,
β : constante de la régression linéaire de valeur 3.17 exprimée en $\mu g.m^{-3}$.

La masse totale de particules en suspension pouvant être estimée par la mesure de l'activité volumique en ^{40}K, il apparait alors que l'activité massique en ^{137}Cs peut être estimée par le rapport des niveaux d'activité entre le ^{137}Cs et le ^{40}K, comme le suggèrent implicitement Wershofen et Arnold (2005). Pour vérifier cette hypothèse, les mesures de l'activité massique en ^{137}Cs sont mises en relation avec le rapport d'activité entre le ^{137}Cs et le ^{40}K (figure 2-15). Il apparait alors une relation linéaire entre ces deux données avec un coefficient de corrélation statistiquement significatif de R = 0.84 ($p < 0.01$) de la forme :

$$A_{mass.}^{Cs-137} = \alpha.R_a + \beta \,, \quad \text{avec } R_a = \frac{A_{vol.}^{Cs-137}}{A_{vol.}^{K-40}}$$

$A_{mass.}^{Cs-137}$: activité massique du ^{137}Cs exprimée en $Bq.kg^{-1}$,

R_a : rapport des niveaux d'activité entre le ^{137}Cs et le ^{40}K,

$A_{vol.}^{Cs-137}$: activité volumique du ^{137}Cs exprimée en $\mu Bq.m^{-3}$,

$A_{vol.}^{K-40}$: activité volumique du ^{40}K exprimée en $\mu Bq.m^{-3}$,

α : coefficient de la régression linéaire de valeur 240 exprimé en $Bq.kg^{1}$,

β : constante de la régression linéaire de valeur 1.1 exprimée en $Bq.kg^{1}$.

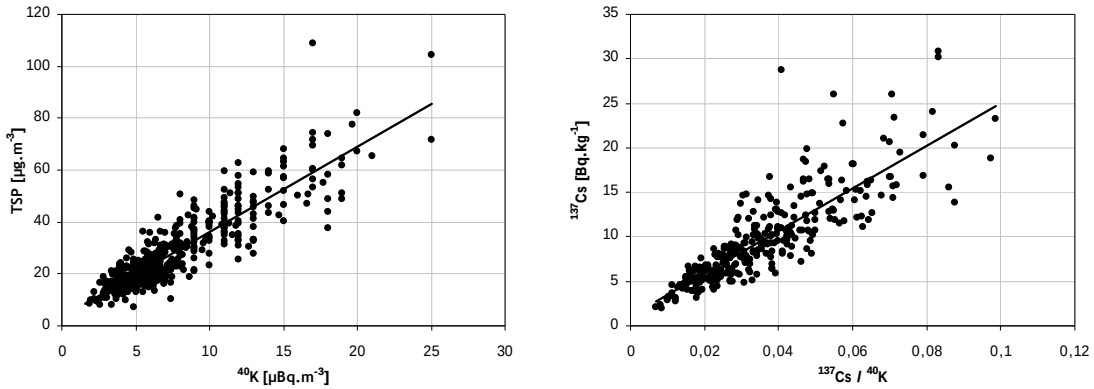


Figure 2-15 : Gauche : Masse totale de particules en suspension (TSP) en fonction de l'activité volumique en ^{40}K dans les aérosols. Droite : Activité massique en ^{137}Cs en fonction du rapport des niveaux d'activité entre le ^{137}Cs et le ^{40}K. Ces deux graphiques sont donnés pour l'ensemble des stations de plaine du réseau OPERA entre mars 2007 et avril 2009.

Le champ de contribution pour l'activité massique en ^{137}Cs est alors calculé à partir du rapport des niveaux d'activité entre le ^{137}Cs et le ^{40}K suivant la même méthodologie que pour l'activité volumique en ^{137}Cs et sur la même période. Les résultats de cette analyse sont présentés dans la figure 2-16. Comme pour l'analyse précédente, la principale région identifiée correspond aux territoires les plus fortement impactés par les retombées de l'accident de Tchernobyl. Cette région est centrée à proximité de la zone de Tchernobyl et s'étend vers la Fédération de Russie. Les trois autres régions du continent eurasien, identifiées précédemment et correspondant à des dépôts surfaciques en ^{137}Cs importants (Sud de la Finlande, frontière avec le Kazakhstan et région des

Balkans), apparaissent également pour leur contribution à l'augmentation de l'activité massique en ^{137}Cs des aérosols prélevés en France.

L'implication de ces régions dans la rémanence atmosphérique du ^{137}Cs apparait alors être induite par la remise en suspension de particules dont l'activité massique en ^{137}Cs est significativement plus importante que pour les autres territoires identifiés précédemment. En effet, les territoires du pourtour méditerranéen ne présentent qu'une faible contribution dans les augmentations de l'activité massique en ^{137}Cs. Au regard de ces résultats, la contribution à l'activité massique en ^{137}Cs des aérosols apparait être directement liée aux dépôts surfaciques en ^{137}Cs.

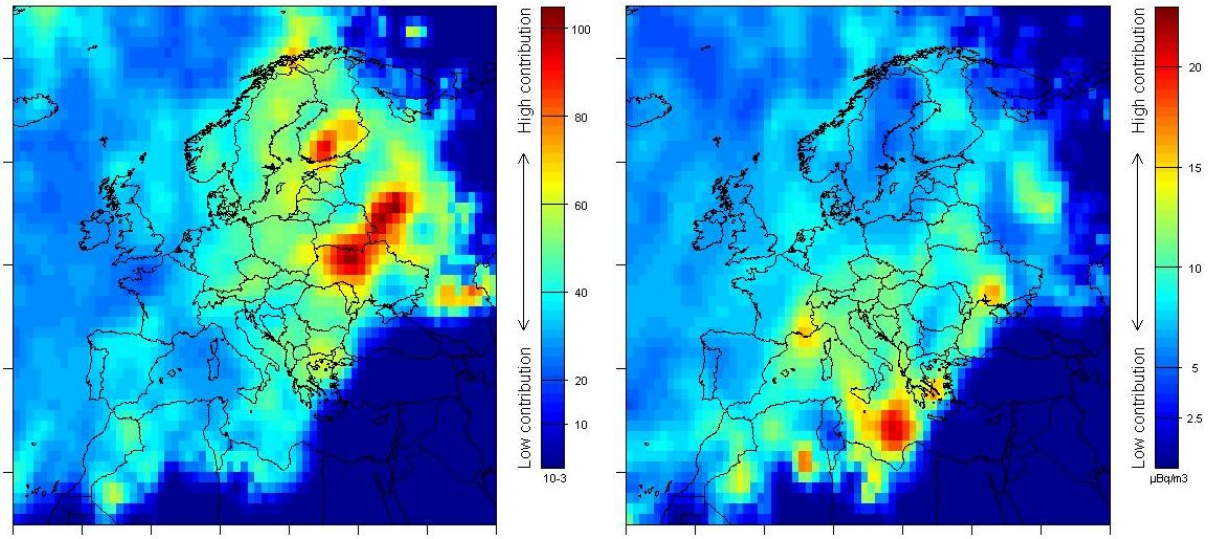


Figure 2-16 : Gauche : Champ de contribution du rapport des niveaux d'activité entre le ^{137}Cs et le ^{40}K ; Droite : Champ de contribution de l'activité volumique en ^{40}K exprimé en $\mu Bq.m^{-3}$. L'analyse est effectuée à partir des données de l'ensemble des stations de plaine du réseau OPERA entre janvier 2000 et avril 2009.

L'activité volumique en ^{137}Cs peut être décomposée comme le produit de l'activité massique de ce radionucléide avec la concentration de particules en suspension (cf. 2.4.1). Si l'implication des régions du pourtour méditerranéen dans la rémanence du ^{137}Cs n'est pas associée à la remise en suspension de particules à l'activité massique en ^{137}Cs importante, cette implication doit alors s'expliquer par une concentration importante à la masse totale de particules en suspension. Pour vérifier cette hypothèse, le champ de contribution de l'activité volumique en ^{40}K, utilisé pour estimer la masse totale de particules en suspension, est calculé suivant la même méthodologie que précédemment. Les résultats de cette analyse sont présentés dans la figure 2-16.

Les principales régions identifiées pour leur contribution significative à la masse totale de particules en suspension sont les régions du pourtour méditerranéen ainsi qu'une autre région, située dans le sud de l'Ukraine. Ces régions correspondent pour partie à celles identifiées dans l'analyse de l'activité volumique en ^{137}Cs. En revanche, les régions fortement impactées par les retombées de l'accident de Tchernobyl et identifiées pour leur contribution dans la rémanence du

^{137}Cs au travers de la remise en suspension de particules à l'activité massique importante, ne présentent qu'une faible contribution vis-à-vis de la masse totale de particules en suspension.

Cette méthode d'analyse appliquée aux mesures complémentaires (activité massique en ^{137}Cs et empoussièrement), permet de montrer que les régions identifiées pour leur implication dans la rémanence atmosphérique du ^{137}Cs se répartissent en deux grandes catégories aux spécificités distinctes. La première se caractérise par un dépôt surfacique en ^{137}Cs important, dû majoritairement aux retombées de l'accident de Tchernobyl. Il en résulte alors une contribution importante aux augmentations du rapport des niveaux d'activité entre le ^{137}Cs et le ^{40}K, proportionnel à l'activité massique en ^{137}Cs. Ces régions participent donc à la rémanence atmosphérique du ^{137}Cs en raison de la remise en suspension de particules à l'activité spécifique importante. La seconde catégorie de régions se caractérise quant à elle par une contamination surfacique en ^{137}Cs significativement plus faible. Les dépôts surfaciques en ^{137}Cs de ces régions résultent principalement des retombées globales durant la période des expérimentations nucléaires atmosphériques. Ainsi, la contribution de ces régions aux augmentations de l'activité massique en ^{137}Cs est faible, en relation avec les quantités de ^{137}Cs déposées. En revanche, la contribution de ces régions à la masse totale de particules en suspension est importante. Ces régions participent donc à la rémanence atmosphérique du ^{137}Cs en raison d'un transport important de matière en suspension.

2.5 - Conclusion

L'objectif de ce chapitre a été de caractériser les variations des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs dans les aérosols afin d'orienter les recherches pour identifier et caractériser, dans les chapitres suivants, les processus impliqués dans la rémanence atmosphérique du ^{137}Cs.

La considération des conditions météorologiques locales n'a pas permis d'établir de relation significative avec les variations des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs. De manière attendue, les niveaux d'activité tendent à diminuer lorsque le cumul ou le nombre de jours de pluie augmente. L'intensité du vent tend également à avoir un effet dispersif sur les niveaux d'activité. Enfin, la saison hivernale présente un plus grand nombre d'augmentations significatives, en raison d'une divergence de nature ou d'intensité des processus de remise en suspension du ^{137}Cs selon la saison, soit en raison de situations météorologiques locales favorables à l'accumulation des particules dans les basses couches.

L'évolution de la relation entre les niveaux d'activité en ^{137}Cs et en ^{7}Be sur l'ensemble de la chronique OPERA a montré un transfert de ce radionucléide artificiel au cours du temps, passant du réservoir atmosphérique au profit du réservoir terrestre. Les tendances observées avec les niveaux d'activité en ^{210}Pb ainsi qu'avec le rapport $^{7}Be/^{210}Pb$ montrent que les augmentations significatives du niveau d'activité en ^{137}Cs correspondent à des advections de masses d'air continentales sans que la réciproque ne soit vérifiée. La relation obtenue avec le ^{40}K montre que ces deux radionucléides ont une origine partiellement commune. Enfin, la relation établie avec la masse totale de particules en suspension a permis de définir l'activité massique en ^{137}Cs des particules prélevées.

La comparaison des activités moyennes en ^{137}Cs dans les aérosols avec les dépôts surfaciques correspondants a permis de définir le coefficient de remise en suspension. La dynamique trop faible de ces distributions n'a pas permis de conclure sur la contribution locale de la remise en suspension. Néanmoins, les différences observées entre les stations de Clermont-Ferrand et du Puy-de-Dôme indiquent que la contribution du transport longue distance sur les augmentations significatives des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs est prépondérante.

Cette hypothèse est vérifiée par la mise en relation des niveaux d'activité en ^{137}Cs supérieurs au percentile 90 de chaque distribution avec l'origine des masses d'air associées, relation établie à partir d'une simple méthode de classification ou de la méthode d'analyse des temps de résidence et des champs de probabilité conditionnelle.

Enfin, l'application de la méthode d'analyse statistique des champs de contribution a permis une localisation ainsi qu'une hiérarchisation des principales régions participant à la rémanence du ^{137}Cs dans l'atmosphère. Les résultats ont permis d'identifier d'une part les régions les plus marquées par les retombées de l'accident de Tchernobyl, en raison de la remise en suspension de particules à l'activité massique en ^{137}Cs importante, en relation avec les densités de dépôt, et d'autre part les régions du pourtour méditerranéen, caractérisées par un dépôt surfacique en ^{137}Cs plus faible et la remise en suspension de grandes quantités de particules.

La localisation des territoires impliqués dans la rémanence atmosphérique du ^{137}Cs atmosphérique permet dans un premier temps de diriger les recherches sur les régions identifiées

afin d'y étudier les processus engagés dans cette rémanence. La connaissance des propriétés spécifiques associées à chacune de ces régions permet ensuite d'orienter l'étude sur des processus répondant aux caractéristiques établies. Prenant pour base les résultats obtenus dans cette partie, les prochains chapitres vont ainsi être consacrés à identifier et caractériser les processus entrainant la remise en suspension de particules porteuses de ^{137}Cs dans l'atmosphère et leur transport jusqu'aux stations de prélèvement du réseau OPERA.

CHAPITRE 3 : Les particules minérales et l'érosion éolienne

Le pourtour méditerranéen a été identifié pour sa participation à la rémanence du ^{137}Cs dans l'atmosphère au travers du transport d'une masse importante de particules. Le nord du continent africain, et tout spécialement le désert du Sahara, étant connu pour son export considérable de poussières minérales, ce chapitre s'attache à étudier et caractériser l'impact de ces évènements.

3-1 – Les épisodes de poussières sahariennes

Dû à leur impact sur l'homme et l'environnement, les poussières minérales provenant des régions arides ou dégradées par les activités humaines sont à la base de nombreuses études réalisées au cours des dernières décennies. Ces particules sont impliquées directement dans le bilan radiatif atmosphérique par leurs effets d'absorption et de diffusion (Arimoto, 2001 ; Meloni et al., 2005 ; Park et al., 2005 ; Mikami et al., 2006 ; Maher et al., 2010) et indirectement au travers de leur influence sur la microphysique des nuages (Kelly et al., 2007 ; Andreae et Rosenfeld, 2008). Elles influent également sur la production primaire marine au travers des nutriments qu'elles apportent (Ratmeyer et al., 1999 ; Kubilay et al., 2000 ; Lenes et al., 2008 ; Maher et al., 2010) et ainsi sur le cycle du carbone. Dans certaines régions, le transport de ces particules minérales participe à la dégradation de la qualité de l'air. L'ensemble de ces sujets d'étude permet de disposer d'une base bibliographique conséquente traitant des poussières minérales.

La majorité des sources persistantes de poussières minérales en suspension dans l'atmosphère est située dans l'hémisphère Nord et se distribue le long de la « dust belt », s'étendant des côtes ouest de l'Afrique du Nord jusqu'à la Chine en passant par le Moyen-Orient et la partie centrale et du Sud de l'Asie (Prospero et al., 2002). Parmi ces sources, le désert du Sahara est la plus importante avec plusieurs centaines de millions de tonnes de particules émises chaque année, représentant la moitié du total des poussières émises à l'échelle globale (Goudie et Middleton 2001 ; Engelstaedter et al., 2006 ; Goudie, 2009). Son influence s'étend sur plusieurs milliers de kilomètres pouvant aller jusqu'à la Scandinavie (Franzen et al., 1994), le continent américain (Swap et al., 1996 ; Koren et al., 2006) ou l'Asie (Tanaka et al., 2005).

3.1.1 – Etat des connaissances sur les poussières sahariennes

3.1.1.1 – Les mécanismes d'émission des particules : l'érosion éolienne

La génération d'aérosols désertiques est conditionnée par la disponibilité de fines particules sur la surface terrestre pouvant être soulevée du sol lorsque la vitesse de frottement du vent dépasse un certain seuil. Cette limite va dépendre de la rugosité des éléments sur cette surface, de la taille des particules ainsi que de l'humidité du sol. Suivant leur taille, différents processus vont mettre en mouvement ces particules. Le plus souvent, les particules minérales sont regroupées en

agrégats maintenus par les forces de cohésion. Pour ces agrégats ou pour les particules les plus grosses, la friction du vent va leur imprimer un léger soulèvement. De par leur taille et leur vitesse de sédimentation induite, ces particules et agrégats ne vont pas pouvoir rester en suspension et vont rapidement retomber au sol. Leur déplacement reste ainsi confiné dans une mince couche près du sol, appelée couche de saltation (Gomes et al., 2003 ; Laurent et al., 2006). Au moment de leur impact sur le sol ou par collision, les agrégats vont se désagréger et éjecter les particules qui les constituent, libérant des particules plus fines pouvant être entrainées par le vent et transportées. Lors de l'impact, des particules plus fines restées cohésives avec le sol vont également être arrachées par transfert d'énergie cinétique (Gomes et al., 2003). Ce mécanisme est appelé « sandblasting ». La figure 3.1 illustre schématiquement l'ensemble des processus qui conditionnent l'émission des particules minérales jusqu'à leur dépôt.

De nombreuses études se sont attachées à étudier la contribution des différents paramètres conditionnant la mise en suspension des particules minérales. Ces études ont pour finalité de mettre en relation les paramètres météorologiques avec les paramètres intrinsèques des surfaces soumises à l'érosion éolienne afin de déterminer l'intensité des flux d'émission de particules et de contraindre les modèles numériques. Les paramètres intrinsèques du sol vont conditionner la vitesse seuil de frottement du vent au-delà de laquelle la mise en mouvement des particules va être initiée. Les principaux paramètres à considérer sont la taille des agrégats, la rugosité de surface, l'humidité du sol et la couverture végétale dans le plan horizontal et vertical (Callot et al., 2000 ; Lu et Shao, 2001 ; Gregory et al., 2004 ; Tanaka et Chiba, 2006 ; Laurent et al., 2006 ; Shaw et al., 2008). Une fois le mouvement initié, le flux de particules sera d'autant plus important que l'intensité du vent le sera.

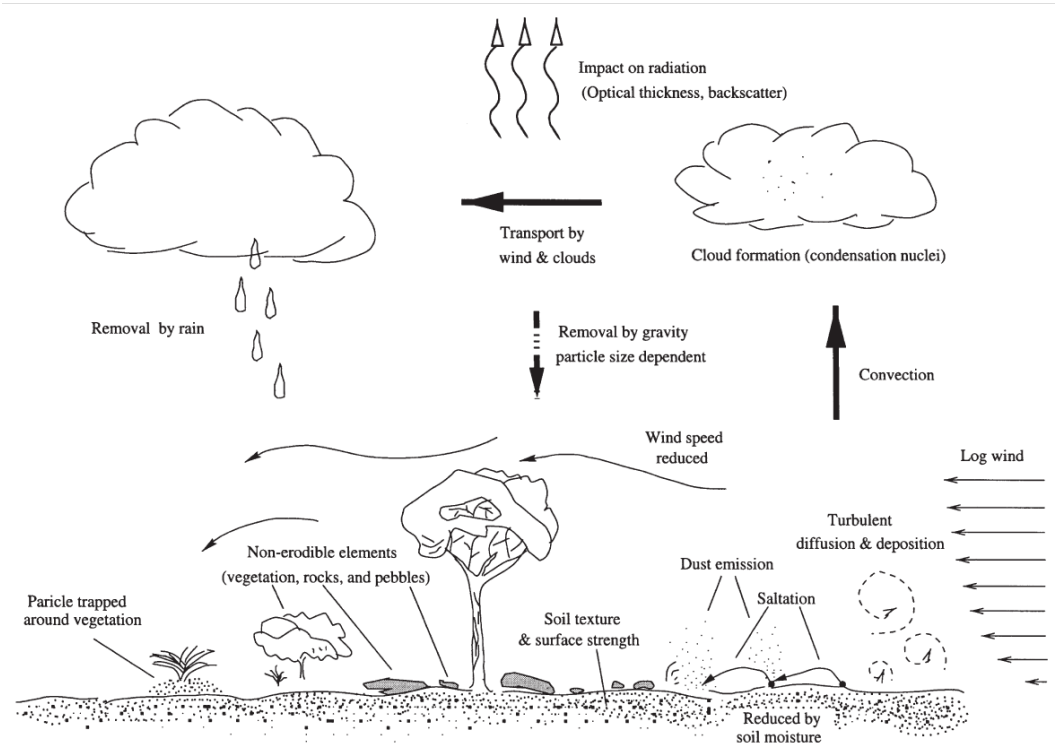


Figure 3.1 : Illustration schématique des processus physiques influençant l'émission, le transport et le dépôt des poussières minérales (d'après Lu et Shao, 2001)

3.1.1.2 – Les principales zones d'émissions de particules minérales

Bien que certaines régions aient pu être identifiées sur la base d'observations réalisées *in situ*, les observations satellitaires sont l'unique source de données permettant de disposer de mesures avec une couverture spatiale globale. L'essor de ces techniques d'observation au cours des dernières décennies a ainsi permis d'identifier les principales régions sources de poussières minérales en suspension dans l'atmosphère (Prospero et al., 2002 ; Washington et al., 2003). Ces observations permettent également de disposer de mesures en continu et de pouvoir ainsi déterminer l'évolution de ces sources au cours du temps.

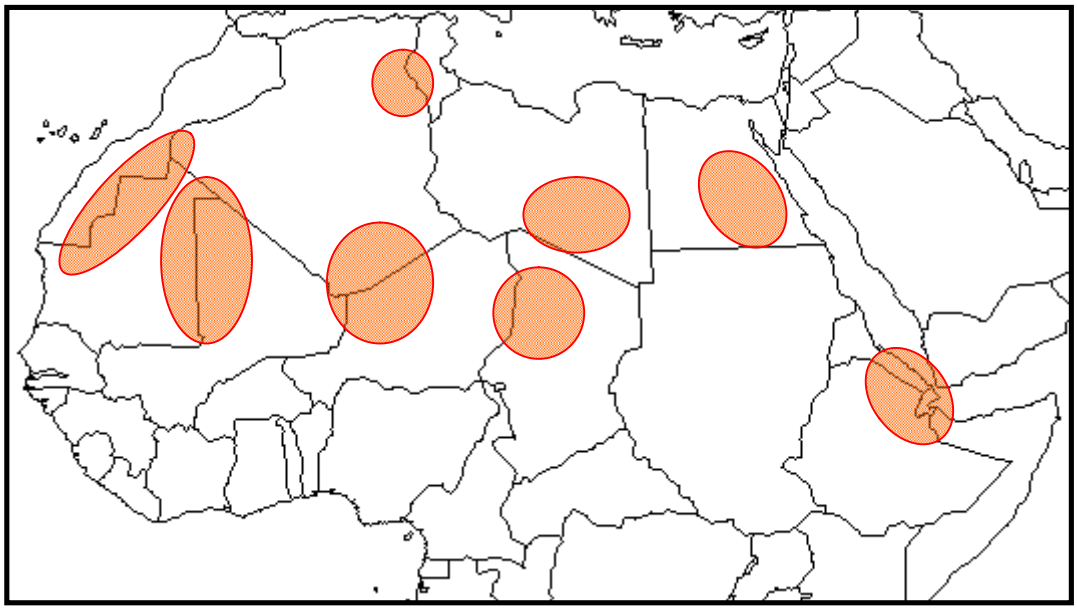


Figure 3.2 : Principales régions sources d'aérosols désertiques en Afrique du Nord (d'après Prospero et al., 2002).

La dépression du Bodélé, située au nord-est du lac Tchad est la plus importante de ces régions sources à l'échelle mondiale (Prospero et al., 2002 ; Washington et al., 2003 ; Warren et al., 2007). Chaque année, entre 120.10^6 et 780.10^6 tonnes d'aérosols minéraux y seraient produits (Bristow et al., 2009). Durant les évènement de soulèvement de poussières, des concentrations de l'ordre de 10 000 $\mu g.m^{-3}$ peuvent être observées localement (Warren et al., 2007). Cette région reste active tout au long de l'année avec un maximum au printemps et un minimum d'activité vers le mois d'août (Engelstaedter et al., 2006). Cinq autres régions majeures, de par leur étendue spatiale, l'intensité de leur émission et le transport des poussières soulevées en direction du sud de l'Europe, sont localisée en Afrique du Nord (Figure 3.1) (Goudie et Middleton, 2001 ; Prospero et al., 2002 ; Washington et al., 2003). La région située sur la frontière mauritanienne se compose d'une multitude de point sources s'étendant jusqu'à la frontière algérienne. Elle est principalement active en début et en fin d'année. La région identifiée sur la frontière entre le Mali et la Mauritanie est quant à elle particulièrement active tout au long de l'année et figure parmi les plus importantes en termes de quantité de particules émises. La région entre l'Algérie et le Niger est principalement

active entre les mois de mai et d'août. La région la plus proche du territoire français est située sur la frontière entre la Tunisie et le Nord-est algérien. La période la plus active pour cette région débute en avril-mai et perdure jusqu'en aout-septembre. Enfin, la dernière de ces régions est située à l'Est du désert libyen. Elle est active durant toute l'année avec un pic d'activité en mai-juin. L'ensemble de ces régions est associé à des topographies particulières puisqu'elles se situent dans des zones dépressionnaires ou à proximité de hauts massifs montagneux entrainant des régimes de vents particuliers.

A travers l'ensemble du désert saharien, d'autres régions source peuvent être également identifiées. Ces régions sont qualifiées de mineures puisque l'intensité de leur émission sur le long terme est moindre en comparaison des principales régions identifiées. Pour ces régions, la mise en suspension des particules est principalement due à des tempêtes de sable dont les occurrences peuvent présenter de très fortes variabilités temporelles. Ainsi, les grandes étendues de dunes n'apparaissent pas comme de perpétuelles régions sources de poussières minérales en suspension

De manière générale, l'ensemble des zones de production de particules minérales en suspension dans l'atmosphère se situe dans les zones très arides où les précipitations et le couvert végétal sont extrêmement faibles. Le maximum de leur activité est enregistré au cours du printemps et de l'été et le minimum durant les mois d'octobre et de novembre (Engelstaedter et al., 2006).

3.1.1.3 – Les caractéristiques des particules

La distribution granulométrique des particules conditionne leur soulèvement, leur temps de résidence dans l'atmosphère, ainsi que les distances parcourues. Cette distribution va dépendre de l'évènement à l'origine de la mise en suspension et présentera des caractéristiques différentes suivant l'évènement de mise en suspension. Les caractéristiques des distributions granulométriques ne sont pas conservées au cours du transport. Ainsi, l'éloignement à la source tend à réduire le nombre de grosses particules en suspension et ainsi le diamètre médian des distributions en comparaison de ce qui pourrait être observé à proximité des sources (Mc Tainsh et al., 1997 ; Breuning-Madsen et Awadzi, 2005 ; Lawrence et Neff, 2009). De plus, en raison des conditions d'accès difficiles aux régions sources, peu de mesures y sont réalisées. La majeure partie des mesures disponibles est effectuée après le transport de ces particules sur de longues distances. Les caractéristiques de ces distributions vont ainsi dépendre de l'intensité de l'évènement, du maintien des conditions de turbulence, ainsi que des conditions et de la durée de transport. Un aperçu des tailles caractéristiques des poussières sahariennes est donné dans la table 3.1 issue de Goudie et Middleton (2001).

Source	Localisation	Taille modale, médiane ou moyenne (µm)
Mc Tainsh et Walker (1982)	Kano, Nigéria	8.9 – 74.3 (médian)
Coudé-Gaussen (1981)	Tanezrouft, centre Sahara	72 (modal)
Coudé-Gaussen (1991)	Maghreb	5 – 40 (médian)
Mattsson and Nihlén (1996)	Crête	8 – 30 (modal)
Sala et al. (1996)	Espagne	4 -30 (moyen)
Ratmeyer et al. (1991)	Ile de Sal	11.9 – 18.6 (moyen)
Littmann (1991a,b)	Allemagne	2.2 – 16 (médian)
Pye (1992)	Crête	4 – 16 (médian)
Gillies et al. (1996)	Mopti, Mali	16.8 (modal)
Ozer et al. (1998)	Gênes, Italie	14.6 (médian)
Bücher and Lucas (1984)	Sud-Ouest de la France	4 – 12.7 (médian)
Coudé-Gaussen (1991)	Sud de la France	8 – 11 (médian)
Tomadin et al. (1984)	Centre de la Méditerranée	2 – 8 (modal)
Coudé-Gaussen (1988)	Bassin parisien	8 (modal)
Wagenbach and Geis (1989)	Alpes Suisse	4.5 (médian)
Talbot et al. (1986)	La Barbade	3.2 (médian)
Arimoto et al. (1997)	Les Bermudes	2.0 – 2.3 (moyen)
Afeti and Resch (2000)	Sud du Ghana	1.16 (moyen)
Perry et al. (1997)	Continent américain	< 1.0 (moyen)

Table 3.1 – Caractéristiques des tailles des poussières sahariennes (d'après Goudie et Middleton, 2001).

De manière générale, les tailles caractéristiques des poussières minérales diminuent quand la distance à laquelle la mesure est réalisée augmente. Toutefois, l'ensemble de ces mesures montre que les particules issues de ces régions désertiques ont une taille médiane, moyenne ou modale supérieure au micron. Cette caractéristique de taille pourra être utilisée ultérieurement pour distinguer la contribution de ces évènements vis-à-vis d'une pollution d'origine anthropique qui génère des particules beaucoup plus fines. Ces particules présentent également des compositions chimiques caractéristiques qui sont utilisées pour tracer ces particules et quantifier leur contribution lors de prélèvements (Viana et al., 2002 ; Borbely-Kiss et al., 2004 ; Rodriguez et al., 2004 ; Nicolas et al., 2008 ; Viana et al., 2008 ; Coz et al., 2009). Suivant les rapports de concentrations de ces différents composés, il est alors possible d'estimer la région émettrice de ces poussières (Schwikowski et al., 1995).

3.1.1.4 – Le transport des particules désertiques

La circulation générale atmosphérique et les conditions météorologiques à l'échelle synoptique conditionnent le transport des particules mises en suspension. Une grande partie de ces poussières minérales, de 30 à 50 % du total de l'export de poussières sahariennes (D'Almeida, 1986), est transportée en direction de l'Atlantique Nord. La zone où l'export de poussières est maximal est comprise entre 5 et 25°N suivant la saison (Goudie et Middleton, 2001). Schlatter (1995) estime que 20 millions de tonnes de poussières sahariennes se déposent annuellement au niveau des Caraïbes.

Le transport de ces poussières sur la Méditerranée et l'Europe est la seconde voie d'export privilégiée. Ce transport est conditionné par la position de centres dépressionnaires sur le nord de l'Afrique qui vont générer une intense mobilisation de poussières et les transporter vers l'Europe occidentale. Moulin et al. (1998) propose ainsi une climatologie du transport des poussières sahariennes sur la Méditerranée et l'Europe. D'après ces travaux, la région de la mer Ionienne, identifiée comme une région source de ^{137}Cs, de ^{40}K et de TSP dans la partie 2.4.6, est une zone de passage privilégiée pour le transport des poussières sahariennes en direction de l'Europe. De par sa proximité, le sud de l'Europe et principalement les pays du pourtour méditerranéen sont régulièrement impactés par ces évènements comme l'Espagne (Querol et al., 2001 ; Rodriguez et al., 2002 ; Pérez et al., 2008 ; Coz et al., 2009), le Portugal (Almeida et al., 2005), l'Italie (Pace et al., 2006 ; Tafuro et al., 2006 ; Gobbi et al., 2007 ; Pavese et al., 2009), la Grèce (Kaskaoutis et al., 2008 ; Mitsakou et al., 2008), le Monténégro (Dordevic et al., 2004), la Turquie (Kubilay et al., 2000 ; Griffin et al., 2007 ; Koçak et al., 2007) ou encore la France où une vingtaine d'épisodes ont été recensés en Corse en une seule année (Bergametti et al., 1989). Lors de certains épisodes, ces poussières peuvent être transportées jusqu'aux iles britanniques (Goudie et Middleton, 2001) voire atteindre la Scandinavie (Franzen et al., 1994). Au total, D'Almeida (1986) estime qu'environ 100 millions de tonnes de ces poussières seraient transportées chaque années sur l'Europe. En raison de l'énergie considérable mise en jeu lors des tempêtes à l'origine du soulèvement des poussières dans le désert saharien, les panaches de poussières sont régulièrement transportés à une altitude élevée, entrainant une forte concentration d'aérosols dans la moyenne troposphère, caractéristique de ces évènements (Alastuey et al., 2005 ; Meloni et al., 2005 ; Guerrero-rascado et al., 2008 ; Pavese et al., 2009). Ainsi, la station du Jungfraujoch située dans les Alpes suisses à 3580 mètres d'altitude enregistre régulièrement le passage de ces panaches (Schwikowski et al., 1995 ; Coen et al., 2003).

3.1.1.5 – Le dépôt des poussières sahariennes

Au cours du transport, les poussières en suspension vont se redéposer au sol par sédimentation ou par dépôt humide, les régions les plus proches des zones sources étant les plus marquées par ce dépôt. Dans leur revue bibliographique, Lawrence et Neff (2009) établissent ainsi une relation entre le flux de dépôt annuel et la distance à la source, les régions situées à moins de 1000 km, comme la France, recevant de 1 à 50 $g.m^{-2}.an^{-1}$ contre une moyenne de 200 $g.m^{-2}.an^{-1}$ pour les régions situées à proximité immédiate des sources. Leur étude fait également apparaitre

que la distribution en taille des particules évolue avec la distance avec un pourcentage de grosses particules qui diminue quand la distance augmente. Toutefois, ils notent que le pourcentage de particules de tailles comprises entre 2 et 50 µm reste majoritaire même au-delà de 1000 km de transport, soulignant l'importance des particules de tailles relativement importantes dans les quantités déposées.

Ces panaches de poussières présentant une quantité significative de particules de tailles importantes, le dépôt sec va donc contribuer majoritairement au dépôt total à proximité des régions sources, expliquant le glissement des distributions en taille vers les plus fines tailles. A l'inverse, le dépôt humide va être prépondérant au fur et à mesure que la distance à la source augmente (Tegen et Fung 1994). Ainsi, au niveau des Iles Canaries, le dépôt sec représenterait plus de 80 % du dépôt total de poussières sahariennes (Torres-Padron et al., 2002) contre 25-30 % au niveau de la Sardaigne et 15-35 % au niveau de la Corse (Guerzoni et al. 1997).

Au total, l'export de poussières sahariennes entrainerait un dépôt annuel de 130 – 460 Mt sur l'Atlantique Nord (Swap et al., 1996) et de 1 – 10 Mt sur l'ensemble de l'Europe (Külzer et al., 1997).

3.1.1.6 – La contamination du sol saharien

Entre 1960 et 1961, la France a effectué 4 essais atmosphériques sur le site de Reggane (Algérie) auxquels vient s'ajouter le rejet à l'atmoshère de l'essai souterrain de « Béryl » en 1962. Dans son rapport annuel de 1960, le CEA fait ainsi état d'une zone contaminée de 150 km de long qui pourrait être plus importante (> 500 km) selon le dossier de plainte déposé auprès du tribunal de grande instance de Paris. Les investigations conduites par l'AIEA (AIEA, 2005) montrent que les niveaux d'activité en ^{137}Cs autour des sites d'expérimentation sont relativement faibles, à l'exception du « point zéro » où des niveaux d'activité plus élevés ont été enregistrés dans des agrégats de sable vitrifié. Ces agrégats de sable vitrifié sont toutefois trop lourds pour être transportés par le vent (Danesi et al., 2008). Au regard de la surface occupée par le désert saharien et de la superficie des zones de production de poussières, l'étendue des régions où les retombées des tirs français peuvent être supposées significatives reste très faible.

Bien que la présence d'^{131}I et de ^{134}Cs ait été détectée qualitativement dans la partie nord de l'Algérie à la suite de l'accident de Tchernobyl (Baggoura et al., 1998), la contribution de ces retombées reste négligeable pour l'ensemble du désert saharien comme le montre les simulations de dispersion du panache dans les premiers temps suivant l'accident (Brandt et al., 2002).

A l'échelle du désert du Sahara, la contamination de surface est alors principalement la marque des retombées globales des tirs (Masson et al., 2010), le Sahara étant dans la bande latitudinale ayant reçu 13 % du total de ces retombées (UNSCEAR, 2000). Les rares mesures réalisées dans la partie algérienne du désert montrent que la majorité des sols ont une activité en ^{137}Cs de l'ordre de 5 Bq.kg^{-1}, pouvant aller jusqu'à 30 Bq.kg^{-1} le long des côtes algériennes où la pluviométrie est plus importante (Baggoura et al., 1998). Ces niveaux d'activité se trouvent être très proches de ceux mesurés dans l'ouest de la France qui a été très peu impacté par les

retombées de l'accident de Tchernobyl (Masson et al., 2010). Ces observations confirment l'implication des retombées globales des tirs dans la contamination en ^{137}Cs du désert saharien.

3.1.2 – Caractéristiques d'un sol saharien : cas du sol de Douz (Tunisie)

Très peu de données sont disponibles concernant les niveaux de contamination des sols sahariens par les radionucléides artificiels, les niveaux d'activité ambiants lors des tempêtes de poussières ou encore la granulométrie des particules porteuses du ^{137}Cs. La réalisation de campagnes de prélèvements d'aérosols dans ces régions de production de poussières n'a pu être envisagée dans le cadre de ces travaux en raison du coût financier et du temps nécessaire à la réalisation de telles campagnes de mesures. Afin d'obtenir des résultats caractéristiques sur ces poussières sahariennes à moindre coût et dans un délai de temps acceptable dans le cadre de ces travaux, nous avons sollicité le Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques (LISA) disposant d'une échantillothèque de sols du Maghreb. Des échantillons de sols de la région de Douz en Tunisie (figure 3.3) ont ainsi pu être étudiés. Cette région figure parmi les principales régions émettant des poussières sahariennes et se trouve être la plus proche du territoire français (cf. 3.1.1.2).

Afin d'être le plus représentatif possible de la partie du sol soumise à l'érosion éolienne, le prélèvement s'est limité à la couche superficielle du sol. Les différentes fractions granulométriques, préalablement séparées, ont ensuite été analysées par spectrométrie gamma au LMRE d'Orsay. Les résultats sont présentés dans la table 3.2 et une représentation graphique pour les niveaux d'activité en ^{137}Cs et ^{40}K et le rapport des niveaux d'activité de ces deux radionucléides est donnée dans la figure 3.4.

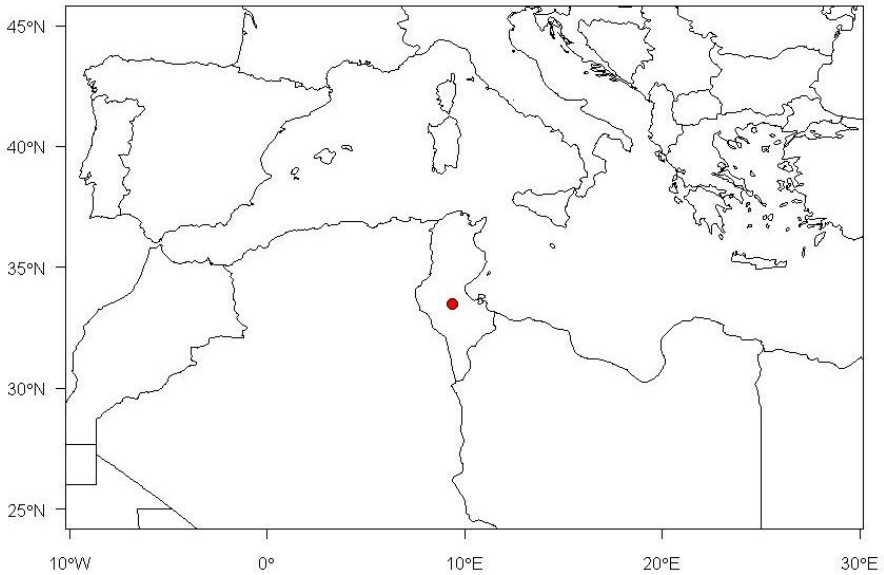


Figure 3.3 : Localisation du prélèvement de sol saharien dans la région de Douz en Tunisie (33.47°N ; 9.39°E).

Fractions granulométriques	^{137}Cs [Bq.kg^{-1}]	^{40}K [Bq.kg^{-1}]	Rapport $^{137}Cs/^{40}K$	^{210}Pb [Bq.kg^{-1}]	^{228}Ac [Bq.kg^{-1}]	^{234}Th [Bq.kg^{-1}]
< 20 µm	20.4 (±1.9)	353 (±32)	0.058 (±0.011)	124 (±14)	28 (±4)	25 (±5)
20 µm – 63 µm	10.8 (±0.9)	375 (±30)	0.029 (±0.005)	69 (±7)	22.1 (±2.4)	21.5 (±2.9)
20 µm – 100 µm	5.3 (±0.6)	347 (±29)	0.015 (±0.003)	35 (±5)	12.5 (±1.7)	10.1 (±2.4)
75 µm - 125 µm	1.36 (±0.21)	229 (±20)	0.006 (±0.001)	9.5 (±2.1)	5.7 (±1)	4.6 (±1.5)

Table 3.2 : Activités massiques de différents radionucléides mesurées par spectrométrie gamma suivant les différentes fractions granulométriques d'un sol prélevé en surface à Douz en Tunisie.

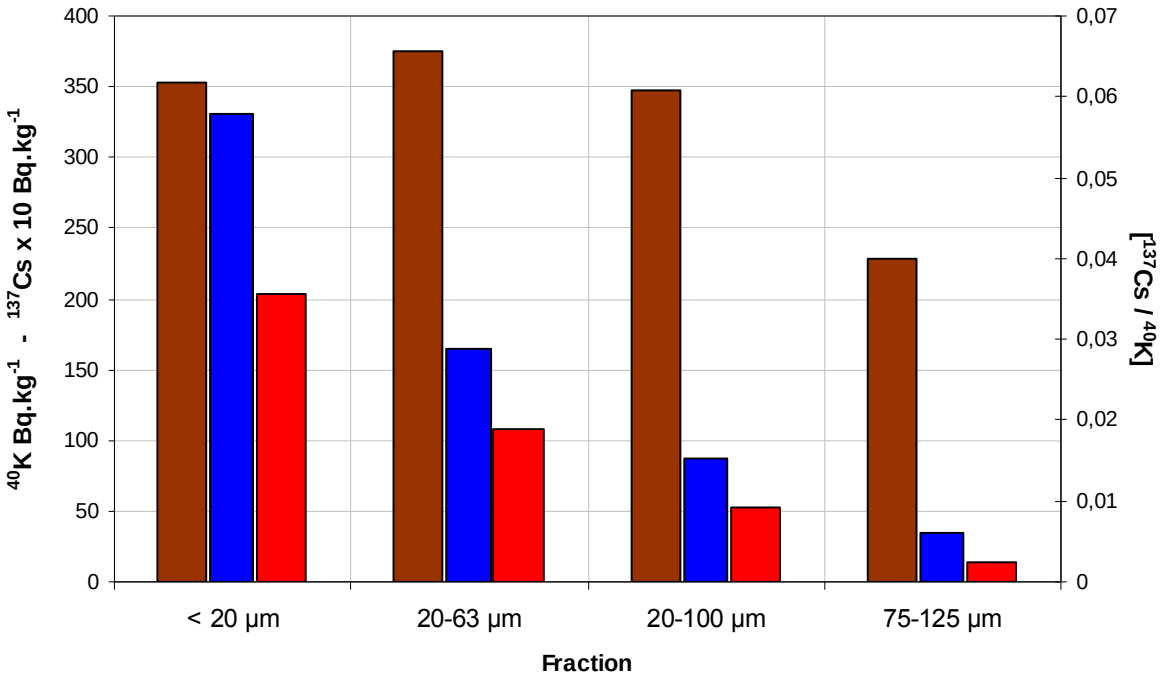


Figure 3.4 : Activités massiques en ^{137}Cs (barres rouges) et en ^{40}K (barres marrons) et du rapport des activités massiques de ces deux radionucléides (barres bleues) en fonction des fractions granulométriques d'un sol de Douz (Tunisie) prélevé en surface - L'activité massique en ^{137}Cs est multipliée par 10 pour améliorer la lisibilité du graphique.

A partir des résultats de l'analyse par spectrométrie gamma, il apparait que les deux radionucléides quantifiés dans l'échantillon ne présentent pas la même tendance vis-à-vis des fractions granulométriques considérées. Ainsi, le ^{40}K tend à avoir une activité massique indépendante de la taille des particules ou agrégats considérés dans la gamme de taille pouvant être mise en suspension et transportée, vraisemblablement en raison de son origine naturelle et de sa primordialité. Cette tendance vient confirmer la relation mise en évidence dans la partie 2.4.6.1 entre l'activité volumique du ^{40}K et la masse totale de particules en suspension (TSP), puisqu'au regard de ces derniers résultats ce radionucléide se trouve être intégré aux particules ou agrégats minéraux. Comme l'activité massique du ^{40}K se trouve être relativement constante quelque soit la fraction granulométrique transportable considérée, l'activité volumique de ce radionucléide mesurée dans les aérosols est bien directement proportionnelle à la masse totale de particules en suspension.

Le ^{137}Cs présente quant à lui une activité massique dépendante de la fraction granulométrique considérée. Elle est maximale pour la fraction la plus fine et décroit lorsque la taille des particules ou agrégats augmente. Ces résultats sont en accord avec ceux rencontrés dans la littérature (Livens et Baxter, 1988 ; Garger et al., 1998 ; Spezzano, 2005 ; Bihari et Dzeco, 2008) quelque soit le type de sol considéré. Cette dépendance avec la taille des particules s'explique principalement par le fait que la couche de surface des particules, et non pas l'ensemble du volume de la particule, participe aux échanges cationiques, ce qui inclut le radiocésium (Bihari et Dzeco, 2008). Ainsi, à l'inverse du ^{40}K, le ^{137}Cs ne se trouve pas intégré aux particules mais attaché sur leur surface. Puisqu'à masse constante, la surface apparente des particules les plus fines est plus importante que pour les particules les plus grosses, l'activité massique en ^{137}Cs des particules les plus fines est alors plus importante. En faisant l'hypothèse que les caractéristiques des particules de sol sont conservées lors de leur mise en suspension, l'extrapolation de ces résultats nous amène à conclure que l'activité massique en ^{137}Cs des aérosols peut nous renseigner sur la granulométrie des particules porteuses de ce ^{137}Cs en relation avec la masse de particules transportée.

De plus, au regard des caractéristiques bien distinctes de ces deux radionucléides et de la dépendance ou non de leur activité massique respective vis-à-vis des fractions granulométriques considérées, il apparait de façon évidente que le rapport des niveaux d'activité entre le ^{137}Cs et le ^{40}K, massique ou volumique, permet de rendre compte de l'activité massique du ^{137}Cs. Ces observations confirment la relation établie dans la partie 2.4.6.1 entre le rapport $^{137}Cs/^{40}K$ et l'activité massique du ^{137}Cs dans les aérosols et y apportent une explication supplémentaire.

En compilant les résultats obtenus pour les différentes fractions granulométriques, il est possible d'estimer les activités massiques en ^{137}Cs et ^{40}K pour l'ensemble de l'échantillon. Cette estimation permet alors de pouvoir comparer ces résultats avec ceux obtenus dans le cadre du réseau OPERA terrestre. Les résultats pour le sol de Douz (Tunisie) et pour les sites d'Alençon, Charleville, Clermont et Dijon sont présentés sur la figure 3.5.

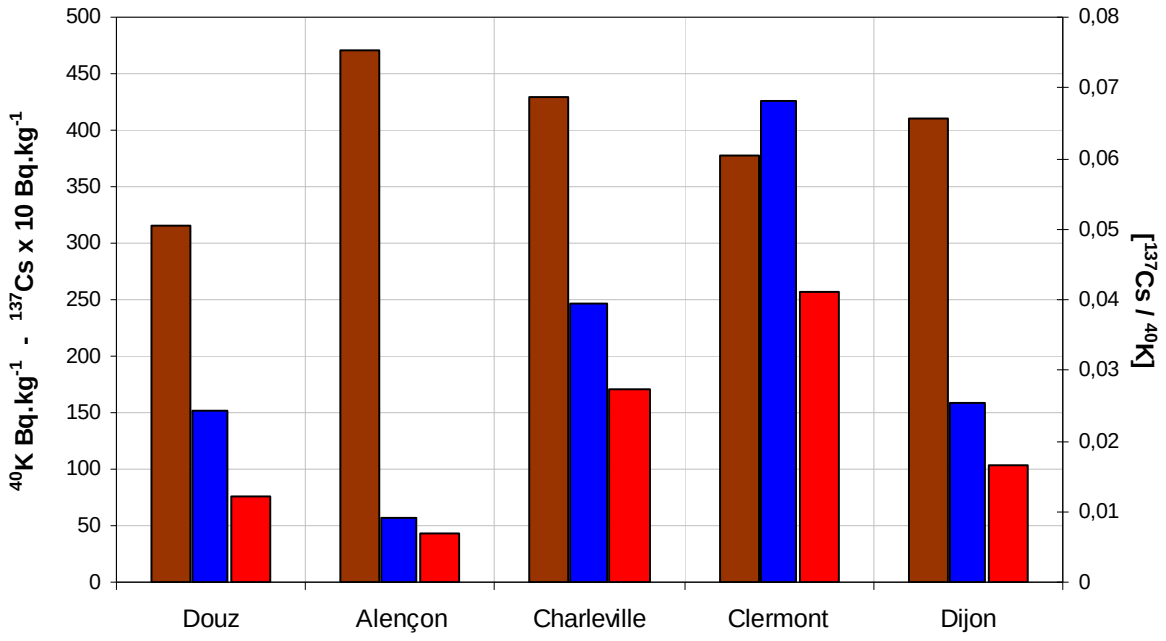


Figure 3.5 : Activités massiques en ^{137}Cs (barres rouges) et en ^{40}K (barres marrons) et du rapport des activités massiques de ces deux radionucléides (barres bleues) pour des sols prélevés surface au niveau de différents sites français du réseau OPERA terrestre ainsi que pour un sol de Douz (Tunisie) - L'activité massique en ^{137}Cs est multipliée par 10 pour améliorer sa lisibilité.

L'estimation des activités massiques de l'échantillon de Douz étant une compilation des activités massiques des différentes fractions granulométriques présentées dans la table 3.2, la fraction supérieure à 125 µm n'est donc pas considérée. Au regard de la tendance observée entre l'activité massique en ^{137}Cs et la taille des particules ou agrégats considérés, la prise en compte de la fraction la plus grossière aurait pour conséquence de diminuer l'activité massique en ^{137}Cs estimée. Il est donc nécessaire de garder à l'esprit que la valeur calculée pour l'activité massique en ^{137}Cs pour le sol de Douz est une estimation haute de ce qui devrait réellement être mesuré en considérant l'ensemble des fractions granulométrique du sol. Pour les sites français du réseau OPERA terrestre, les prélèvements sont effectués en surface. La fraction la plus grossière, supérieure à 2 mm, est éliminée par tamisage, le reste du prélèvement étant ensuite broyé. Les résultats obtenus sont alors représentatifs de l'activité massique des sols en surface.

Les résultats présentés sur la figure 3.5 montrent que l'activité massique en ^{137}Cs du sol de Douz (7.63 ± 3.6 $Bq.kg^{-1}$) se trouve proche des niveaux d'activité rapportés par Baggoura et al. (1998) pour les sols algériens (5 $Bq.kg^{-1}$ en moyenne jusqu'à 30 $Bq.kg^{-1}$). La comparaison de ce niveau d'activité massique en ^{137}Cs avec les valeurs obtenues pour les sites français confirme également les observations faites par Masson et al. (2010) qui indiquent que les niveaux d'activité en ^{137}Cs rencontrés au niveau des sols sahariens sont comparables à ceux rencontrés dans les régions de l'ouest de la France très faiblement impactées par les retombées de l'accident de Tchernobyl, à l'image des résultats obtenus pour le site d'Alençon. En faisant toujours l'hypothèse que les caractéristiques des particules de sol sont conservées lors de leur mise en suspension, ces résultats

nous permettent alors de présumer que l'érosion éolienne du sol de Douz, et par extrapolation de l'ensemble des sols sahariens, entrainerait la mise en suspension de particules dont l'activité massique serait plus faible que dans le cas d'érosion éolienne locale, tout du moins pour les sites de la moitié Est de la France. Les valeurs obtenues pour l'activité massique en ^{40}K étant relativement proches (378 - 470 $Bq.kg^{-1}$) pour les sites français en comparaison des niveaux d'activité massique en ^{137}Cs (4.25 - 25.73 $Bq.kg^{-1}$), le rapport des niveaux d'activité de ces deux radionucléides peut être utilisé pour renseigner sur l'activité massique en ^{137}Cs (cf. 2.4.6).

3.1.3 – La détection des épisodes de poussières sahariennes

Afin de confirmer les caractéristiques présupposées des poussières sahariennes établies à partir de l'étude spécifique d'un sol, il est nécessaire de vérifier que ces propriétés se conservent lors de la mise en suspension des particules ainsi que durant la phase de transport. En raison de l'impossibilité de réalisation de campagnes de mesures dans les régions sources, il n'a pas été possible de vérifier *in situ* la conservation de l'activité massique entre le sol et les particules transportées, ainsi que le détail par fraction granulométrique. Toutefois, bien que les différents mécanismes entrainant la mise en suspension de particules de sol puissent modifier la distribution granulométrique des particules ou agrégats du sol, dû notamment à l'éclatement de ces derniers, il est admis que ces mécanismes n'influencent pas directement la répartition du ^{137}Cs sur les différentes particules. La caractérisation de ces poussières sahariennes après la phase de transport vers le territoire français apparait plus accessible. Il est alors nécessaire tout d'abord d'identifier ces évènements de transport de ces poussières sur le territoire français. Dans cette partie, les différents moyens utilisés pour déterminer l'influence des poussières sahariennes sur les mesures issues des prélèvements des stations OPERA sont présentés.

3.1.3.1 – Les modèles de prévision de transport de poussières sahariennes

Les modèles numériques simulant le transport de poussières d'origine saharienne sont fréquemment utilisés dans la littérature afin d'impliquer rétrospectivement ces épisodes et d'interpréter les résultats des mesures réalisées (Alpert et al., 2004 ; Hernandez et al., 2008 ; Karlsson et al., 2008 ; Niclolàs et al., 2008 ; Giménez et al., 2010 ; Pederzoli et al., 2010 ; Prasad et al., 2010). La majeure partie de ces modèles utilise le concept de vitesse de friction seuil pour établir le flux d'émission de poussières à partir d'étendues actives en termes de production d'aérosols désertiques préalablement définies. Le transport et la dispersion de ces poussières sont ensuite contrôlés par des données météorologiques. Ce paragraphe présente un aperçu des différents modèles opérationnels en routine et utilisés dans cette étude.

Les modèles SKIRON/DUST (Kallos, 1997) et DREAM (Dust regional atmospheric model) (Nickovic et al., 2001) sont les deux modèles opérationnels les plus utilisés pour les études européennes principalement en raison de leur couverture spatial. Ces modèles ont initialement les mêmes modules de base, comprenant le cycle des poussières et le système de modélisation

atmosphérique décris dans Nickovic et al. (2001). L'injection de poussières dans les premières couches des modèles est conditionnée par le type de sol et sa composition minéralogique, le rapport massique des différentes fractions granulométriques considérées et les conditions hydrologiques et atmosphériques de surface. Ces deux modèles se différencient ensuite par leurs améliorations respectives, leur résolution et leur interface. Les prévisions de ces modèles sont directement accessibles sur les sites suivant : http://www.bsc.es pour DREAM et http://forecast.uoa.gr pour SKIRON.

Le système NAAPS (Navy aerosol analysis and prediction system) du Global Aerosol Model repose quant à lui sur une modélisation plus simple concernant la production de poussières dans l'atmosphère. Cette modélisation repose sur une vitesse de friction seuil de 0.6 $m.s^{-1}$ appliquée aux zones déterminées comme érodables et pondérée par un coefficient rendant compte de l'intensité des différentes sources (figure 3.6). Cette estimation est basée sur les travaux de Prospero et al. (2002) et il est alors possible de retrouver les principales régions d'émissions de particules désertiques décrites dans la partie 3.1.1.2. Les sorties de ce modèle sont disponibles également sur le site : http://www.nrlmry.navy.mil.

Enfin, d'autres modèles simulent la production et le transport de ces poussières sahariennes comme le modèle de l'université de Tel-Aviv (http://wind.tau.ac.il/dust8/) qui reprend les modules de DREAM, ou encore le modèle CHIMERE développé à l'IPSL/LMD (http://www.lmd.polytechnique.fr/dust/) qui alimente le modèle Prév'Air de prévision de la qualité de l'air en France (http://www.prevair.org). Une illustration des sorties de modèles des différents systèmes décrits ci-dessus est donnée sur la figure 3.7.

Avec une vue d'ensemble, les modèles illustrant la figure 3.7 prévoient une tendance similaire avec le passage d'un nuage de poussières sur la partie Est de la France pour la journée du 28 mai 2008. Toutefois, les valeurs prédites divergent grandement puisque celles-ci varient de 1 - 10 $\mu g.m^{-3}$ pour Prév'Air, jusqu'à 320 - 640 $\mu g.m^{-3}$ pour DREAM au niveau de la station de la Seyne-sur-Mer. Il est également notable que le modèle SKIRON/DUST prévoit une concentration en particules de 25-50 $\mu g.m^{-3}$ alors qu'il possède le même système de base que le modèle DREAM. Cette illustration nous montre qu'il est difficile d'exploiter directement et quantitativement les données issues de ces modèles de prévision et qu'il est préférable de les utiliser qualitativement et conjointement afin de déterminer la présence de poussières sahariennes dans les basses couches de l'atmosphère.

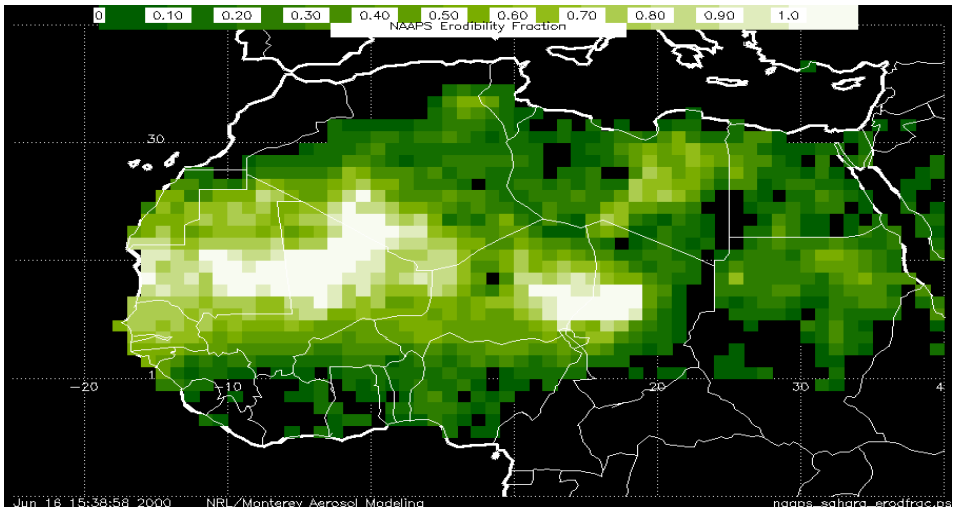


Figure 3.6 : Fraction de sol érodable utilisée dans le modèle NAAPS pour estimer l'intensité du flux de particules.

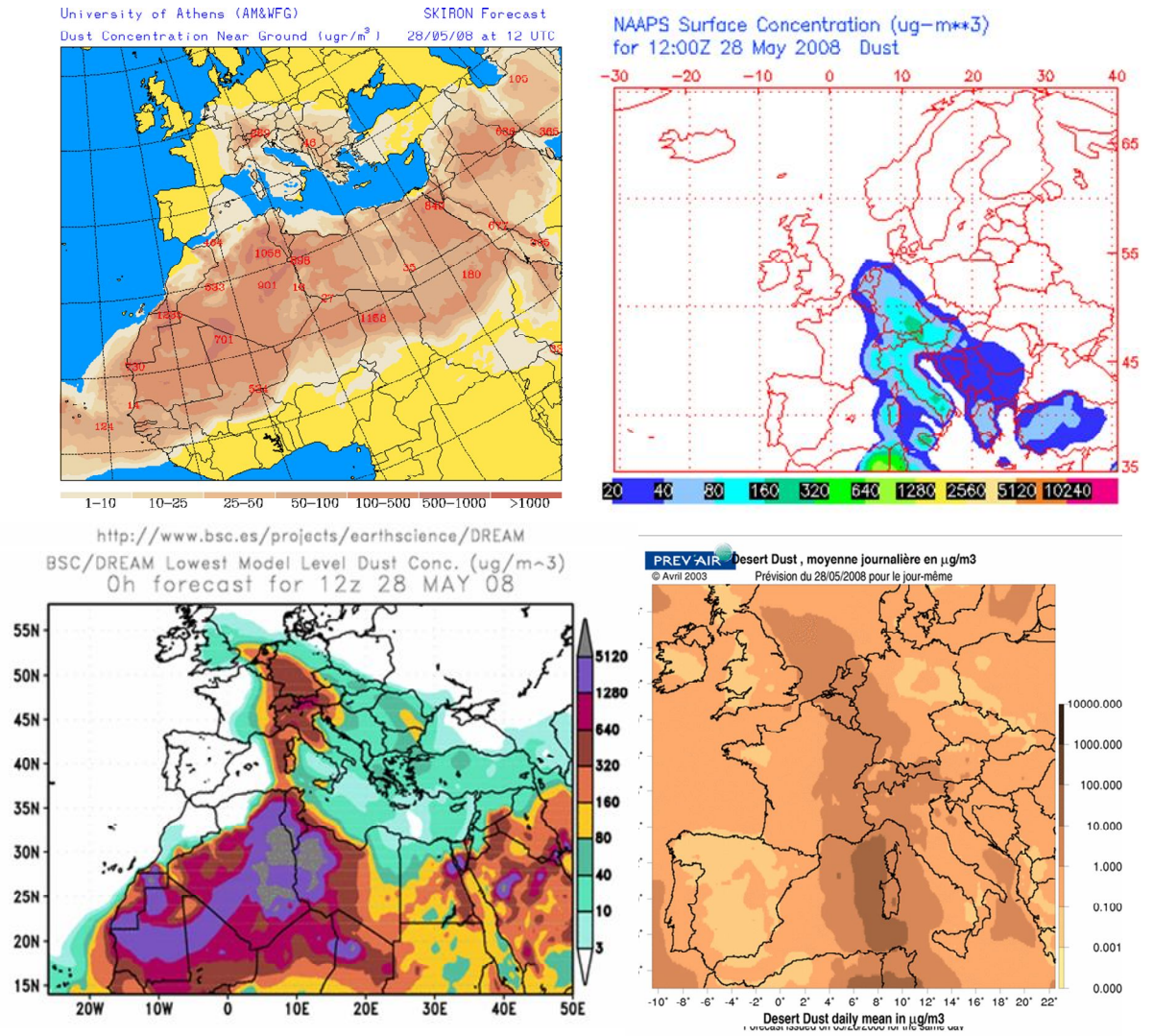


Figure 3.7 : Concentrations au niveau du sol pour le 28 mai 2008 d'après les modèles SKIRON/DUST en haut à gauche, NAAPS en haut à droite, DREAM en bas à gauche et Prév'Air en bas à droite.

3.1.3.2 – Les images satellites

Afin de déterminer qualitativement la présence de poussières sahariennes dans les basses couches de l'atmosphère, il est également possible d'utiliser les images fournies par les différents satellites. En comparaison à celle fournie par les modèles numériques, l'information satellitale dispose d'une couverture spatio-temporelle plus faible qui reste toutefois satisfaisante pour la détermination de leur présence au regard du temps caractéristique de transport de ces poussières et des distances parcourues par ces panaches. Les images fournies par les satellites utilisées pour la détermination de la présence de poussières sahariennes dans l'atmosphère sont issues d'algorithmes de calculs qui permettent une visualisation directe de la présence de ces poussières. Dans notre étude, nous utilisons principalement des recompositions d'images à partir de plusieurs canaux permettant la restitution d'images en couleurs quasi-réelle issues de la base de données « NASA/GSFC MODIS Rapid Response » à partir des mesures des satellites Aqua et Terra. Nous nous attachons alors à observer le développement d'un panache de poussières se déplaçant en direction du Sud de l'Europe. Pour ce type d'images satellites, cette observation est plus évidente lorsque le panache de poussières transite au dessus d'une surface marine. Les données issues de la base de données TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer) peuvent également être utilisées au travers de l'Aerosol Index. Cet index rend compte de la charge en aérosols à l'intérieur de la colonne considérée. Une illustration des images disponibles et utilisées dans cette étude pour déterminer la présence de panaches de poussières sahariennes est donnée sur la figure 3.8. La présence de couverture nuageuse peut gêner la visualisation du panache de poussières sahariennes. Egalement, ces images ne renseignent d'aucune façon sur leur altitude de transport. L'information apportée par ces images satellites reste qualitative et intervient en complément de celle apportée par les modèles de prévision de transport des poussières sahariennes.

3.1.3.3 – Les mesures aux sols

Pour confirmer la présence de poussières sahariennes dans les basses couches de l'atmosphère et donc leur contribution aux prélèvements d'aérosols effectués par les stations du réseau OPERA, il est également possible d'utiliser des bases de données issues des mesures réalisées au niveau du sol. Les réseaux de surveillance de la qualité de l'air sur le territoire français mesurant la concentration massique de particules en suspension au niveau du sol peuvent alors nous renseigner sur la durée et l'intensité d'un épisode de poussières sahariennes. D'après les figures 3.7 et 3.8, nous avons pu établir qu'un panache de poussières sahariennes a survolé le Sud-est de la France aux alentours du 28 mai 2008. La figure 3.9 présente alors les mesures en PM_{10} réalisées dans cette région entre le 20 mai 2008 et le 10 juin 2008.

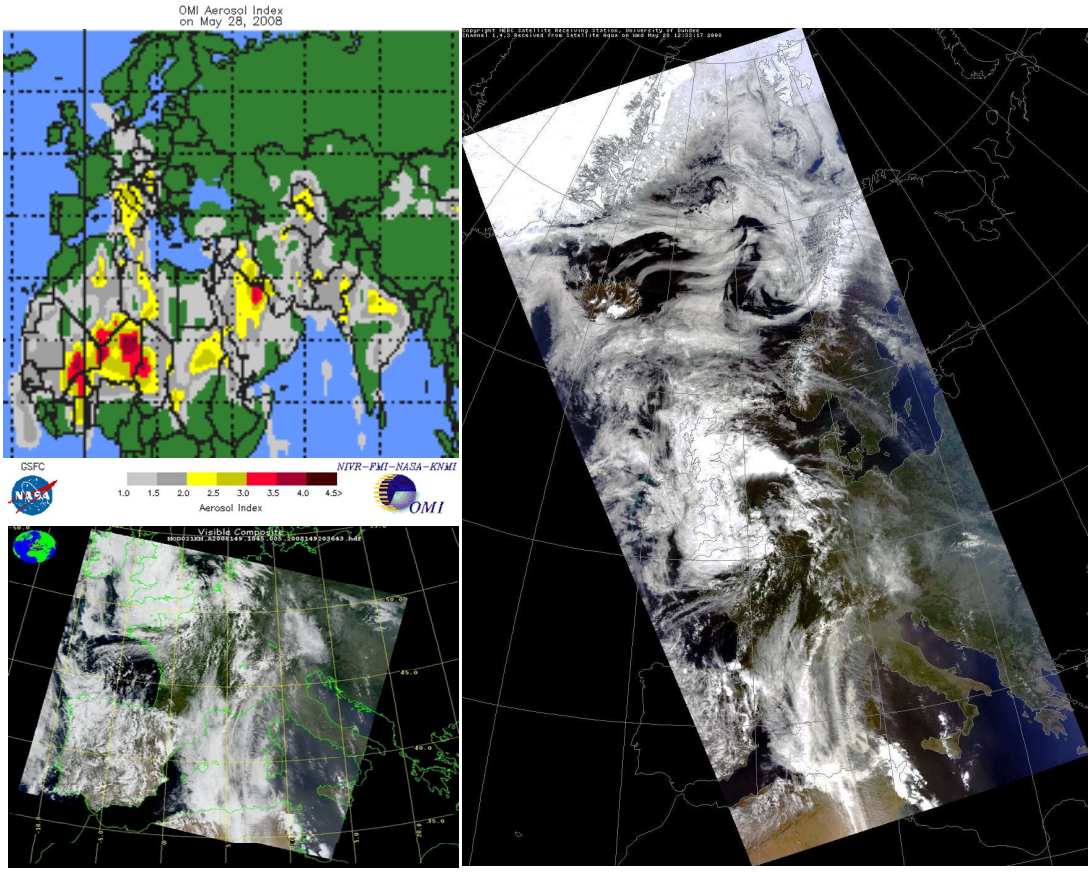


Figure 3.8 : Panel d'images disponibles pour la journée du 28 mai. En haut à gauche : « Aerosol Index » issue de la base de données TOMS à partir des données du satellite OMI; en bas à gauche : composition d'images à partir de plusieurs canaux de mesures du satellite Terra issue de la base de données MODIS Rapid Reponse System ; à droite : composition d'images à partir de plusieurs canaux de mesures du satellite Aqua issue de la base de données de l'université de Dundee.

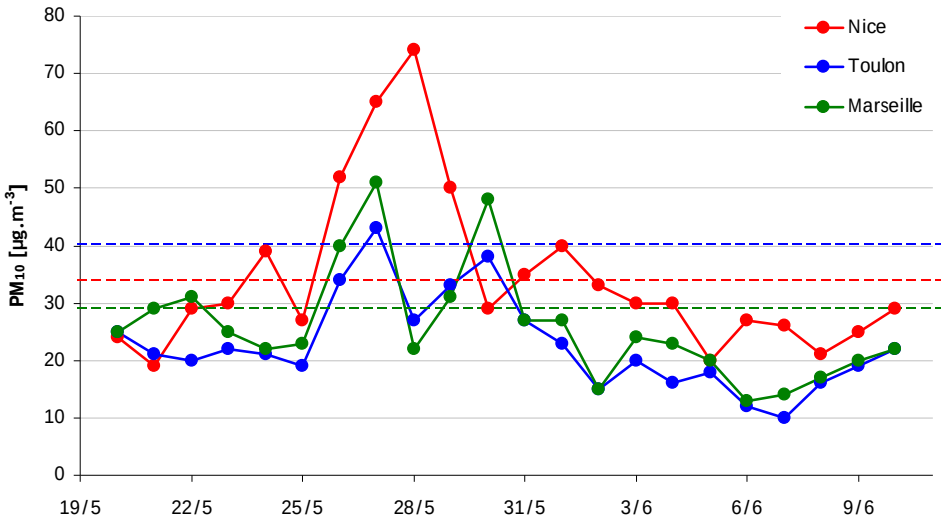


Figure 3.9 : Moyennes journalières en PM_{10} (courbes pleines) aux stations de Nice, Toulon et Marseille entre le 20 mai 2008 et le 10 juin 2008. Les droites en pointillés représentent la moyenne annuelle de 2008 pour chacune des stations (source : Atmo PACA).

D'après ce graphique, la concentration en PM_{10} augmente significativement au niveau de la station de Nice entre le 26 et 29 mai 2008 et de façon beaucoup plus modérée sur les stations de Toulon et Marseille entre le 26 et le 27 mai 2008. Cette augmentation de la concentration en PM_{10} participe alors à la signature d'un transport de poussières sahariennes sur le pourtour méditerranéen, en complément des images satellites et des modèles de simulation. Les augmentations plus faibles des niveaux de PM_{10} aux stations de Toulon et Marseille montrent qu'elles se situent à la périphérie du panache de poussières tandis que la station de Nice se trouve plus affectée par cet épisode, conformément aux prévisions des modèles de simulation. A partir de l'évolution des niveaux en PM_{10} de cette dernière station, l'advection de poussières sahariennes semble perdurer quatre jours.

Afin de compléter la caractérisation de ces épisodes, nous pouvons également utiliser les bases de données AERONET (AErosol RObotic NETwork) qui regroupent les mesures optiques réalisées par le réseau international de photomètres. Cette base de données est principalement constituée de mesures de l'épaisseur optique des aérosols (AOT) présents dans l'ensemble de la colonne atmosphérique. A l'aide d'algorithme d'inversion, cette base de données fournit également une information sur la distribution en taille des aérosols présents dans la colonne atmosphérique. Cette base de données ne dispose toutefois pas d'une résolution temporelle satisfaisante puisque la mesure par les photomètres n'est possible qu'en l'absence de couverture nuageuse. La figure 3.10 présente ainsi une illustration des mesures d'AOT réalisées sur le site de Toulon durant le mois de mai 2008 ainsi que la distribution en granulométrique calculée pour deux jours avec et sans influence de poussières sahariennes, respectivement le 27 et le 15 mai 2008.

D'après la chronique des mesures d'AOT sur le site de Toulon, la journée du 27 mai présente une augmentation significative à mettre en relation avec le passage du panache de poussières sahariennes sur cette région. L'information complémentaire apportée par cette base de données est la distribution granulométrique des aérosols présents dans la colonne atmosphérique. En comparant les journées du 15 mai 2008, sans influence de poussières sahariennes, et du 27 mai 2008, influencée par le passage du panache, nous pouvons voir que la distribution granulométrique des aérosols est dominée par les particules de taille inférieure au micron tandis que lors du passage de panaches de poussières sahariennes, cette distribution se caractérise par une majorité de particules de taille supérieure au micron. Cette information participe également à la signature du passage de poussières sahariennes.

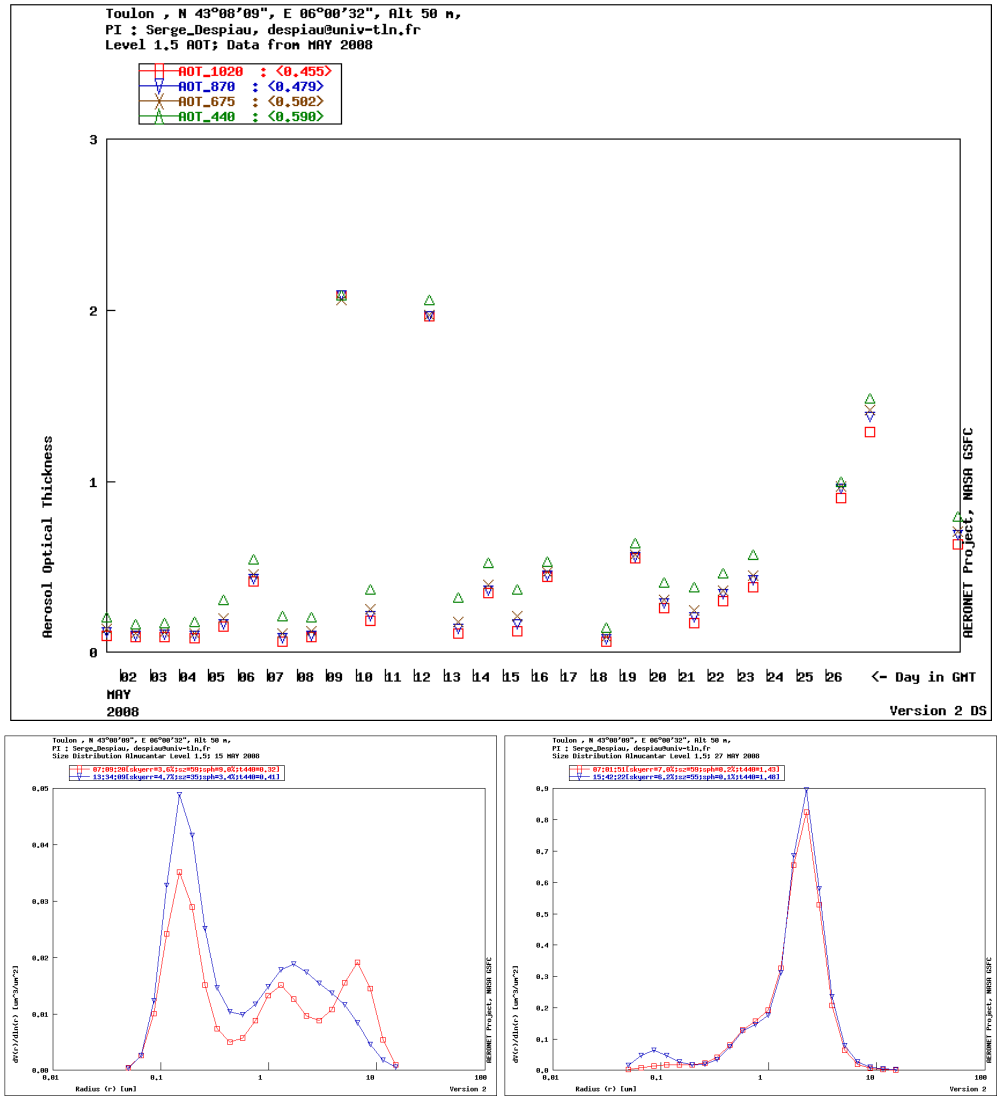


Figure 3.10 : Mesures de l'épaisseur optique d'aérosols durant le mois de mai 2008 à différentes longueur d'ondes (haut) et distributions granulométriques pour le 15 mai 2008 (bas gauche) et pour le 27 mai 2008 (bas droite) sur le site de Toulon (43.14° N, 6.01° E, 50 m) (source : AERONET).

3.1.3.4 – Calcul de rétro-panaches

Le calcul de rétro-panaches (cf. 2.4.2) permet de confirmer l'origine saharienne de panaches de poussières et d'estimer la région source du soulèvement des particules. La figure 3.11 présente le rétro-panache calculé à la station de La Seyne-sur-Mer le 27 mai 2008. Ce calcul retrace le parcours des particules durant les 120 heures précédant leur arrivée, à 100 m au dessus de la station de prélèvement. Les concentrations résultantes étant pondérées par le nombre de particules introduit dans le modèle et par le volume de la couche, le résultat obtenu est sans dimension. Il rend compte de la fraction de particules ayant survolé chacun des pixels du domaine considéré avec une fraction égale à 1 pour le pixel contenant le site de La Seyne-sur-Mer. D'après la figure 3.11, la masse d'air arrivant à la station de La Seyne-sur-Mer le 27 mai 2008 présente une origine saharienne. De plus, le survol de la région située à proximité de la frontière entre l'Algérie et la

Tunisie ainsi que la région localisée en Libye indique que ces deux régions sont potentiellement à l'origine du soulèvement des particules minérales.

Le tracé de la rétro-trajectoire associée au rétro-panache reste confiné dans les plus fortes concentrations du rétro-panache (autour des 10 %) en accord avec sa définition (cf. 2.4.2). Toutefois, la simple considération de ce tracé ne permet pas de remonter jusqu'à une origine saharienne de la masse d'air et présente un temps de résidence important au dessus de la région de la Mer Ionienne. Cette différence entre le tracé d'un rétro-panache et de sa rétro-trajectoire associée se retrouve à plusieurs reprises dans le cas de masses d'air d'origine saharienne. Elle permet alors d'expliquer l'identification de la Mer Ionienne comme une des régions sources de la remise en suspension du ^{137}Cs (cf. 2.4.6) et montre que cette région ne présente pas d'implication directe dans la rémanence atmosphérique de ce radionucléide mais se trouve être une région de convergence des masses d'air transportant des poussières sahariennes vers le sud de la France.

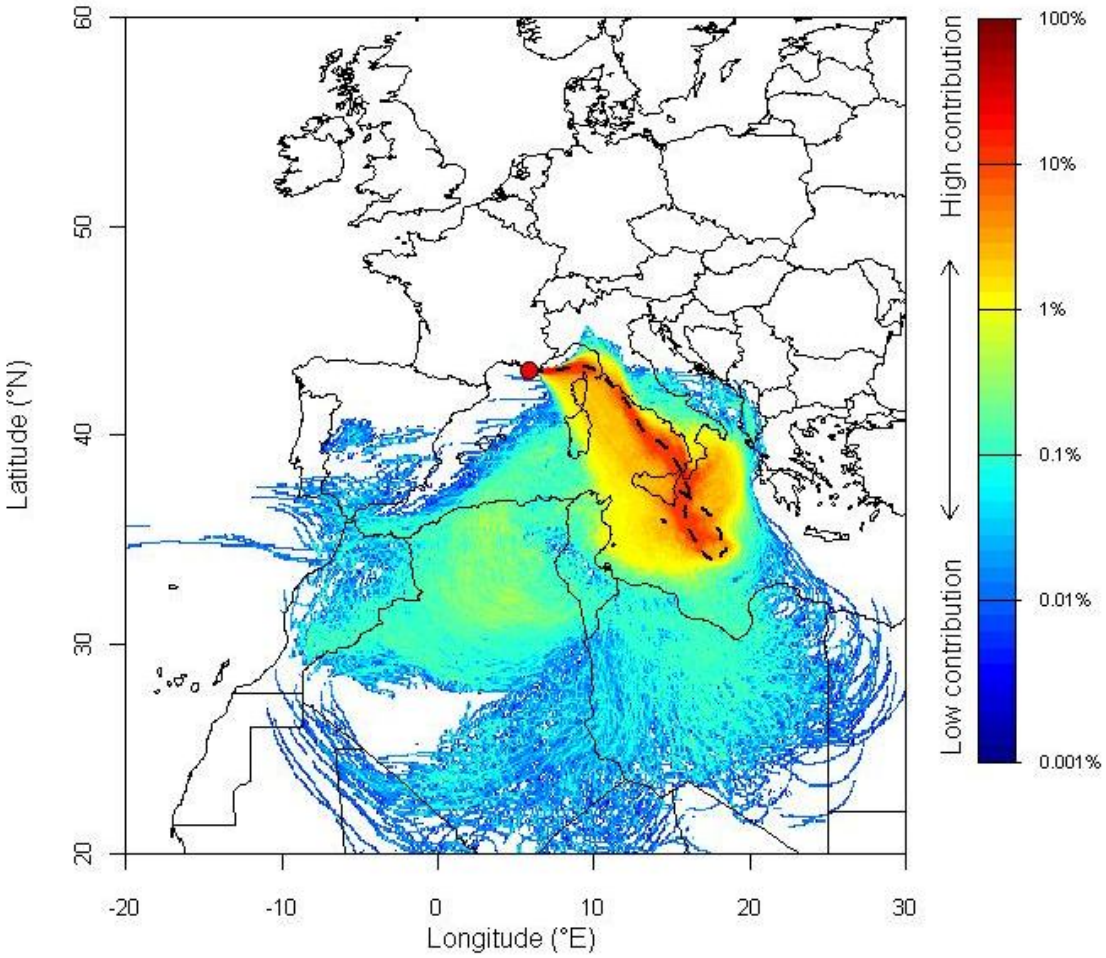


Figure 3.11 : Rétro-panache arrivant à la station de La Seyne-sur-Mer à une altitude de 100 m le 27 mai 2008, durant les 120 heures précédentes, intégré sur la couche 0-2000m. Le tracé en pointillés représente la rétro-trajectoire associée.

Comme précédemment, le calcul de rétro-panaches ne permet pas à lui seul de rapprocher un épisode de poussières sahariennes et une augmentation significative du niveau d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols. En effet, une masse d'air peut avoir une origine saharienne sans qu'aucun soulèvement de poussières ne se soit produit sur son parcours. Ainsi ce calcul vient en complément des informations obtenues à partir des différentes observations, mesures et calculs décrits précédemment. Ce résultat participe aux hypothèses permettant de rapprocher un épisode de poussières sahariennes à une augmentation significative du niveau d'activité en ^{137}Cs.

3.1.3.5 – Recensement et tendances des évènements de poussières sahariennes

Sur la base des différentes données disponibles pour identifier l'export de poussières sahariennes vers notre territoire, il est possible de recenser chacun de ces épisodes dans le but de faire apparaitre des caractéristiques marquantes et d'étudier leur impact sur la rémanence du ^{137}Cs dans le compartiment atmosphérique. Néanmoins, le fait d'utiliser un critère discriminatoire pour déterminer la présence de poussières sahariennes au niveau des stations de collecte du réseau OPERA entrainerait un biais dans la caractérisation de ces épisodes.

Les images satellites ne présentant pas une couverture spatio-temporelle satisfaisante au même titre que les données du réseau AERONET, les mesures des PM_{10} par les ASQAA ne permettant une distinction des épisodes de transport de poussières sahariennes uniquement dans le cas d'épisodes extrêmes et le tracé de rétro-panache ne certifiant pas la présence de poussières dans l'atmosphère, ce recensement préliminaire a été basé sur les données des modèles de prévisions. Parmi l'ensemble des modèles disponibles, le modèle SKIRON était le seul à être opérationnel dès le début de notre période d'étude et à couvrir le territoire français. Il a donc été retenu. Le recensement de tous les épisodes de transport de poussières sahariennes sur le territoire français entre janvier 2000 et décembre 2008, basé sur les données du modèle SKIRON, a été réalisé par A.Demoisson et consigné dans le rapport de stage « Etude du passage d'épisodes sahariens sur la France ». Les résultats de cette partie sont basés sur les données de recensement figurant dans ce rapport.

Afin de rendre compte du transport de poussières sahariennes au niveau des stations du réseau OPERA, la donnée la plus pertinente est la concentration volumique en poussières dans la première couche du modèle, soit la plus proche du sol. Cette donnée n'étant disponible qu'à partir d'avril 2007, elle ne peut être utilisée pour le recensement des évènements de transport de poussières sahariennes sur l'ensemble de la période d'étude. Il est alors possible d'utiliser la charge totale de poussières intégrée sur l'ensemble de la colonne d'air, disponible dès les premières années de la période étudiée. Par définition, cette donnée ne considère pas l'altitude de transport des poussières sahariennes et ne rend pas nécessairement compte de la présence de poussières dans les plus basses couches de l'atmosphère. La considération de cette donnée a pour effet de maximiser le nombre total de jours influencés par un transport de poussières sahariennes. La seconde alternative revient à utiliser le dépôt de poussières au sol, disponible à partir du mois d'octobre 2000, qui aura pour effet de minimiser le nombre de jours influencés par un transport de

poussières sahariennes puisque la présence de poussières dans les basses couches n'entraine pas nécessairement le dépôt d'une quantité de matière suffisante pour être représentée sur les sorties de modèle. Toutefois, le nombre de jours où la concentration en poussières dans la couche du modèle la plus proche du sol est significative doit se trouver dans l'intervalle des données décrites ci-dessus. Nous utiliserons donc la charge totale de poussières intégrée sur l'ensemble de la colonne d'air ainsi que la quantité déposée pour donner une estimation du nombre de jours influencés par le transport de poussières sahariennes au niveau de chaque station du réseau OPERA.

Au cours de la période d'étude, le modèle SKIRON a intégré plusieurs évolutions de paramétrage et d'interface se traduisant par l'apparition d'une tendance interannuelle à la hausse, le nombre moyen de jours subissant un transport de poussières sahariennes augmentant d'un facteur 20 en 8 ans pour l'estimation faite à partir de la charge totale de poussières intégrée sur l'ensemble de la colonne d'air et d'un facteur 4 en 7 ans pour le nombre de jours soumis à un dépôt de poussières. L'obtention d'un tel résultat ne peut que confirmer l'implication des évolutions du modèle dans cette tendance. De plus, les autres moyens de détection des évènements de poussières sahariennes ne font pas apparaitre une telle tendance, qui ne trouve pas non plus confirmation dans la littérature. Toutefois, certaines études basées sur des chroniques de mesures montrent qu'il existe une tendance à l'augmentation de ces évènements mais sur des échelles de temps plus longues et de façon moins marquées (Engelstaedter et al., 2006).

Bien que le recensement de chacun des épisodes de poussières sahariennes durant la période étudiée se trouve conditionné par les évolutions successives du modèle, l'existence d'une saisonnalité dans le transport de ces poussières au travers de tendances intra-annuelles peut être étudiée. En effet, la répartition des différents évènements de transport au cours de l'année reste similaire quelque soit l'année considérée et le nombre d'épisodes recensés. Ainsi, la figure 3.12 représente le cumul mensuel du nombre de jours de transport de poussières sahariennes pondéré par le nombre total de jours de transport recensé durant l'année considérée. La fréquence des épisodes de transport de poussières sahariennes sur les stations du réseau OPERA varie au cours de l'année et présente un maximum au printemps, que l'estimation se base sur la charge totale de poussières intégrée sur l'ensemble de la colonne d'air ou sur le nombre de jours subissant un dépôt significatif, en accord avec les observations de Loÿe-Pilot et Martin (1996) réalisées en Corse. A l'opposé, les mois de décembre et de janvier sont les mois qui enregistrent le moins d'épisodes de transport de poussières. Cette variation intra-annuelle correspond à la saisonnalité des émissions des régions sources décrites dans la partie 3.1.1.2 qui présentent, pour la majeure partie, un maximum d'activité durant la saison sèche, soit entre le printemps et l'été (Prospero et al., 2002 ; Engelstaedter et al., 2006). Egalement, des études établissent des situations synoptiques particulières associées à ces évènements de transport en fonction de la saison (Moulin et al., 1998 ; Meloni et al., 2008).

Sur la base de ce recensement, il est également possible de faire apparaitre des différences entre les stations du réseau OPERA dues à leur localisation géographique. La figure 3.13 représente ainsi le nombre moyen de jours influencés par un transport de poussières sahariennes pour chacune de ces stations. D'après les remarques faites ci-dessus sur la tendance interannuelle du nombre

d'épisodes de transport et les évolutions du modèle, les valeurs reportées sur la figure 3.13 sont dépendantes de la période considérée pour effectuer leur calcul. Le nombre de jours influencés par le transport de ces poussières est alors utilisé en relatif pour établir une hiérarchisation entre les stations du réseau OPERA.

La station la plus fréquemment influencée par le transport de poussières sahariennes est la station de la Seyne-sur-Mer qui se trouve être la station la plus méridionale du réseau OPERA. Elle est par conséquent la plus proche des régions sources de ces poussières et n'offre aucun obstacle topographique à leur arrivée. A l'opposé, les stations les plus septentrionales du réseau, soit Alençon, Charleville et Orsay, sont les stations les moins concernées par ces évènements avec des moyennes très proches. Il apparait ainsi que la distance aux sources est un paramètre prépondérant quant à leur influence sur la composition des aérosols atmosphériques. Enfin, les stations de Bordeaux, Dijon et Clermont-Ferrand présentent des valeurs intermédiaires en rapport avec leur distance respective aux sources mais aussi du fait de la topographie entre les stations et les régions sources. Ainsi, bien que la station de Bordeaux se trouve être plus proche des régions sources que celle de Clermont-Ferrand, la présence de massif pyrénéen limite l'occurrence des épisodes de transport de poussières en provenance du sud. Le transport de poussières sahariennes sur la station de Bordeaux provient alors majoritairement de l'ouest après un contournement de la péninsule ibérique par les panaches de poussières. Cette observation participe à l'explication des résultats obtenus dans la partie 2.4.3, montrant une origine différente pour les augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs pour la station de Bordeaux.

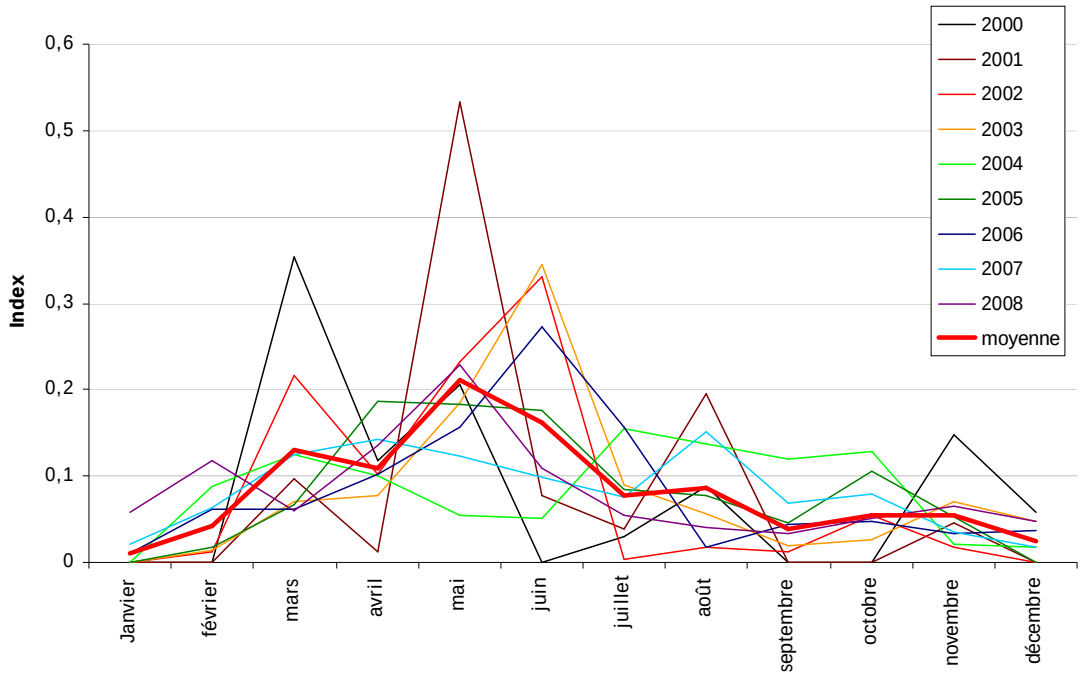


Figure 3.12 : Cumul mensuel du nombre de jours de transport de poussières sahariennes pondéré par le nombre total de jours de transport recensés durant l'année considérée pour l'ensemble des stations du réseau OPERA. Estimation faite à partir des données de charge totale de poussières intégrée sur l'ensemble de la colonne d'air. La courbe rouge en gras représente la moyenne des différentes années.

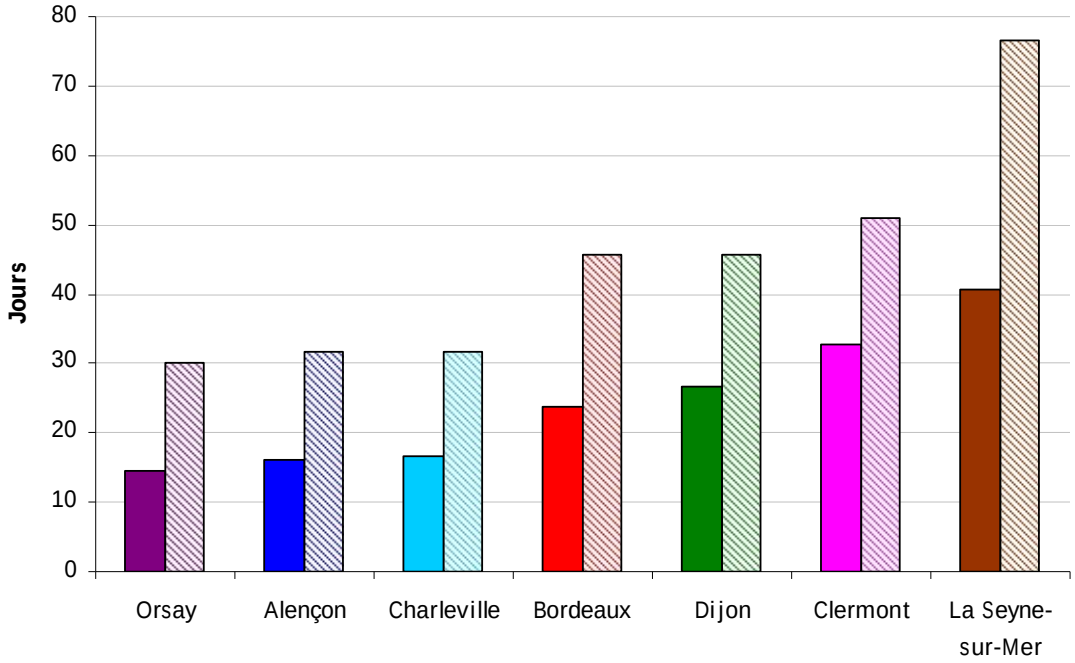


Figure 3.13 : Moyenne du nombre de jours par année de transport de poussières sahariennes pour chacune des stations du réseau OPERA estimée à partir du nombre de jours subissant un dépôt significatif entre 2001 et 2008 (histogrammes pleins) et des données de la charge totale de poussières intégrée sur l'ensemble de la colonne d'air entre 2000 et 2008 (histogrammes hachurés).

Une des caractéristiques importantes de ces évènements de transport de poussières sahariennes est la durée de ces épisodes au regard du temps de prélèvement des stations OPERA (10 jours). Pour l'ensemble des stations, la répartition du nombre d'épisodes de transport de poussières sahariennes en fonction de leur durée est identique. Le total du nombre d'épisodes de transport de poussières sahariennes pour différentes classes de durée pondéré par le nombre total d'épisodes recensé à chacune des stations du réseau OPERA est alors représenté sur la figure 3.14. Pour l'ensemble du réseau OPERA, les évènements ne durant qu'une seule journée représentent environ 1/3 des épisodes, plus de 80 % des évènements ne durent pas plus de 3 jours et les épisodes dont la durée est supérieure au temps de prélèvement des stations OPERA représentent moins de 0.5 % du total des épisodes. De plus, la durée de ces évènements de transport de poussières sahariennes est estimée à partir des données de la charge totale de poussières intégrée sur l'ensemble de la colonne d'air, ce qui maximise le nombre total de jours influencés par un transport de poussières sahariennes.

Ainsi, la caractérisation des évènements de transport de poussières sahariennes basée sur des épisodes dont la durée est supérieure au temps de prélèvement des stations du réseau OPERA, pour ne sélectionner que les décades où l'influence de ces évènements est exclusive, n'est pas envisageable. Nous choisissons donc de caractériser ces évènements à partir de cas particuliers sélectionnés non pas par leur durée et leur influence exclusive, mais à partir de leur intensité et donc de leur influence prépondérante sur le prélèvement d'aérosols.

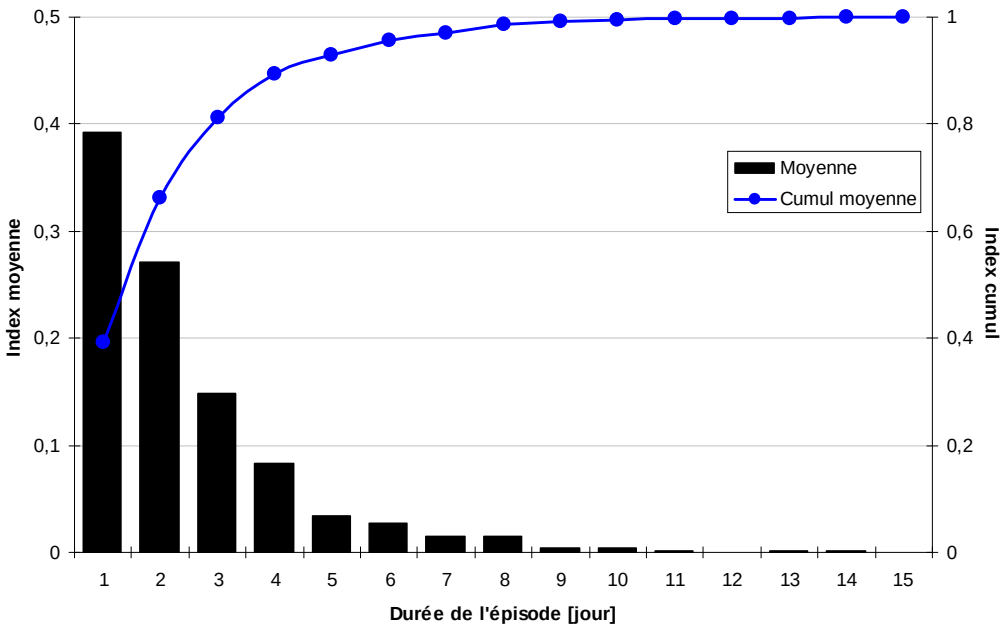


Figure 3.14 : Total du nombre d'épisodes de transport de poussières sahariennes en fonction de leur durée en jour, pondéré par le nombre total d'épisodes recensé à chacune des stations du réseau OPERA. Estimation faite à partir des données de la charge totale de poussières intégrée sur l'ensemble de la colonne d'air entre 2000 et 2008 (histogramme noir) et cumul du total pondéré en fonction de la durée de l'épisode (courbe bleue).

3.1.4 – Etude de l'évènement du 21 février 2004

L'évènement de transport de poussières sahariennes se produisant le 21 février 2004 est l'un des plus exceptionnel au regard de la masse de particules transportée durant la période d'étude. Au cours de cette journée, 28 stations de surveillance de la qualité de l'air situées en France métropolitaine enregistrent un niveau de PM_{10} journalier supérieur à 50 µg.m^{-3}. Le maximum est atteint à la station la plus méridionale de l'ensemble des réseaux français avec 145 µg.m^{-3} en moyenne journalière, soit un dépassement de près de 200 % de la valeur en PM_{10} autorisée par la directive européenne sur la qualité de l'air (2008/50/EC). La situation météorologique correspondante est représentée sur la figure 3.17 et montre la remontée en flux cyclonique d'un air chaud en provenance de l'Afrique du Nord vers le Sud de la France. Cette situation météorologique est répertoriée dans la littérature comme un scénario typique de transport de poussières sahariennes vers le Sud de l'Europe (Escudero et al., 2005 ; Meloni et al., 2008). Les images satellites viennent confirmer la présence de ces poussières dans l'atmosphère avec la visualisation d'un panache couvrant une partie de la Méditerranée (Figure 3.15). La couverture spatio-temporelle de ces images ne permet pas de définir avec précision les contours du panache ainsi que l'étendue des régions impactées.

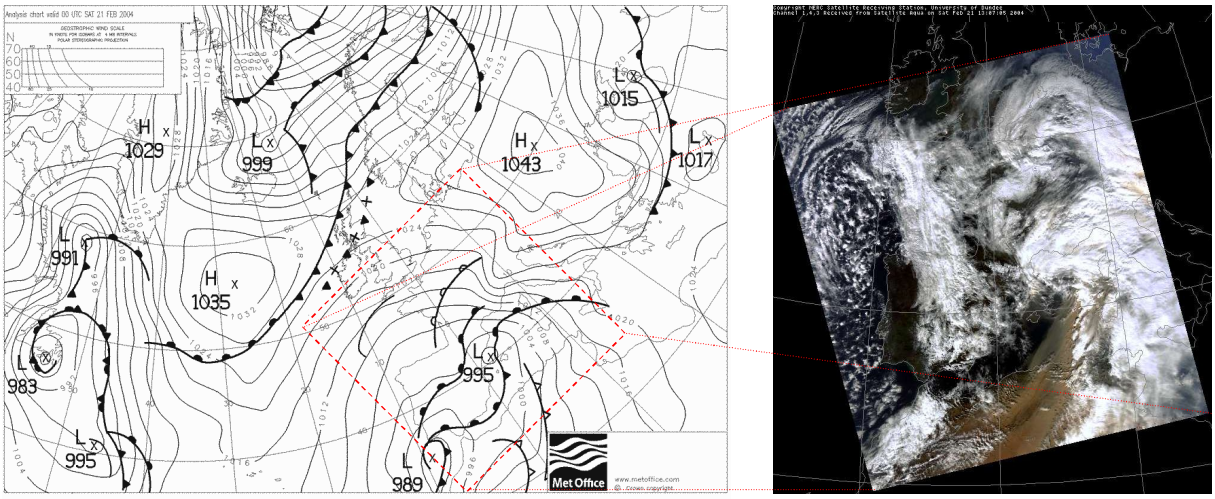


Figure 3.15 : Situation météorologique synoptique du 21 février 2004 à l'échelle de l'Europe avec les tracés des champs de pression au niveau de la mer et des lignes de front (www.metoffice.com) (carte de gauche) et composition d'images à partir de plusieurs canaux de mesures du satellite Aqua du 21 février 2004 issue de la base de données de l'université de Dundee (carte de droite).

Les modèles opérationnels de transport de poussières sahariennes prévoient l'arrivée d'un panache de poussières sur le sud de l'Europe entre le 21 et le 23 février 2004 mais se différencient sur l'étendue spatiale du panache (Figure 3.16). Suivant les modèles, le panache ne concerne que les côtes méditerranéennes ou s'étend jusqu'au sud du Royaume-Uni.

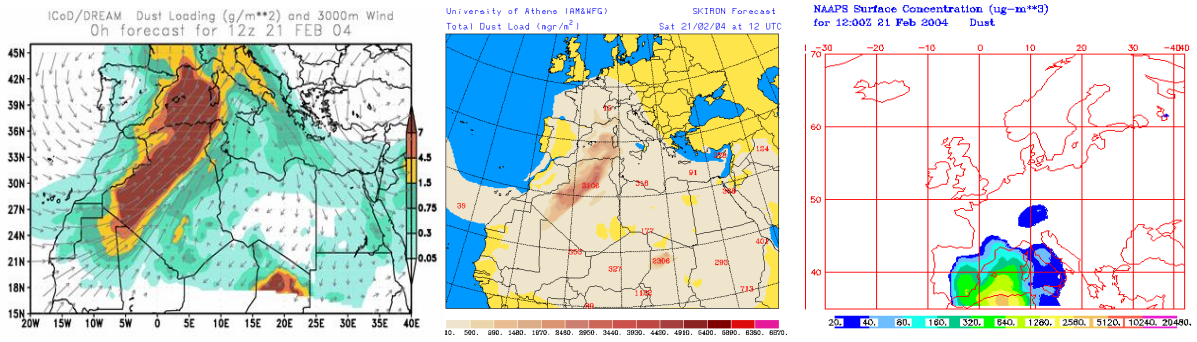


Figure 3.16 : Résultats de prévisions de transport de poussières sahariennes pour le 21 février 2004 à 12:00 UTC pour les modèles, de gauche à droite, DREAM, SKIRON et NAAPS.

3.1.4.1 – Caractérisation en empoussièrement de l'épisode

Dans le but de rendre compte de l'étendue réelle des régions impactées par le passage de ce panache de poussières et de la durée de cet évènement, l'ensemble des mesures de PM réalisées par les différentes AASQA (Associations Agréées pour la Surveillance de la Qualité de l'Air) sur le territoire français a été récupéré. Ces mesures sont effectuées à l'aide de balance TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) ou de jauges bêta. Les données de PM sont ensuite distribuées par l'Agence De l'Environnement et de la Maitrise de l'Energie (ADEME) sur la base de données

horaires. Une description plus détaillée du réseau français de surveillance de la qualité de l'air est donnée dans le rapport EMEP/CCC-Report 8/2007.

Pour les stations influencées de façon significative par des sources locales, la contribution du passage du panache saharien pourrait se trouver masquée par le bruit de fond et les variations journalières. Afin de définir une contribution spécifique au passage du panache de poussières, il est alors nécessaire d'estimer et de soustraire la contribution locale de fond. Dans leur étude, Escudero et al. (2007) estiment cette contribution comme équivalente à la valeur du 30ème percentile des séries chronologiques des stations de mesures classées dans la catégorie des stations régionales de fond. Une fois estimée, cette contribution locale est soustraite aux mesures des stations environnantes pour obtenir la contribution spécifique de l'évènement de transport longue distance associé. Les régions dans lesquelles la charge totale en poussières durant l'évènement n'excède pas la contribution locale estimée sont alors considérées comme non influencées. Pour cet évènement, le nombre de stations régionales de fond sur le territoire français en 2004 est insuffisant pour obtenir une estimation correcte des bruits de fond régionaux (Table 3.3). L'alternative retenue est alors d'estimer la contribution locale au niveau de chacune des stations en s'inspirant des travaux d'Escudero et al. (2007) et en lui attribuant la valeur du 30ème percentile des séries chronologiques de ces stations de mesures quelque soit leur classification établie en fonction de leur environnement proche et de leur influence principale (urbaine, périurbaine, industrielle, trafic, rurale…). Toutefois, les mesures issues des stations « trafic » ne sont pas utilisées du fait des contributions anthropogéniques importantes pouvant potentiellement altérer l'estimation de la contribution du panache de poussières sahariennes. De même, les stations de mesure de $PM_{2.5}$ étant en nombre insuffisant à cette date pour permettre une couverture représentative du territoire français, ces données seront utilisées uniquement pour caractériser le passage du panache et non pas pour cartographier l'évolution spatio-temporelle du panache de poussières sahariennes à l'échelle du territoire français. Ainsi, seules les mesures de PM_{10} sont utilisées pour cette cartographie. Au final, les données de 248 stations de PM_{10} réparties sur l'ensemble du territoire français ont été utilisées pour cartographier cet évènement ainsi que celles de 31 stations de mesure de $PM_{2.5}$ utilisées pour sa caractérisation. Leur localisation est présentée sur la figure 3.17 et la répartition de leur classement donnée dans la table 3.3.

Les stations de mesures de PM_{10} retenues étant en nombre suffisant et relativement bien distribuées sur l'ensemble du territoire français, il est alors possible d'interpoler les données recueillies et de cartographier leur série temporelle à l'échelle de la France durant cet évènement de transport de poussières sahariennes. Pour ne pas multiplier le nombre de cartes obtenues mais pour rester tout de même représentatif des évolutions temporelles de cet évènement, les données de chaque stations sont moyennées sur 12 heures (minuit-midi) du 19 au 26 février 2004, après que la contribution locale estimée ait été soustraite. Jusqu'au 20 février matin et à partir du 22 février soir, les différences de concentrations entre les différentes régions restent faibles, permettant d'utiliser la méthode de krigeage ordinaire. En revanche, entre le 20 février soir et le 22 février matin, la méthode de krigeage universel est préférée afin de rendre compte au mieux des gradients de concentrations entre le sud et le nord du territoire. L'application de ces différentes méthodes

est basée sur l'étude des variogrammes associés. L'interpolation des résultats est ensuite intégrée par le logiciel ArcGis et les cartes résultantes sont présentées dans la figure 3.18. Une description technique plus détaillée de cette interpolation est donnée dans Métivier et al. (2010).

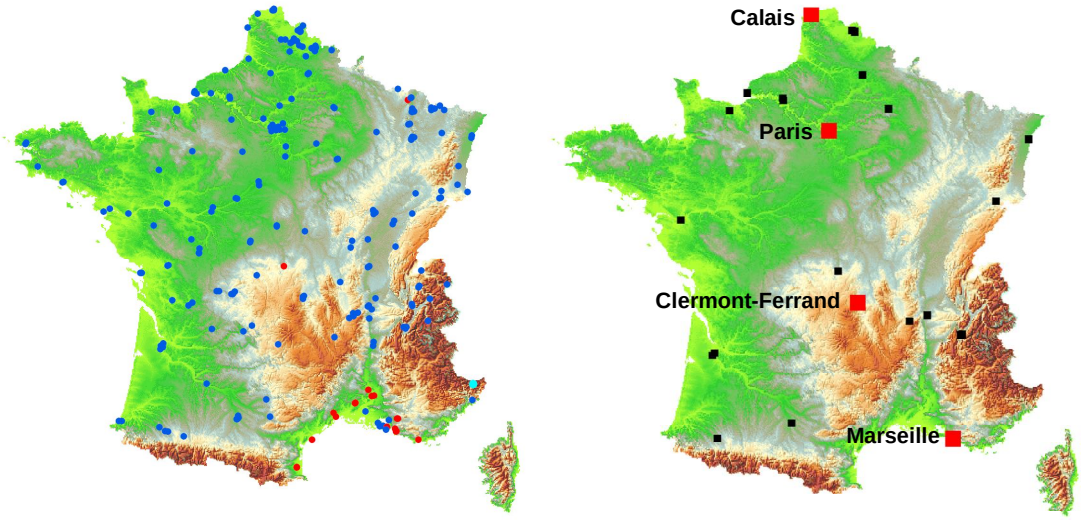


Figure 3.17 : Carte de gauche : localisation des stations de mesures de PM_{10} utilisées. Les points rouges représentent l'emplacement des stations avec un niveau de PM_{10} journalier supérieur à la limite européenne le 21 février 2004 et les points bleus l'emplacement des stations avec un niveau de PM_{10} journalier inférieur à la limite européenne. Carte de droite : localisation des stations de mesures de $PM_{2.5}$ (carrés noirs). Les carrés rouges situent les stations dont les séries temporelles sont exposées ci-après.

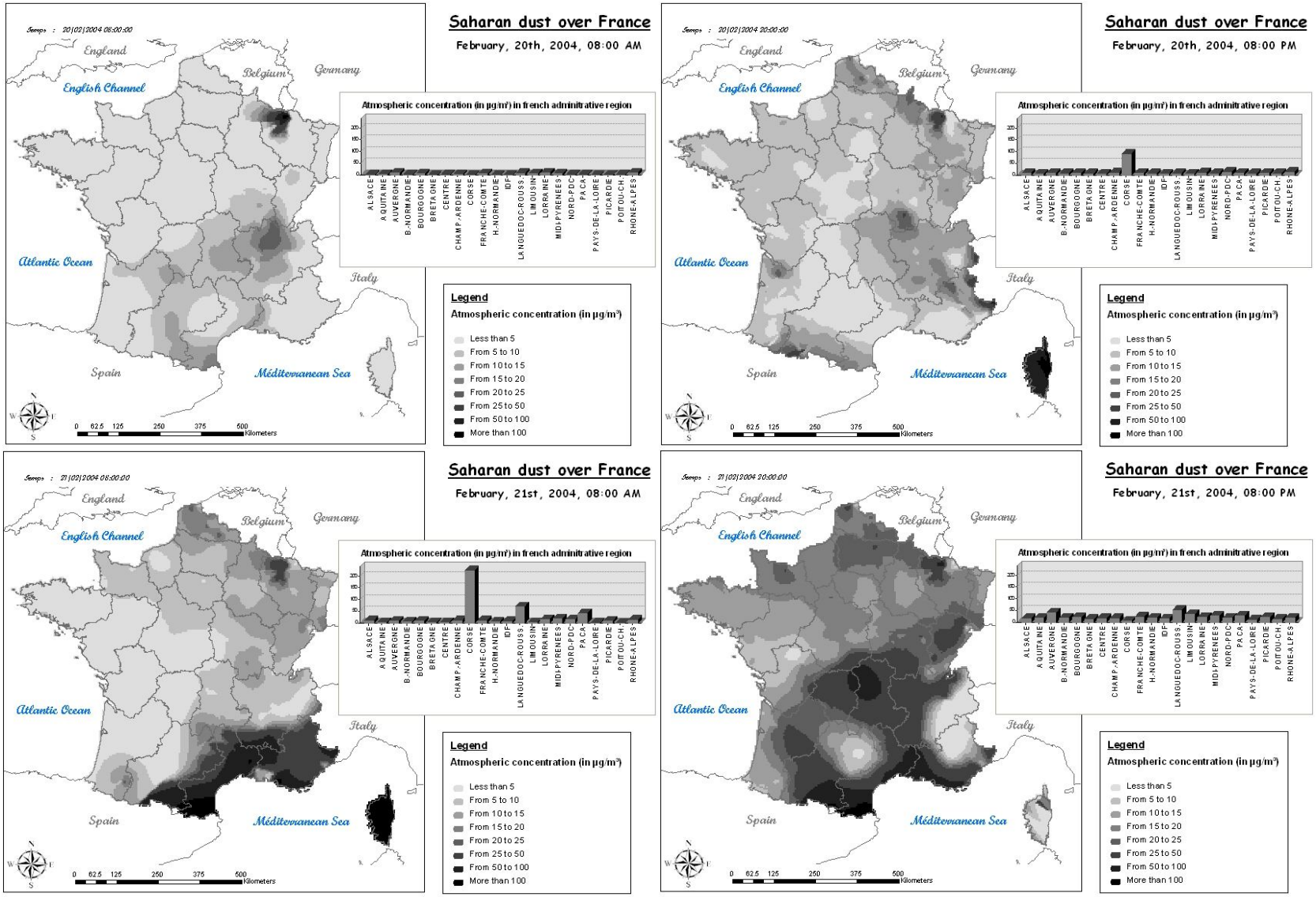
	PM_{10}	$PM_{2.5}$
Industrielle	30 (12%)	0 (0%)
Périurbaine	41 (17%)	2 (6.5%)
Rurale	5 (2%)	0 (0%)
Trafic	0 (0%)	6 (19.5%)
Urbaine	172 (69%)	23 (74%)
Total	248 (100%)	31 (100%)

Table 3.3 : Nombre de stations et pourcentage associé suivant les différentes classifications des stations de mesure de PM_{10} et $PM_{2.5}$ utilisées dans cette étude.

La figure 3.18 présente les résultats du 20 au 23 février 2004 puisque le panache de poussières sahariennes influence les mesures de l'empoussièrement uniquement dans cet intervalle de temps. Le panache survole en premier lieu la Corse dans la journée du 20 février 2004. Le panache atteint la côte méditerranéenne française le 21 février au matin où une contribution semi-journalière du panache sur la mesure des PM_{10} égale à 163 $\mu g.m^{-3}$ est enregistrée à Perpignan, soit la valeur maximale enregistrée sur le continent. Cette station enregistre également la valeur maximale horaire à 8 UTC avec 310 $\mu g.m^{-3}$ de PM_{10} en donnée brute. Ainsi, la région la plus influencée par le passage du panache saharien est le pourtour méditerranéen avec 22 stations de

mesures de PM_{10} non-trafic enregistrant une valeur journalière supérieure à la limite européenne durant l'ensemble de l'évènement. La seconde région la plus marquée est la région centrale autour de Clermont-Ferrand avec une seule station supérieure aux 50 $\mu g.m^{-3}$ de PM_{10} journalier. Sur la figure 3.18, il apparait également que le panache de poussières sahariennes atteint le nord de la France avec toutefois une contribution beaucoup moins importante, de l'ordre de 10 $\mu g.m^{-3}$, et s'étend sur l'ouest près de la côte atlantique. Cet évènement de transport de poussières dure jusqu'au 23 février où l'ensemble du territoire français présente des contributions en PM_{10} du panache très faibles en raison de l'advection d'une masse d'air propre en provenance de la Mer du Nord. L'obtention de valeurs très proches de zéro après le passage du panache de poussières participe à la validation de la méthode appliquée pour estimer la contribution de cet évènement sur les mesures en PM_{10}. Dans son ensemble, la figure 3.18 permet d'obtenir une visualisation directe de l'évolution spatio-temporelle du panache de poussières sahariennes dans les plus basses couches de l'atmosphère à l'échelle du territoire français. Ainsi, le passage de ce panache n'entraine une modification significative de l'empoussièrement que sur une durée de 2 jours.

Sur la figure 3.18, il apparait une région frontalière du Luxembourg où la contribution du panache de poussières sahariennes persiste du 20 au 23 février 2004 avec des valeurs importantes principalement au début de cette période. En regardant la base de données dans son détail, il apparait alors que cette singularité est due aux mesures élevées d'une seule station dans cette région, sans que les stations alentours ne présentent des mesures et des variations similaires. Ces différentes observations permettent de conclure à une contribution principalement locale des sources d'émissions et d'exclure une contribution du passage du panache de poussières sahariennes.


Saharan dust over France
February, 20th, 2004, 08:00 AM
Saharan dust over France
February, 20th, 2004, 08:00 PM
Saharan dust over France
February, 21st, 2004, 08:00 AM
Saharan dust over France
February, 21st, 2004, 08:00 PM
Temps : 20/02/2004 08:00:00
Temps : 20/02/2004 20:00:00
Temps : 21/02/2004 08:00:00
Temps : 21/02/2004 20:00:00
England
Belgium
Germany
English Channel
Atlantic Ocean
Italy
Spain
Mediterranean Sea
Atmospheric concentration (in µg/m³) in french administrative region
ALSACE
AQUITAINE
AUVERGNE
B.-NORMANDIE
BOURGOGNE
BRETAGNE
CENTRE
CHAMP.-ARDENNE
CORSE
FRANCHE-COMTE
H.-NORMANDIE
IDF
LANGUEDOC-ROUSS.
LIMOUSIN
LORRAINE
MIDI-PYRENEES
NORD-PDC
PACA
PAYS-DE-LA-LOIRE
PICARDIE
POITOU-CH.
RHONE-ALPES
Legend
Atmospheric concentration (in µg/m³)
Less than 5
From 5 to 10
From 10 to 15
From 15 to 20
From 20 to 25
From 25 to 50
From 50 to 100
More than 100
0 62.5 125 250 375 500 Kilometers

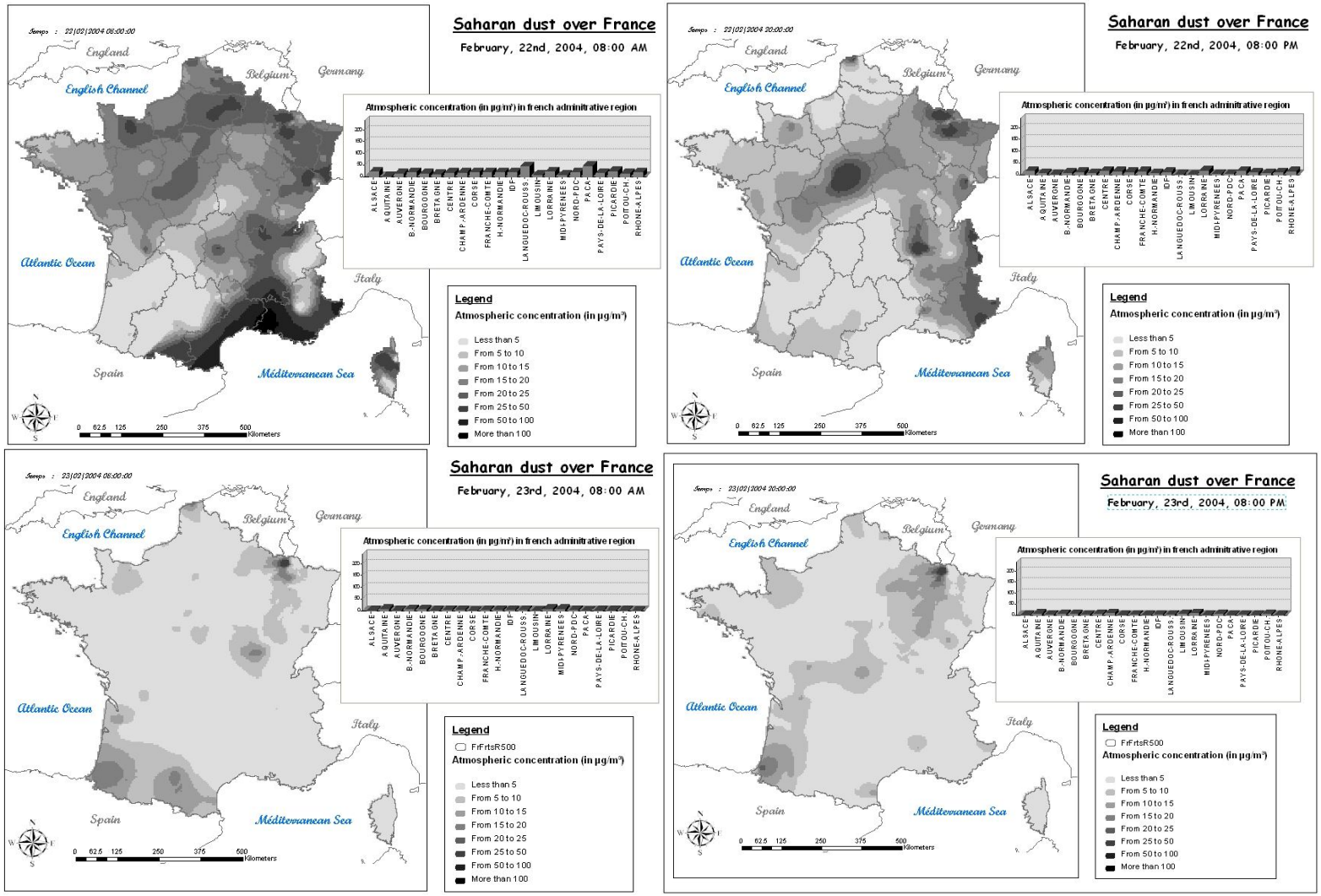


Figure 3.18 : Interpolation de la contribution du passage du panache de poussières sahariennes sur les mesures de PM_{10} à l'échelle de la France du 20 au 23 février 2004 en moyenne semi-journalière.

Pour synthétiser cet évènement, il est également possible d'estimer en fonction de chacune des régions, la contribution journalière moyenne de cet épisode sur les mesures de PM_{10}. Cette contribution journalière est alors supérieure à 80 µg.m^{-3} en Languedoc-Roussillon et de l'ordre de 45 µg.m^{-3} dans la région PACA pour la journée du 21 février 2004 (figure 3.19). Cette estimation moyenne permet également de définir pour les stations présentant une valeur moyenne de PM_{10} journalière supérieure à la limite européenne, si l'origine de ce dépassement est imputable au transport de poussières sahariennes ou si ce dépassement trouve son origine dans une influence locale.

Les mesures de $PM_{2.5}$ peuvent renseigner sur la fraction transportée. Au moment où le maximum de la valeur horaire en PM_{10} est enregistré à la station de Marseille durant l'épisode, soit 219 µg.m^{-3} le 21 février 2004 à 03 UTC, les $PM_{2.5}$ ne représentent que 19 µg.m^{-3}, soit un rapport $PM_{2.5}/PM_{10}$ inférieur à 0.1 (figure 3.20). En comparaison avec les moyennes annuelles enregistrées au niveau de cette station, ces valeurs correspondent à une augmentation de 10 % pour les $PM_{2.5}$ et de 2025 % pour la fraction $PM_{10-2.5}$ (différence de concentrations entre PM_{10} et $PM_{2.5}$). Au niveau de son entrée sur le territoire français, cet évènement se caractérise alors par une fraction très importante de particules de taille comprise entre 2.5 et 10 µm, représentant plus de 90 % de la masse de particules en suspension. Lors de son passage sur la partie centrale du territoire français (station de Clermont-Ferrand sur la figure 3.20), le panache de poussières est toujours composé d'une fraction importante de particules comprises entre 2.5 et 10 µm ($PM_{10-2.5}$ = 62 µg.m^{-3}) puisqu'elles représentent près de 70 % de la masse de particules en suspension. Au niveau de la région parisienne, un maximum du niveau de PM_{10} est enregistré le 22 février 2004 à 11 UTC avec une fraction grossière beaucoup plus faible ($PM_{10-2.5}$ = 6 µg.m^{-3}). Pour les deux précédentes régions, le passage du panache de poussières sahariennes se caractérisait par une diminution brutale du rapport $PM_{2.5}/PM_{10}$. Au niveau des stations de la région parisienne, une diminution significative de ce rapport est enregistrée vers 22 UTC de cette même journée. Toutefois, cette diminution survient en phase avec une diminution significative des niveaux de PM_{10} et de $PM_{2.5}$ due au lessivage de l'atmosphère par un épisode pluvieux. Cette observation montre ainsi que la seule considération de ce rapport ne peut être suffisante pour identifier un excès de particules de taille importante et qu'il est également nécessaire de considérer la masse de particules dans la fraction grossière. Ainsi, après son passage sur la partie centrale du territoire français, le panache de poussières ne semble plus caractérisé par une fraction importante de grosses particules. Néanmoins, une augmentation des niveaux de PM_{10} sur l'ensemble de la partie nord est observée à partir de l'après-midi du 21 et de manière plus significative pour la journée du 22 février 2004. A la station de Calais, l'augmentation du niveau de PM_{10} apparait plus progressive sur une durée de temps plus longue comme si le panache de poussières était plus dispersé. La même remarque peut être faite quant à la diminution du rapport $PM_{2.5}/PM_{10}$ qui atteint une valeur de 0.4 au moment du niveau maximal de PM_{10}, laissant penser que le panache est toujours composé de grosses particules. Il semblerait alors que le panache de poussières ait impacté de façon moins significative la région parisienne que les régions du Nord de la France, peut-être en raison de mouvement verticaux de celui-ci.

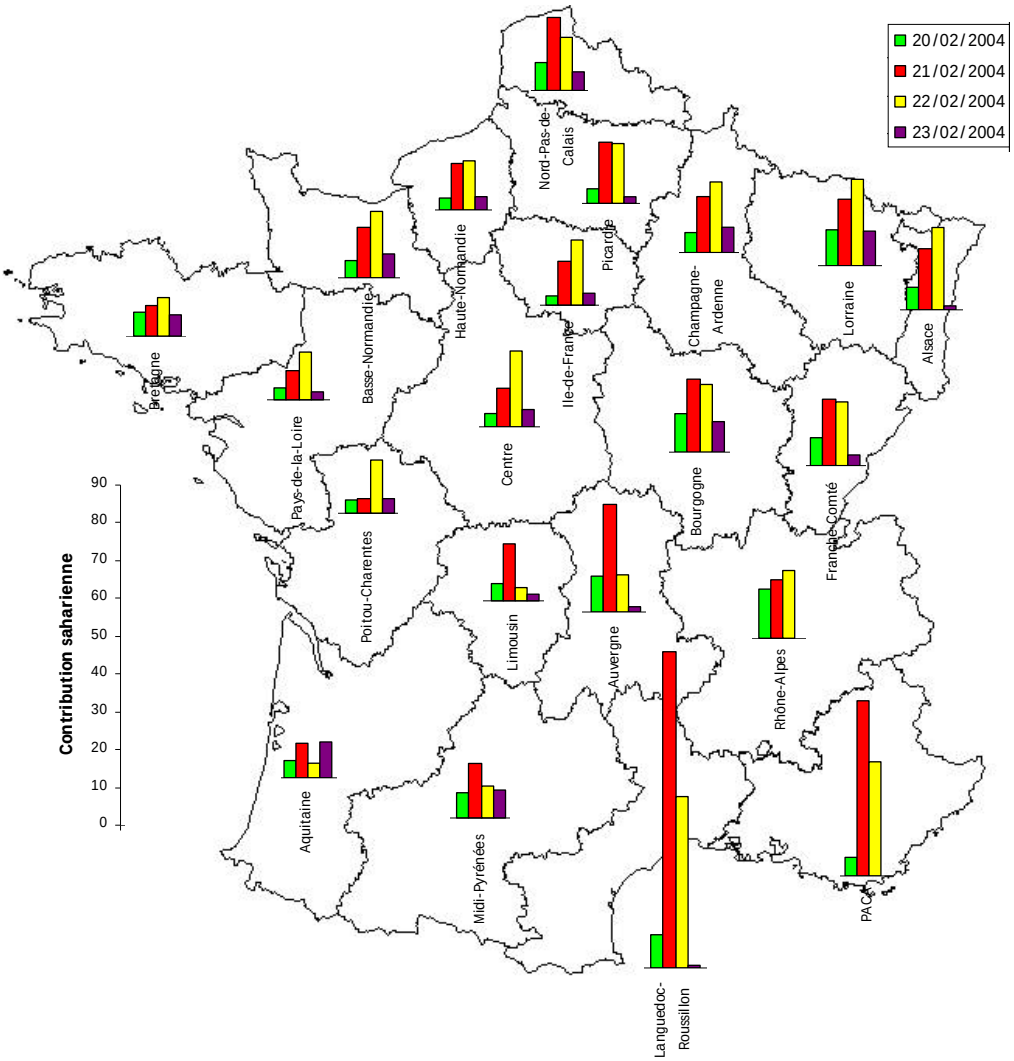


Figure 3.19 : Contribution moyenne journalière du panache de poussières sahariennes sur la mesure des PM_{10} moyennée sur l'ensemble des stations de chacune des régions françaises du 20 au 23 février 2004.

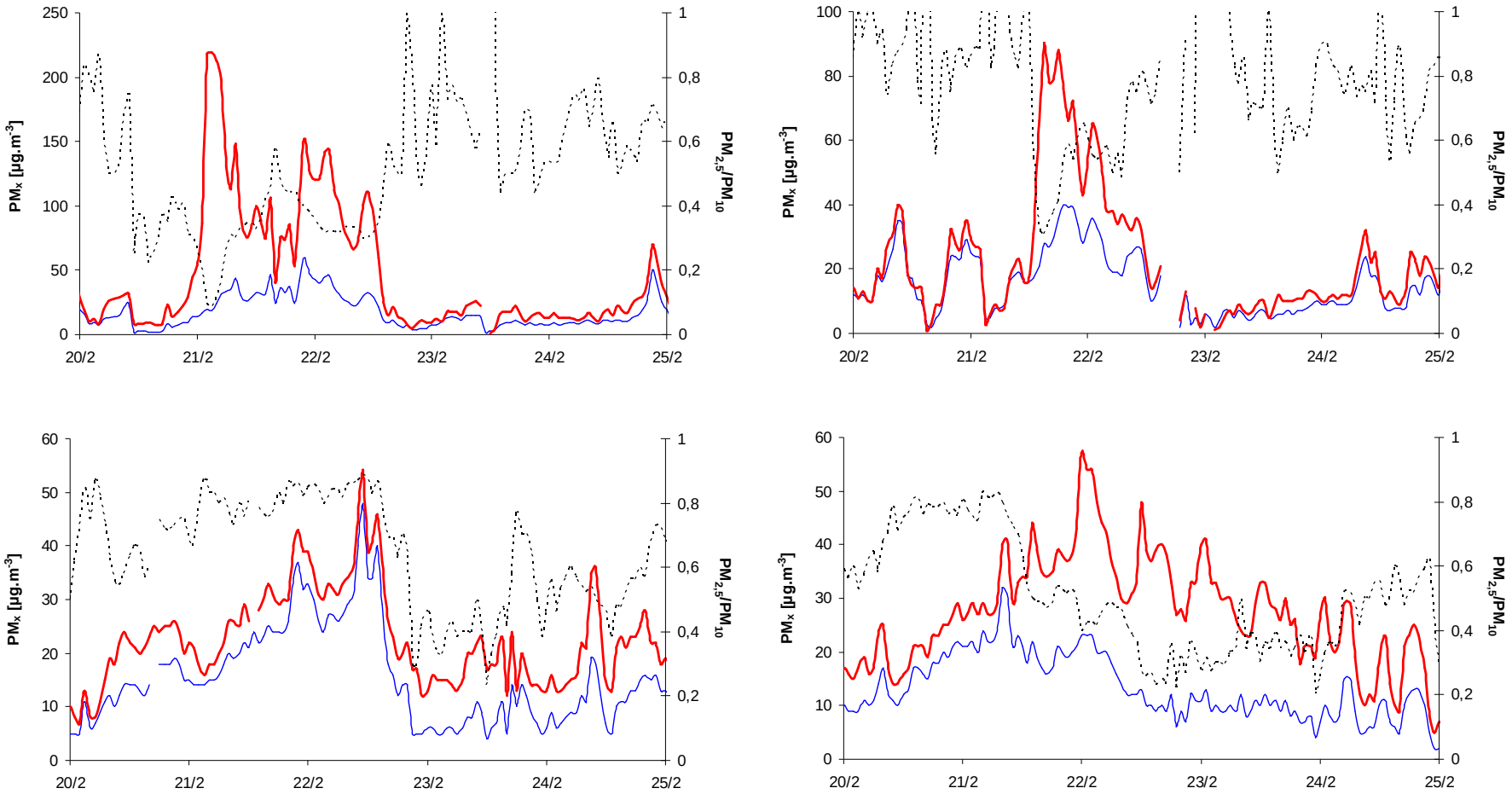


Figure 3.20 : Mesures horaires des PM_{10} (tracé rouge), $PM_{2.5}$ (tracé bleu) et calcul du rapport $PM_{2.5}/PM_{10}$ (tracé pointillé noir) du 20 au 24 février 2004 pour les stations de Marseille, Clermont-Ferrand, Paris et Calais. L'échelle des PM_x varie suivant les graphiques.

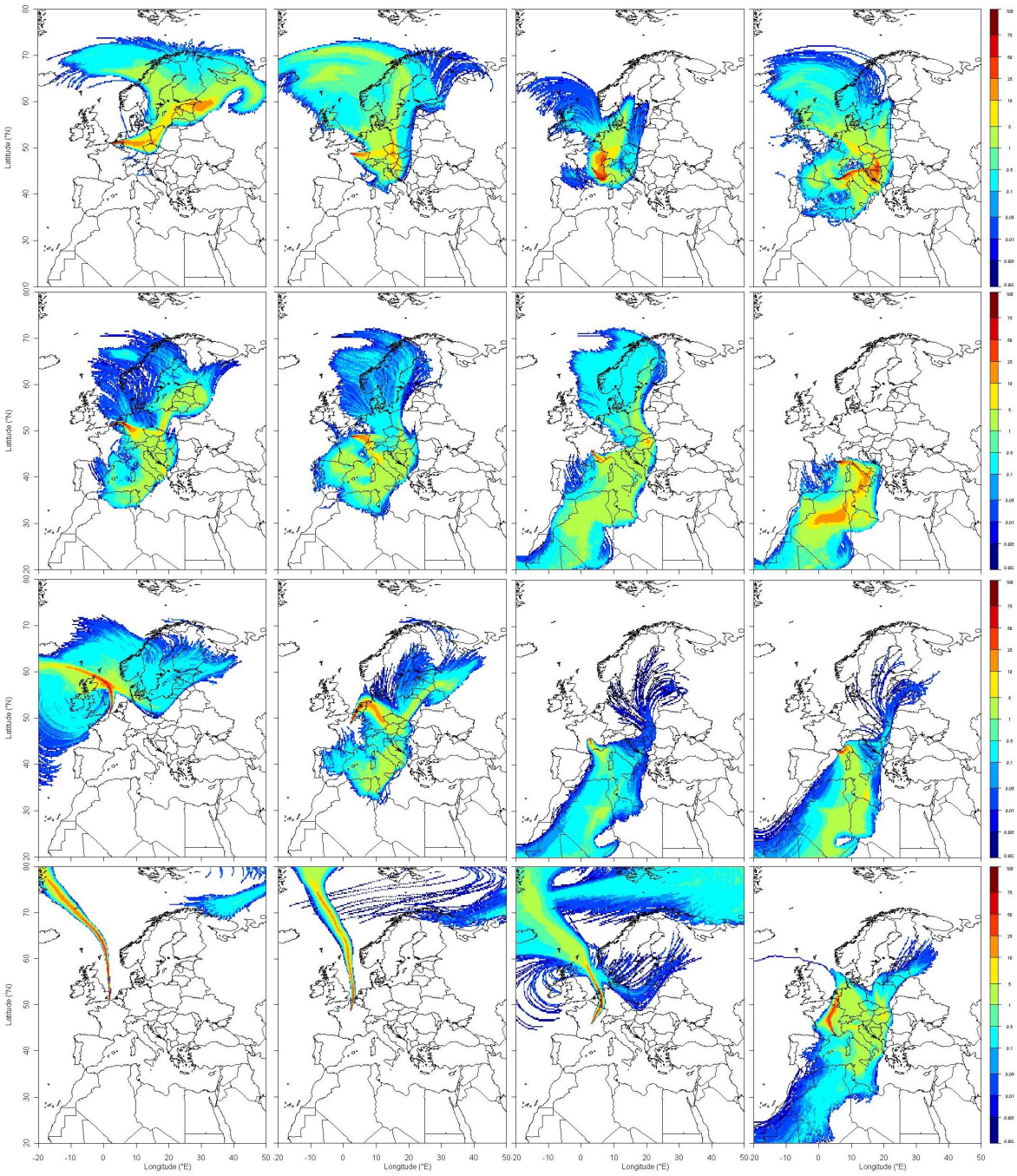


Figure 3.21 : Calculs de rétro-panaches de 120 h du 20 février (1ère ligne), 21 février (2nde ligne), 22 février (3ème ligne) et 23 février (dernière ligne) à 12 UTC pour les stations de surveillance de la qualité de l'air de Calais (1ère colonne), Paris (2nde colonne), Clermont-Ferrand (3ème colonne) et Marseille (dernière colonne). L'échelle de couleurs correspond au pourcentage du total des particules arrivant à la station considérée et passant sur un pixel.

De ces différentes observations, il apparait que même en disposant d'un grand nombre de mesures avec des résolutions spatio-temporelles adéquates, l'estimation de la contribution du transport de poussières sahariennes sur les mesures réalisées reste un exercice complexe nécessitant plusieurs approximations.

3.1.4.2 – Caractérisation de l'origine de l'évènement

Pour confirmer l'implication du transport de poussières sahariennes dans les augmentations significatives des niveaux de PM sur l'ensemble du territoire français, le parcours des masses d'air arrivant aux différentes stations de surveillance de la qualité de l'air a été retracé à l'aide de calculs de rétro-panaches. Les résultats de ces simulations sont présentés dans la figure 3.21.

Ainsi, l'ensemble du territoire français se trouve sous l'influence de masses d'air sahariennes à partir du 21 février 2004. La partie Sud du territoire est sous l'influence exclusive de cette masse d'air saharienne tandis que les autres stations sont principalement influencées par cette masse d'air conjointement avec une masse d'air en provenance du nord-est. Ces simulations permettent de confirmer la contribution du transport de poussières sahariennes sur la partie nord du territoire français établie à partir des données de PM_{10} interpolées, même si cette contribution diminue au fur et à mesure de l'avancée du panache.

Ces simulations peuvent également être utilisées pour estimer les régions de soulèvement de ces particules sahariennes en visualisant les zones survolées par la masse d'air. Sa vitesse de déplacement sur ces zones est également un paramètre important pour estimer dans quelle proportion ces régions ont pu influencer sa composition. Une vitesse de déplacement rapide signifie une vitesse de vent associée importante qui sera potentiellement plus favorable à l'érosion éolienne et au maintient en suspension sur de longues distances des particules issues de régions arides. A l'inverse, une masse d'air sera d'autant plus influencée par les émissions anthropogéniques que sa vitesse de déplacement au dessus des territoires associés à ces émissions est faible.

Afin d'estimer la vitesse de déplacement de la masse d'air, le temps moyen restant aux particules à l'intérieur d'un même pixel pour atteindre la station considérée est calculé lors de la simulation de rétro-panache et ce pour chacun des pixels du domaine. Ce calcul permet ensuite de tracer des lignes iso-temporelles délimitant les zones à l'intérieur desquelles le temps restant aux particules avant leur arrivée à la station est identique. Plus ces lignes se trouvent éloignées et plus la masse d'air se déplace rapidement. A l'inverse, plus ces lignes se trouvent rapprochées et plus la masse d'air se déplace lentement, offrant potentiellement la possibilité aux émissions anthropiques d'influencer sa composition. Pour cet évènement, ce calcul a été réalisé pour les rétro-panaches de Marseille et de Clermont-Ferrand sur des simulations de 120 heures avec une résolution temporelle de 3 heures, une résolution spatiale horizontale de 0.1° x 0.1° et une concentration verticale moyennée sur la couche 0-2000 m. Les résultats sont présentés sur la figure 3.22.

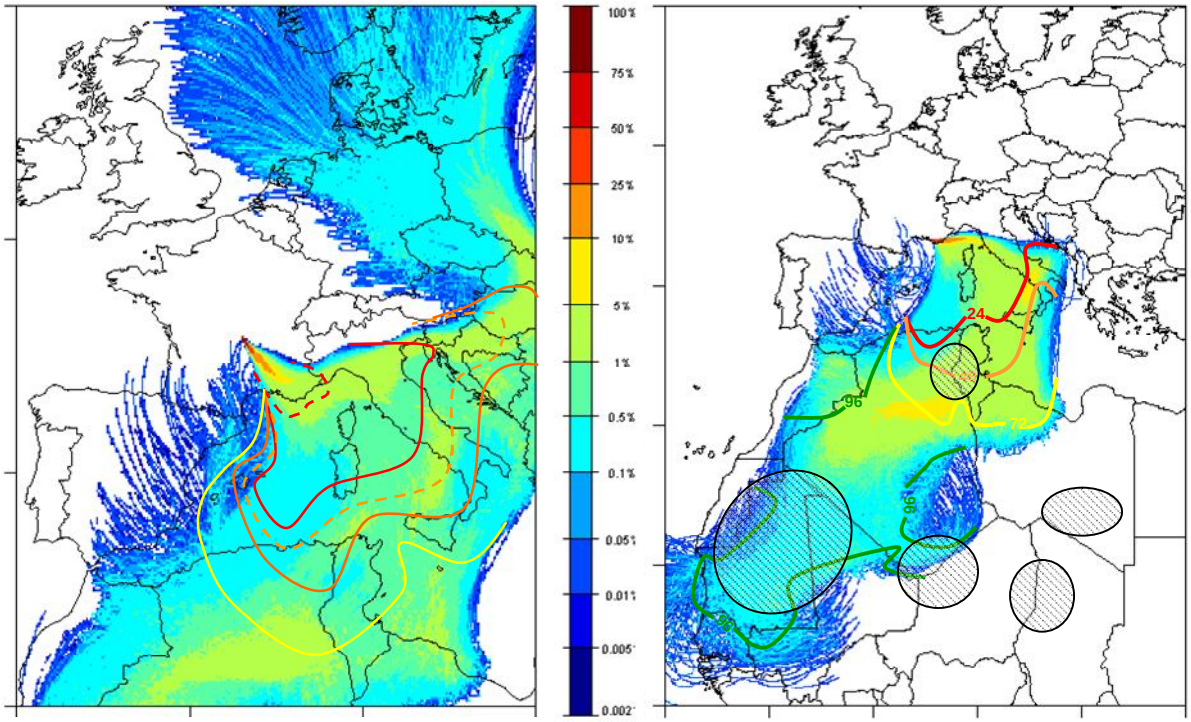


Figure 3.22 : Calculs de rétro-panache arrivant aux stations de Clermont-Ferrand (gauche) et Marseille (droite) le 21 février 2004 à 12 UTC. L'échelle de couleurs du rétro-panache correspond au pourcentage du total des particules arrivant à la station considérée et passant sur un pixel. Les lignes de couleurs correspondent aux lignes iso-temporelles avec : les pointillés rouges pour l'iso-temporelle de 12h, la ligne rouge pour 24h, les pointillés oranges pour 36h, la ligne orange pour 48h, la ligne jaune pour 72h et la verte pour 96h. Les zones hachurées localisent les principales régions de soulèvement des poussières minérales sahariennes (cf. figure 3.2).

Le calcul du rétro-panache et des iso-temporelles de la station de Clermont-Ferrand est utilisé pour confirmer l'estimation de la vitesse de transport de la masse d'air. En effet, cette vitesse peut être estimée et vérifiée à partir de la figure 3.20 entre les stations de Marseille et de Clermont-Ferrand en calculant l'intervalle de temps entre les mesures du maximum horaire en PM_{10} de ces deux stations qui signe l'arrivée du panache de poussières. Cet intervalle de temps est alors égal à 12 heures (3 :00 et 15 :00 respectivement pour Marseille et Clermont-Ferrand). En accord avec le tracé des iso-temporelles de la figure 3.22, il apparait que 12 heures avant son arrivée sur la station de Clermont-Ferrand, la masse d'air transportant les poussières sahariennes était située sur la côte méditerranéenne (pointillés rouges). Cette confrontation des résultats de mesure et de simulation permet de valider cette dernière. A partir de la simulation du rétro-panache arrivant à Marseille, il apparait que la masse d'air entrainant une augmentation des niveaux de PM_{10} provient de l'Afrique de l'Ouest. Dans le détail, cette masse d'air survole plusieurs régions identifiées dans la partie 3.1.1.2. Quatre jours avant son arrivée à la station de Marseille, la masse d'air survole la région entre la frontière du Mali et de la Mauritanie ainsi que celle entre le Maroc et la Mauritanie regroupées en une seule région sur la figure 3.22. La distance des iso-temporelle de valeur 96h et 72h montre que la masse d'air se déplace alors rapidement en direction du Nord de l'Afrique, signe

que les vents sous-jacents sont intenses entrainant un probable soulèvement de poussières. La masse d'air survole ensuite la région localisée entre la Tunisie et le Nord-est de l'Algérie 48 heures avant son arrivée sur Marseille. Durant le survol de cette région, la masse d'air se déplace plus lentement comme le montre le rapprochement des iso-temporelles égales à 72h, 48h et 24h et sont donc moins propices à un soulèvement de poussières. Ainsi, le panache saharien atteignant le territoire français le 21 février 2004 semble majoritairement composé de poussières issues de la région située entre le Maroc, le Mali et la Mauritanie et de façon secondaire, de poussières issues de la région entre l'Algérie et la Tunisie.

3.1.4.3 – Caractérisation radioécologique de l'évènement

Les niveaux d'activité en ^{137}Cs mesurés durant la décade couvrant l'épisode de transport de poussières sahariennes sont donnés dans la table 3.3, ainsi que la moyenne pour l'année 2004 pour chacune des stations OPERA opérationnelles à cette date. L'ensemble des stations présente un niveau d'activité en ^{137}Cs supérieur à la moyenne annuelle. Par extrapolation, cette observation confirme l'influence des épisodes de transport de poussières sahariennes sur les augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols et justifie l'intérêt porté à ces évènements.

	^{137}Cs [µBq.m^{-3}]	^{40}K [µBq.m^{-3}]	Rapport [$^{137}Cs/^{40}K$]	PM_{10} [µg.m^{-3}]
Alençon	0.35 (0.15)	8.4 (6.72)	0.042 (0.022)	16.2 (15.6)
Bordeaux	0.44 (0.38)	9.2 (7.59)	0.048 (0.050)	18.3 (23.4)
Charleville	0.50 (0.31)	7.9 (6.28)	0.063 (0.042)	-
Dijon	0.76 (0.31)	8.3 (7.28)	0.092 (0.041)	18.8 (12.9)
Orsay	0.54 (0.25)	8.3 (6.57)	0.065 (0.035)	27.7 (26.0)
La Seyne-sur-Mer	1.30 (0.52)	27 (13.96)	0.048 (0.036)	31.1 (34.4)

Table 3.3 : Moyennes décadaires des niveaux d'activité en ^{137}Cs et ^{40}K exprimés en µBq.m^{-3} et rapport des niveaux d'activité de ces deux radionucléides pour les différentes stations du réseau OPERA et niveaux de PM_{10} moyennés sur la période de prélèvement des stations OPERA mesurés à proximité. Les valeurs entre parenthèses indiquent la moyenne annuelle correspondante.

Les niveaux d'activité en ^{40}K pour cette décade sont également reportés dans la table 3.3 et permettent de monter que le transport de poussières sahariennes entraine également une augmentation de sa concentration dans les aérosols. Cette observation est toutefois réellement significative uniquement pour la station de la Seyne-sur-Mer qui présente un niveau d'activité en ^{40}K deux fois plus important que la moyenne annuelle. Cette observation résulte principalement de la présence de particules de diamètre supérieur à 10 µm puisqu'à l'échelle du prélèvement, le niveau de PM_{10} ne se trouve pas modifié vis-à-vis de la moyenne annuelle. De plus, cet épisode de transport de poussières se caractérise au niveau du pourtour méditerranéen, par une fraction importante de

grosses particules (Masson et al., 2010). Comme établie dans la partie 2.4.6.1, la concentration en ^{40}K est corrélée à la masse totale de particules en suspension et rend ainsi principalement compte de la présence de grosses particules participant de façon plus significative à la masse totale que les particules les plus fines.

A partir de l'interpolation effectuée sur les mesures de PM_{10}, il est alors possible de hiérarchiser les stations en fonction de la contribution de cet épisode sur les niveaux d'empoussièrement (figure 3.23). Cette hiérarchisation se base sur les moyennes estimées pour l'ensemble de chaque région intégrant une station du réseau OPERA (cf. figure 3.19). Ainsi, la station de la Seyne-sur-Mer est la plus influencée par cet évènement, suivie de la station de Dijon. Les stations de Charleville et d'Alençon présentent une contribution du panache similaire et relativement proche de celle estimée pour la région d'Orsay. La station la moins influencée se trouve être la station de Bordeaux. La considération de moyenne régionale permet de diminuer de potentielles contributions locales et d'obtenir une contribution du panache de poussières plus représentative.

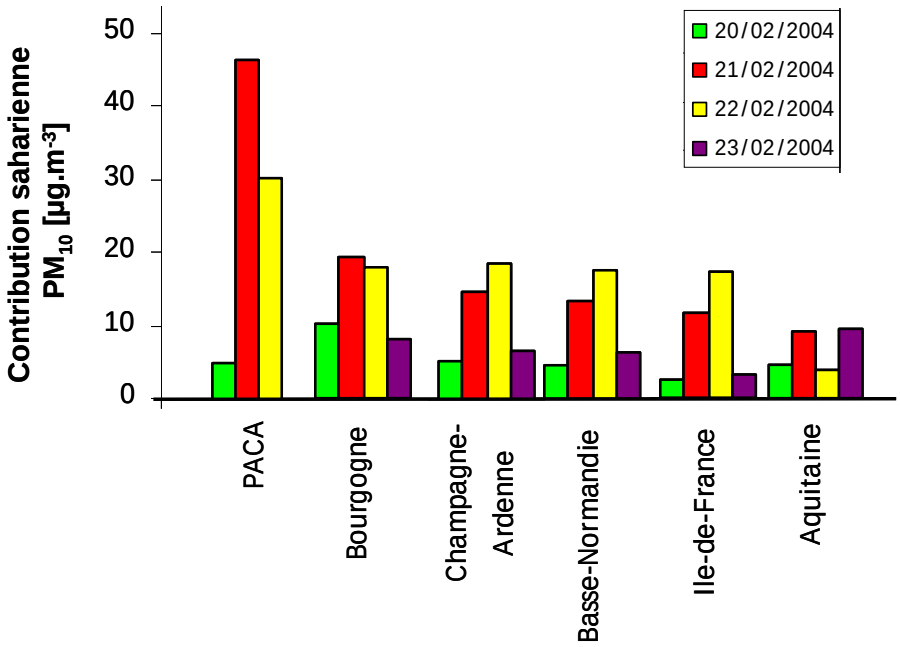


Figure 3.23 : Contribution du panache de poussières sahariennes sur les niveaux de PM_{10} pour les différentes régions intégrant une station du réseau OPERA (à partir de la figure 3.19).

Ce classement établi à partir de l'interpolation de mesures de PM_{10} durant le passage du panache de poussières sahariennes est très proche de celui qui aurait pu être obtenu à partir des mesures des niveaux d'activité en ^{137}Cs durant la décade correspondante. Afin de soustraire un bruit de fond « local » et les différentes influences des stations OPERA, la figure 3.24 présente les mesures d'activité obtenues durant la décade correspondant à cet évènement, pondérées par les moyennes annuelles respectives. En premier lieu, il ressort que le classement établi à partir de l'interpolation des mesures de PM_{10} donné dans la figure 3.23 correspond à celui de la contribution du panache de poussières au regard de son influence sur les niveaux d'activité en ^{137}Cs, à

l'exception de la station de Charleville où la contribution du panache sur les PM_{10} semble avoir été surestimée. A partir de cette figure, il ressort également que la contribution du panache de poussières sahariennes sur les niveaux d'activité en ^{137}Cs semble très proche pour les stations de la Seyne-sur-Mer, Dijon, Alençon et Orsay, alors qu'elle apparait de façon significative sur le niveau d'activité en ^{40}K uniquement pour la station de la Seyne-sur-Mer. Cette différence sur le ^{40}K s'explique par la présence de grosses particules au niveau de la station de la Seyne-sur-Mer qui disparaissent par la suite lors de l'avancée du panache à l'intérieur du territoire. Le résultat obtenu pour le ^{137}Cs indique que ce dernier serait principalement attaché aux plus fines particules puisque la disparition des plus grosses, représentées par le niveau d'activité en ^{40}K, ne diminue pas son niveau d'activité de façon proportionnelle. Ainsi, entre la station de la Seyne-sur-Mer et celle de Dijon, la diminution de l'activité volumique du ^{40}K est supérieure d'un facteur 3 tandis qu'elle est inférieure d'un facteur 2 pour l'activité volumique du ^{137}Cs. Le rapport résultant des niveaux d'activité entre le ^{137}Cs et le ^{40}K, corrélé à l'activité massique en ^{137}Cs (cf. partie 2.4.6.1) présente alors une augmentation significative entre la station de la Seyne-sur-Mer et les autres stations principalement influencées par cet épisode, directement liée au dépôt des particules de taille importante.

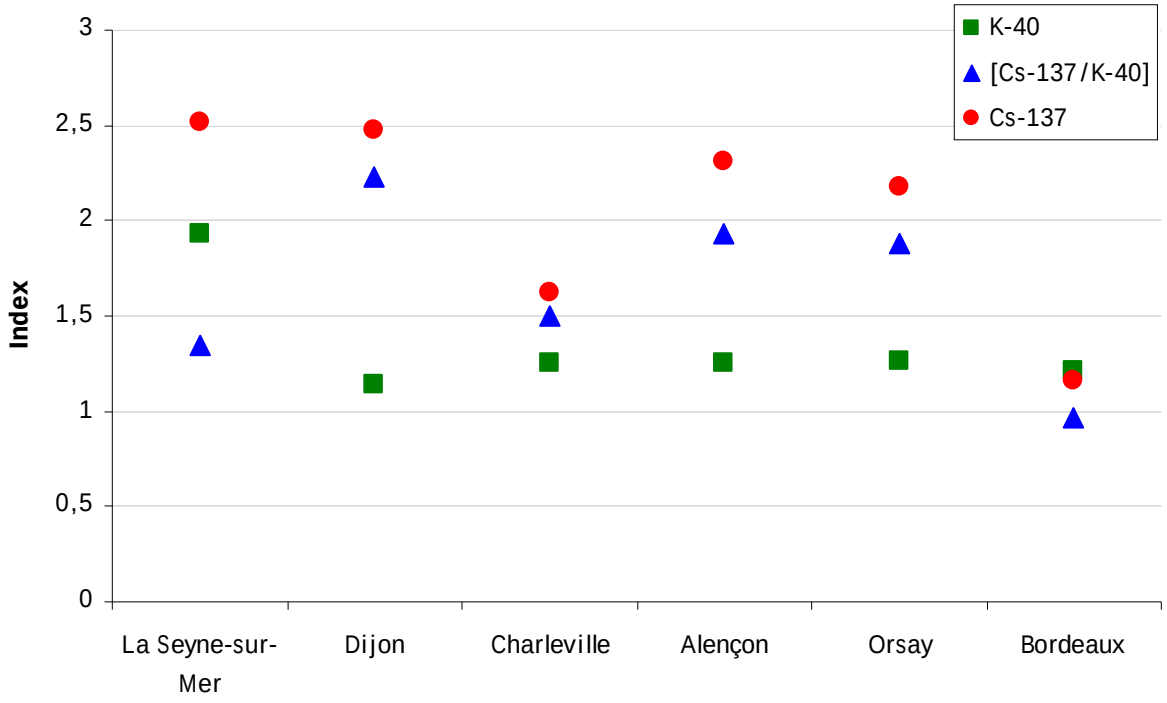


Figure 3.24 : Niveaux d'activité en ^{137}Cs et ^{40}K sur la décade de l'évènement et rapports des niveaux d'activité de ces deux radionucléides pondérés par leur moyenne annuelle pour chaque stations du réseau OPERA présentées dans l'ordre du classement établi dans la figure 3.23.

Les mesures des niveaux d'activité présentées jusqu'ici sont moyennées sur l'ensemble de la période de prélèvement, soit une durée comprise entre 9 et 10 jours suivant les stations (période du 20 février au 29 février ou 1er mars 2004) et ne rendent pas exactement compte des niveaux d'activité durant l'épisode. A partir des stations du réseau AS (cf. partie 1.1.2) effectuant des

prélèvements journaliers, le niveau d'activité en ^{137}Cs a pu être déterminé quotidiennement durant l'épisode de transport de poussières sahariennes au niveau des stations de Cadarache, Montfaucon et Nice (Masson et al., 2010). La figure 3.25 présente ainsi les mesures significatives quotidiennes de ces stations en ^{137}Cs. Pour permettre une comparaison pertinente en raison des différences géographiques constatées, seule la mesure décadaire de ^{137}Cs de la station de la Seyne-sur-Mer y est ajoutée.

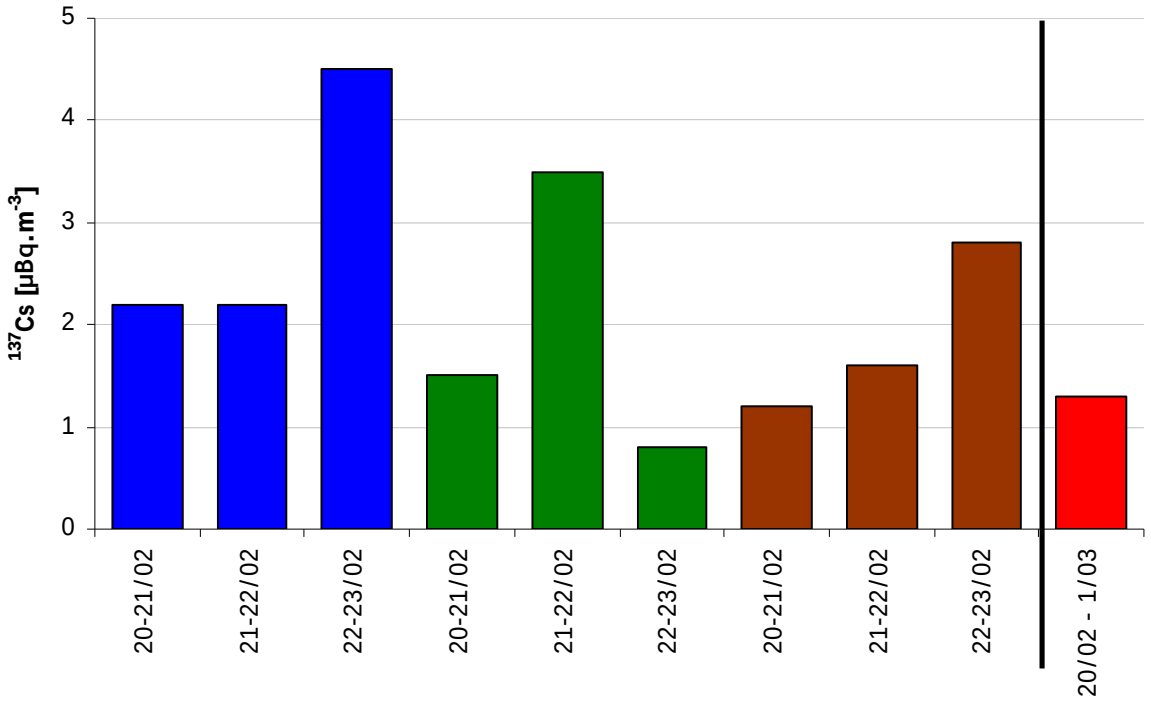


Figure 3.25 : Niveaux d'activité journaliers en ^{137}Cs aux stations de Cadarache (bleu), Montfaucon (vert) et Nice (marron) et décadaire à la station de la Seyne-sur-Mer (rouge) durant l'épisode de transport de poussières sahariennes du 20 au 23 février 2004.

En comparant les mesures journalières avec la mesure décadaire effectuée à la station de La Seyne-sur-Mer, il apparait que les niveaux d'activité en ^{137}Cs des filtres journaliers durant l'épisode (du 20 février au 22 février) sont plus élevés que le niveau d'activité du filtre décadaire de la station de La Seyne-sur-Mer. Cette observation apporte une confirmation supplémentaire quant à la contribution du transport de poussières sahariennes sur les augmentations significatives du niveau d'activité en ^{137}Cs, puisque la prise en compte des périodes extérieures à l'évènement, représentée par la mesure décadaire, entraine une diminution du niveau d'activité résultant.

3.1.4.4 – Conclusion de la caractérisation de l'évènement

L'étude approfondie de cet épisode de transport de poussières sahariennes permet de mettre en évidence plusieurs caractéristiques pouvant être utilisées pour identifier d'autres évènements de même nature et pour estimer la contribution de l'ensemble de ces évènements sur la rémanence du ^{137}Cs dans le compartiment atmosphérique. Tout d'abord et au niveau de la station de la Seyne-sur-Mer où le panache de poussières a eu l'impact le plus significatif, cet évènement est caractérisé une masse de particules en suspension très importante, principalement due à la présence de grosses particules, accompagnée d'une augmentation significative de l'activité volumique en ^{137}Cs dans les aérosols. En revanche, le rapport [$^{137}Cs/^{40}K$] reste dans une gamme de valeur relativement proche de la moyenne et ne permet pas d'expliquer à lui seul l'augmentation significative de l'activité volumique. Cette augmentation de l'activité volumique en ^{137}Cs résulte alors principalement de l'augmentation de la quantité de particules en suspension dans l'atmosphère. Pour les autres stations du réseau OPERA, l'impact de cet épisode sur l'augmentation significative du niveau d'activité volumique du ^{137}Cs est également avéré. Néanmoins, la sédimentation des particules les plus grosses durant le transport des poussières entraine une forte diminution de la masse totale de particules en suspension représentée par l'activité volumique en ^{40}K, non proportionnelle à la diminution de l'activité volumique en ^{137}Cs. Il en résulte alors une augmentation significative de l'activité massique estimée, due à la sédimentation plus rapide des grosses particules.

3.1.5 – Généralité de l'influence des épisodes sahariens sur les niveaux d'activité

Les moyens de détection de ces épisodes de transport de poussières sahariennes, décrits dans la partie 3.1.3, ont été utilisés conjointement pour réaliser un recensement de ces évènements durant la période d'étude. La base de données obtenue permet de mettre en évidence les caractéristiques radioécologiques de ces épisodes. La table 3-4 synthétise, pour différents évènements majeurs représentatifs, les mesures obtenues. Les épisodes présentés illustrent la diversité de ces évènements, du point de vue de leur origine, de leur trajectoire, de leur altitude de transport, de leur étendue spatio-temporelle, de leur intensité ou encore de leur impact sur les niveaux d'activité de radionucléides naturels ou artificiels. De plus, la durée des prélèvements des stations OPERA excède le plus souvent la durée des épisodes, mélangeant leur influence avec d'autres évènements de remise en suspension ou diluant simplement leur impact. Il est ainsi difficile de considérer une caractéristique quantitative unique, applicable à l'ensemble des évènements étudiés. Afin de déterminer l'influence moyenne de ces épisodes sur la rémanence du ^{137}Cs dans le compartiment atmosphérique, il est possible de faire ressortir de notre synthèse de l'ensemble des épisodes des tendances et des ordres de grandeur.

Episode	Mesure	Alençon	Bordeaux	Charleville	Clermont	Dijon	Orsay	P.d.D.	Seyne	Commentaires
mars-03	Cs-137 vol.	0.56	0.21	0.66	-	0.81	0.70	-	0.63	Entrée par ouest et sud Survol France
	K-40	18	7.8	18	-	18	20	-	40	
	Rapport	31	27	37	-	45	35	-	16	
mai-03	Cs-137 vol.	0.10	< L.D	0.16	-	0.28	0.14	-	0.96	Survol sud et est
	K-40	7.2	3.8	7.6	-	13	9.0	-	29	
	Rapport	14	< L.D	21	-	22	16	-	33	
nov-05	Cs-137 vol.	0.10	0.24	0.18	0.15	0.15	< L.D	1.73	0.18	Panache en altitude exclusivement
	K-40	5.1	7.5	5.1	6.2	8.8	5.0	42	5.7	
	Rapport	20	32	35	24	17	< L.D	41	32	
juin-06	Cs-137 vol.	0.19	0.50	0.29	0.55	0.48	0.23	2.33	1.10	Survol France Plaine + altitude
	K-40	11	13	12	19	15	10	55	36	
	Rapport	17	38	24	29	32	23	42	31	
mars-07	Cs-137 vol.	< L.D	0.38	0.17	0.38	0.30	0.14	0.77	0.46	Filtre sur l'épisode pour Clermont et PdD
	K-40	7.9	11	6.6	< L.D	6.5	7.7	17	17	
	Rapport	< L.D	35	26	< L.D	46	18	45	27	
	Cs-137 mass.	< L.D	8.5	5.9	4.2	7.2	3.7	-	6.4	
	TSP	29	44	29	91	41	38	-	72	
mai-07	Cs-137 vol.	0.07	0.31	< L.D	0.62	0.41	0.20	2.17	0.73	Survol sud et est – Plaine + altitude
	K-40	3.9	6.5	5.4	18	13	4.2	66	25	
	Rapport	18	48	< L.D	34	32	48	33	29	
	Cs-137 mass.	3.1	11.7	< L.D	14.1	14.8	8.7	-	10.2	
	TSP	23	26	18	44	28	23	-	72	
oct-07	Cs-137 vol.	< L.D	0.60	< L.D	0.44	NA	0.33	0.12	0.56	Survol France en plaine – Entrée par est + sud
	K-40	4.0	11	3.6	7.3	NA	7.1	2.7	17	
	Rapport	< L.D	55	< L.D	60	NA	46	44	33	
	Cs-137 mass.	< L.D	13.1	< L.D	18.1	NA	10.7	-	5.2	
	TSP	24	46	17	24	NA	31	-	109	
mai-08	Cs-137 vol.	NA	0.17	0.36	0.32	0.37	0.20	NA	0.50	Exemple de la partie 3.1.3
	K-40	NA	4.0	9.5	6.0	12.7	4.9	NA	17.7	
	Rapport	NA	43	38	53	29	41	NA	28	
	Cs-137 mass.	NA	10.0	12.4	16.5	12.2	28.7	-	9.1	
	TSP	NA	17	29	19	30	7	-	55	
moyenne 2000-2009	Cs-137 vol.	0.20	0.37	0.33	0.23	0.36	0.27	0.48	0.49	
	K-40	7.2	7.6	7.0	6.3	8.5	7.2	14.0	14.8	
	Rapport	25	46	43	33	41	32	44	32	
	Cs-137 mass.	5.9	10.6	11.4	8.2	10.8	7.6	-	7.4	
	TSP	23	29	23	22	26	23	-	48	

Table 3-4 : Synthèse des mesures radioécologiques représentatives des évènements de transport de poussières sahariennes. Les activités volumiques du ^{137}Cs et du ^{40}K sont exprimées en [$\mu Bq.m^{-3}$], le rapport des niveaux d'activité de ces deux radionucléides est donné en [10^{-3}], l'activité massique du ^{137}Cs est exprimée en [$Bq.kg^{-1}$] et la masse totale de particules en suspension est exprimée en [$\mu g.m^{-3}$]. Les mesures inférieures aux limites de détection sont représentées par « < L.D » et les données « NA » correspondent à un dysfonctionnement de la station de prélèvement.

Tout d'abord, de par sa position géographique, la proximité des régions sources et les trajectoires empruntées par les panaches de poussières, la station de la Seyne-sur-Mer est la station du réseau OPERA la plus fréquemment impactée par les évènements de transport de poussières sahariennes quelle que soit l'intensité des épisodes considérés. En fonction de leur intensité, ces évènements entrainent des augmentations significatives des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs et ^{40}K ainsi qu'une augmentation de la masse totale de particules en suspension. La fréquence de ces épisodes de transport de poussières sahariennes sur ce site participe aux augmentations des niveaux moyens respectifs en comparaison des autres stations du réseau OPERA. Au niveau de cette station, ces épisodes se caractérisent alors par un flux de particules en suspension important. En revanche, la très grande majorité de ces épisodes ne s'accompagne pas d'une augmentation de l'activité massique en ^{137}Cs ni d'une augmentation du rapport des niveaux d'activité entre le ^{137}Cs et le ^{40}K. L'augmentation significative de l'activité volumique en ^{137}Cs associée à ces épisodes ne provient alors pas de l'activité spécifique des particules, en accord avec les densités de dépôt en ^{137}Cs des régions émettrices de ces particules. L'intensité de la source, c'est-à-dire la quantité de matière mise en suspension dans ces régions, ainsi que l'efficacité du transport des particules sont ainsi responsables et conditionnent les augmentations des niveaux d'activités volumiques en ^{137}Cs résultantes.

Conformément aux résultats du recensement de la partie 3.1.3.5, les deux stations implantées dans la région du Massif Central sont régulièrement survolées par des évènements de transport de poussières sahariennes. En raison de l'altitude de transport des panaches, la station implantée au sommet du Puy-de-Dôme est plus fréquemment impactée que la station de plaine, située à seulement 11 km dans le plan horizontal et à 800 m dans le plan vertical. Ainsi, la majorité des évènements détectés dans la moyenne troposphère n'influence qu'exceptionnellement la station de Clermont-Ferrand. Le transport des poussières sahariennes concerne alors majoritairement la partie de l'atmosphère située au-dessus de la couche limite. Lors de certains évènements, les panaches de poussières peuvent également concerner les couches inférieures tandis que leur transport exclusif dans les plus basses couches de l'atmosphère est exceptionnel. Les conséquences directes de cette altitude de transport privilégiée sont des niveaux d'activités en ^{137}Cs et ^{40}K, mesurés lors de ces épisodes de transport, significativement plus importants que pour toutes les autres stations de plaine du réseau OPERA. La figure 3.26 illustre ainsi les distributions des niveaux d'activités de ces deux radionucléides pour la station d'altitude du Puy-de-Dôme et la station de plaine de la Seyne-sur-Mer.

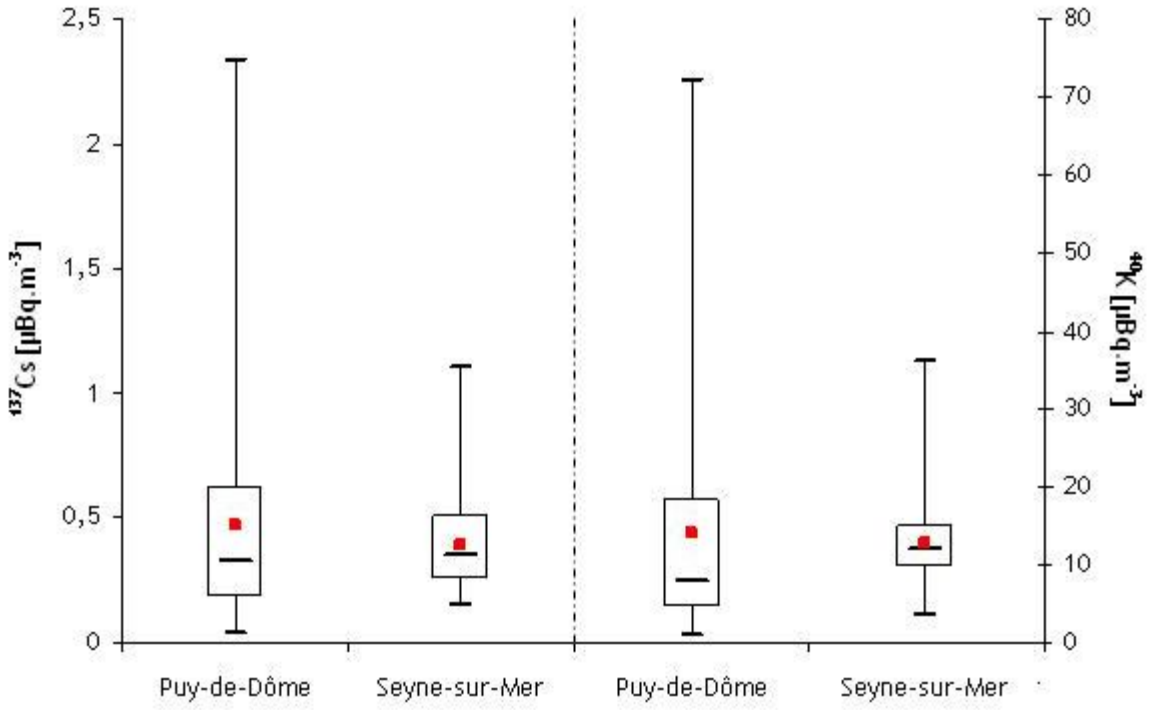


Figure 3.26 : Distribution sous forme de « boites à moustaches » des niveaux d'activités en ^{137}Cs (à gauche) et en ^{40}K (à droite) aux stations du Puy-de-Dôme et de la Seyne-sur-Mer pour la période d'octobre 2005 à octobre 2008.

Les augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs et en ^{40}K à la station du Puy-de-Dôme, dues aux épisodes de transport de poussières sahariennes à cette altitude, sont plus importantes que celles observées à la station de la Seyne-sur-Mer. Toutefois, la fréquence de ces évènements moins importante sur le site d'altitude entraine des activités moyennes en ^{137}Cs et ^{40}K relativement proches de celles du site de plaine. Comme pour le site de la Seyne-sur-Mer, les mesures effectuées à la station du Puy-de-Dôme lors des évènements de transport montrent que les augmentations significatives des niveaux d'activités volumiques en ^{137}Cs résultent de concentrations importantes de particules en suspension dues à l'intensité des sources d'émission de ces particules et ne correspondent pas à des augmentations de l'activité spécifique des particules.

Les autres stations du réseau OPERA implantées en plaine sont plus rarement impactées par ces évènements. Lors d'épisodes qualifiés d'exceptionnels, une influence de ces épisodes sur les niveaux d'activité en ^{137}Cs et ^{40}K est observée. De manière générale, les activités volumiques en ^{137}Cs et ^{40}K ainsi que la masse totale en suspension diminuent au cours du transport de ces panaches en fonction des latitudes respectives des stations de prélèvement. Ces diminutions résultent de l'efficacité de l'ensemble des processus de dépôt. Pour plusieurs évènements, une augmentation du rapport des niveaux d'activité entre le ^{137}Cs et le ^{40}K, due à une diminution plus significative de ce dernier, ainsi qu'une augmentation associée de l'activité massique en ^{137}Cs apparait au cours du transport. Cette observation s'explique par une élimination plus importante et plus rapide des grosses particules, vis-à-vis des plus fines, tout au long du parcours du panache.

Les évènements de transport de poussières sahariennes impactant la station de la Seyne-sur-Mer ont un niveau d'activité massique en ^{137}Cs de l'ordre de 10 $Bq.kg^{-1}$. Cette valeur correspond à la moyenne de la distribution à cette station, en partie due à la fréquence élevée de ces épisodes. Elle est comparable à l'activité massique moyenne des sols sahariens de l'ordre de 5 $Bq.kg^{-1}$ (Baggoura et al., 1998) ainsi qu'à celle déterminée pour le sol de Douz (table 3.2). Pour la station de Clermont-Ferrand, l'activité massique en ^{137}Cs mesurée lors des évènements de transport de poussières sahariennes est de l'ordre de 15 $Bq.kg^{-1}$, indiquant une évolution moyenne de la distribution en taille des particules porteuses du ^{137}Cs au cours du transport avec une élimination d'une partie des particules les plus grosses.

Lors des épisodes d'intensité exceptionnelle, des prélèvements de retombées totales (dépôt sec + humide) ont été réalisés à l'aide de tables de collecte sur le site de Cadarache ou à proximité (site de Manosque). De manière systématique, les niveaux d'activité massique en ^{137}Cs dans ces échantillons sont supérieurs aux niveaux mesurés dans les aérosols ambiants. La même tendance est obtenue pour les rapports d'activité $^{137}Cs/^{40}K$. A titre d'exemple, l'activité massique en ^{137}Cs mesurée dans les dépôts de l'épisode du 21 février 2004 était de 38.6 $Bq.kg^{-1}$ tandis que celle estimée dans les aérosols prélevés en routine à la station de la Seyne-sur-Mer, est environ de 10 $Bq.kg^{-1}$, ce qui correspond à la moyenne de l'ensemble des épisodes étudiés. De la même façon, pour l'épisode de mai 2008, l'activité massique en ^{137}Cs des dépôts est égale à 16.8 $Bq.kg^{-1}$ contre 8.2 $Bq.kg^{-1}$ dans les aérosols ambiants. Cette différence s'explique par un lessivage de l'ensemble des particules composant le panache de poussières par les précipitations. En revanche, dans les échantillons d'aérosols prélevés en routine, les plus grosses particules, de par leur vitesse de sédimentation plus importante, se retrouvent en plus grand nombre près du sol et conduisent donc à une activité massique en ^{137}Cs moins importante que dans le cas du dépôt humide.

Enfin, l'ensemble de ces caractéristiques peut être utilisé conjointement avec les données de la littérature afin d'estimer la contribution totale de ces épisodes sur la remise en suspension du ^{137}Cs. Pour cela, il est nécessaire de considérer la quantité totale d'aérosols exportés du sol saharien, l'activité massique des particules émises, les quantités transportées ainsi que les quantités déposées. Ces données, issues de la littérature et de cette étude, sont reportées dans la table 3.4 avec les gammes de valeurs admises afin d'estimer l'ordre de grandeur de la contribution résultante.

Il est estimé que de 10^{11} à 10^{13} Bq de ^{137}Cs sont remis en suspension dans le désert saharien chaque année. Bien qu'une majeure partie se redépose à proximité des régions sources, une partie de cet export va être transportée sur de grandes distances. Pour le territoire français, où les densités de dépôt surfacique en ^{137}Cs sont comprises entre 100 et 10 000 $Bq.m^{-2}$, le dépôt résultant de l'ensemble de ces évènements de transport de poussières sahariennes contribue à un apport annuel en ^{137}Cs compris entre 0.75 % et 5.10^{-5} % respectivement de l'activité déjà présente. Lors de l'événement de février 2004, Masson et al. (2010) estimaient à 0.1 % la contribution de ce seul épisode sur l'activité initialement présente dans le sud de la France.

	Données	Sources	Calculs
Activité massique			
maximum	15 Bq / kg	*cette étude*	
minimum	5 Bq / kg	*cette étude*	
Quantité exportée depuis le Sahara			
maximum	760 M tonnes / année	*Goudie et Middelton (2001)*	1.1 10^{13} Bq/année
minimum	130 M tonnes / année	*Goudie et Middelton (2001)*	6.5 10^{11} Bq/année
Dépôt en France			
maximum	50 g / m2 / année	*Lawrence et Neff (2009)*	0.75 Bq/m^2/année
minimum	1 g / m2 / année	*Lawrence et Neff (2009)*	5 10^{-3} Bq/m^2/année

Table 3.4 : Données utilisées pour le calcul des quantités de ^{137}Cs exportées à l'échelle du Sahara et déposées à l'échelle de l'Europe et de la France.

Bien que ces évènements de transport de poussières sahariennes entrainent des augmentations significatives du niveau d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols ambiants, l'enrichissement des sols en ^{137}Cs par ces épisodes est actuellement négligeable en comparaison des densités de dépôt observées. L'impact de ces évènements sur les niveaux ambiants n'est ainsi apparent qu'en raison du bruit de fond ambiant très faible et de l'état de traces de ce radionucléide dans le compartiment atmosphérique.

Une estimation de la contribution de l'ensemble de ces évènements de transport de poussières sahariennes sur le niveau ambiant moyen en ^{137}Cs dans les aérosols en France est réalisée. Cette estimation se base sur la relation établie à l'échelle de la France par Masson et al. (2010) entre la concentration moyenne des panaches de poussières sahariennes près du sol et la quantité déposée. Elle tient compte également de l'estimation de la quantité moyenne de matière déposée chaque année sur le territoire français et de la concentration massique des particules porteuses de ^{137}Cs estimée dans cette étude.

D'après la revue bibliographique de Lawrence et Neff (2009), les territoires comme la France situés à une distance modérée des régions sources de poussières désertiques sont soumis à un dépôt surfacique moyen annuel de l'ordre de 1 à 50 g.m^{-2}.an^{-1}. Cette gamme de valeurs est en accord avec Loÿe-Pilot et Martin (1996) qui observaient en Corse un dépôt annuel moyen de poussières sahariennes de 12.5 g.m^{-2}, avec d'importantes variabilités interannuelles. En redistribuant cette valeur à l'échelle des périodes de prélèvements des stations du réseau OPERA, soit 10 jours, nous obtenons un dépôt de fond résiduel compris entre 0.03 et 1.4 g.m^{-2}.$décade^{-1}$. Les évènements de poussières sahariennes se caractérisent par des intrusions épisodiques et n'entrainent pas de bruit de fond résiduel. Néanmoins, ce passage d'un phénomène épisodique à continu est nécessaire afin de pouvoir estimer la contribution de l'ensemble de ces épisodes sur une échelle de temps supérieure à la durée de l'évènement et sur le long terme. Pour obtenir ces

valeurs de dépôt, à partir de la relation empirique de Masson et al. (2010) entre les quantités de matière déposées et la concentration moyenne de poussières en suspension, il faut que la concentration moyenne de fond due à la présence de particules désertiques en suspension dans l'atmosphère soit comprise entre 0.13 et 6.52 µg.m^{-3}. Sur la base de l'ensemble des épisodes étudiés, il est estimé que ces poussières désertiques ont une activité massique moyenne en ^{137}Cs comprises entre 5 et 15 Bq.kg^{-1}. Ainsi, le bruit de fond ambiant en ^{137}Cs dans les aérosols dû à la présence de particules désertiques est estimé entre 6.5 10^{-4} et 9.8 10^{-2} µBq.m^{-3}. En comparant cette estimation avec la moyenne sur la période d'étude des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs de l'ensemble des stations du réseau OPERA, soit 0.32 µBq.m^{-3}, ces évènements de transport de poussières sahariennes contribuent pour 0.2 à 30 % de cette activité moyenne. Une contribution de 0.2 % semble sous-estimée vis-à-vis des résultats obtenus dans la partie précédente faisant le lien direct entre les évènements de transport de poussières sahariennes et les augmentations significatives de l'activité volumique en ^{137}Cs. En revanche, une contribution de l'ordre de 30 % de ces évènements au niveau ambiant en ^{137}Cs dans les aérosols français apparait plus réaliste.

3.2 - Autres évènements de transport de poussières minérales

Lors de l'identification des régions contribuant à la rémanence atmosphérique du ^{137}Cs (cf. 2.4.6.3), la région du sud de l'Ukraine, proche de la Mer Caspienne, est apparue comme participant aux augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs conjointement aux augmentations des niveaux d'activité en ^{40}K. Cette partie étudie alors l'origine de cette identification et s'intéresse à un évènement exceptionnel de soulèvement de particules dans cette région.

Le 23 mars 2007, des rafales de vent mesurées à plus de 100 km.h^{-1} soulèvent un panache de poussières dont la concentration au niveau du sol atteint 1400 µg.m^{-3} en Slovaquie (Birmili et al., 2007). Ce panache de poussières traverse ensuite l'Europe en direction de l'Ouest (Bessagnet et al., 2008). En République Tchèque, un dépôt moyen de 2.3 g/m^2 est mesuré consécutivement à cet épisode avec des maxima locaux jusqu'à 10 fois supérieurs (Jindrïch Hladil et al., 2008). A travers toute l'Europe centrale, cet épisode entraine de très fortes augmentations des niveaux de PM_{10} comme le montre la cartographie établie par Birmili et al. (2007) (figure 3.27).

Bien que cet évènement présente à première vue des caractéristiques similaires aux épisodes de transport de poussières sahariennes, les analyses et mesures effectuées démontrent une origine différente de cet évènement (Birmili et al., 2007 ; Jindrïch Hladil et al., 2008). Les rétro-panaches calculés sur cette période montrent que le territoire français subit l'influence de cet épisode (figure 3.27). En revanche, les réseaux de surveillance de la qualité de l'air mesurant la concentration en PM_{10} à proximité des stations du réseau OPERA n'enregistrent pas de hausses aussi remarquables que les stations du centre de l'Europe (figure 3.28). Seule la partie Nord de la France apparait alors concernée par cet épisode de transport de poussières ukrainiennes et semble se trouver en périphérie du panache au regard des niveaux en PM_{10} observés.

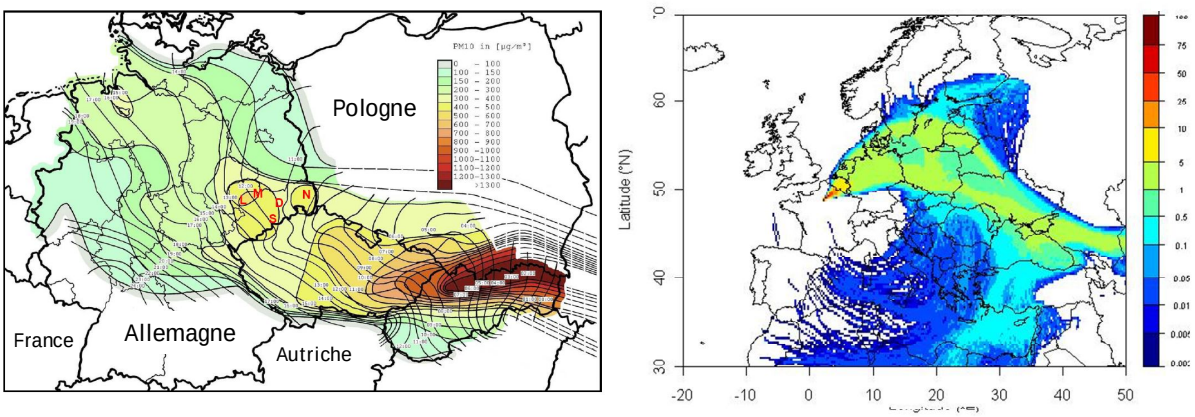


Figure 3.27 : gauche : évolution spatio-temporelle des niveaux de PM_{10} sur l'Europe centrale le 24 mars 2007 (d'après Birmilli et al., 2007) ; droite : tracé du rétro-panache arrivant à la station de Charleville-Mézières le 25 mars 2007 à 00:00 UTC.

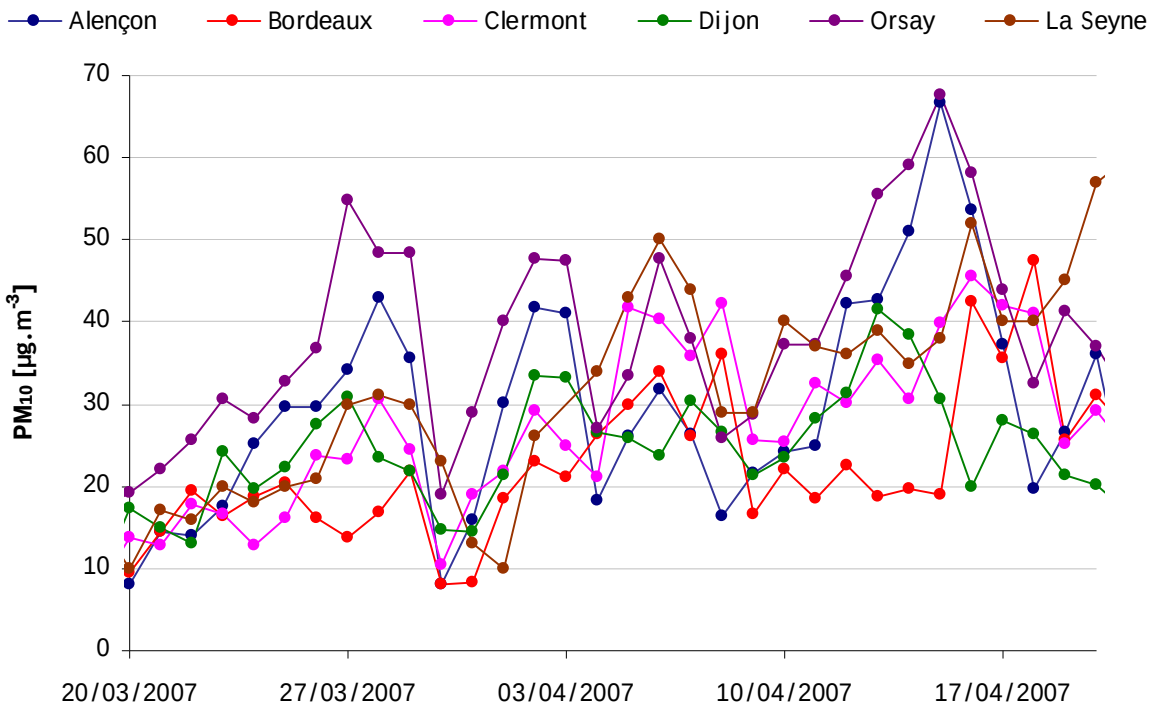


Figure 3.28 : Niveaux moyens en PM_{10} journaliers aux alentours des stations du réseau OPERA du 20 mars 2007 au 20 avril 2007.

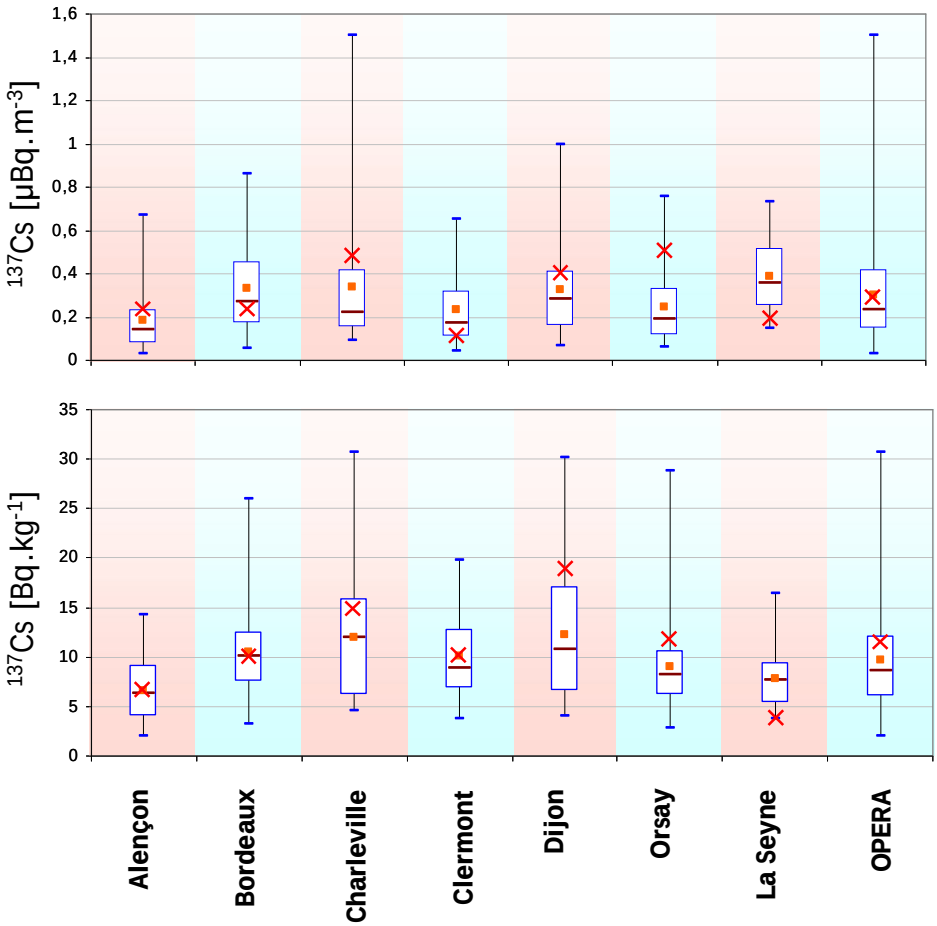


Figure 3.29: Distributions des niveaux d'activité volumique (haut) et massique (bas) en ^{137}Cs sur la période d'étude pour le réseau OPERA. Les niveaux d'activité en ^{137}Cs durant la décade correspondante à l'évènement de transport de poussières ukrainiennes sont représentés par une croix rouge.

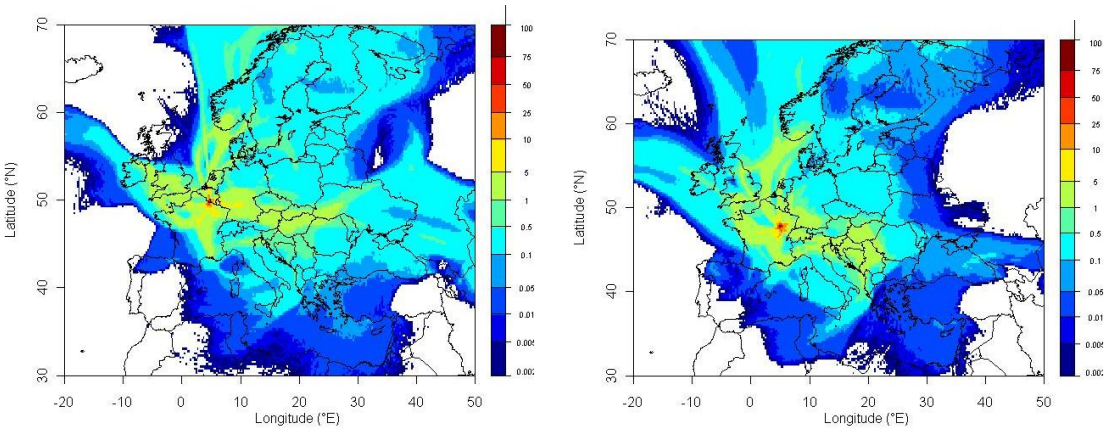


Figure 3.30 : Cumul des rétro-panaches durant la décade du 21-31 mars 2007 aux stations de Charleville-Mézières (gauche) et Dijon (droite).

Les résultats des analyses par spectrométrie gamma effectuées sur les filtres de prélèvement correspondant à cette décade présentent des tendances différentes suivant leur région d'implantation. Les deux stations les plus au nord du réseau, Charleville-Mézières et Orsay, présentent des augmentations significatives de l'activité volumique en ^{137}Cs ainsi qu'en ^{40}K en comparaison de leurs niveaux moyens respectifs (figure 3.29). Cette contribution du panache de poussières ukrainiennes sur le niveau d'activité en ^{137}Cs semble ensuite diminuer pour les autres stations en fonction de leur latitude respective. Ainsi, les niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs pour les stations de Bordeaux, Clermont-Ferrand et la Seyne-sur-Mer se trouvent inférieurs à leur moyenne respective durant cet évènement. L'activité massique en ^{137}Cs pour les stations du nord de la France présente également une augmentation significative en comparaison des niveaux moyens respectifs. Toutefois, de par le niveau de contamination des sols de la région source de ces poussières, les niveaux d'activité massique résultants apparaissent moins importants que ce qui était attendu. En effet, en comparaison des épisodes de transport de poussières sahariennes, l'activité massique des particules mises en suspension et transportées lors de cet évènement n'est pas représentative de la différence de dépôt surfacique en ^{137}Cs entre ces deux territoires.

L'influence limitée de cet évènement en termes de durée et d'intensité constatée à partir des mesures de PM_{10} participe vraisemblablement à l'atténuation de l'impact de cet évènement sur les niveaux d'activité en ^{137}Cs. Afin d'illustrer la diversité des masses d'air associées à la mesure des niveaux d'activité durant cette décade et la dilution résultante de cet évènement due à la durée du prélèvement, la figure 3.30 présente le cumul des rétro-panaches journaliers durant la décade correspondante à cet épisode. Egalement, la prépondérance de particules de taille micronique composant ce panache de poussières (Birmili et al., 2007) contribue au maintien d'une activité massique en ^{137}Cs moyenne. Cet épisode de transport de poussières ukrainiennes étant exceptionnel, aucun autre évènement n'a pu être observé sur la période d'étude afin de permettre une confrontation des résultats et d'aboutir à des caractéristiques plus pertinentes. Il est tout de même à noter que cet évènement de transport de poussières ne provient pas d'une zone qualifiée de permanente en termes d'émission de particules minérales dans la littérature même si celle-ci est connue pour son potentiel d'érosion éolienne. Cet évènement montre alors qu'il est nécessaire de considérer l'ensemble des territoires soumis à l'érosion éolienne comme susceptible de réalimenter significativement le compartiment atmosphérique en radionucléides artificiels à partir de dépôts antérieurs.

Sur l'ensemble de la période d'étude, à l'exception des épisodes de transport de poussières sahariennes et de l'évènement de poussières ukrainiennes, aucun autre évènement d'érosion éolienne de grande ampleur n'a eu d'impact significatif sur les niveaux d'activité mesurés par les stations du réseau OPERA. Néanmoins, il semblerait de façon évidente que des soulèvements de poussières locales puissent participer à la rémanence du ^{137}Cs dans l'atmosphère, ne serait-ce qu'au regard de la tendance entre la contamination des sols et les niveaux moyens en ^{137}Cs pour chacune des stations du réseau OPERA. L'absence d'identification d'évènement significatif de remise en suspension locale due à l'érosion éolienne semble principalement due à la durée des prélèvements des stations OPERA compris entre 5 et 10 jours, ce qui représente une durée considérable au regard

des périodes caractéristiques de phénomènes locaux. Ainsi, les dépôts surfaciques en ^{137}Cs au niveau de chacune des stations, qualifiés de moyens, associés au faible pouvoir d'émission des sols locaux ne suffisent pas pour caractériser correctement le processus de soulèvement de particules minérales à l'échelle locale. Toutefois, l'absence de contribution significative d'évènement de soulèvement de particules minérales d'origine locale sur les niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols montre que ces processus ne participent pas de manière significative à la rémanence du ^{137}Cs dans le compartiment atmosphérique. Ainsi, sans pouvoir l'affirmer avec certitude, l'érosion éolienne locale pourrait alors contribuer au bruit de fond local du niveau d'activité en ^{137}Cs sans entrainer d'augmentations significatives de celui-ci.

3.3 – Conclusion

Se basant sur les résultats de l'identification des régions sources participant à la remise en suspension du ^{137}Cs dans le compartiment atmosphérique, la région saharienne est apparue comme une des régions privilégiées de remise en suspension du ^{137}Cs. La remise en suspension de ce radionucléide artificiel s'accompagne également d'un soulèvement de ^{40}K et d'un transport de grandes quantités de particules.

La discussion sur les différents moyens de détection des évènements de transport de poussières sahariennes a montré qu'il était nécessaire d'utiliser conjointement ces bases de données afin d'identifier, quantifier et déterminer l'étendue spatio-temporelle de ces épisodes. Le recensement de ces évènements a fait apparaitre une grande diversité dans l'origine, le parcours, l'intensité de ces épisodes entrainant un impact tout aussi variable sur les niveaux d'activité.

Sur la base de ces différentes techniques de détection, une relation a été établie entre les passages de panaches de poussières sahariennes dans les basses couches de l'atmosphère et les augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs. Une discrétisation journalière des mesures a montré que lors d'un épisode d'intensité exceptionnel, le niveau d'activité en ^{137}Cs pouvait être supérieur à 4 $\mu Bq.m^{-3}$. Le niveau ambiant en France étant de 0.32 $\mu Bq.m^{-3}$, l'activité mesurée au cours de cet épisode confirme l'implication des évènements de poussières sahariennes dans la rémanence du ^{137}Cs dans le compartiment atmosphérique.

En termes d'influence spatio-temporelle, la station de la Seyne-sur-Mer est la plus fréquemment impactée par le transport de poussières sahariennes suivie de la station implantée au sommet du Puy-de Dôme. En raison de l'altitude de transport de ces épisodes, les évènements impactant la station du Puy-de-Dôme sont plus intenses et entrainent les augmentations les plus significatives de l'ensemble du réseau OPERA. Sur l'ensemble de la période d'étude, ces deux stations présentent des niveaux moyens d'activité en ^{137}Cs très proches.

La caractérisation de ces évènements a montré que ces panaches se caractérisaient par une fraction importante de particules de diamètre supérieur à 2.5 µm. Même moyennée sur la période de prélèvement de 10 jours, ces évènements entrainent une forte augmentation de la masse totale de particules en suspension. Cette augmentation de l'empoussièrement correspond également à une augmentation significative des niveaux d'activité en ^{40}K. Pour les niveaux d'activité en ^{137}Cs, ces évènements entrainent des augmentations significatives de l'activité volumique sans être nécessairement accompagnées d'augmentations de l'activité massique. Ces observations mettent alors en évidence que l'implication de ces évènements dans la rémanence atmosphérique du ^{137}Cs est avant tout liée au transport important de matière, caractéristique de ces épisodes.

L'utilisation conjointe des observations effectuées et des estimations de la littérature a permis de quantifier l'export total en ^{137}Cs de ces évènements, estimé entre 10^{11} et 10^{13} Bq par année. A l'échelle de la France, le dépôt annuel moyen associé à ces évènements est inférieur à 1 $Bq.m^{-2}$, soit une contribution comprise entre 0.75 % et 5.10^{-5} % des dépôts surfaciques antérieurs. Pour une station aux caractéristiques représentatives du réseau OPERA ces évènements contribueraient pour 1/3 au bruit de fond ambiant en ^{137}Cs.

CHAPITRE 4 : Les incendies de forêt

Les territoires fortement impactés par les retombées de l'accident de Tchernobyl participent également à la rémanence du ^{137}Cs dans le compartiment atmosphérique. Lors de l'identification des régions sources, il est apparu que les processus de remise en suspension prenant place dans ces territoires se caractérisent par un rapport des niveaux d'activité entre le ^{137}Cs et le ^{40}K plus important que pour les régions moins marquées par les retombées de l'accident et sont associés à des augmentations significatives de l'activité massique en ^{137}Cs. Cette différence pourrait s'expliquer par un dépôt surfacique en ^{137}Cs plus important et donc un excès de ^{137}Cs au regard du ^{40}K présent dans les sols. Néanmoins, ces territoires ne se caractérisent pas par un soulèvement de particules significatif à l'inverse des territoires soumis à l'érosion éolienne. De plus, le couvert végétal dans ces régions et l'humidité des sols limitent le développement de ce processus. Ainsi, il est nécessaire d'explorer de nouveaux processus de remise en suspension du ^{137}Cs au niveau de ces territoires afin de parvenir à comprendre et expliquer leur participation à la rémanence du ^{137}Cs dans l'atmosphère.

La forêt boréale eurasienne représente un des plus importants réservoirs de radionucléides artificiels dans l'environnement en raison des retombées totales des essais nucléaires atmosphériques ainsi que celles de l'accident de Tchernobyl. Bien qu'une très grande partie de cette radioactivité soit fixée dans le sol, la partie transférée à la biomasse ainsi que celle se retrouvant dans la litière peuvent être réémises dans l'atmosphère et redistribuées durant les épisodes d'incendies (Paliouris et al., 1995 ; Lujaniene et al., 1997 ; Wotawa et al., 2006 ; Lujaniene et al., 2007). Ce chapitre étudie la possibilité que des évènements de grande ampleur de combustion de biomasse due aux incendies de forêt dans des régions présentant un dépôt surfacique en ^{137}Cs important puissent conduire à l'export d'une quantité significative de particules porteuses de ce radionucléide et avoir un impact sur les niveaux d'activité dans les aérosols à très longues distances.

4.1 -L'environnement forestier

Les terres boisées, comprenant les surfaces forestières, couvrent environ 4 milliards d'hectares à travers le monde, soit plus de ¼ de la superficie totale des terres émergées (FAO, 2009). Sur le continent Eurasien, ces terres boisées recouvrent près d'un milliard d'hectares dont la très grande majorité (~80 %) se situe en Fédération de Russie (figure 4.1). Ces étendues forestières se trouvent principalement dans la bande latitudinale comprise entre 50° N et 70° N et par conséquent ont été significativement marquées par les retombées globales des essais nucléaires atmosphériques (UNSCEAR, 2000).

Figure 4.1 : Cartographie de l'étendue des ressources forestières sur le continent Eurasien (données FAO, 2009)

Les écosystèmes forestiers ont un effet significatif sur l'interception et l'accumulation de particules radioactives issues de rejets atmosphériques. A la suite des accidents de Kyshtym et de Tchernobyl, plusieurs études ont montré que les dépôts étaient plus importants dans les zones forestières en raison de leur pouvoir filtrant, en comparaison des zones plus ouvertes comme les prairies (Kutlakhmedov et al., 1999 ; Shcheglov, 1999). Suite à l'accident de Tchernobyl en 1986, environ 4 millions d'hectares de forêts ont été contaminés avec un dépôt surfacique en ^{137}Cs supérieur à 37 $kBq.m^{-2}$ (IAEA, 2001). Ces surfaces boisées fortement contaminées se repartissent entre la Biélorussie, l'Ukraine et la Fédération de Russie. L'écosystème forestier étant une ressource élémentaire pour de nombreuses activités, plusieurs études se sont intéressées à l'évolution des niveaux d'activité dans ce milieu ainsi qu'au devenir des radionucléides artificiels déposés pour l'ensemble des territoires impactés par les retombées de cet accident.

Dans les premiers temps suivant l'accident de Tchernobyl, la majeure partie des retombées se retrouve sur la canopée. Le transfert foliaire est alors la principale voie de contamination de la végétation. Après un cycle saisonnier, principalement en raison de la chute du feuillage, les radionucléides initialement présents dans la canopée se déposent à la surface des sols. Près de 20 ans après l'accident de Tchernobyl, le principal réservoir d'activité de l'environnement forestier se trouve être le sol, où le ^{137}Cs se retrouve majoritairement dans les vingt centimètres, en raison de sa migration très lente. Le transfert racinaire est alors la principale voie de contamination de la

végétation. Pour l'ensemble des territoires impactés par les retombées de Tchernobyl, et quel que soit le type de forêt considéré, la répartition du ^{137}Cs entre les différents compartiments de l'écosystème forestier semble relativement similaire. En moyenne, près de 90 % du ^{137}Cs initialement déposé se retrouve dans le sol et ses couches de surface comprenant la litière et 10 % se retrouve dans les parties aériennes de la biomasse. Le ^{137}Cs se trouvant majoritairement dans les couches supérieures du sol, celui-ci peut-être recyclé dans l'ensemble de l'écosystème forestier. Les voix d'exportation de ce radionucléide étant limitées, les forêts constituent un réservoir important à l'état d'équilibre en termes d'activité totale dans son ensemble. Les mesures réalisées à plusieurs années d'intervalle montrent qu'en comparaison de la quantité totale initialement déposée, la perte d'activité observée est infime, voire négligeable (Kutlakhmedov et al., 1999). En raison de son fort pouvoir d'accumulation des radionucléides artificiels comme le ^{137}Cs, l'écosystème forestier constitue alors, sur le long terme, une source potentielle de redistribution de ces radionucléides pouvant entrainer une contamination secondaire pour les territoires voisins (Paliouris et al., 1995 ; Lujaniene et al., 1997).

4.2 -Les incendies

Chaque année, de l'ordre de 3 millions de km^2 à travers le monde sont affectés par les incendies (Giglio et al., 2006) consommant de 5 500 à 9 200 Tg de biomasse (Ichoku et Kaufman 2005). Bien que les régions les plus chaudes soient naturellement plus vulnérables face au risque incendie, toutes les grandes étendues de forêts sont concernées par ces évènements (figure 4.2). Les forêts russes et brésiliennes ainsi que celles du centre de l'Afrique sont les plus sévèrement affectées. La combinaison de plusieurs facteurs météorologiques défavorables comme la sécheresse ou des vents intenses, associés à une importante densité de végétation va conditionner la vulnérabilité d'un massif forestier face au risque incendie. Ainsi, pour l'Europe et la partie occidentale de la Russie, les incendies se produisent majoritairement entre le printemps le début de l'automne (Duncan et al., 2003 ; Sofiev et al., 2009).

Les propriétés des particules émises par les incendies dépendent du type de végétation et de son humidité, de la phase de combustion et de plusieurs autres variables. Toutefois, l'ensemble des études s'accorde pour montrer que la combustion de biomasse est une source significative de fines particules en suspension de taille submicronique (Reid et al., 2005 ; Hodzic et al., 2007 ; Roy et al., 2007). Associés à une énergie convective importante, les panaches de fumées émis peuvent être transportés sur des distances très importantes et entrainer des épisodes de pollution particulaire (Forster et al., 2001 ; Aarnio et al., 2007 ; Withan et Manning 2007).

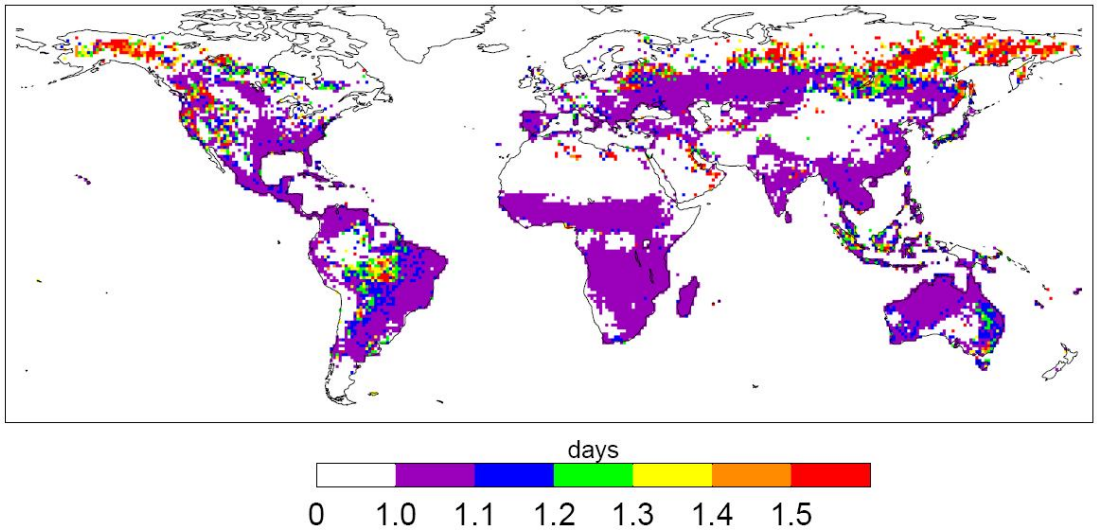


Figure 4.2 : Climatologie (2001-2004) des moyennes mensuelles de la persistance des incendies sur des pixels de 1°. Evaluation réalisée à partir des observations MODIS (cf. 4.3.2) embarqué sur le satellite Terra (issue de Giglio et al., 2006).

L'association d'une contamination importante et d'une vulnérabilité face au risque incendie conduit à étudier et caractériser l'influence que peut avoir ce processus sur les variations des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols. En 1992, des incendies dans la zone d'exclusion de Tchernobyl, détruisant 1300 ha de forêt et 2300 ha de prairie, ont entrainé des augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans l'air ambiant jusqu'à plusieurs centaines de kilomètres (Rapport ECP-5 ; Lujaniene et al., 1997). Plusieurs études menées à partir d'expériences en laboratoire (Amiro et al., 1996) ou à partir d'incendies naturels ou artificiels dans l'environnement ont confirmé que ce processus participe à la remise en suspension du ^{137}Cs (Paliouris et al., 1995 ; Lujaniene et al., 1997 ; Kashparov et al., 2000 ; Yoschenko et al., 2006 [a-b]), tout en restant sur des mesures à l'échelle locale. L'étude menée par Wotawa et al. (2006) a établi une relation entre des augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs au Canada et des incendies dans les forêts boréales asiatiques et canadiennes mettant en évidence la capacité de ces évènements à transporter sur de longues distances ce radionucléide mis en suspension.

La partie suivante est alors consacrée à présenter les différents moyens disponibles pour identifier les incendies et leurs panaches de fumées à différentes échelles afin d'établir leur influence sur les niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols prélevés au niveau des stations atmosphériques du réseau OPERA.

4.3 – Détection des incendies

4.3.1 – Les bases de données de recensement

Plusieurs bases de données recensant les incendies dans différentes régions peuvent être utilisées afin de réaliser des statistiques ou mettre en relation des résultats de mesures avec ces évènements. En France, la région méditerranéenne est la plus vulnérable face au risque incendie et la plus fréquemment touchée par ces évènements. La base de données Prométhée, accessible par son site internet – www.promethee.com – a pour objectif de fédérer les données en provenance de sources diverses afin de rendre disponible le recensement des incendies dans 15 départements du pourtour méditerranéen. Les rapports annuels permettent d'établir le nombre d'incendies, les surfaces brûlées et de localiser dans l'espace et dans le temps les principaux feux pour chaque saison. Ces données seront utilisées ultérieurement afin d'étudier l'impact de ces incendies sur la remise en suspension du ^{137}Cs et son impact local en relation avec les mesures réalisées à la station de la Seyne-sur-Mer. Par exemple, le tracé des surfaces brûlées annuellement sur l'ensemble de la région méditerranéenne entre 1973, date de création de la base de données, et 2006, montre que l'année 2003 a été la plus touchée par les incendies (figure 4.3). Cette année 2003 correspond à un été chaud et sec propice au développement de ces évènements.

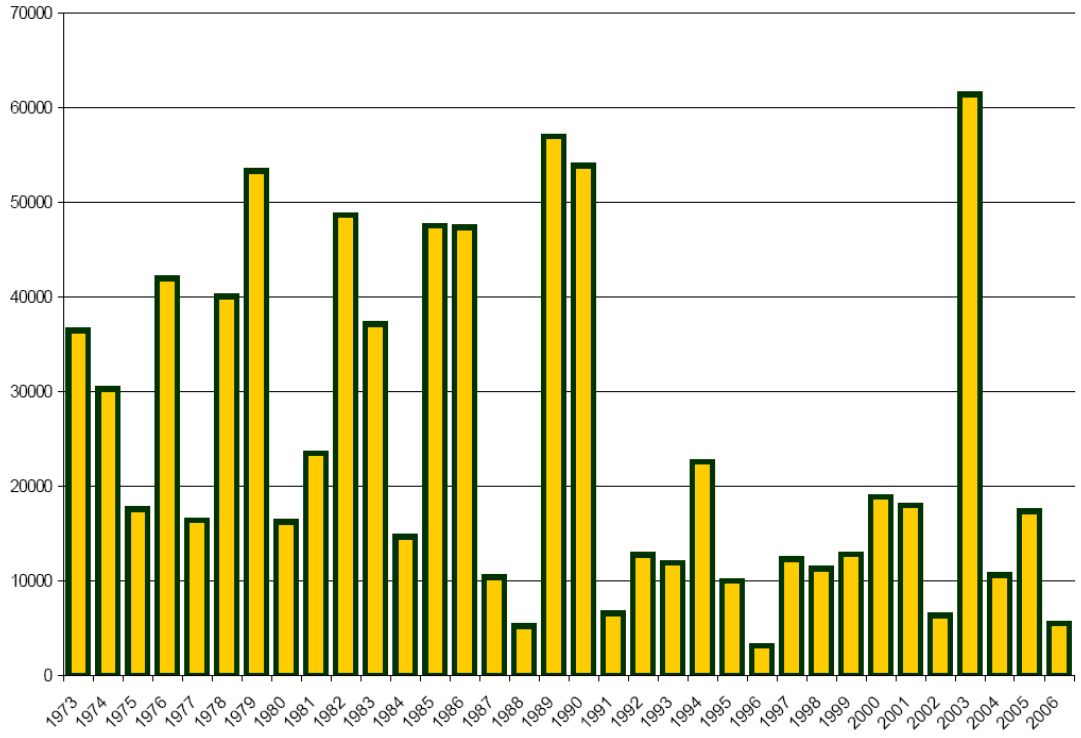


Figure 4.3 : Superficie annuelle brulée (en hectare) dans la région méditerranéenne entre 1973 et 2006 (issue de la base de données Prométhée – bilan 2006).

A l'échelle de l'Europe, l'European Forest Fire Information System (EFFIS) mis en place et maintenu par le Joint Research Center (JRC) est une base de données archivant les informations relatives aux incendies pour vingt pays européens. L'EFFIS incorpore également une prévision du risque incendie pour ces pays ainsi qu'une mise à jour régulière de la situation des incendies principalement basée sur les observations satellites fournies par MODIS (cf. 4.3.2). La figure 4.4 illustre la visualisation des archives sur l'ensemble de l'Europe pour l'année 2003 disponible directement par le site de l'EFFIS (http://effis.jrc.ec.europa.eu/). De manière interactive, il est possible de disposer de données par région permettant de mettre en relation des incendies locaux et des variations des niveaux d'activité pour chacune des stations OPERA.

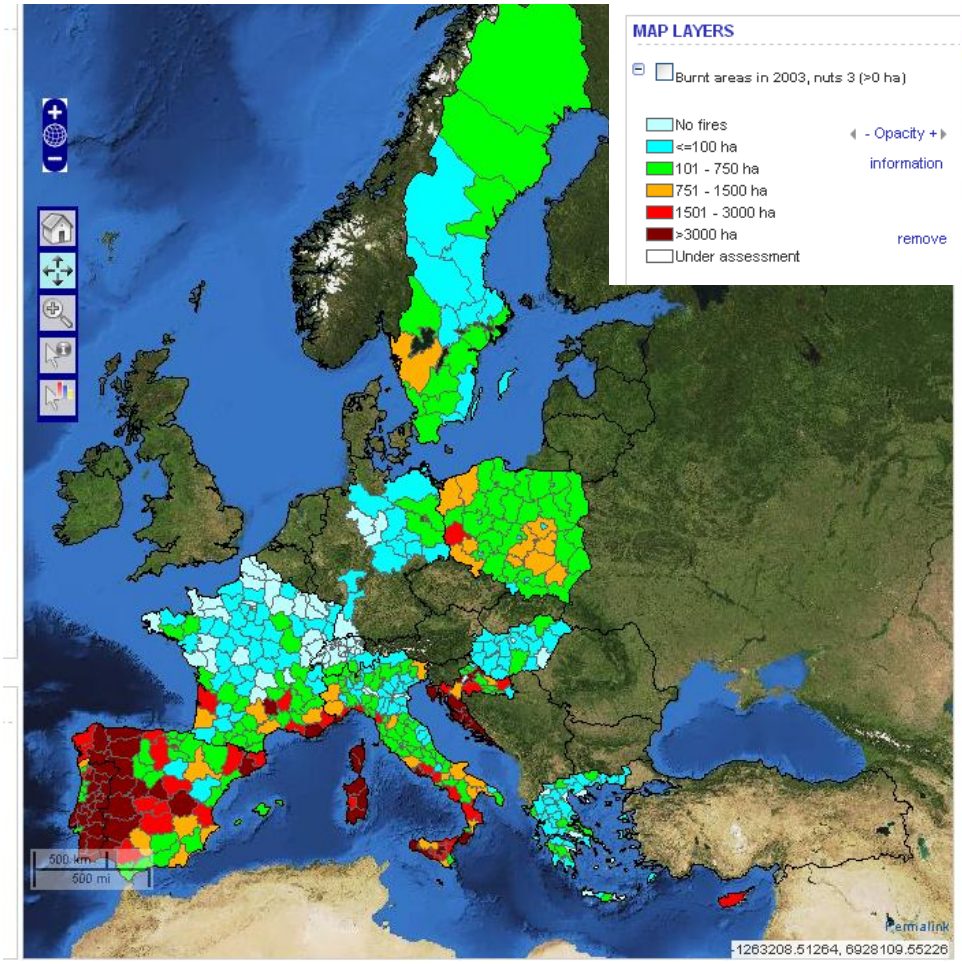


Figure 4.4 : Carte des surfaces brûlées en 2003 à l'échelle de l'Europe (source : EFFIS).

A l'échelle internationale, l'International Forest Fire News (IFFN), une activité de l'équipe FAO/UNECE composée de spécialistes du Global Fire Monitoring Center (GFMC), publie des rapports biannuels sur la situation des incendies dans le monde entier. Les rapports édités recensent les incendies dans les différents pays et focalisent sur certaines régions d'intérêt lors d'évènements particuliers. Par exemple, un article a été consacrée aux incendies de 1992 dans la zone d'exclusion de Tchernobyl, recensant les surfaces brûlées et soulignant l'impact de cet évènement sur les niveaux d'activité ambiants en ^{137}Cs dans les aérosols à proximité (IFFN, 2005).

4.3.2 – Les observations satellites

En complément des bases de données de recensement des incendies utilisant plusieurs techniques d'observations le plus souvent *in situ*, le développement récent des techniques de détection spatiale permet de disposer de nouvelles informations sur l'étendue spatio-temporelle de ces évènements, à l'instar de la détection des sources de poussières sahariennes et de disposer de données en quasi temps réel. La base de données la plus communément utilisée dans la littérature est celle utilisant les mesures des spectrophotomètres MODIS (MODerate-resolution Imaging Spectroradiometer) embarqués sur les satellites Aqua et Terra de la NASA (NAtional Spatial Agency). Ces données sont distribuées à partir du Web Fire Mapper (http://maps.geog.umd.edu/) (Justice et al., 2002) sous forme de cartes localisant les incendies sur une période cumulée de 10 jours (figure 4.5).

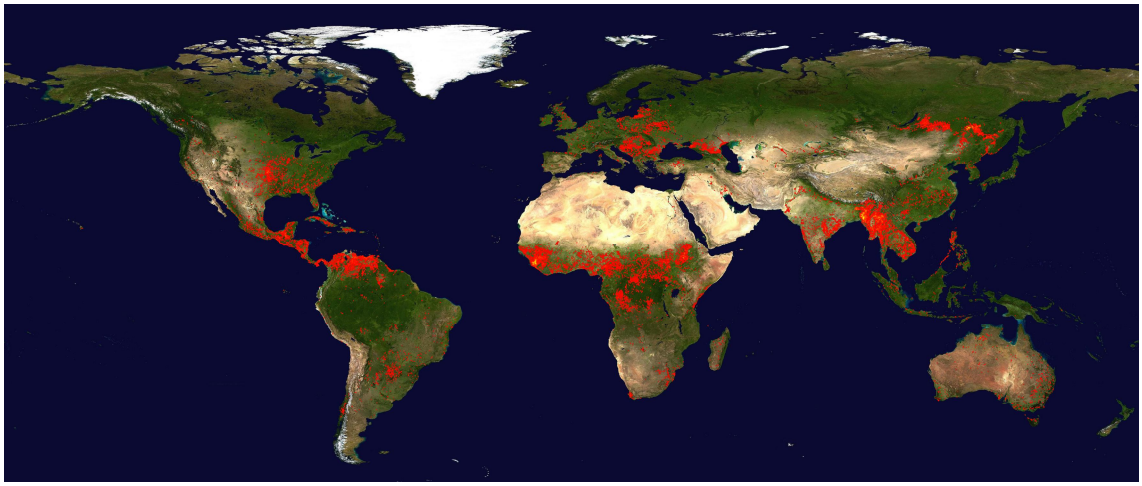


Figure 4.5 : Carte cumulée des « hotspots » détectés par MODIS du 22/03/2003 au 31/03/2003.

Les incendies recensés sont appelés des « points chauds » puisqu'ils correspondent à des anomalies thermiques mesurées par MODIS dans le moyen infrarouge et l'infrarouge thermique. La plupart du temps, ces anomalies thermiques correspondent à des incendies mais aucune distinction ne peut être faite avec des éruptions volcaniques ou des torchères bien qu'un masque soit appliqué pour éliminer les « points chauds » persistants. Chaque « point chaud » détecté par MODIS est un pixel contenant un ou plusieurs incendies. La taille des pixels représentés sur la figure 4.5 n'est pas proportionnelle à la dimension des incendies détectés. Au nadir, la taille de ce pixel est de 1 km de côté et s'élargit pour les détections latérales. La taille minimale des feux détectés est de l'ordre de 100 m^2. Ainsi, chaque « point chaud » est équivalent à un incendie dont la taille peut varier de 100 m^2 à 1 km^2 le long du nadir, et supérieur pour les détections latérales. Des détails supplémentaires sur la détection des incendies par MODIS sont donnés dans Giglio et al. (2003). Pour les études spécifiques, il est possible de disposer des archives quotidiennes, géo-référençant chacun des « points chauds » et donnant la dimension des pixels observés. Il est également possible de disposer d'une alerte quotidienne du nombre de feux détectés dans une région d'intérêt.

La base de données IONA de l'Agence Spatiale Européenne (ESA) recense également les anomalies thermiques à partir d'observations spatiales mais ces données ne seront pas utilisées dans le cadre de cette étude.

4.4 – Détection des panaches d'incendies

4.4.1 – Les observations satellites

Afin de confirmer la présence d'un incendie, il est possible d'utiliser les images satellites pour visualiser le développement des panaches de fumées. Cette observation permet d'estimer qualitativement l'intensité de l'évènement et fournit une première information sur la dispersion du panache de fumée et les régions situées sous le vent du foyer. De la même manière que pour les épisodes de transport de poussières minérales, les recompositions d'images à partir de plusieurs canaux, permettent la restitution d'images en couleurs quasi-réelles issues de la base de données « NASA/GSFC MODIS Rapid Response » à partir des mesures des satellites Aqua et Terra. Une illustration de ces images est donnée dans la figure 4.6.

Figure 4.6 : Panaches de fumée près du lac Baïkal en Russie le 22 mai 2009 observés par le satellite Aqua. Les pixels rouges représentent les « hotspots » détectés par MODIS.

4.4.2 – Les modèles numériques opérationnels

Comme pour les modèles de prévision de transport de poussières sahariennes, des modèles opérationnels simulent la dispersion des panaches de fumées à partir des incendies détectés par les observations satellites. Le modèle NAAPS, présenté dans la partie 3.1.3.1, simule également la

dispersion des panaches à différentes échelles et fournit une information quantitative sur la contribution de ces panaches sur la concentration en particules au niveau du sol (figure 4.7). Au cours de cette étude, le modèle SILAM (Sofiev et al., 2009) (http://silam.fmi.fi/) a également été utilisé afin d'estimer la contribution des panaches d'incendies sur la composition des aérosols. Ce modèle opérationnel est également basé sur les données d'observations de MODIS qui sont utilisées pour établir les termes sources. Les simulations du modèle SILAM fournissent également une estimation quantitative de la contribution des panaches sur les concentrations en $PM_{2.5}$ (figure 4.7).

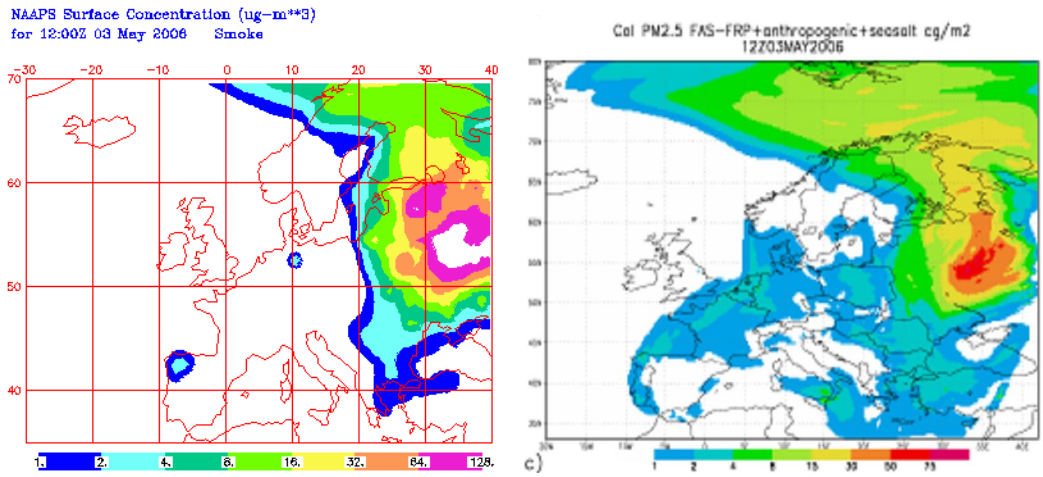


Figure 4.7 : Illustration des sorties de modèle de NAAPS (gauche) et de SILAM (droite) à l'échelle de l'Europe pour la journée du 3 mai 2006.

4.4.3 – Les mesures au sol

La présence de panaches de fumées dans les basses couches de l'atmosphère modifie les concentrations de particules en suspension. Les mesures effectuées par les réseaux de surveillance de la qualité de l'air peuvent être utilisées pour établir la contribution de ces évènements. A l'échelle du territoire français, ces mesures sont effectuées par les AASQA. La combustion de biomasse entrainant une importante production de fines particules, les mesures de $PM_{2.5}$ apparaissent les plus pertinentes afin d'identifier l'advection de ces panaches. Contrairement aux épisodes de transport de poussières minérales, les épisodes de transport de particules issues de la combustion se caractérisent par une augmentation du rapport $PM_{2.5}/PM_{10}$.

Pour illustrer cette caractéristique, la figure 4.8 présente l'évolution conjointe des concentrations horaires en PM_{10} et $PM_{2.5}$ lors d'un évènement de transport longue-distance de panaches de fumées sur l'agglomération de Lille en septembre 2002 et lors d'un épisode de transport de poussières sahariennes sur Marseille en février 2004 (cf. partie 3.1.4). Dans le cas d'advection de fumée, l'augmentation du niveau de PM_{10} est en très grande partie due à la présence dans l'atmosphère de fines particules de diamètre inférieur à 2.5 µm. Le rapport $PM_{2.5}/PM_{10}$ résultant est alors supérieur à 0.9, tandis que dans le cas de l'épisode de transport de poussières

minérales, l'augmentation du niveau de PM_{10} est principalement due à la présence de particules de diamètre supérieur à 2.5 µm puisque le rapport devient inférieur à 0.1.

La base de données AirBase, constituée par l'European Environment Agency (EEA) à travers l'European Topic Centre on Air and Climate Change (EIONET), centralise les mesures effectuées par les différents réseaux de surveillance de la qualité de l'air à l'échelle européenne. Elle permet ainsi d'étudier le transport longue-distance de panaches de fumée en provenance de régions extérieures au territoire français. La figure 4.9 localise les stations de mesures des PM_{10} et $PM_{2.5}$ en Europe constituant cette base de données en 2010. Comme les réseaux européens de surveillance de la qualité de l'air se densifient au cours du temps, cette base de données est en constante évolution.

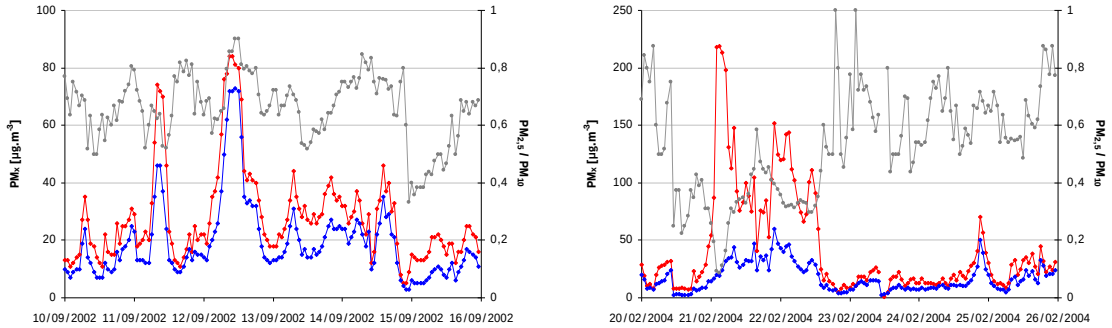


Figure 4.8 : Concentrations horaires en PM_{10} (courbes rouges), $PM_{2.5}$ (courbes bleues) exprimées en µg.m^{-3} et rapports des concentrations $PM_{2.5}$ / PM_{10} (courbes grises) pour la station de Lille (graphique gauche) pour la période 10-15/09/2002 (données Atmo Nord – Pas de Calais) et pour celle de Marseille (graphique droite) pour la période 20-25/02/2004 (données Atmo PACA).

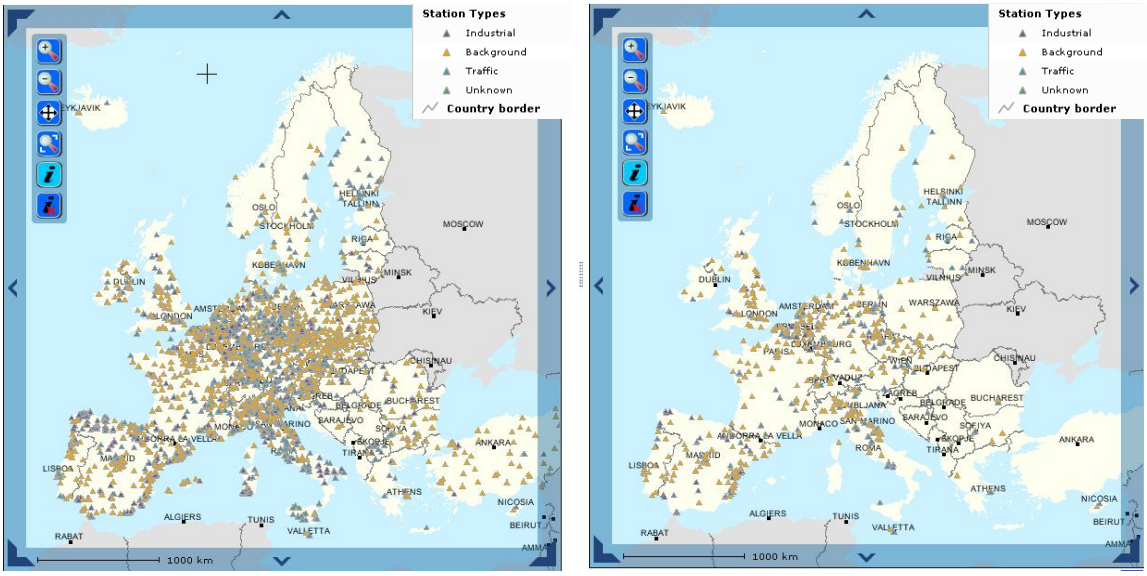


Figure 4.9 : Localisation des stations de mesures des PM_{10} (gauche) et $PM_{2.5}$ (droite) constituant la base de données AirBase en 2010.

Le réseau AERONET (cf. partie 3.1.3.3) complète la liste de moyens de détection des panaches de fumées dans l'atmosphère, au travers des mesures d'épaisseur optique d'aérosols qui augmentent significativement lors du passage d'un panache. Les distributions en taille calculées à partir d'algorithmes d'inversion peuvent également fournir une information complémentaire afin d'identifier ces évènements.

4.4.4 – Les simulations numériques

Les différentes observations et mesures décrites peuvent être utilisées conjointement pour indiquer l'influence d'un panache de fumée sur la composition des aérosols ainsi que pour déterminer l'étendue spatio-temporelle d'un épisode d'advection. La réalisation de calculs de dispersion, à partir du modèle de dispersion HYSPLIT, permet d'étudier plus particulièrement certains évènements d'incendies de forêts et d'isoler leur contribution sur les différentes mesures effectuées sur les aérosols.

A titre d'exemple, la figure 4.10 présente un calcul de dispersion des panaches de fumées à partir d'incendies recensés en Corse par les observations MODIS durant la saison 2003. Sur la même période, les niveaux de PM mesurés à Toulon et Marseille sont reportés. Il est alors possible de déterminer les périodes de prélèvement de la station de la Seyne-sur-Mer qui subissent l'influence des panaches de fumées de ces incendies et de déterminer si ces évènements entrainent une variation des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols ambiants.

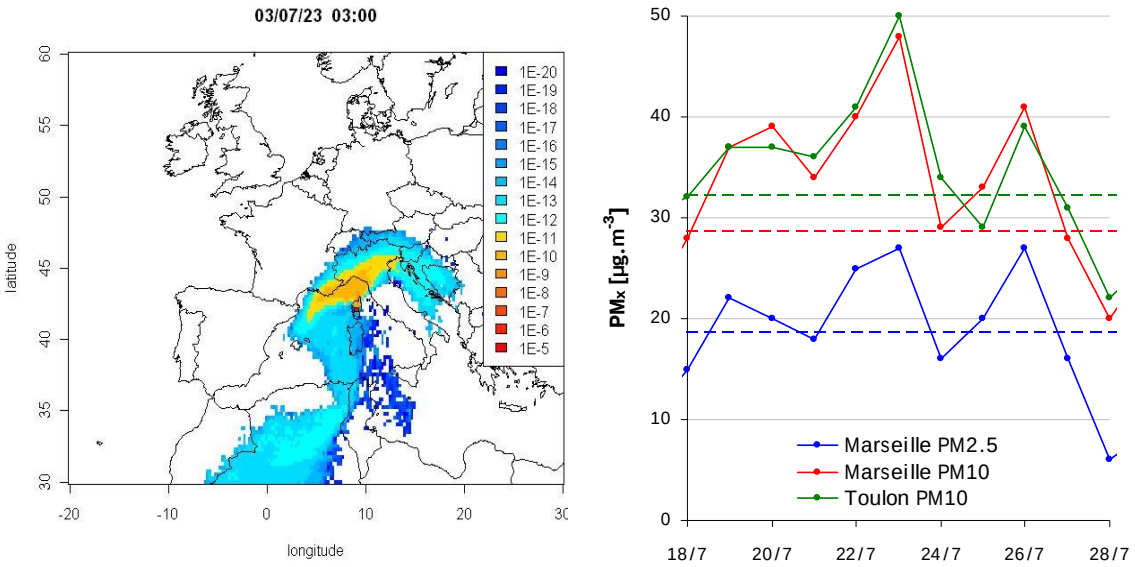


Figure 4.10 : Gauche : dispersion des panaches de fumées du 23 juillet 2003 issus des incendies en Corse durant l'été 2003. Droite : concentrations journalières à Marseille en PM_{10} (courbe rouge) et $PM_{2.5}$ (courbe bleue) et à Toulon en PM_{10} (courbe verte) du 18 au 28 juillet 2003.

4.5 – Etude spécifique des incendies de 2002

Cette partie présente l'étude détaillée d'un évènement de grande ampleur, mettant en œuvre les différents moyens de détection présentés, pour déterminer l'influence des incendies sur la remise en suspension du ^{137}Cs.

4.5.1 – Présentation de l'évènement

A la fin de l'été 2002, l'ensemble des stations composant le réseau OPERA présente des augmentations simultanées des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs (figure 4.11). Ces augmentations significatives sont, pour une partie des stations, les plus fortes enregistrées sur la période d'étude. Les tracés des rétro-trajectoires correspondant aux périodes de prélèvements, montrent que ces augmentations sont associées à des masses d'air en provenance de l'Europe de l'Est et des territoires impactés par les retombées de l'accident de Tchernobyl (figure 4.12).

Durant la période correspondant aux augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols de l'ensemble des stations du réseau OPERA, de nombreux « points chauds » sont détectés par les satellites Aqua et Terra de la NASA à l'aide du spectrophotomètre MODIS. Les recompositions d'images en couleurs quasi-réelles permettent d'observer le développement des panaches de fumées résultants de ces « points chauds » et confirment leur nature incendiaire (figure 4.13). Ces incendies sont alors recensés dans la base de données MODIS Rapid Response System Global Fire Maps. Leur localisation est présentée sur la figure 4.14 sous forme de carte cumulée sur dix jours. Cet épisode débute dans le courant du mois de juillet et se termine à la fin du mois de septembre avec une étendue spatiale très importante. Selon les sources, de 2 à 12 10^6 ha auraient été brûlés sur le continent eurasien au cours de l'année 2002 (Sukhinin et al., 2004 ; Van der Werf et al., 2006 ; IFFN, 2007), avec une grande partie de ces incendies se produisant dans les territoires fortement contaminés par les retombées de l'accident de Tchernobyl.

Dans le même temps, des augmentations des niveaux d'empoussièrement en Finlande (Niemi et al., 2005) et au Royaume-Unis (Withan et Manning, 2007) sont attribuées à un transport de particules issues d'incendies en Europe de l'Est et en Fédération de Russie.

Au regard de ces résultats, des trajectoires empruntées par les masses d'air influant la composition des aérosols et des augmentations simultanées des niveaux d'activité en ^{137}Cs en France, cet évènement offre l'opportunité d'investir la possibilité que des épisodes de grandes échelles de combustion de biomasse puissent introduire dans l'atmosphère une quantité significative de ^{137}Cs et avoir un impact à longue distance sur les niveaux d'activité dans l'air ambiant.

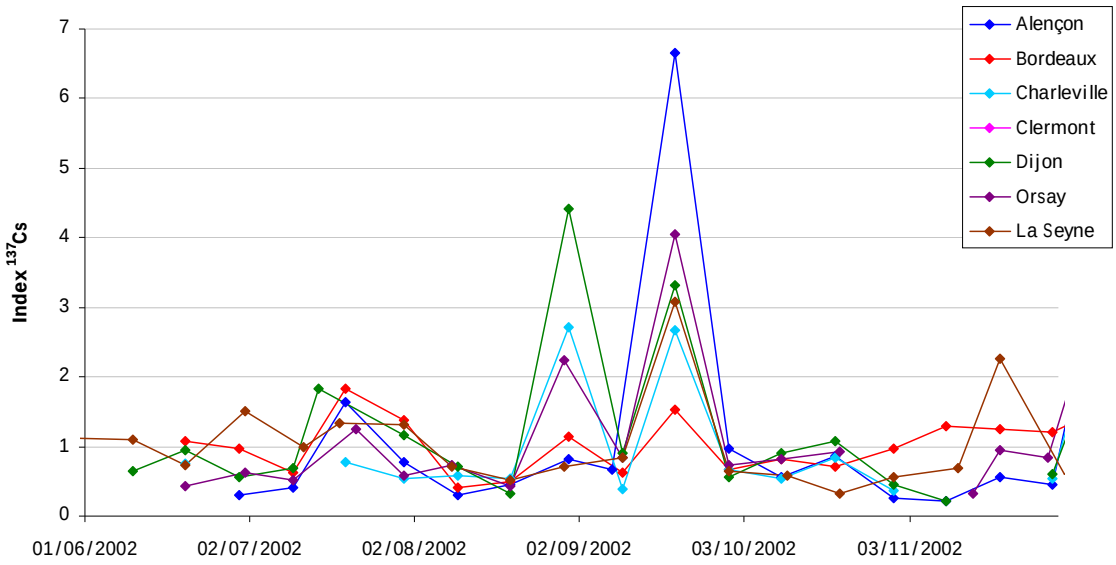


Figure 4.11 : Niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs dans les aérosols entre le 1er juin 2002 et 30 novembre 2002 pour chacune des stations du réseau OPERA, pondérés par les moyennes respectives sur la période d'étude.

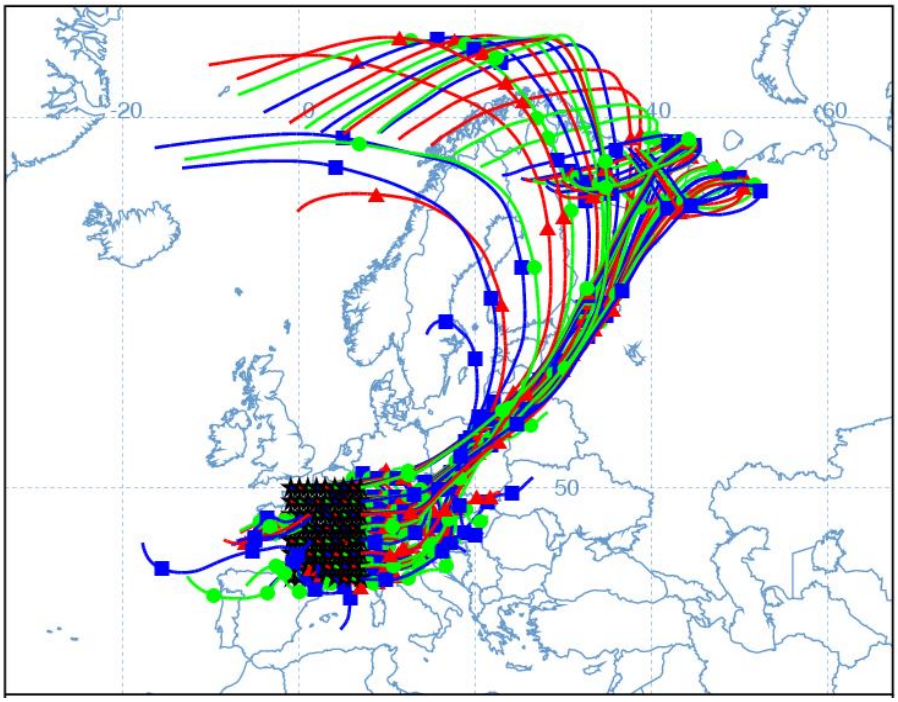


Figure 4.12 : Groupe de rétro-trajectoires de 120 heures des masses d'air arrivant sur la France le 13 septembre 2002 à 12 UTC à partir du modèle HYSPLIT. Les étoiles noires représentent les points d'arrivée de chacune des rétro-trajectoires.

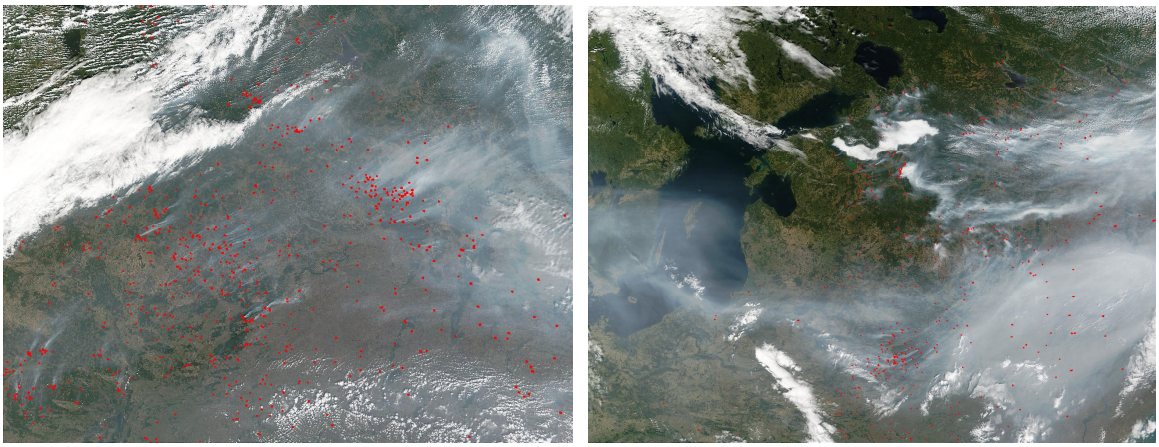


Figure 4.13 : Recomposition d'images en couleurs quasi-réelles des satellites Aqua et Terra au dessus de la Biélorussie et de la Fédération de Russie le 3 septembre (gauche) et 4 septembre 2002 (droite).

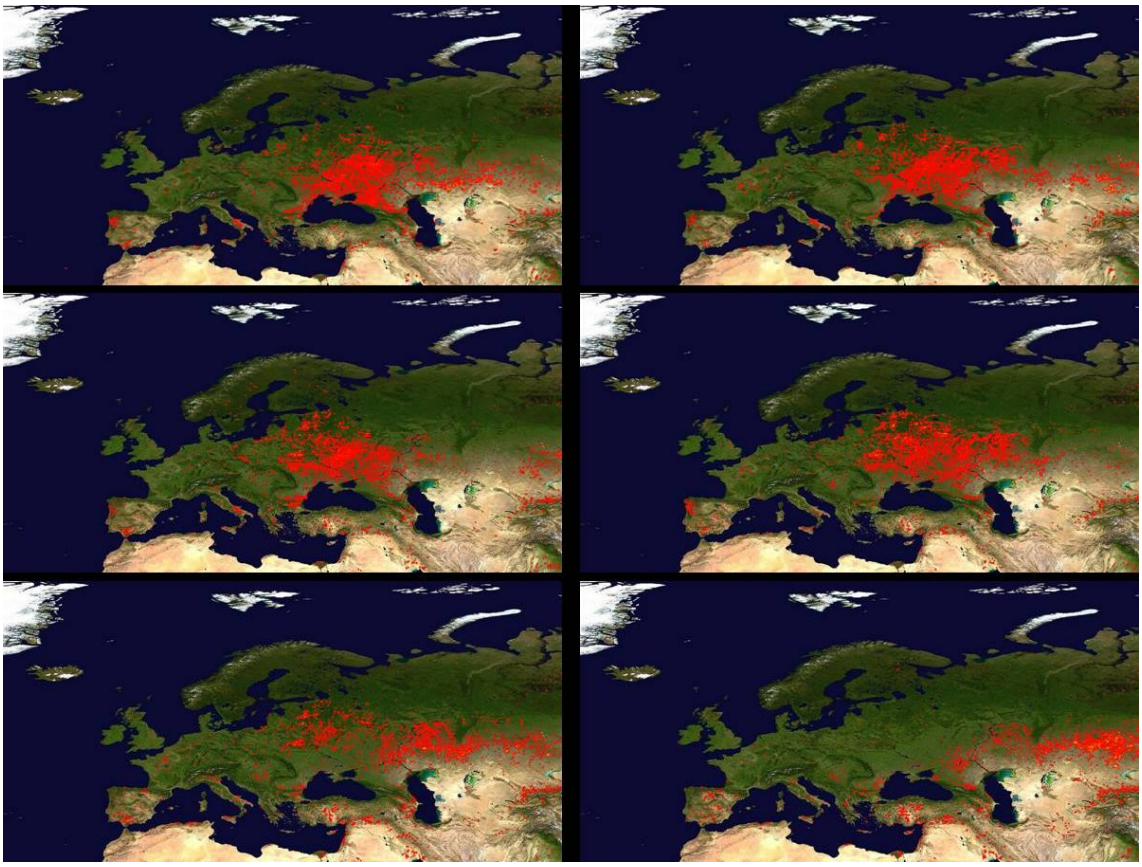


Figure 4.14 : Cartes présentant la localisation des incendies détectés par MODIS et cumulés sur 10 jours sur une partie du continent Eurasien durant l'été 2002 (Haut-gauche : 30/07 – 08/08, haut-droite : 09/08 – 18/08, milieu-gauche : 19/08 – 28/08, milieu-droite : 29/08 – 07/09, bas-gauche : 08/09 – 17/09, bas-droite : 18/09 – 27-09).

4.5.2 – Données et méthodes

4.5.2.1 – Les mesures de radioactivité

Pour caractériser au mieux cet évènement et son impact sur les niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols ambiants, les mesures réalisées par l'ensemble des réseaux européens de surveillance ou d'observation de la radioactivité portée par les aérosols ambiants sont récupérées et analysées. La table 4.1 liste les différents réseaux européens participant à cette étude. L'emplacement des 129 stations retenues, et réparties dans 23 pays, est représenté dans la figure 4.15. Comme il n'existe aucune harmonisation des réseaux de mesures des niveaux d'activité dans les aérosols à l'échelle de l'Europe, les caractéristiques d'échantillonnage et de métrologie diffèrent pour chaque réseau. Ainsi, la durée des prélèvements varie entre la journée et le mois, réduisant d'autant l'influence d'un évènement important sur les niveaux d'activité résultants pour les périodes de prélèvements les plus longues. Dans la majorité des cas, les niveaux d'activité en ^{137}Cs sont moyennés sur une période de 7 jours. Afin de suivre l'évolution des niveaux d'activité en ^{137}Cs à l'échelle de l'Europe au cours de cet évènement, nous avons donc choisi de cartographier ces mesures avec un pas de temps de 7 jours plutôt que de les représenter sous forme graphique. Bien qu'il y ait une perte d'informations sur la résolution temporelle de certaines mesures, cette représentation permet une visualisation directe de l'évolution spatiale des niveaux d'activité. Pour la métrologie, les valeurs des limites de détection ainsi que les erreurs associées à la mesure varient significativement d'un réseau à l'autre, dues à la précision des détecteurs utilisés, au temps d'exposition, à la concentration d'autres radionucléides pouvant masquer des pics d'énergies lors de l'analyse des spectres, au niveau de protection contre les rayonnements cosmiques et à l'ensemble des paramètres métrologiques. Gardant ces limites à l'esprit, une compilation de l'ensemble des données est réalisée pour étudier l'influence de cet évènement à l'échelle continentale et établir si les augmentations des niveaux d'activité observées en France se retrouvent sur l'ensemble du continent jusqu'aux régions incendiées.

Pays	Organisation	Nombre de stations	Durée d'échantillonnage
Allemagne	BfS – DWD - PTB	31	7 jours
Autriche	AGES	10	7 jours
Belgique	AFCN	2	1 mois
Biélorussie	-	4	1 mois
Danemark	RNL	1	7 jours
Espagne	CIEMAT	5	7 jours
Estonie	ERPC	3	7 jours
Finlande	STUK	4	7 jours
France	IRSN	7	5-10 jours
Hongrie	KFKI / OOSKI	1	10 jours
Irlande	RPII	1	1 mois
Italie	ANPA	11	7 jours
Lituanie	Institut of Physics	3	7 jours
Luxembourg	LRP / CU	1	7 jours
Norvège	NRPA	5	7 jours
Pays-Bas	RIVM	1	7 jours
Pologne	CLRP - IFJ	10	7 jours
Rép. Tchèque	NRPI / SURO	5	7 jours
Royaume-Unis	HPA / CRCE	2	15 jours
Serbie	Vinca Institue	2	1 mois
Slovénie	IJS	9	1 mois
Suède	FOI	7	7 jours
Suisse	OFSP	4	7 jours

Table 4.1 : Caractéristiques des réseaux européens de mesures du ^{137}Cs dans les aérosols.

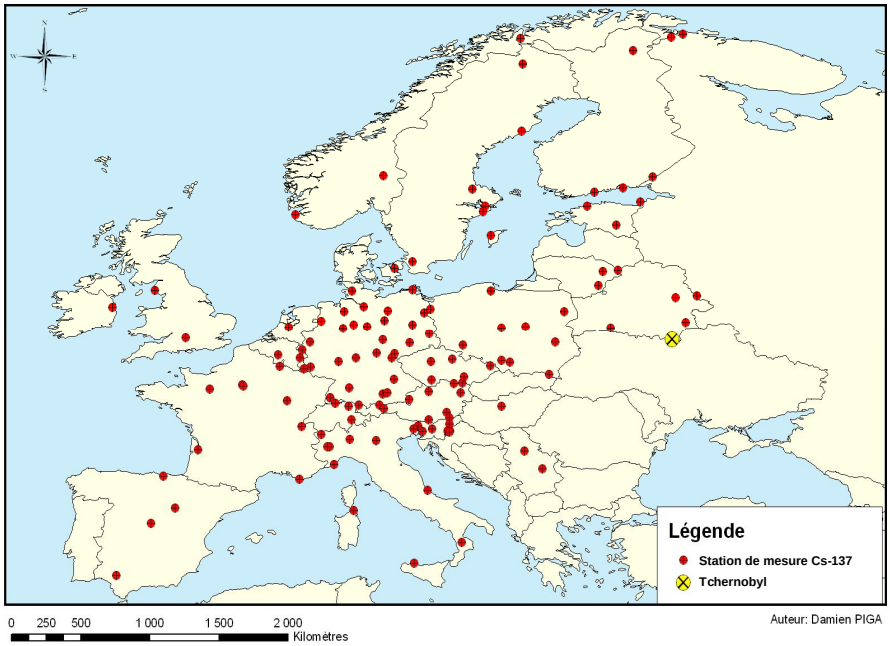


Figure 4.15 : Localisation des 129 stations de mesures des niveaux de ^{137}Cs dans les aérosols à l'échelle européenne.

4.5.2.2 – La simulation numérique

Afin de mettre en relation les variations des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols à l'échelle du continent européen et l'advection des panaches de fumées issus des incendies observés dans les territoires fortement impactés par les retombées de l'accident de Tchernobyl, la dispersion des particules émises par cet épisode est simulée en utilisant le modèle HYSPLIT v4.8 et la base de données météorologiques FNL, tous deux disponibles sur le serveur de l'Air Resources Laboratory de la NOAA.

4.5.2.2.1 – Les données d'entrée de la simulation

Le recensement des « points chauds » de la base de données MODIS est utilisé comme données d'entrée dans le modèle. Dans un premier temps, un domaine d'émission est délimité à partir des cartes de la figure 4.14 afin de prendre en compte un maximum d'incendies touchant les vastes étendues forestières dans l'est de l'Europe et correspondant à des dépôts surfaciques en ^{137}Cs importants. Le domaine retenu s'étende de 45°N à 60°N et de 20°E à 60°E (figure 4.16).

La base de données MODIS fournit une information sur la localisation, l'instant et plusieurs paramètres annexes relatifs à la détection de chaque « point chaud ». Dans le domaine défini précédemment, 62 757 « points chauds » sont recensés durant l'été 2002. Afin de limiter la simulation dans le temps et de couvrir également la période des augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs en France, celle-ci est bornée à la période où plus de 500 feux sont recensés quotidiennement dans la zone d'intérêt. La simulation des émissions des « points chauds » détectés démarre donc le 19 juillet, se termine le 15 septembre et totalise 56 370 incendies (figure 4.19). En comparant avec la figure 4.16, la restriction du domaine d'émission n'élimine que peu de « points chauds » qui ne se trouvent pas dans les territoires les plus fortement marqués par les retombées de l'accident de Tchernobyl.

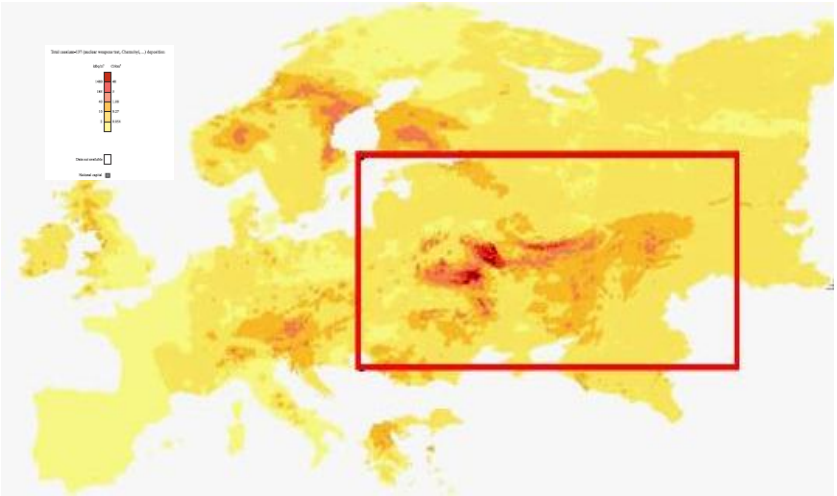


Figure 4.16 : Localisation du domaine pris en compte pour le recensement des incendies en Europe de l'Est durant l'été 2002 superposée à la carte des dépôts surfacique en ^{137}Cs à l'échelle de l'Europe d'après De Cort et al. (1998).

4.5.2.2.2 –Paramétrisation de la simulation

La détection des incendies étant réalisée à partir des mesures des satellites Aqua et Terra, la date et l'heure de détection des « points chauds » fournies par la base de données MODIS correspondent au passage du satellite au dessus de la région analysée et non au début réel de l'incendie. L'émission des incendies détectés au cours d'une journée est alors arbitrairement attribuée à 12 UTC de chaque jour de simulation.

Pour simplifier la simulation et réduire les temps de calculs, une somme journalière du nombre de « points chauds », détectés dans chaque pixel de résolution spatiale de 1° x 1°, est calculée avec l'hypothèse que chaque « point chaud » recensé est un incendie de taille et d'intensité similaire. Proportionnellement au nombre de « points chauds » recensés dans chacun des pixels, un nombre de particules est injecté dans le modèle chaque jour de simulation. La figure 4.18 présente une illustration du passage des données brutes issues de la base de données MODIS aux données analysées utilisées pour définir le fichier d'émissions dans le modèle HYSPLIT. Cette simplification spatiale réduit le temps de calcul mais conduit à une perte de résolution spatiale puisque les incendies émettent leurs particules avec une incertitude maximale de 0.5 °. Au regard des distances parcourues ensuite par ces particules pour atteindre les différentes stations de mesures du ^{137}Cs dans les différents pays européens ainsi que de l'ensemble des incertitudes liées à la simulation même de dispersion, cette simplification est acceptable.

La position des particules dispersées par le modèle est repérée sur une grille horizontale de résolution 0.5° x 0.5° sur le domaine allant de 35°N à 75°N et de 20°W à 70°E. La concentration des particules est moyennée sur une couche verticale de 500 m au dessus du sol. La simulation débute le 19 juillet et dure jusqu'au 15 septembre 2002, avec un intervalle de sortie moyen toutes les 3 heures et une nouvelle grille d'émission quotidienne à 12 UTC. Les résultats de la simulation tiennent compte des dépôts secs et humides et les particules sont artificiellement éliminées du domaine après 480 heures de simulation si celles-ci n'ont pas atteint le sol au préalable. Pour une comparaison avec les mesures journalières des réseaux de surveillance de la qualité de l'air, une moyenne des champs de concentrations journalière est réalisée. Un lissage sur les cartes résultantes est également appliqué au moyen du logiciel ArcGIS afin de permettre une meilleure visualisation.

Les résultats sont présentés avec une échelle de couleurs qualitative puisque l'objectif de cette simulation est simplement de matérialiser la dispersion des panaches de fumées et de les mettre en relation avec les variations des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs. La mise en place d'une simulation quantitative aurait nécessité, pour chaque incendie, la détermination de la quantité de combustible, de la nature du combustible, de facteurs d'émission associés, de l'intensité de la combustion, de son efficacité et d'autres paramètres. La plus-value apportée par la réalisation d'une telle simulation, au regard du travail nécessaire ainsi que des approximations inévitables, est apparue limitée et non opportune dans le cadre de cette étude. De plus, l'obtention de résultats qualitatifs suffit à caractériser cet évènement et à étudier son impact sur les variations des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols.

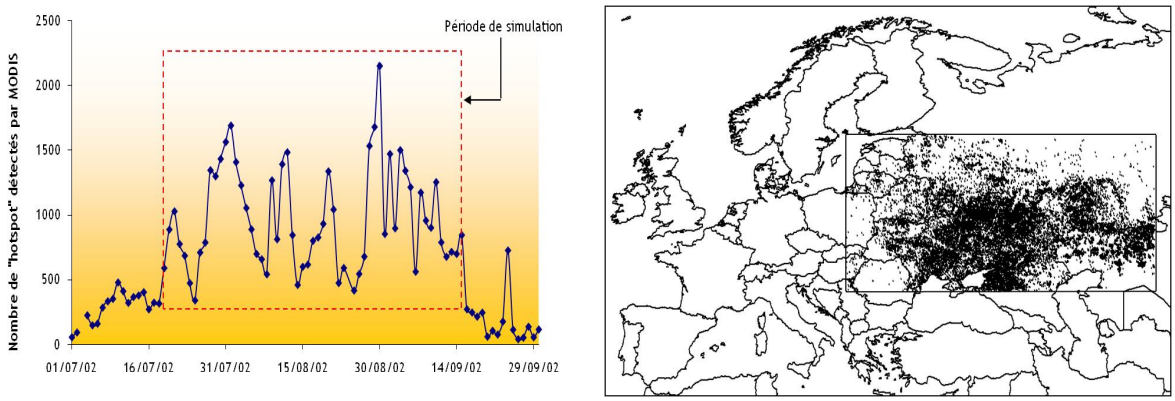


Figure 4.17 : Gauche : Evolution journalière du nombre de « points chauds » recensés par MODIS dans le domaine d'intérêt entre le 1er juillet 2002 et le 30 septembre 2002. Droite : Localisation des 56 370 « points chauds » recensés par MODIS du 19 juillet au 15 septembre 2002 dans le domaine d'intérêt.

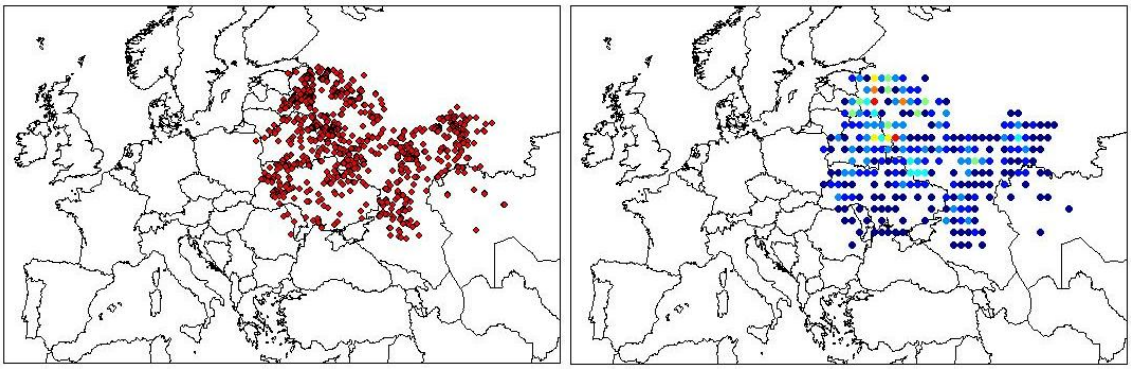


Figure 4.18 : Droite : Localisation de 2 147 « points chauds » par MODIS le 30 août 2002. Gauche : Somme journalière sur une grille de 1°x1° avec une échelle de couleur proportionnelle au nombre de « points chauds » sommés. Le fichier d'émission ne comporte plus que 248 points d'émission.

4.5.2.3 – Les mesures d'empoussièrement

Pour valider les résultats de cette simulation, les niveaux d'empoussièrement dans les basses couches de l'atmosphère sont utilisés. Bien que la mesure des $PM_{2.5}$ apparaisse plus pertinente pour tracer la dispersion des panaches de fumées, la densité des stations n'est pas suffisante pour suivre son évolution. En raison de leur nombre et de leur répartition sur le territoire européen, les mesures des PM_{10} sont alors préférées, sachant qu'une augmentation des $PM_{2.5}$ entraine inévitablement une augmentation des PM_{10}. Ainsi, les mesures de PM_{10} réalisées par les différents réseaux de surveillance de la qualité de l'air à l'échelle européenne sont récupérées, essentiellement par la base de données AirBase de l'EIONET présentée précédemment et également par une collaboration avec différents réseaux externes à cette base. Les contributeurs à cette étude pour les mesures de PM_{10} sont indiqués dans la table 4.2. La localisation de l'ensemble des stations est donnée dans la figure 4.19. Au total, les mesures de 895 stations réparties dans vingt pays sont utilisées.

Pays	Organisation	Nombre de stations
Autriche	Austrian Federal Environment Agency and the provincial governments of Lower Austria, Upper Austria, Burgenland and Styria	9
Belgique	AirBase	28
Bulgarie	AirBase	7
République-Tchèque	AirBase	53
Danemark	Department of Atmospheric Environment /National Environmental Research Institut / AirBase	9
Estonie	AirBase	4
Finlande	AirBase	24
France	French Environment and Energy Management Agency (ADEME)	298
Allemagne	The Monitoring Network of the federal Environment Agency (Umweltbundesamt-UBA)	267
Grèce	AirBase	14
Hongrie	AirBase	1
Italie	AirBase	14
Lettonie	AirBase	1
Norvège	AirBase	2
Pays-Bas	Dutch National Air Quality Monitoring Network / National Institute of Public Health and environment RIVM	19
Pologne	ARMAAG +Airbase	40
Slovaquie	Slovak Hydrometeorological Institute - SHMI	20
Slovenie	AirBase	7
Suède	IVL Swedish Environmental Research Institute	6
Suisse	Swiss National Air Pollution Monitoring Network - NABEL (FOEN and EMPA) / MeteoSwiss	13
Royaume-Unis	AirBase	59

Table 4.2 : Présentation des réseaux européens de surveillance de la qualité de l'air.

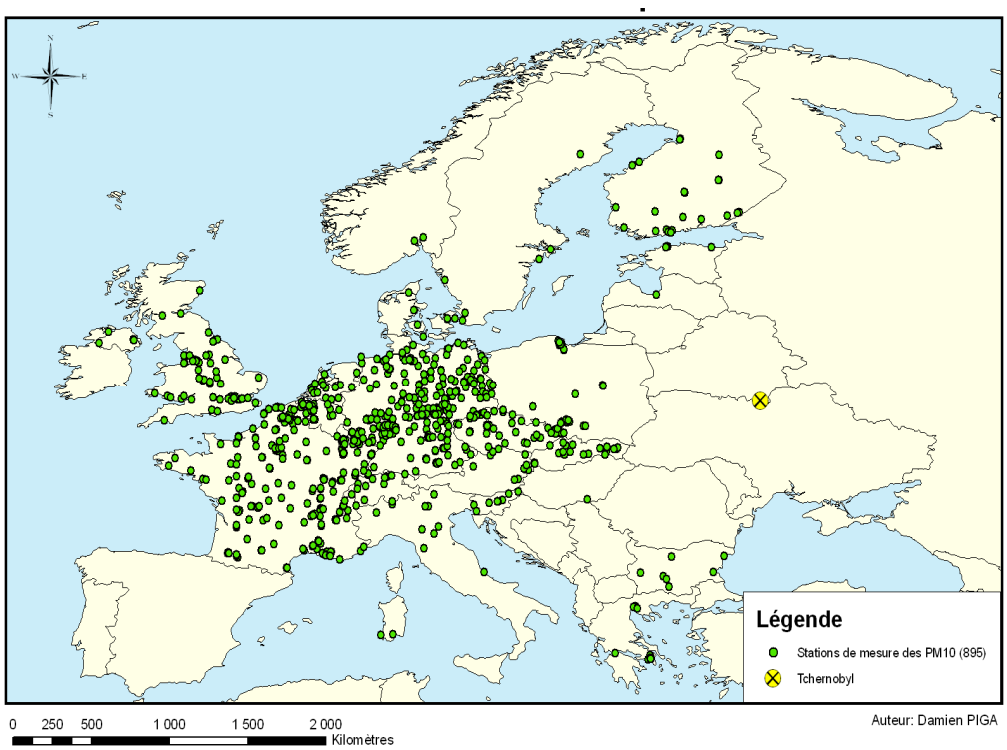


Figure 4.19 : Localisation des stations de mesure des PM_{10} utilisées dans cette étude.

4.5.3 – Résultats

Le début du mois d'août se caractérise par une situation radioécologique classique pour la partie occidentale de l'Europe avec des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs dans les aérosols inférieurs à 1 µBq.m^{-3}, ou inférieurs aux limites de détection. Pour la partie plus à l'est de l'Europe, les niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs présentent des augmentations en comparaison des niveaux moyens. Les résultats de la simulation montrent que les panaches de fumées restent principalement confinés au-dessus des régions sources et sur les Pays Baltes, avec de brèves intrusions vers l'ouest de l'Europe, jusqu'à la frontière entre la Pologne et l'Allemagne. Ainsi, le séjour prolongé des panaches de fumées au dessus des régions de l'est et du nord de l'Europe participe aux augmentations des niveaux d'activité volumiques en ^{137}Cs observées tandis que la brièveté des intrusions sur les autres régions n'est pas suffisante pour entrainer une augmentation significative des niveaux d'activité, moyennés sur une période de 7 jours.

La situation évolue sensiblement lors de la semaine du 19 au 26 août 2002 avec un système dépressionnaire en provenance de la côte atlantique qui bloque la progression des panaches vers l'ouest de l'Europe au niveau de la frontière allemande. Le séjour prolongé des panaches sur le centre de l'Europe y entraine des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs en augmentation, en comparaison des semaines précédentes, ainsi que des niveaux de PM_{10} journaliers supérieurs à 50 µg.m^{-3}, confirmant l'influence des panaches dans les basses couches de l'atmosphère.

La semaine du 26 août au 2 septembre 2002 correspond à la première augmentation significative en ^{137}Cs, observée sur la figure 4.11, au niveau des stations OPERA de Charleville-Mézières, Orsay et Dijon. Cette augmentation se retrouve sur une majeure partie de l'Europe (figure 4.20). A la différence des semaines précédentes, les stations suisses, belges, allemandes et hollandaises présentent des niveaux d'activité supérieurs aux limites de détection, et au-delà de 2 µBq.m^{-3} pour la majorité d'entre elles. Sur l'ensemble de l'Europe, un gradient de concentration orienté en direction des régions où se produisent les incendies est observé. Le nord du continent présente également des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs plus importants que les régions plus méridionales.

Bien que des effets locaux ou des évènements concomitants au transport des fumées puissent influencer les mesures des PM_{10}, les résultats de la simulation montrent que le passage des panaches entraine des augmentations des niveaux d'empoussièrement (figure 4.21). Cette concordance confirme d'une part les résultats mêmes de la simulation numérique et d'autre part l'influence du passage des panaches de fumées sur la composition des aérosols dans les basses couches et les mesures réalisées au niveau du sol.

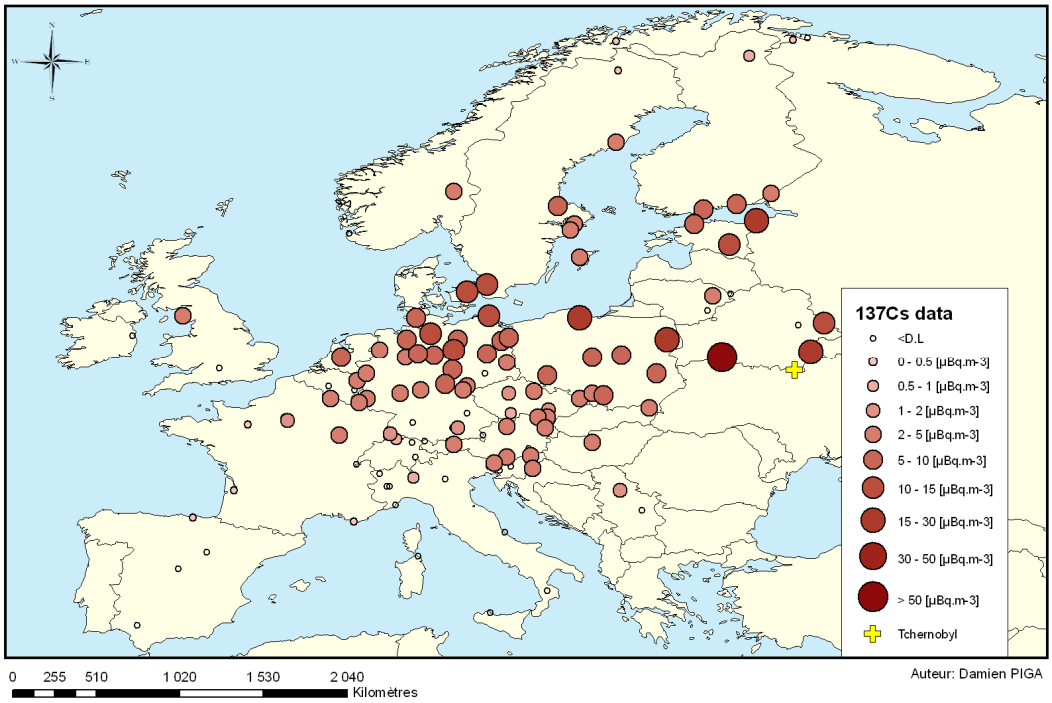


Figure 4.20 : Activité volumique du ^{137}Cs dans les aérosols entre le 26 août et le 2 septembre 2002.

Les résultats de simulation, appuyés par les mesures de PM_{10}, montrent que la situation météorologique à l'échelle synoptique permet une avancée des panaches sur la partie ouest de l'Europe, en raison d'un système dépressionnaire centré sur la mer Ligure et le Golfe de Gênes. Ainsi, les panaches de fumées impactent l'ouest de l'Europe par le nord en commençant par les côtes de la Mer du Nord avant de redescendre et de se disperser vers le sud au cours des jours suivants (figure 4.21). Les augmentations significatives des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs sur la partie occidentale de l'Europe correspondent donc à l'advection des panaches de fumées durant la période de prélèvement, avec des concentrations et des temps de résidence plus importants sur les régions du nord, associés à des augmentations des niveaux d'activité plus importantes .

A partir du 1er septembre 2002, la descente d'un front froid repousse les panaches de fumées vers l'est de l'Europe mettant fin à ce premier épisode de transport longue distance sur l'ouest de l'Europe et la France (figure 4.21).

La tendance observée en fin de semaine 35 se confirme durant la période suivante, avec l'advection d'une masse d'air océanique sur l'ensemble de l'Europe occidentale. Ainsi, les panaches de fumées restent bloqués sur la partie orientale de l'Europe durant toute la période du 2 au 9 septembre 2002 (figure 4.23). Il en résulte alors des diminutions significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs au-delà sur la partie occidentale (figure 4.22). Au niveau de la partie centrale et orientale de l'Europe, où les panaches de fumées présentent toujours des concentrations importantes, les niveaux d'activité en ^{137}Cs restent élevés, comme en Pologne, en Biélorussie ou encore en Lituanie.

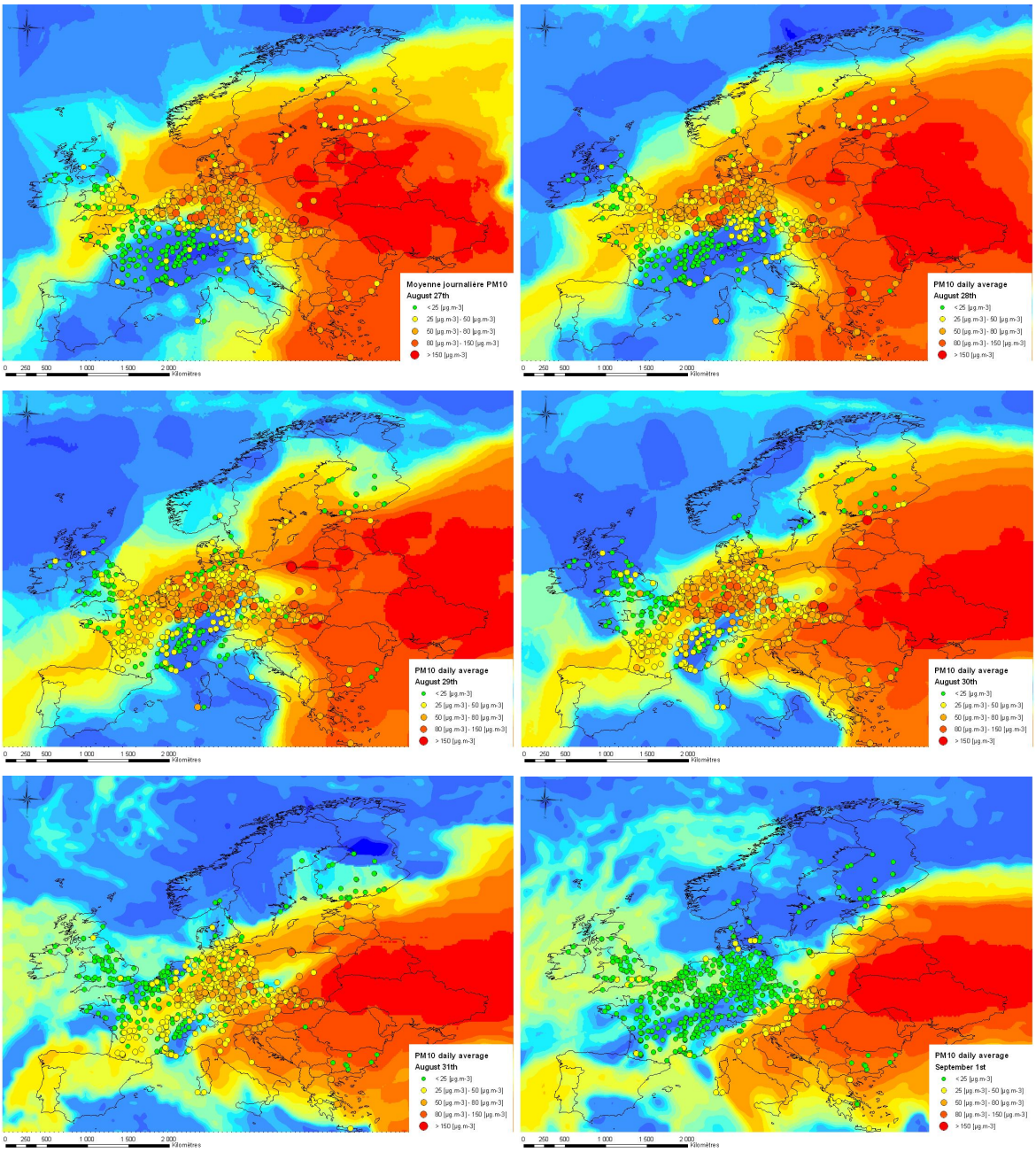


Figure 4.21 : Fond de carte : résultats de la simulation de la dispersion des panaches de fumées moyennés sur la journée. Les couleurs les plus chaudes symbolisent les plus fortes concentrations des panaches de fumées. Cercles de couleurs : mesures journalières des PM_{10}. Haut-gauche : 27 août 2002. Haut droite : 28 août. Milieu-gauche : 29 août. Milieu-droite : 30 août. Bas-gauche : 31 août. Bas-droite : 1er septembre 2002.

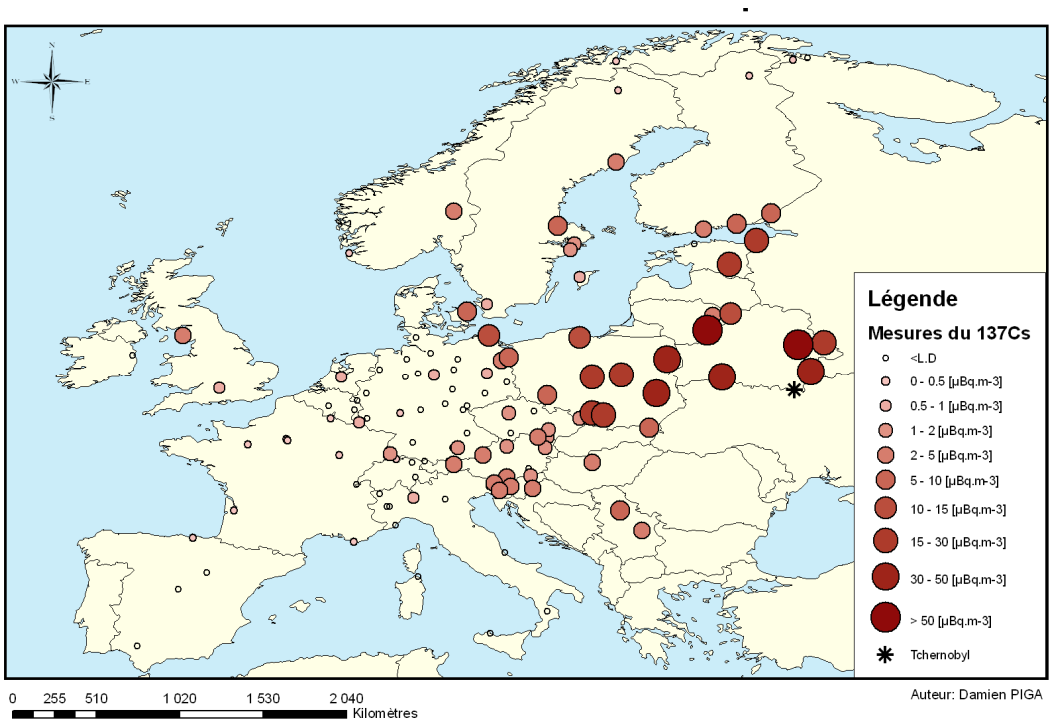


Figure 4.22 : Activité volumique du ^{137}Cs dans les aérosols entre le 2 et le 9 septembre 2002.

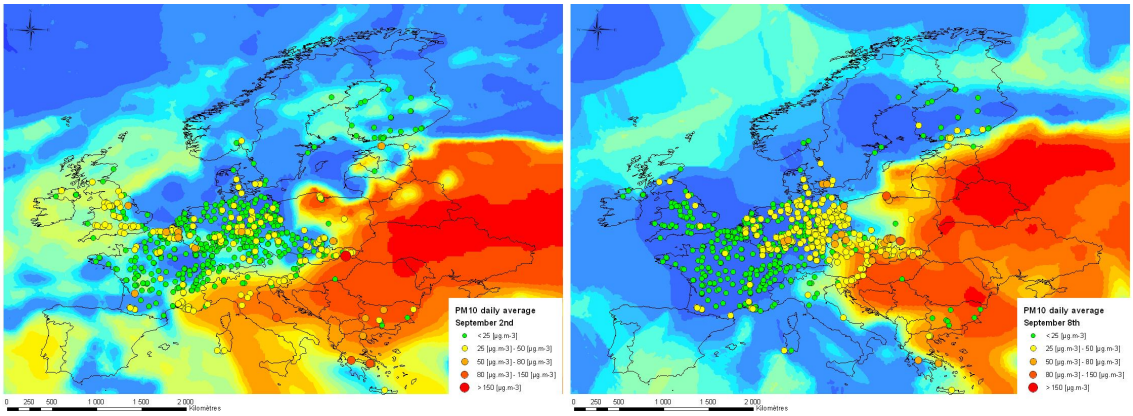


Figure 4.23 : Fond de carte : résultats de la simulation de la dispersion des panaches de fumées moyennés sur la journée. Cercles de couleurs : mesures journalières des PM_{10}. Gauche : 2 septembre 2002. Droite : 8 septembre 2002.

La semaine du 9 au 16 septembre correspond à la seconde augmentation significative des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs (cf. figure 4.11). A l'échelle de l'Europe, la figure 4.24 montre que la tendance constatée en France se retrouve sur l'ensemble du continent, avec des niveaux en ^{137}Cs relativement homogènes sur toute la partie occidentale. La dispersion des panaches pour cette période (figure 4.25) montre que leur avancée s'effectue plus transversalement en direction de l'ouest, en raison d'un anticyclone sur la Scandinavie. Au cours de la semaine, une partie des panaches redescend vers le pourtour méditerranéen. En comparaison de la première advection, les niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs sont plus homogènes sur l'ouest de l'Europe et légèrement moins importants, dû à une concentration plus faible des panaches. En raison de la

dispersion des panaches vers l'ouest, les niveaux d'activité en ^{137}Cs observés sur l'est de l'Europe sont en légère diminution au regard de la semaine précédente, bien que ces niveaux d'activité restent importants en raison de la persistance des incendies dans ces régions.

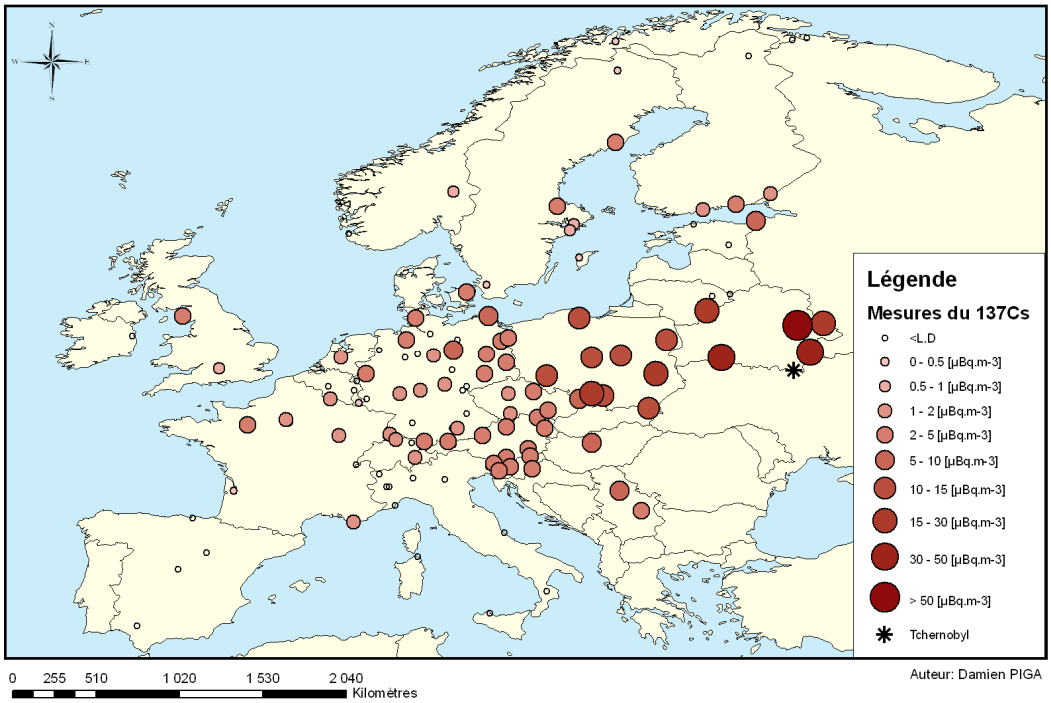


Figure 4.24 : Activité volumique du ^{137}Cs dans les aérosols entre le 9 et le 16 septembre 2002.

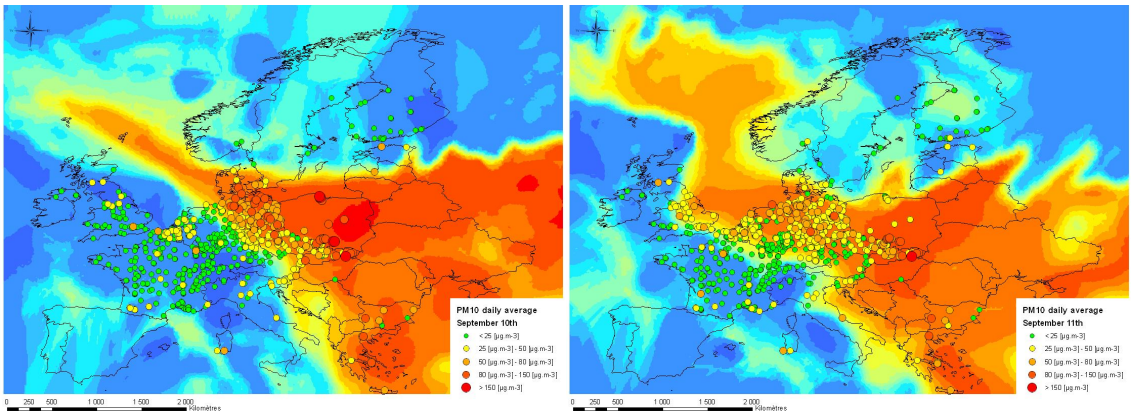


Figure 4.25 : Fond de carte : résultats de la simulation de la dispersion des panaches de fumées moyennés sur la journée. Cercles de couleurs : mesures journalières des PM_{10}. Gauche : 10 septembre 2002. Droite : 11 septembre 2002.

A partir du 16 septembre, le nombre d'incendies recensés dans la base de données MODIS diminue très nettement pour devenir inférieur à 500 « points chauds » journaliers détectés, en raison d'un système dépressionnaire sur la région et d'une pluviométrie conséquente. Les niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs diminuent dès lors significativement sur l'ensemble de l'Europe.

4.5.4 – Discussion

D'après la base de données MODIS, 62 757 « points chauds » ont été détectés dans le domaine d'intérêt, correspondant aux territoires fortement impactés par les retombées de l'accident de Tchernobyl, entre les mois de juillet et de septembre de l'année 2002. En faisant l'hypothèse que l'intégralité des pixels comportant un « point chaud » ait brûlé, ce nombre correspond à une surface maximale brûlée de 128 217 km^2, après avoir appliqué des facteurs de correction aux détections latérales (cf. 4.3.2). Cet ordre de grandeur est en accord avec les différentes estimations réalisées à partir d'observations au niveau du sol ou dérivées d'autres mesures satellites (Shukinin et al., 2004 ; Van der Werf et al., 2006 ; IFFN 2007 ; JRC 2008). La taille minimale d'un incendie détectable par MODIS étant de 100 m^2, la surface minimale brulée durant cette période est donc de 6.3 km^2. Cette valeur minimale est clairement une sous-estimation de la surface totale brûlée mais permet tout de même de fixer la plus basse valeur de l'estimation.

Les travaux consacrés à la redistribution du ^{137}Cs par les incendies de forêt montrent qu'une fraction, estimée entre 1% et 10% du ^{137}Cs disponible dans les régions brûlées, est remise en suspension lors de tels évènements (Amiro et al., 1996 ; Kashparov et al., 2000 ; Yoschenko et al., 2006 [a-b] ; Wotawa et al., 2006).

En raison de l'étendue spatiale de la zone d'investigation, soit près de 3.10^6 km^2, la connaissance exacte de la densité de dépôt de chaque parcelle de biomasse brûlée ne peut être envisagée. La contamination des sols dans les régions brûlées est alors considérée être dans l'intervalle de 2 à 10 $kBq.m^2$, tout en sachant qu'une partie des territoires présente des niveaux de contamination supérieurs (figure 1.14 et 4.16).

A partir de l'ensemble de ces estimations, contamination des sols, fraction de ^{137}Cs émise et étendue des surfaces brûlées, la quantité totale de ^{137}Cs remis en suspension lors de l'épisode des incendies en Europe de l'Est de l'été 2002 est calculée (table 4.3). La quantité totale remise en suspension par cet évènement est estimée entre 10^8 et 10^{14} Bq de ^{137}Cs. La considération de valeurs moyennes entre les différents paramètres utilisés pour réaliser ce calcul abouti à une quantité de l'ordre de 10^{12} – 10^{13} Bq de ^{137}Cs, comme indiqué dans la colonne centrale de la table 4.3.

D'après les estimations des surfaces brûlées chaque année en Europe ainsi qu'en Fédération de Russie, les quantités moyennes de ^{137}Cs remises en suspension dans ces territoires durant la saison des incendies sont estimées. Avec les mêmes hypothèses que précédemment et une moyenne annuelle de 10^4 à 10^5 km^2 de forêt brûlés en moyenne chaque année dans l'ensemble de ces régions (Shukinin et al., 2004 ; Van der Werf et al., 2006 ; IFFN 2007 ; JRC 2008) de l'ordre de 10^{13} Bq de ^{137}Cs seraient remis en suspension dans l'atmosphère chaque année par l'ensemble des incendies à l'échelle du continent. Ce résultat est en accord avec l'étude de Wotawa et al., (2006) qui estiment que de l'ordre du TBq de ^{137}Cs ont été émis lors des saisons 2003 et 2004 par les incendies en forêt boréale.

		Densité de dépôt ($Bq.m^{-2}$)					
		2 000		6 000		10 000	
Fraction émise		0.01	0.1	0.01	0.1	0.01	0.1
Surface brulée (km^2)	6.28	$1.26\ 10^{-4}$	$1.26\ 10^{-3}$	$3.77\ 10^{-4}$	$3.77\ 10^{-3}$	$6.28\ 10^{-4}$	$6.28\ 10^{-3}$
	64 111	1.28	12.8	3.85	38.5	6.28	62.8
	128 217	2.56	25.6	7.69	76.9	12.8	128

Table 4.3 : Estimation de la quantité totale de ^{137}Cs exprimée en TBq (10^{12} Bq) remis en suspension dans l'atmosphère par les incendies de 2002 en Europe de l'Est en fonction des différentes estimations de la contamination des sols, de la fraction de ^{137}Cs émise et de l'étendue des surfaces brûlées.

Les résultats de la partie 2.4.6.3 ont montré que les processus engagés dans la rémanence atmosphérique du ^{137}Cs dans les territoires les plus marqués par les retombées de l'accident de Tchernobyl se caractérisent par la remise en suspension de particules à l'activité massique en ^{137}Cs importante. Lors de cet évènement la mesure de l'activité massique en ^{137}Cs n'est pas disponible mais peut être estimée par le rapport des niveaux d'activité entre le ^{137}Cs et le ^{40}K (cf. 2.4.6.3). Lors des deux périodes d'influence des panaches sur les mesures du réseau OPERA, les valeurs de ce rapport présentent des augmentations significatives en comparaison du niveau moyen (figure 4.26). A partir du rapport moyen sur l'ensemble du réseau OPERA et de la relation de la partie 2.4.6.3, l'activité massique en ^{137}Cs est estimée à 25.8 et 25.6 $Bq.kg^{-1}$ respectivement pour chacune des deux périodes d'influence des panaches. Cette valeur moyenne est significativement plus importante que la moyenne du réseau OPERA depuis 2007 (8.7 $Bq.kg^{-1}$) et confirme ainsi l'identification de ce processus dans les territoires fortement impactés par les retombées de l'accident de Tchernobyl.

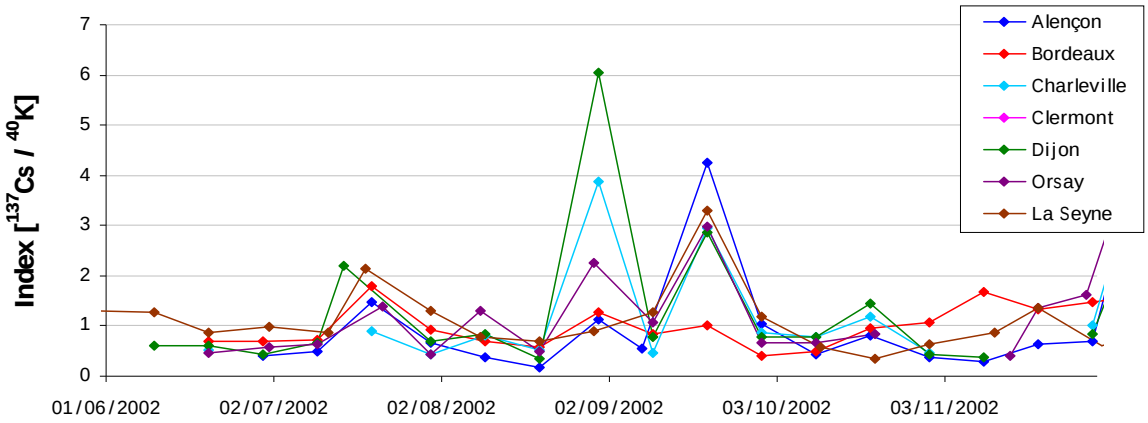


Figure 4.26 : Rapport des niveaux d'activité entre le ^{137}Cs et le ^{40}K dans les aérosols entre le 1er juin 2002 et 30 novembre 2002 pour chacune des stations du réseau OPERA pondérés par les moyennes respectives sur la période d'étude.

4.6 – Etude complémentaire d'autres évènements

4.6.1 – Incendies en Europe de l'est

Au cours du printemps 2002, plusieurs incendies sont également détectés par les observations satellites dans les régions fortement impactées par les retombées de l'accident de Tchernobyl (figure 4.27). Au cours de cette période, les stations du réseau OPERA présentent des augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols et notamment les stations du nord de la France comme Charleville-Mézières, Orsay et Alençon (figure 4.28). A ces augmentations des niveaux d'activité sont également associées des augmentations générales des concentrations en PM_{10}, dépassant pour un certain nombre les 50 $\mu g.m^{-3}$ journaliers (figure 4.29). Ces augmentations résultent principalement d'une augmentation de la concentration des plus fines particules. Pour compléter cette caractérisation, le tracé de multiples rétro-trajectoires est effectué (figure 4.30) pour mettre en relation les incendies recensés et les augmentations des niveaux d'activité. Ce type de tracé représente l'ensemble des parcours des masses d'air arrivant sur la France, dont les points d'origine sont définis à partir d'une matrice de résolution spatiale de 1°x1°, allant du coin supérieur gauche de coordonnées (50°N ; -1°E) au coin inférieur droit de coordonnées (43°N ; 8°E), pour les journées du 5 avril et du 10 avril 2002. Ces deux jours correspondent aux plus fortes augmentations des concentrations journalières en PM_{10} et $PM_{2.5}$ et intégrent la décade de mesure des augmentations significatives des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs. Durant ces périodes de mesures, l'ensemble du territoire français est donc sous l'influence de masse d'air en provenance des régions incendiées.

L'ensemble de ces résultats montre que les incendies détectés à l'est de l'Europe sont à l'origine de la remise en suspension d'une quantité importante de particules porteuses de ^{137}Cs. En fonction des conditions météorologiques, ces particules sont transportées sur de grandes distances et entrainent des augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols à plusieurs milliers de kilomètres. Cet évènement s'accompagne également d'une augmentation des rapports des niveaux d'activité entre le ^{137}Cs et le ^{40}K, en accord avec les résultats de la partie 2.4.6.3.

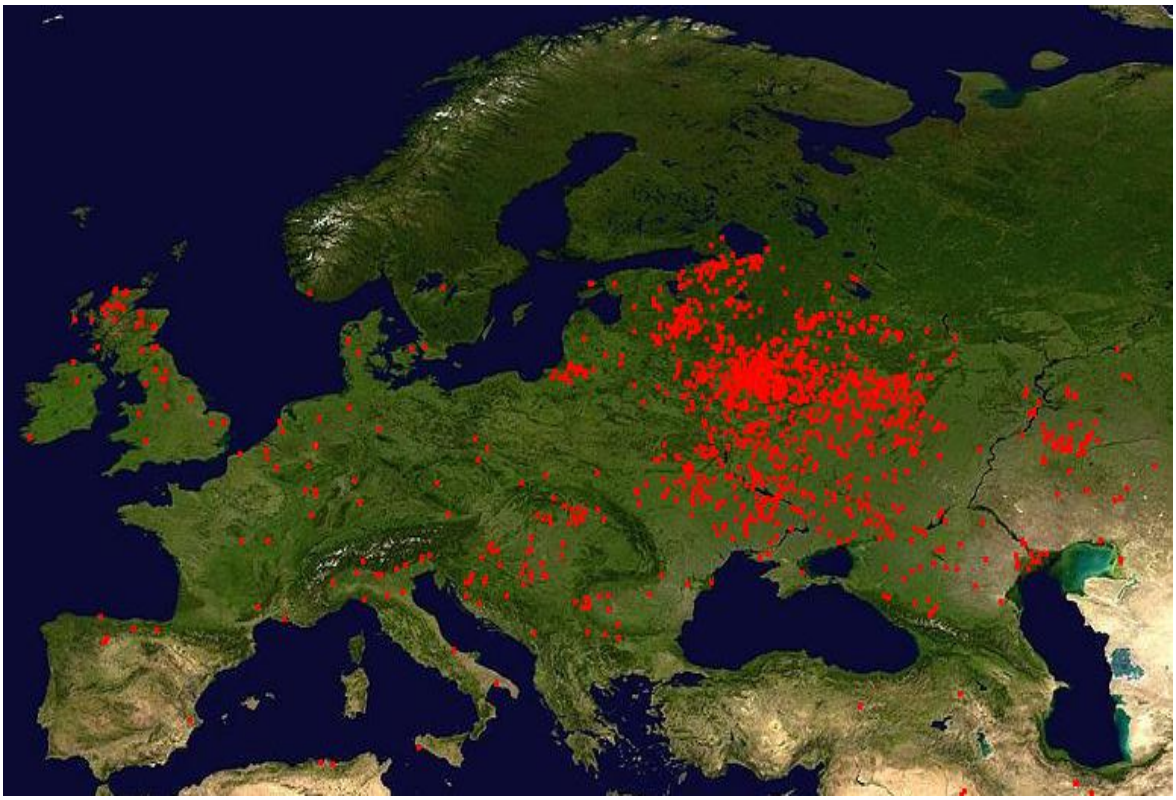


Figure 4.27 : Localisation des « points chauds » cumulés du 1er au 10 avril 2002, détectés par MODIS à l'est de l'Europe.

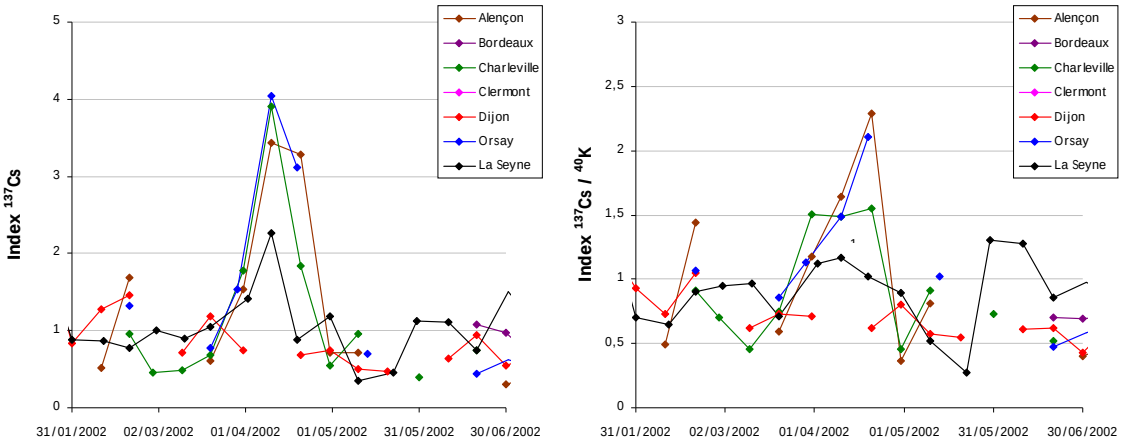


Figure 4.28 : Niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs (gauche) et rapport des niveaux d'activité entre le ^{137}Cs et le ^{40}K (droite) dans les aérosols entre le 1er février 2002 et 30 juin 2002 pour chacune des stations du réseau OPERA pondérés par les moyennes respectives sur la période d'étude.

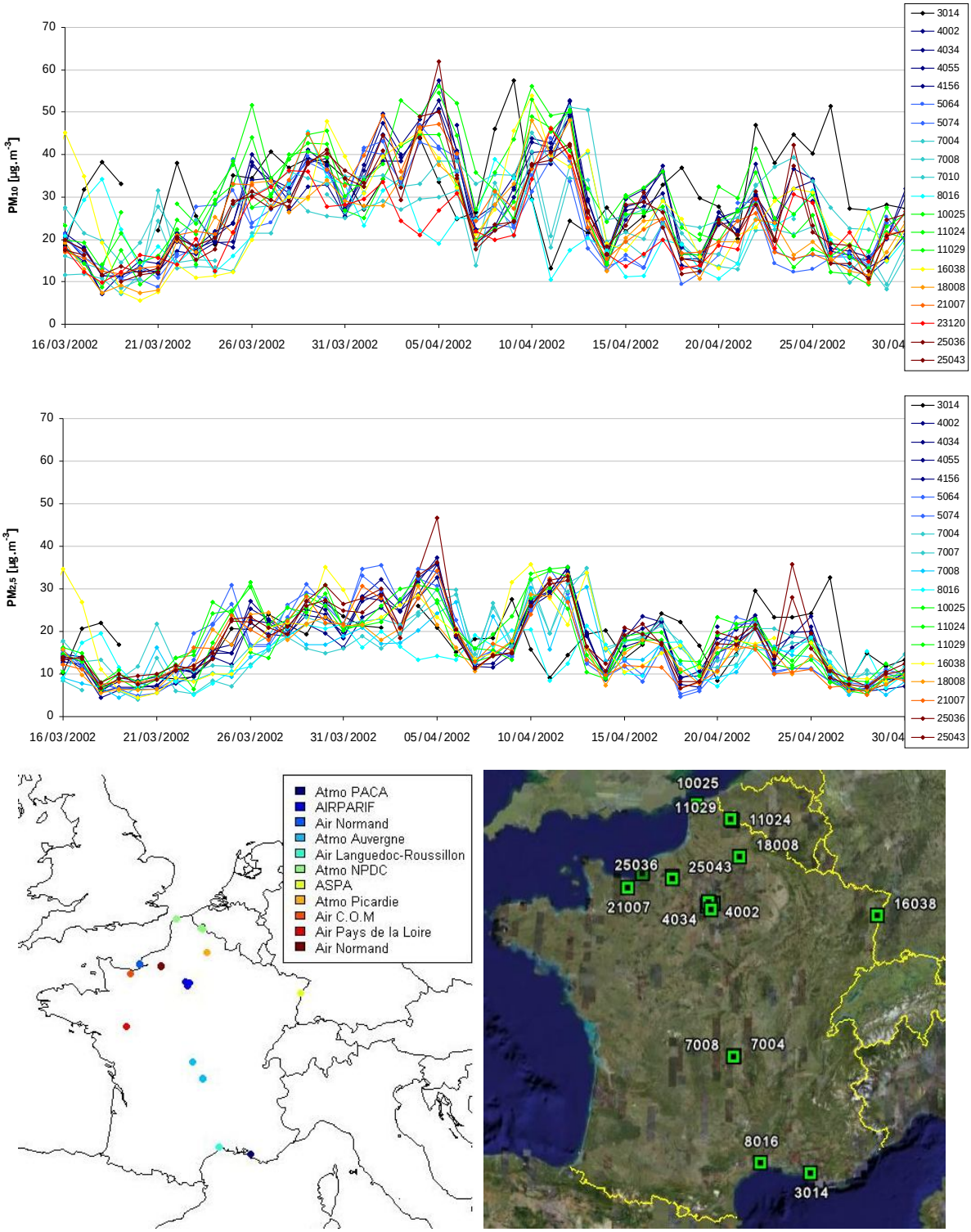


Figure 4.29 : Evolutions des concentrations journalières des PM_{10} (haut) et $PM_{2.5}$ (milieu) entre le 16 mars 2002 et le 30 avril 2002 pour plusieurs stations de surveillance de la qualité de l'air localisées suivant leur code et leur association d'appartenance sur les deux cartes du bas.

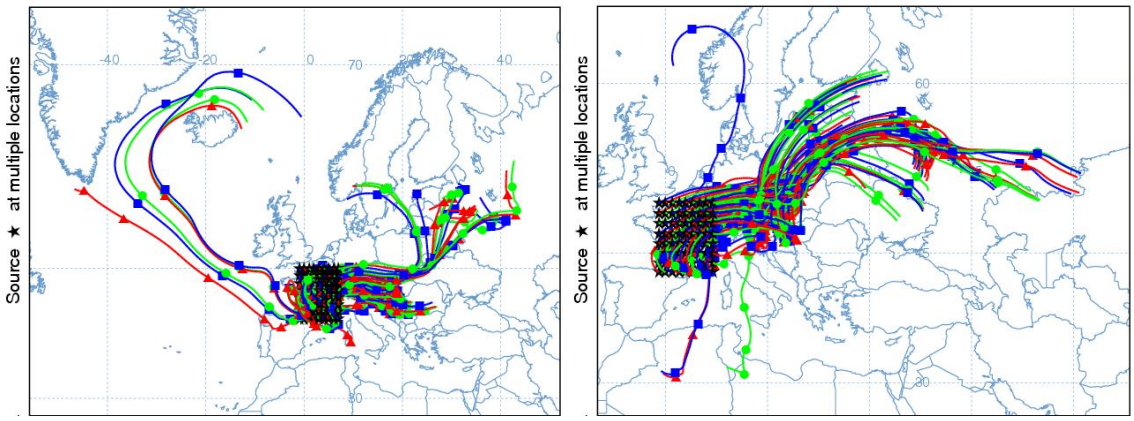


Figure 4.30 : Tracés de 120 heures de multiples rétro-trajectoires se terminant en France le 5 avril 2002 (gauche) et le 10 avril 2002 (droite).

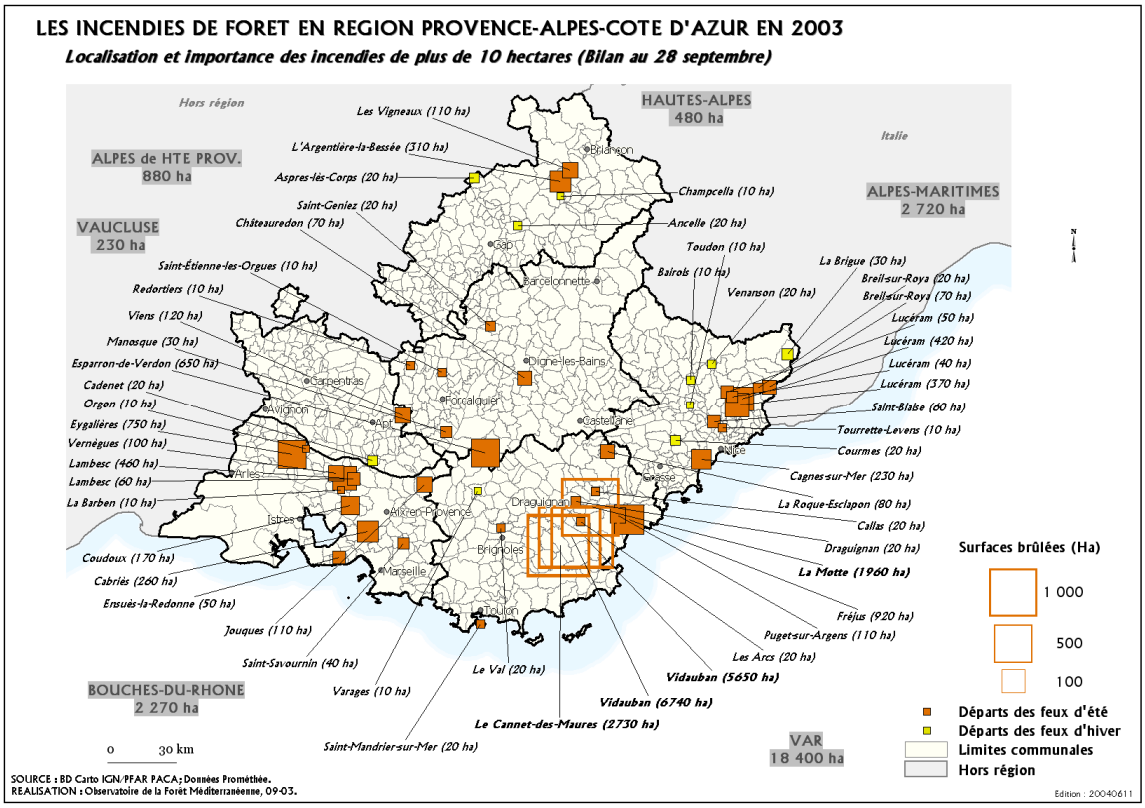


Figure 4.31 : Localisation des incendies de plus de 10 ha en région PACA durant l'été 2003.

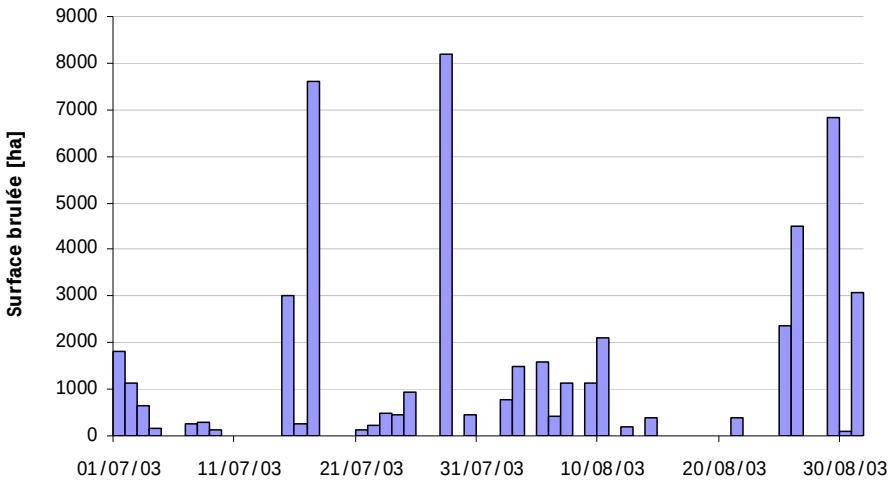


Figure 4.32 : Distribution temporelle des surfaces brulées par les incendies recensés en région PACA durant les mois de juillet et août 2003 (source : base de données Prométhée).

4.6.2 – Incendies en PACA et Corse

4.6.2.1 – Les incendies en PACA

Les étendues forestières de la région PACA sont vulnérables au risque incendie. La station de la Seyne-sur-Mer offre l'opportunité d'étudier la contribution des incendies dans la remise en suspension du ^{137}Cs, à une échelle plus locale. Bien que cette région présente des dépôts surfaciques en ^{137}Cs significativement moins importants que dans les territoires étudiés précédemment, la proximité des incendies justifie l'intérêt porté à ces évènements.

Conformément à la figure 4.3, l'année 2003 était une année exceptionnelle en termes de surfaces brûlées par les incendies en région PACA. La figure 4.31 en présente la distribution spatiale, tandis que la figure 4.32 présente la distribution temporelle des surfaces brûlées au cours de l'été 2003.

Afin d'établir une influence de ces incendies sur les prélèvements de la station de la Seyne-sur-Mer, l'ensemble des rétro-trajectoires sur la période allant du 1er juillet au 30 août 2003 a été étudié. Les masses d'air arrivant à cette station avaient soit une origine océanique, soit une origine locale. Dans les deux cas, ces masses d'air n'ont pas pu se charger en ^{137}Cs par le survol de régions propices au soulèvement de particules minérales, ou simplement par le survol de territoires marqués plus significativement par l'ensemble des retombées radioactives. Les mesures réalisées à cette station durant la période de l'été 2003 apparaissent alors être représentatives de l'environnement local de la station et permet ainsi d'étudier l'influence des incendies dans cette région sur la remise en suspension à l'échelle locale du ^{137}Cs dans le compartiment atmosphérique.

La figure 4.33 présentent les niveaux d'activité en ^{137}Cs et ^{40}K et le rapport des niveaux d'activité de ces deux radionucléides, tous trois pondérés par leur moyenne respective sur la période d'étude. Durant la période allant du début du mois de juillet à la fin du mois d'août, soit la

période correspondant au maximum du nombre d'incendies et de surfaces brûlées, les mesures effectuées à la station de la Seyne-sur-Mer sont très proches de leur moyenne. Le niveau d'activité en ^{137}Cs ne présente donc aucune augmentation significative permettant de mettre en évidence une influence des incendies dans la région.

Pour cette même période, les mesures décadaires de ^{40}K ainsi que les mesures journalières de PM_{10} réalisées par Atmo PACA à proximité de la station OPERA ne montrent pas d'augmentations importantes, ne permettant pas de caractériser l'influence des panaches de fumées sur la composition des aérosols prélevés.

Dans cette région, le développement d'incendies de grandes ampleurs est la conséquence directe d'un vent important, favorisant alors la dispersion des particules mises en suspension. La figure 4.34 montre ainsi que les jours correspondants aux surfaces brûlées les plus importantes, qui se trouvent être dans le Var (figure 4.31), correspondent également à des concentrations en PM_{10} égales ou inférieures à la moyenne de l'année 2003. Ces deux observations ont pour cause commune l'intensité du vent.

En conclusion, les incendies dans la région PACA participent à la rémanence du ^{137}Cs dans l'atmosphère. Toutefois, en raison des conditions de dispersion atmosphériques associées à ces évènements, nous ne pouvons pas quantifier leur contribution. Au final, ces incendies locaux ne participent pas aux augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs pour la station de la Seyne-sur-Mer.

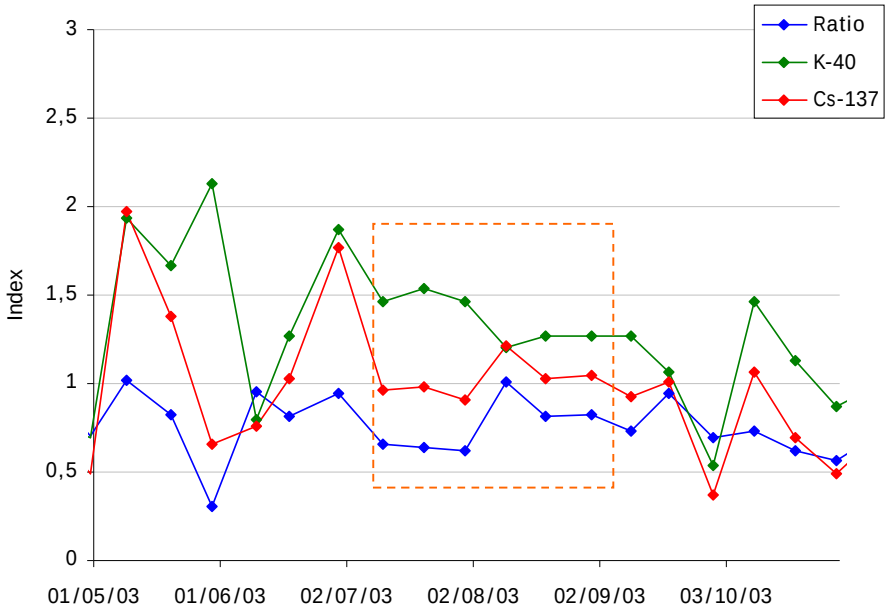


Figure 4.33 : Niveaux d'activité en ^{137}Cs (rouge), et ^{40}K (vert) et rapport des niveaux d'activité de ces deux radionucléides (bleu) entre le mois de mai et d'octobre 2003 tous trois pondérés par leur moyenne respective sur la période d'étude. La période de mesure allant du début du mois de juillet à la fin du mois d'août est matérialisée par le cadre en pointillés oranges.

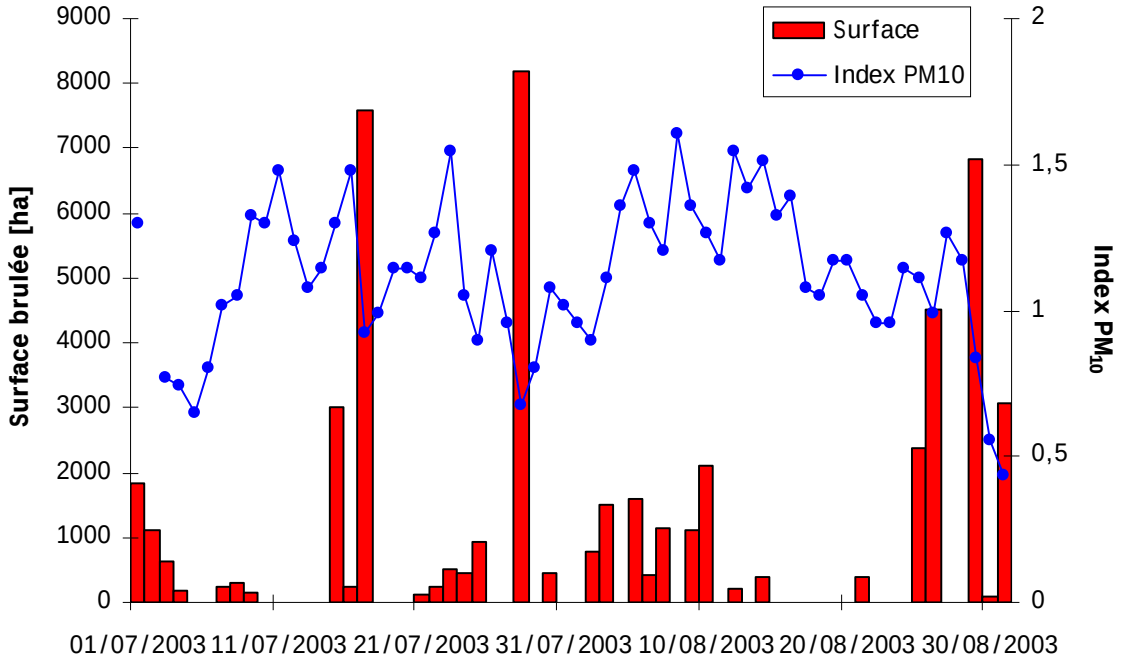


Figure 4.34 : Evolution temporelle des surfaces brûlées dans la région PACA (histogrammes rouges) et moyennes journalières de la concentration en PM_{10} au niveau de l'agglomération de Toulon (données d'Atmo PACA) pondérées par la moyenne annuelle de l'année 2003 (courbe bleue) durant l'été 2003.

4.6.2.2 – Les incendies en Corse

La Corse associe des dépôts surfaciques en ^{137}Cs importants à l'échelle du territoire français dus aux retombées de l'accident de Tchernobyl et une grande vulnérabilité au risque incendie. Durant cette même année 2003, 409 « points chauds » sont recensés par MODIS entre le mois de juin et le mois de septembre en Corse. Les simulations numériques de la dispersion des panaches de fumées, réalisées suivant la même méthode que celle décrite pour l'épisode de l'été 2002, montrent qu'une partie des panaches sont transportés sur le continent au cours de cette saison (figure 4.35). La journée du 23 juillet correspond notamment à une concentration journalière en PM_{10} de 50 $\mu g.m^{-3}$ pour la station de l'agglomération de Toulon. Bien que plusieurs périodes d'advection des panaches de fumées issus des incendies corses soient observées, celles-ci ne correspondent pas à des augmentations de l'activité volumique en ^{137}Cs dans les aérosols prélevés à la Seyne-sur-Mer. Les conclusions de cette partie sont alors identiques à la précédente.

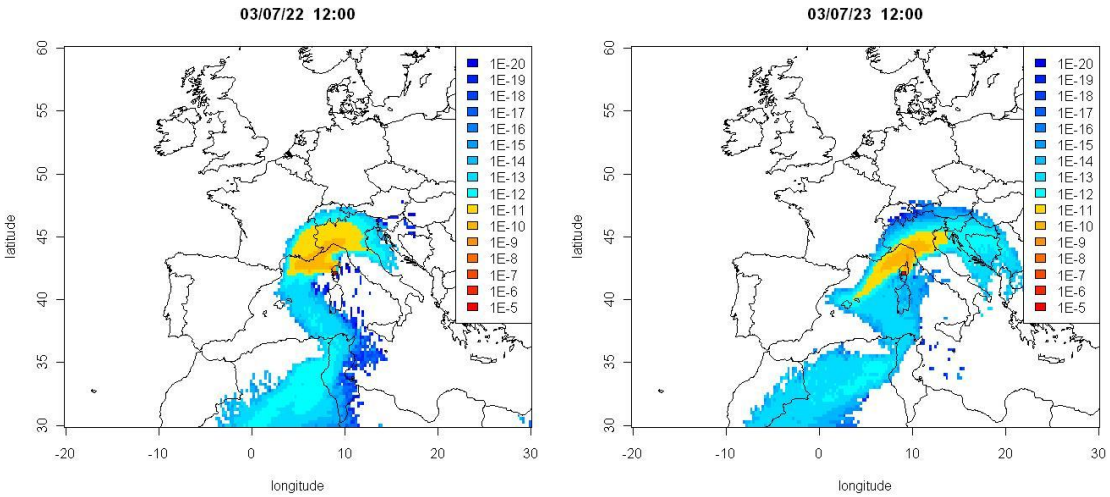


Figure 4.35 : Résultats bruts de la simulation de la dispersion des panaches de fumées le 22 juillet 2003 à 12 UTC (gauche) et le 23 juillet 2003 à 12 UTC (droite) à partir du recensement des incendies de MODIS en Corse pour l'été 2003.

4.6.3 – Incendies du pourtour méditerranéen

Les régions du pourtour méditerranéen, à l'image de la région PACA et de la Corse, sont régulièrement touchées par de grands incendies. Durant la période d'étude, nous pouvons citer par exemple les incendies portugais durant l'été 2003 et 2005 détruisant respectivement près de 430 000 et 300 000 ha de forêts (IFFN, 2006) ou encore les incendies grecques de l'été 2007 (figure 4.36). Cependant, aucun de ces évènements majeurs ne correspond à un épisode de transport longue-distance jusqu'au territoire français, permettant d'étudier leur impact sur les variations des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols.

L'un des rares évènements majeurs se produisant sur le pourtour méditerranéen donnant lieu à un transport vers le territoire français est l'épisode touchant le nord de l'Algérie durant l'été 2007. Entre le 1er juillet et le 31 août 2007, 5 398 « points chauds » sont recensés par MODIS le long de la côte algérienne. Les panaches de fumées, se dispersant au dessus de la Mer Méditerranée, peuvent alors être observés à partir des images satellites (figure 4.37). Le tracé des rétro-panaches des masses d'air arrivant à la station de la Seyne-sur-Mer montrent que le maximum de l'intensité de cet évènement correspond à l'advection de masses d'air vers le Sud de la France (figure 4.38). Dans le même temps, les mesures de PM_{10} effectuées sur l'agglomération toulonnaise présentent une augmentation de la concentration des particules en suspension (figure 4.38).

Figure 4.36 : Image satellite des panaches de fumées émis par les incendies grecques le 26 août 2007 à 16 UTC (Image Meteosat-9 HRV – EUMETSAT)

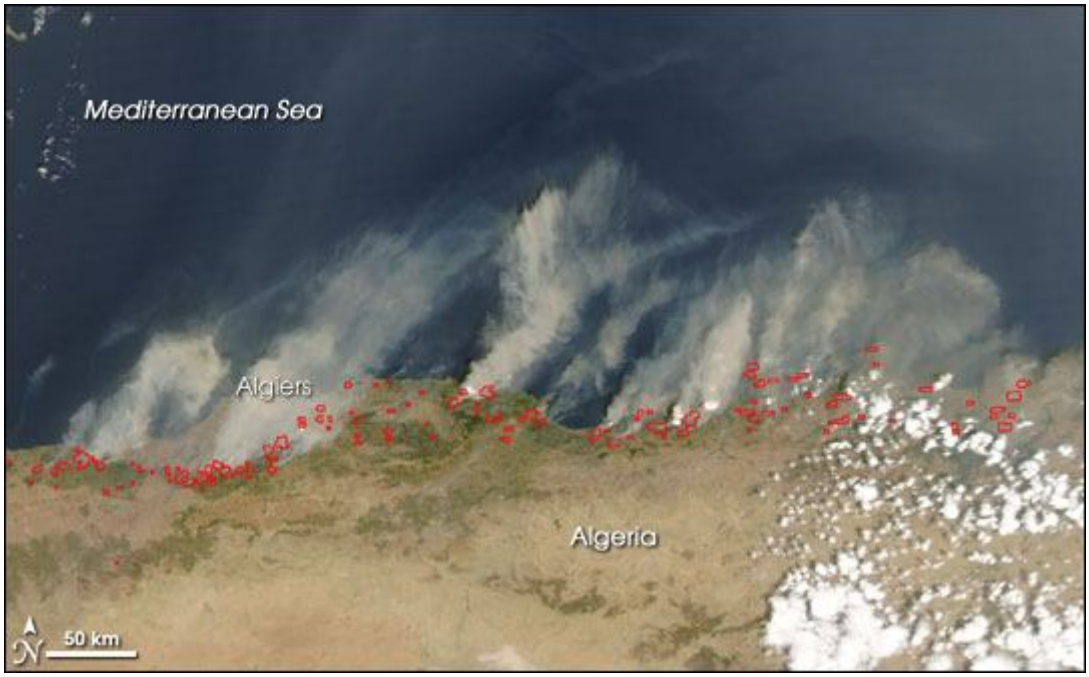


Figure 4.37 : Image du satellite Aqua des panaches de fumée au dessus de la Mer Méditerranée le 29 août 2007.

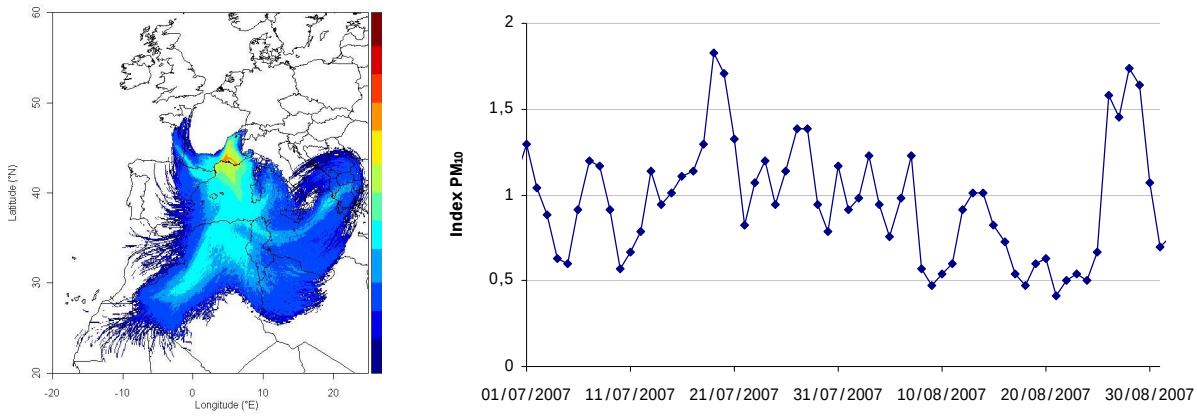


Figure 4.38 : Gauche : Tracé d'un rétro-panaches de 120 heures arrivant à la station de la Seyne-sur-Mer le 27 août 2007 à 12 UTC. L'échelle de couleur représente qualitativement la concentration du rétro-panache avec les plus fortes concentrations représentées par les couleurs les plus chaudes jusqu'aux couleurs les plus froides pour les plus faibles concentrations. Droite : Evolution temporelle de la concentration en PM_{10} du 1er juillet au 31 août à la station urbaine de l'agglomération de Toulon pondérée par la moyenne annuelle (données Atmo PACA).

La simulation de la dispersion des panaches d'incendies est réalisée à l'aide du modèle HYSPLIT et de la base de données MODIS avec une grille d'émission de résolution 0.1° x 0.1°, entre le 1er juillet et le 11 septembre 2007. La journée du 29 août 2007 montre l'advection de panaches de fumées sur le sud de la France (figure 4.39).

Ayant un flux de sud, l'advection des panaches de fumées s'accompagne toutefois d'un transport de poussières sahariennes, établi d'après les prévisions des modèles opérationnels préalablement décrits (figure 4.39). Ainsi, l'augmentation de la concentration en PM_{10} constatée sur l'agglomération de Toulon se trouve être vraisemblablement due au transport de particules minérales.

Bien que la période de prélèvement de la fin du mois d'août se caractérise par l'influence conjointe d'un transport de poussières sahariennes et de panaches de fumées, les niveaux d'activité en ^{137}Cs et ^{40}K correspondant ne présentent pas d'augmentations significatives au niveau de la station de la Seyne-sur-Mer (figure 4.40). Ainsi, même si les contributions respectives des deux évènements ne peuvent être distinguées, leur résultante ne modifiant pas significativement la valeur moyenne enregistrée en ^{137}Cs au niveau de cette station, il est alors possible de conclure que l'évènement d'advection de panaches de fumées issus des incendies sur la côte algérienne ne participe pas aux augmentations significatives du niveau d'activité en ^{137}Cs observées à la station de la Seyne-sur-Mer.

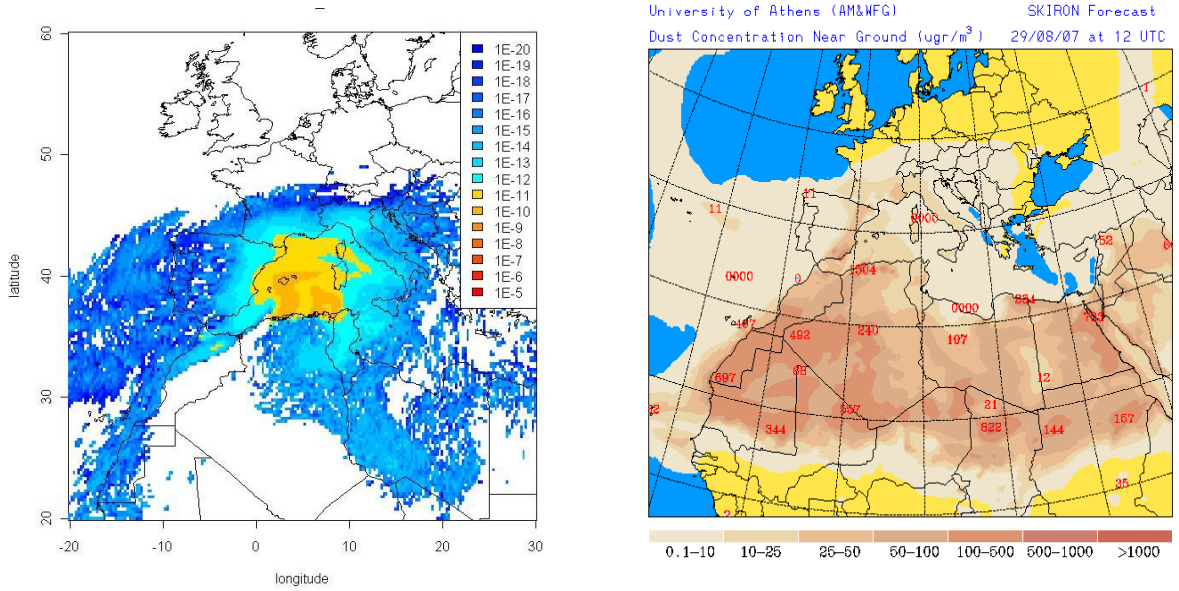


Figure 4.39 : Résultats bruts de la simulation de la dispersion des panaches de fumées des incendies en Algérie le 29 août 2007 à 12 UTC (gauche) et prévision de transport de poussières sahariennes le 29 août 2007 à 12 UTC en concentration au niveau du sol par le modèle SKIRON (droite).

Figure 4.40 : Niveaux d'activité en ^{137}Cs (rouge), et ^{40}K (vert) et rapport des niveaux d'activité de ces deux radionucléides (bleu) entre le mois de mai et d'octobre 2007 tous trois pondérés par leur moyenne respective sur la période d'étude. La période de mesure correspondante à l'advection conjointe des poussières sahariennes et des panaches de fumées est matérialisée par la flèche noire.

4.7 - Conclusion

Ce chapitre a mis en évidence et étudié le principal processus de remise en suspension du ^{137}Cs dans les territoires fortement impactés par les retombées de l'accident de Tchernobyl et ayant une influence sur les prélèvements du réseau OPERA.

La caractérisation de l'épisode d'incendies de forêt en 2002 dans l'est de l'Europe a mis en évidence que ces évènements peuvent être à l'origine d'un transport de particules porteuses de ce radionucléide sur de très grandes distances et entrainer des augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs à plusieurs milliers de kilomètres. Bien que les incendies dans ces régions aient une occurrence saisonnière, leur influence sur les niveaux d'activité en ^{137}Cs en France, va dépendre principalement des conditions météorologiques déterminant le transport des panaches.

Par exemple, les évènements de l'été 2010 en Russie n'ont eu aucune influence sur les prélèvements du réseau OPERA, en raison de la dispersion des panaches vers le nord et l'est de la Russie. Ces travaux ont permis à l'IRSN de communiquer sur les niveaux d'activité attendus dans le cas d'un transport des panaches vers les territoires européens (www.irsn.fr)

La contribution moyenne de ce processus sur le bruit de fond ambiant ne peut être estimée de la même manière que pour les évènements de transport de poussières sahariennes. En revanche, une estimation des quantités totales de ^{137}Cs remis en suspension à l'échelle de la saison sur l'ensemble des territoires présentant un marquage important en ^{137}Cs a été réalisée.

Il est ainsi estimé qu'annuellement, de l'ordre de 10^{13} Bq de ^{137}Cs sont remis en suspension dans l'atmosphère par l'ensemble des incendies en Europe ainsi qu'en Fédération de Russie. Ce terme source est à mettre en relation avec l'étendue spatiale considérée, s'étendant sur l'ensemble du territoire eurasien, ainsi qu'avec la durée des émissions sur plusieurs mois. Pour des incendies se produisant à proximité de la zone d'exclusion de Tchernobyl, les quantités remise en suspension seront plus importantes, en relation avec les dépôts surfaciques.

Bien que des évènements de grande ampleur se soient produits en dehors des territoires fortement marqués par les retombées de l'accident de Tchernobyl, les situations météorologiques correspondantes n'ont pas transporté les panaches de fumées en direction des stations du réseau OPERA, durant la période d'étude. L'influence des incendies au Portugal durant les étés 2003 et 2005 ou en Grèce durant l'été 2007 n'a pu être déterminée.

Egalement, les incendies à l'échelle régionale n'ont montré aucune implication dans les augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs pour la station de la Seyne-sur-Mer.

Bien que tous ces évènements d'incendies participent à la rémanence atmosphérique du ^{137}Cs, en relation avec l'ampleur des épisodes et le marquage en ^{137}Cs des territoires, les conditions météorologiques locales, associées aux incendies, favorisent la dispersion des particules émises et limitent leur impact sur les prélèvements des stations OPERA. Ainsi, seuls les évènements de grandes ampleurs dans les territoires fortement marqués ont pu être caractérisés.

CHAPITRE 5 : Le bois de chauffage

Les processus étudiés précédemment, l'érosion éolienne et les incendies de forêt, se manifestent durant les périodes sèches et chaudes. Or, plus de 75 % des niveaux d'activité volumiques en ^{137}Cs supérieurs au percentile 90 à chaque station se produisent entre les mois de novembre et de mars. Bien que l'hiver se caractérise par une diminution de l'efficacité de la ventilation dans les basses couches de l'atmosphère, entrainant une accumulation des particules et une augmentation de leur concentration, il reste à identifier un phénomène alimentant l'atmosphère en ^{137}Cs pour y expliquer sa présence. Les résultats du chapitre précédent amènent donc à s'intéresser à la combustion de biomasse sous toutes ses formes et notamment à la combustion de bois à des fins de chauffage durant l'hiver.

5.1 – Généralités sur le bois de chauffage

L'utilisation du bois comme source d'énergie apparait être une des réponses au réchauffement climatique et à l'épuisement des énergies fossiles puisque cette ressource est renouvelable et que son impact dans le bilan carbone est globalement neutre. De ce fait, les politiques publiques encouragent son développement. En France, les énergies renouvelables thermiques telles que le bois, les déchets du bois, l'énergie solaire ou géothermique ou les pompes à chaleur représentent jusqu'à 10 % de la production d'énergie, soit la seconde ressource utilisée en France en 2007 après le nucléaire (figure 5.1). Parmi les différentes ressources qui composent le panel des énergies renouvelables, le bois et ses dérivés représentent près de ¾ de la production d'énergie. La filière bois-énergie représente ainsi une consommation annuelle en France de 8.15 Mtep (mégatonne équivalent pétrole), dominée en très grande partie par le secteur domestique avec 81 % de la consommation totale (ADEME 2009).

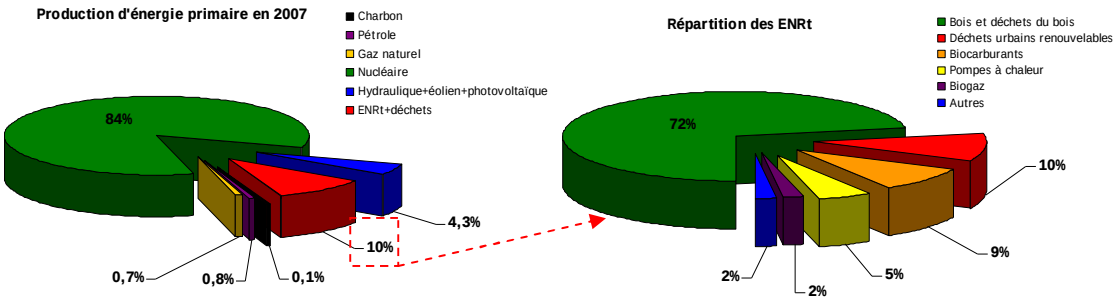


Figure 5.1 : Répartition de la production d'énergie primaire pour la France en 2007 (source : DGEMP 2007).

A l'échelle de l'Europe, même si la répartition des sources dans la production totale d'énergie primaire diffère pour chaque pays, la proportion du secteur biomasse/déchets est sensiblement la même que pour la France. Pour l'ensemble de l'Europe, cette filière représente une consommation annuelle de 98.7 Mtep en 2007, soit une proportion de 11.5 % de la production totale d'énergie primaire (source : EUROSTAT). Certains pays de l'Europe affiche un pourcentage bien supérieur à la moyenne européenne comme le Portugal (69 %), la Finlande (47 %) ou l'Autriche (43 %) mais les principaux consommateurs de cette filière sont l'Allemagne et la France avec 23.5 et 12.3 Mtep respectivement. Le secteur biomasse se compose de trois familles principales dont le bois-énergie, appelé également biomasse solide, le biogaz et les biocarburants. Pour l'ensemble de l'Europe, la biomasse solide représente en moyenne les ¾ de la production d'énergie primaire réalisée à partir du secteur de la biomasse (EurObserv'ER, 2009).

La filière de la biomasse dans la production d'énergie primaire représente un secteur actif en plein développement en France et en Europe. Toutefois, cette filière conduit à l'émission de différents polluants tels que les oxydes d'azote, le monoxyde de carbone, les composés organiques volatils et hydrocarbures imbrûlés, le benzène, les hydrocarbures aromatiques polycycliques, les

particules… (ADEME, 2009). Les quantités de particules émises en France par la combustion du bois et leur contribution aux émissions totales nationales sont présentées dans la table 5.1.

La combustion du bois contribue de manière significative aux émissions nationales de particules, notamment pour les plus fines. Le secteur domestique est le principal contributeur de ces émissions, à hauteur de 97 %, en raison surtout de mauvaises conditions de combustion en maison individuelle, alors que sa consommation ne représente que 82 % du total du bois (Airaq, 2008 ; ADEME, 2009). Ces résultats amènent donc à considérer la combustion du bois-énergie comme élément de remise en suspension dans le compartiment atmosphérique du ^{137}Cs initialement présent dans la biomasse.

	Poussières totales	PM_{10}	$PM_{2.5}$
Combustion du bois dans le domestique	138,2 kt	131,3 kt	128,6 kt
% du total bois	97 %	97 %	97 %
Combustion du bois dans l'industrie, l'agriculture et le chauffage collectif	4,9 kt	4,1 kt	3,5 kt
% du total bois	3 %	3 %	3 %
Emissions totales liées à la combustion du bois	143,1 kt	135,4 kt	132,1 kt
% du total national	12 %	27 %	40 %
Emissions totales en France	1175,8 kt	501,6 kt	327,7 kt

Table 5.1 : Emissions atmosphériques nationales dues à la combustion du bois pour différents secteurs et contribution aux émissions atmosphériques totales nationales pour l'année 2005 (d'après ADEME, 2009 – source : CITEPA, 2008)

Au-delà de l'aspect quantitatif des émissions de particules par la combustion du bois, ce processus génère principalement des fines particules puisqu'elles représentent 95 % du total des particules émises (rapport $PM_{2.5}$ / TSP), en accord avec les observations faites préalablement pour les particules émises par les incendies. Ces particules peuvent donc être transportées sur de grandes distances et être à l'origine d'épisodes de pollution. L'Agence Européenne pour l'Environnement (EEA) dispose de bases de données permettant d'estimer les quantités de particules émises dans l'atmosphère chaque année par la combustion de biomasse à l'échelle des différents pays ainsi qu'à l'échelle du continent. Les sources résidentielles fixes représentent 22 % et 28 % des émissions de PM_{10} et $PM_{2.5}$ respectivement, et sont la principale source d'émission de ces particules.

5.2 - La contamination du bois

A la suite de l'accident de Tchernobyl en 1986, des valeurs limites concernant la contamination du bois ont été définies pour différents usages afin de limiter l'exposition des travailleurs et des consommateurs. Dans le cadre de son utilisation comme source d'énergie, la limite définie par l'AIEA (2005), en termes de niveau d'activité maximal de la ressource en ^{137}Cs, est de 750 $Bq.kg^{-1}$. Pour certains territoires de la Fédération de Russie, cette valeur limite atteint 1 400 $Bq.kg^{-1}$ en ^{137}Cs (Lujaniene et al., 2007). Sur le territoire français, le niveau moyen d'activité en ^{137}Cs du bois est en moyenne de 25 $Bq.kg^{-1}$, d'après les mesures réalisées dans le cadre des prélèvements du réseau OPERA terrestre,

Due à sa grande mobilité, le ^{137}Cs n'est pas réparti de façon homogène dans toutes les parties de l'arbre. Bien que les proportions puissent varier suivant les études, l'ensemble de la littérature s'accorde pour montrer que le ^{137}Cs s'accumule majoritairement dans les parties les plus actives de l'arbre. Ainsi, la cerne de 1986 ne correspond pas au maximum d'activité et celle-ci diminue de manière exponentielle du bord vers le centre du tronc (Barci-Funel et al., 1995 ; Andersson et al., 1999 ; Fesenko et al., 2003 ; Soukhova et al., 2003). En termes d'activité massique dans les différentes parties de l'arbre, le classement décroissant obtenu est alors : aiguilles / feuilles - jeunes branches – racines – écorce – vieille branche – tronc (Strebl et al., 1999 ; Thiry et al., 2002 ; Fesenko et al., 2003 ; Goor et Thiry, 2004). Cette répartition avec une activité massique plus importante dans les parties actives de l'arbre explique également l'activité importante observée dans la litière en raison de leur chute, entrainant alors un recyclage de ce radionucléide par la biomasse et sa rémanence dans le milieu forestier. Il est également observé que les arbres les plus jeunes, notamment ceux ayant démarré leur croissance après l'accident de Tchernobyl, ont une activité en ^{137}Cs plus importante que les arbres plus anciens, confirmant ainsi l'implication du transfert racinaire dans la rémanence de ce radionucléide dans l'écosystème forestier (Barci-Funel et al., 1995 ; Ipatyev et al., 1999). Toutefois, du point de vue du stock de ^{137}Cs, le tronc représentant un volume beaucoup plus important que toutes les autres parties, cette partie de l'arbre en est le principal réservoir, représentant plus de la moitié de l'activité stockée dans les parties aériennes, bien que sa concentration massique soit minimale (Ipatyev et al., 1999 ; Riesen 2002 ; Goor et Thiry, 2004).

En considérant que la température des foyers de combustion de biomasse dépasse la température de volatilisation du ^{137}Cs (669 °C) et les résultats des différentes études montrant une redistribution de l'activité lors du processus de combustion (Paliouris et al., 1995 ; Amiro et al., 1996 ; Lujaniene et al., 1997 ; Kashparov et al., 2000 ; Yoschenko et al., 2006 a-b ; Wotawa et al., 2006), l'utilisation de la biomasse comme source d'énergie doit entrainer la remise en suspension de quantités significatives de ^{137}Cs initialement déposé puis intégré au cours du temps. Ces hypothèses peuvent être renforcées par les mesures réalisées en Suède établissant que le niveau d'activité volumique dans les aérosols ambiants est supérieur durant l'hiver au centre d'un village en comparaison des mesures réalisées dans les champs alentours, alors que la relation s'inverse en été (ECP5, 1995).

5.3 – Caractérisation du processus d'émission

Pour estimer le facteur d'émission de ce processus et caractériser les propriétés des particules émises, une étude reproduisant les conditions de combustion d'une cheminée domestique a été réalisée en laboratoire.

5.3.1 – Matériels et méthodes

5.3.1.1 - Les prélèvements

Combinant à la fois des dépôts surfaciques en ^{137}Cs supérieurs à la moyenne française, suite aux retombées globales des tirs et de l'accident de Tchernobyl, et une importante production et consommation de bois-énergie, la région des Vosges est retenue pour effectuer le prélèvement de bois servant de combustible à l'expérience. Des prélèvements de litières et de sols, représentatifs des parcelles d'origine des arbres débités, sont réalisés dans les alentours de la commune de Gérardmer (88) afin de déterminer les dépôts surfaciques en ^{137}Cs et la représentativité de l'ensemble des prélèvements. Les différents échantillons de sol sont séchés par étuvage à 80°C puis broyés pour être analysés par spectrométrie gamma. Les prélèvements de litière subissent une calcination à 480 °C après leur étuvage afin de concentrer l'activité dans les cendres restantes avant d'être analysés. Les niveaux d'activité moyens en ^{137}Cs de la litière et des différentes profondeurs de sol sont reportés dans la table 5.2. Ces résultats montrent que le dépôt surfacique en ^{137}Cs dans les échantillons de sols prélevés est plus important que la moyenne des sols français (cf. figure 2.15) et que la majorité du ^{137}Cs se trouve dans la première couche du sol, conformément aux différentes observations reportées dans la littérature (cf. 4.1).

	^{137}Cs [Bq.m^{-2}]	Répartition [%]
Litière	114 ± 11	1
Sol 0 - 10 cm	5704 ± 514	64
Sol 10 - 20 cm	1603 ± 161	18
Sol 20 – 30 cm	1554 ± 157	17
Total	8975 ± 844	100

Table 5.2 : Activités surfaciques moyennes de la litière et à différentes profondeurs de sol déterminées à partir de trois prélèvements effectués dans les alentours de la commune de Gérardmer et représentatifs des parcelles d'origine des arbres débités.

L'essence utilisée pour la caractérisation du processus de remise en suspension du ^{137}Cs est le hêtre en raison de sa consommation majoritaire. Le prélèvement se présente sous forme de bûches puisque cette forme est la plus utilisée dans la filière bois-énergie avec une consommation annuelle en France estimée aux environs de 50 millions de stères (ADEME, 2008). Afin de déterminer l'activité initiale du bois utilisé lors de la combustion et permettre le calcul d'un facteur d'émission, un échantillon composite de buches est initialement séché par étuvage à 80 °C, puis raboté pour obtenir des copeaux et enfin transformé en sciure par broyage, le tout étant de nouveau séché par étuvage avant d'être mis en géométrie puis analysé par spectrométrie gamma au Laboratoire de Radioécologie et d'Ecotoxicologie de l'IRSN (IRSN/DEI/SECRE/LRE). L'activité massique en ^{137}Cs du bois utilisé dans la suite de cette étude est alors de 35.3 ± 1.6 $Bq.kg^{-1}$ de matière sèche (MS). Bien que le niveau d'activité en ^{137}Cs dans le bois dépende de plusieurs facteurs tels que le dépôt surfacique, la nature du sol, l'essence de bois considérée, l'âge de l'arbre ou encore la partie prélevée, il est possible de comparer ce résultat à ceux de la base de données SYLVESTRE de l'IRSN recensant un grand nombre de mesures d'activité pour différentes matrices sur le territoire français. Ainsi, le bois utilisé dans cette étude présente un niveau d'activité en ^{137}Cs comparable aux résultats de la base de données tout en se situant dans le haut de la distribution. Ainsi, le prélèvement de bois effectué et utilisé pour cette étude peut être qualifié de représentatif des niveaux de contamination des essences boisées françaises.

Pour la suite de l'étude, les buches de bois prélevées sont divisées en fraction plus petites afin de permettre une meilleure combustion lors de leur incinération et conditionnées dans une étuve à 80 °C pour les maintenir à un taux d'humidité faible. La figure 5.2 présente un aperçu de la forme des buches utilisées lors de la simulation de la combustion de bois dans une cheminée domestique.

Figure 5.2 : Photographie du conditionnement des morceaux de bois utilisés lors de la simulation de la combustion de bois dans une cheminée domestique.

5.3.1.2 – L'installation CARINEA

Cette étude est réalisée en collaboration avec le Laboratoire d'Expérimentation des Feux de l'IRSN (IRSN/DPAM/SEREA/LEF) dans l'installation CARINEA à Cadarache. Son dispositif se compose d'une hotte canalisant les émissions de foyers de faible puissance vers une veine de mesure permettant de caractériser ces émissions (figure 5.3). La figure 5.4 présente schématiquement la veine de mesure utilisée dans le cadre de cette étude pour caractériser les aérosols formés lors de la combustion du bois.

Au dessus du foyer accueillant le combustible, la hotte de prélèvement aspire les émissions de la combustion avec un débit d'air régulé. Tout au long de la conduite de la cheminée, plusieurs appareils de mesures sont disposés permettant de caractériser les aérosols émis.

Dans un premier temps, un dispositif permet de prélever les aérosols sur une batterie de filtres (figure 5.5). Le piquage sur la conduite permet un prélèvement iso-cinétique. La commande de contrôle permet la sélection du filtre effectuant le prélèvement. Les filtres ayant une dimension de 15.9 cm^2, leur colmatage peut être atteint rapidement selon les essais de combustion. La mesure de la perte de charge de ces filtres permet alors de basculer sur le filtre suivant avant le colmatage et de disposer ainsi d'un prélèvement continu tout au long de la combustion. La batterie de filtres utilisée dans le cadre de cette étude se compose de 4 filtres de prélèvement en fibre de verre. Ces prélèvements sont utilisés pour réaliser une analyse en spectrométrie gamma *a postériori* afin de quantifier les niveaux d'activité en ^{137}Cs émis lors de la phase de combustion.

A la suite de la batterie de filtres, un second piquage effectue un prélèvement en direction d'une balance TEOM montée en série avec un système de dilution (figure 5.6). Connaissant les débits de prélèvements, cette mesure permet de remonter à la quantité d'aérosols circulant dans la conduite et de calculer la quantité totale émise lors de la combustion. Enfin, un dernier piquage dirige une fraction de l'air prélevé vers un impacteur Andersen (figure 5.6). Les prélèvements ont des durées de l'ordre de vingt minutes pour chaque essai et sont effectués en moyenne après 30 minutes de combustion. Par mesure gravimétrique, les différents étages d'impaction de l'appareil permettent d'obtenir une image de la distribution granulométrique des aérosols à un instant donné de la phase de combustion.

En supplément de ces mesures, le dispositif permet un suivi en temps réel de la perte de masse du combustible afin de calculer les facteurs d'émissions. La mesure de la température de combustion est effectuée par un thermocouple placé directement au cœur du foyer. En différents points de la conduite et pour chaque canne de prélèvement, la température des émissions est mesurée afin de s'assurer que les limites soutenues par les équipements ne sont pas dépassées et afin de recalculer les débits de prélèvements. Enfin, différents capteurs annexes mesurent les concentrations en CO, CO_2 et O_2 dans la conduite ainsi que l'opacité des fumées. Un filtre à très haute efficacité THE est placé en sortie de conduite afin d'épurer les effluents avant rejet dans l'environnement.

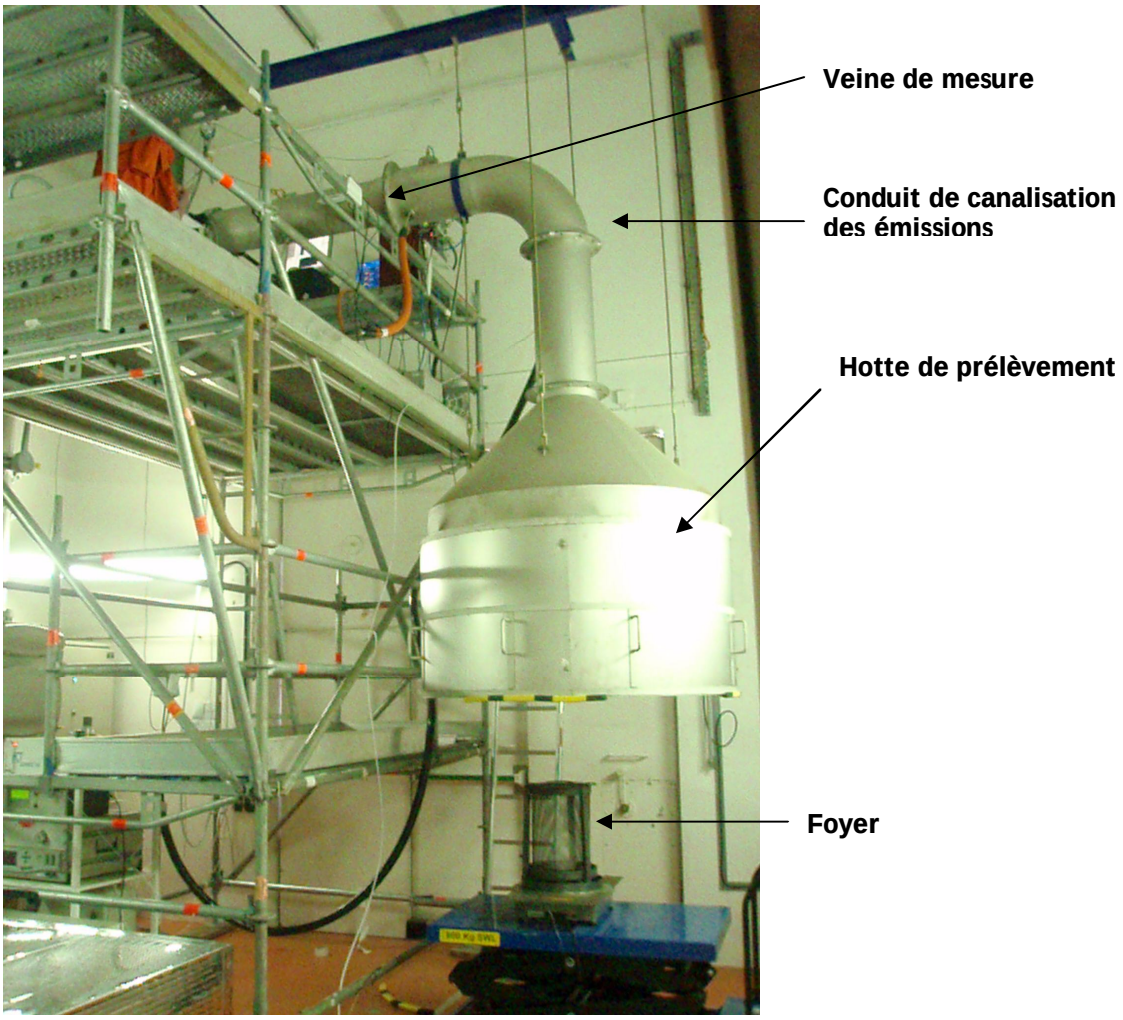


Figure 5.3 : Installation CARINEA

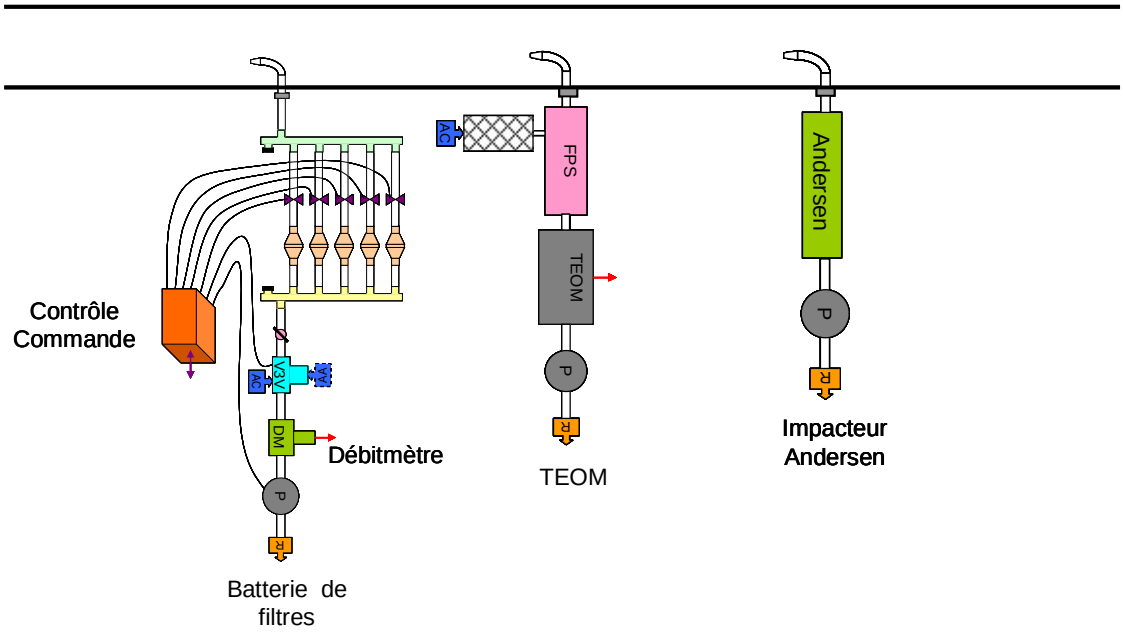


Figure 5.4 : Schéma de la veine de prélèvement et de mesure de l'installation CARINEA utilisée pour la mesure des aérosols.

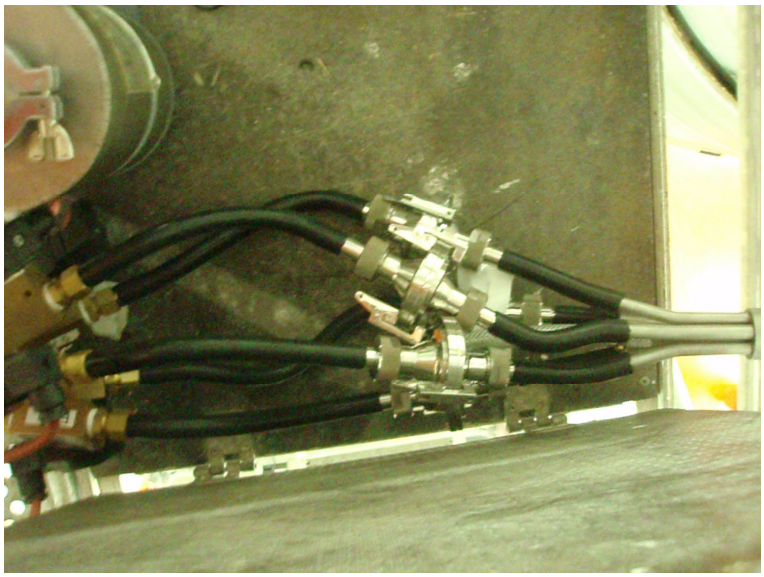


Figure 5.5 : Batterie de filtres utilisée pour la détermination par spectrométrie gamma des radionucléides émis par la combustion du bois.

Figure 5.6 : Impacteur Andersen (gauche) et équipement de la balance TEOM (droite) utilisés pour la caractérisation des aérosols émis lors de la combustion du bois.

5.3.1.3 – Les caractéristiques des différents essais

Afin de reproduire les conditions de combustion des cheminées domestiques, le bois est placé dans un panier métallique disposé sur une plateforme de hauteur réglable afin d'ajuster la distance entre le foyer et la hotte de prélèvement (figure 5.7). De l'éthanol liquide est utilisé pour démarrer la phase de combustion en raison de sa neutralité en termes d'émission de particules. Celui-ci est disposé sous le panier métallique accueillant le combustible et la quantité utilisée mesurée à l'aide d'une balance. Pour chaque essai, environ 0.4 kg d'éthanol est utilisé.

Pour assurer la sécurité des opérateurs, le protocole d'expérience interdit toute entrée dans l'enceinte durant la phase de combustion. Il n'est donc pas permis de réalimenter le foyer au cours de la phase de combustion. Aussi, les morceaux de bois présentés dans la figure 5.2 sont disposés initialement dans le panier métallique au début de chaque essai sans intervention possible pour entretenir ou réalimenter le foyer. Le panier étant monté sur une balance, la masse totale de combustible initialement déposée est relevée pour chaque essai. A la fin de chaque essai, les filtres de prélèvement composant la batterie de filtres sont récupérés et séchés par étuvage afin de déterminer la masse d'aérosols déposée. La même opération est effectuée pour les filtres équipant l'impacteur Andersen. Afin de disposer d'un maximum de quantité de matière pour la mesure par spectrométrie gamma des radionucléides émis lors de la combustion du bois, les essais sont répétés plusieurs fois puis les filtres de prélèvements rassemblés dans une même géométrie et mesurés simultanément. Pour les supports d'impaction, seule une détermination gravimétrique est effectuée après étuvage. En raison des quantités trop faibles déposées sur ces supports, une caractérisation par spectrométrie gamma n'est pas envisageable afin de déterminer la phase porteuse du ^{137}Cs et sa répartition suivant les classes de particules.

Au final, 4 essais de combustion sont réalisés dans l'installation CARINEA. La table 5.3 en donne les principales caractéristiques. Ainsi, les différents essais ne présentent pas une uniformité en termes d'efficacité de combustion. Cette différence résulte principalement de l'agencement initial des bûches dans le panier métallique recueillant le combustible et de son évolution au cours de la phase de combustion pouvant dans certain cas limiter la quantité de bois brûlée. Les principales observations visuelles réalisées durant chacun des essais sont les suivantes :

- Essai n°1 : combustion rapide des bûches avec présence de grandes flammes,
- Essai n°2 : première phase de combustion rapide et seconde phase de la combustion lente sans flamme avec une grande quantité de fumée émise,
- Essai n°3 : arrêt rapide des flammes puis arrêt naturel de la combustion,
- Essai n°4 : combustion avec flammes puis alternative après 90 minutes.

La considération de l'ensemble de ces 4 essais permet ainsi d'obtenir un échantillon composite représentatif d'une situation moyenne de combustion dans les cheminées domestiques.

Figure 5.7 : Panier métallique accueillant le combustible bois (gauche) et vue du panier placé sur la plateforme à la verticale de la hotte de prélèvement des émissions lors de la phase de combustion (droite).

	Masse initiale de bois [kg]	Masse finale de bois [kg]	Durée de la combustion [sec.]	Activité initiale de ^{137}Cs introduite [Bq]
Essai n°1	3.261	1.149	3 377	115 ± 5
Essai n°2	5.584	0.413	10 894	197 ± 9
Essai n°3	3.588	2.390	3 612	127 ± 6
Essai n°4	3.411	0.067	8 651	120 ± 5
Total	15.844	4.019	26 534	559 ± 25

Table 5.3 : Principales caractéristiques des 4 essais de combustion de bois réalisés dans l'installation CARINEA.

Lors de chacun des essais, plusieurs prélèvements sur filtres sont effectués avec des durées de temps variables. Lors du premier essai, les filtres de prélèvement sont exposés aux émissions avec des durées croissantes afin d'éviter tout colmatage. Par la suite ceux-ci sont exposés avec des durées plus longues. Les principales caractéristiques (durée et volume du prélèvement, masse déposée sur le filtre, masses brûlées correspondantes) des différents filtres de prélèvement réalisés pour chacun des essais sont présentées dans la table 5.4. Au final, l'ensemble des filtres de prélèvement totalise un volume de prélèvement de 10.75 m^3 pour une masse déposée de 35.4 mg.

	Essai n°1				Essai n°2			Essai n°3	Essai n°4	Total
	Filtre 1-1	Filtre 1-2	Filtre 1-3	Filtre 1-4	Filtre 2-1	Filtre 2-2	Filtre 2-3	Filtre 3-1	Filtre 4-1	
Durée [sec.]	480	605	901	1 322	3 600	3 609	3 633	3 612	8 651	26 413
Volume prélevé [m^3]	0.23	0.25	0.36	0.54	1.45	1.42	1.47	1.48	3.56	10.75
Masse prélevée [mg]	0.5	1.5	1.5	2.1	6.2	9	4.6	3.3	6.7	35.4
Volume conduite [m^3]	104.4	130.5	194.2	285.9	785.2	812.4	851.7	819.3	1952.8	5936.5
Masse brulée [kg]	0.605	0.374	0.389	0.698	1.615	1.909	1.624	1.198	3.344	11.756

Table 5.4 : Caractéristiques des prélèvements effectués à partir de la batterie de filtres pour les différents essais réalisés.

5.3.2 – Résultats

Les résultats des calculs réalisés à partir des mesures effectuées avec la balance TEOM pour chacun des essais sont reportés dans la table 5.5. Ces résultats permettent d'estimer le facteur d'émission de particules lors de la combustion du bois dans une cheminée domestique calculé comme le rapport des masses émises et brûlées. Le facteur d'émission de particules moyen pour l'ensemble des essais de combustion est alors de 3.19 g/kg de bois sec brûlés.

Les mesures gravimétriques des différents étages d'impaction pour chacun des essais permettent ensuite d'estimer la distribution granulométrique des particules émises. A partir de la figure 5.8 présentant les résultats pour le quatrième essai, il ressort que les aérosols émis lors de la combustion du bois sont très majoritairement inférieurs au micron et que ceux-ci se retrouvent sur le dernier étage d'impaction. Pour les résultats des autres essais, la distribution des particules ne présente pas forcément de maximum de masse sur le dernier étage d'impaction mais la majorité des particules possède un diamètre inférieur au micron. Pour le premier essai, la part de particules supermicroniques apparait être plus importante que pour les essais suivants. Ce résultat semble dû

à la présence d'un résidu de particules déposé dans la conduite lors de combustions précédentes et emporté lors de la combustion du bois. Les essais précédents effectués dans l'installation CARINEA visaient à caractériser les émissions lors de la combustion de composés plastiques. Le résidu de particules déposé alors dans la conduite ne modifie donc pas les quantités de ^{137}Cs mesurées. Ces résultats portant sur la distribution granulométrique des aérosols émis sont eux aussi en accord avec les résultats cités en introduction de cette partie, montrant que les émissions liées à l'utilisation du bois de chauffage influaient principalement sur les plus fines particules.

	Masse d'aérosols émis [g]	Masse brulée [kg]	Facteur d'émission [g/kg]
Essai n°1	4.57	2.066	2.21
Essai n°2	15.69	5.148	3.05
Essai n°3	2.69	1.198	2.24
Essai n°4	14.54	3.344	4.35
Total	37.48	11.756	3.19

Table 5.5 : Résultats des mesures de la balance TEOM pour chacun des essais.

L'analyse des prélèvements par spectrométrie gamma est réalisée au LMRE à Orsay. Elle permet de déterminer le niveau d'activité moyen des aérosols émis par la combustion du ^{137}Cs. L'activité massique de ces particules est alors de 880.9 ± 152 $Bq.kg^{-1}$. En comparaison des niveaux d'activité massique en ^{137}Cs mesurés dans l'environnement par les différentes stations de prélèvement du réseau OPERA, l'activité massique des aérosols émis lors de la combustion du bois est 2 ordres de grandeur plus importante. Ce résultat confirme alors l'implication de l'utilisation du bois-énergie dans la remise en suspension du ^{137}Cs dans le compartiment atmosphérique et justifie la poursuite de cette étude dans le but de mieux caractériser l'influence de ce processus sur les mesures réalisées dans l'environnement.

Les résultats de l'activité massique en ^{137}Cs des aérosols émis lors de la combustion du bois correspond à une mesure « à la cheminée ». Par conséquent, ce résultat ne peut être représentatif des mesures réalisées dans l'environnement puisque les phénomènes de dispersion et de dilution ne sont pas pris en compte. Néanmoins, le résultat obtenu indique que les émissions de bois de chauffage participent aux augmentations significatives des niveaux d'activité massique mesurées par les stations du réseau OPERA.

Considérant la durée des phases de combustion ainsi que la quantité de ^{137}Cs émis, le débit de rejet en sortie de cheminée est de $6.44.10^{-4}$ $Bq.s^{-1}$. Prenant cette valeur comme donnée d'entrée, la simulation de dispersion réalisée par l'équipe de modélisation de l'IRSN (IRSN/SESUC) a montré que le niveau d'activité en ^{137}Cs à des distances allant de 100 à 500 m donne des valeurs d'activité en ^{137}Cs compris entre 10^{-6} et 10^{-7} $Bq.m^{-3}$, en situation de faible dispersion. Ces résultats permettent alors de faire le lien entre les résultats de l'expérience et les mesures réalisées dans l'environnement.

Les résultats de la table 5.5 permettent ensuite de calculer le facteur d'émission du ^{137}Cs dans l'atmosphère lors de la combustion du bois dans une cheminée classique. Connaissant la masse totale d'aérosols émis (37,48 g) et l'activité massique de ces particules, l'activité totale émise est de 33.0 ± 5.7 Bq de ^{137}Cs. La quantité de bois brûlée au cours des différents essais étant de 11.756 kg avec une activité massique de 35.3 ± 1.6 $Bq.kg^{-1}$, la quantité de ^{137}Cs potentiellement émis durant ces essais est donc de 415 ± 19 Bq.

Ces résultats indiquent donc un facteur d'émission de 7.96 ± 1.74 %, en accord avec les résultats de Wotawa et al. (2006) estimant un facteur d'émission du ^{137}Cs de l'ordre de 10% lors d'incendies de forêts (cf. partie 4.5.4). Toutefois, le facteur d'émission obtenu apparait bien inférieur à celui obtenu par Amiro et al. (1996), soit un facteur d'émission supérieur à 60 % pour des températures de combustion supérieures à 669 °C. Dans leur étude, Amiro et al. disposaient une quantité connue de ^{137}Cs sur une essence de bois puis soumettaient celle-ci à différentes températures de combustion. Ce dépôt superficiel du ^{137}Cs sur la biomasse sans que celui-ci y soit intégré explique vraisemblablement les valeurs élevées obtenues par Amiro et al. (1996) puisque pour l'ensemble des essais, lors des périodes de bonne combustion, les températures relevées par le thermocouple placé dans le cœur du panier métallique sont supérieures à la température de volatilisation du ^{137}Cs.

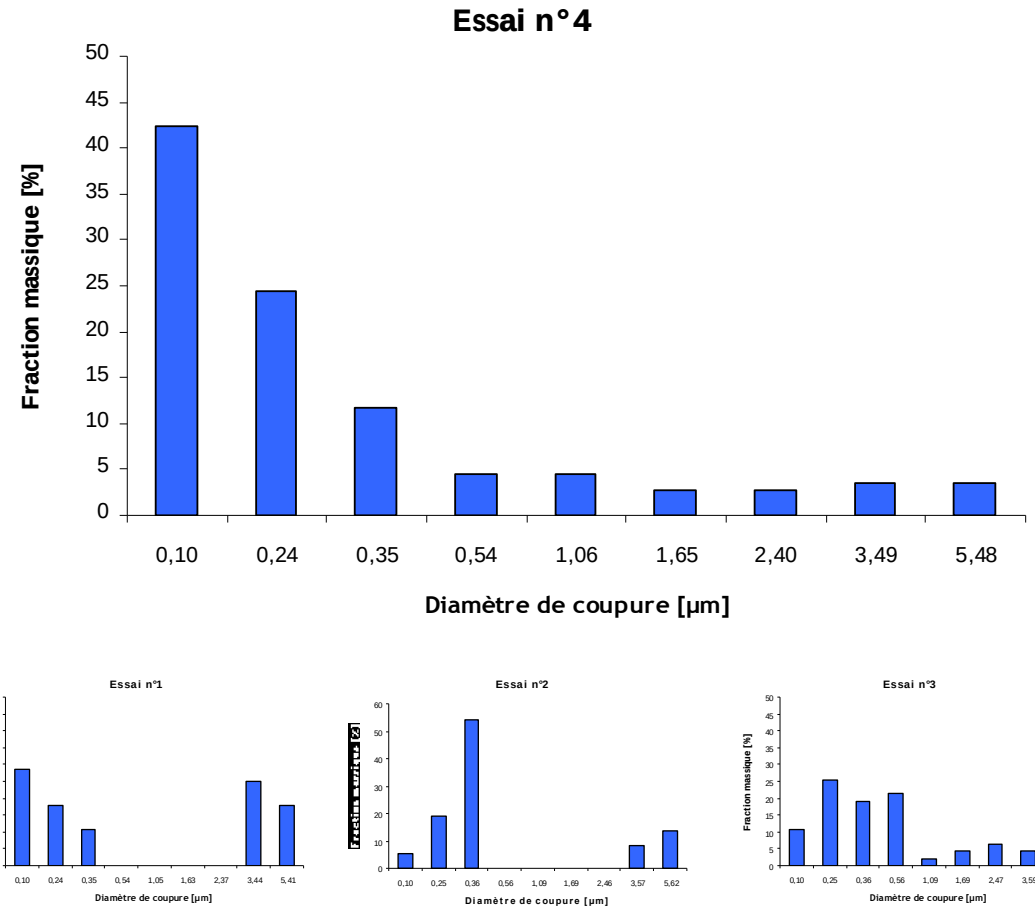


Figure 5.8 : Répartition massique des aérosols émis lors du 4ème essai de combustion en fonction de leur diamètre aérodynamique (haut) et pour les trois autres essais (bas).

5.3.3 – Discussion

La quantité de ^{137}Cs remis en suspension par la combustion de bois utilisé comme ressource énergétique durant l'hiver peut être approchée de deux manières. Connaissant le facteur d'émission du ^{137}Cs lors de la combustion du bois dans une cheminée domestique, l'activité massique caractéristique du bois utilisé en France, et les estimations de quantité de bois brûlé, il est possible d'estimer les quantités de ^{137}Cs remis en suspension au cours de chaque hiver sur l'ensemble du territoire. Pour estimer la quantité de bois brûlé, la relation établie par DGEMP-ADEME est utilisée : 1 tonne de bois = 0.257 tep. La seconde méthode considère l'activité massique des aérosols émis lors de la combustion du bois déterminée dans le cadre de cette étude comme représentative de celle de l'ensemble des aérosols émis par ce processus sur le territoire français et prend en compte les estimations de quantité de particules émises recensées dans les cadastres d'émissions où estimées dans différentes études. Les résultats de ces méthodes sont reportés dans la table 5.6.

	Activité massique du bois [Bq.kg^{-1}]	Facteur d'émission [%]	Quantité de bois brulé [kg]	^{137}Cs total émis [Bq]
France	35.3 ± 1.6	7.96 ± 1.74	$3.17\ 10^{10}$	$8.91 \pm 2.35\ 10^{10}$
Europe			$3.84\ 10^{11}$	$1.08 \pm 0.28\ 10^{12}$
	Activité massique des aérosols [Bq.kg^{-1}]	Quantité de particules émises [kg]		^{137}Cs total émis [Bq]
France	880.9 ± 152	$138.2\ 10^{6}$		$1.22 \pm 0.21\ 10^{11}$
Europe		$463.2\ 10^{6}$		$4.08 \pm 0.70\ 10^{11}$

Table 5.6 : Estimations des quantités de ^{137}Cs émises durant l'hiver par la combustion du bois.

L'estimation de la quantité annuelle de ^{137}Cs remis en suspension par la filière bois-énergie est de l'ordre de 10^{11} de ^{137}Cs. Cette estimation fournit ainsi un ordre de grandeur de la quantité émise basée sur plusieurs hypothèses. Il existe notamment une incertitude sur les quantités de bois brûlées annuellement et les quantités de particules émises. Les observations et statistiques fournies par le ministère en charge de l'environnement, s'accompagnent d'avertissements précisant qu'il n'existe pas de statistiques régulières et exhaustives sur la production et la vente de bois de chauffage et qu'il est par conséquent très difficile d'en estimer les stocks. Bien que les valeurs mentionnées dans les différentes bases de données se recoupent, celles-ci se basent de manière

générale sur les mêmes données d'entrée et il apparait difficile d'apporter une critique constructive aux valeurs utilisées. Ainsi, tout en gardant à l'esprit que ces valeurs ne sont que des estimations, l'ordre de grandeur des valeurs utilisées devrait s'approcher de la réalité.

A l'échelle de l'Europe, le même type de calcul est réalisé. Les résultats obtenus sont alors à considérer avec encore plus de précaution que pour le territoire français, puisque la représentativité des valeurs utilisées pour la France diminue de manière évidente pour l'ensemble de l'Europe, notamment en termes de contamination des essences. Suivant la méthode de calcul utilisée, la quantité totale de ^{137}Cs remis en suspension est comprise entre 10^{11} et 10^{12} Bq. Cette différence réside principalement dans le fait que tous les pays européens ne participent pas au registre des émissions de particules par la combustion de biomasse, entrainant une sous-estimation des émissions et par conséquent, une sous-estimation de la quantité de ^{137}Cs remis en suspension. Ainsi, l'ordre de grandeur de 10^{12} Bq de ^{137}Cs remis en suspension annuellement par la filière bois-énergie à l'échelle du continent européen apparait être le plus fiable.

Ces estimations relatives à la filière bois-énergie au plan national et au plan européen sont comparables aux résultats présentés au chapitre 4 sur la quantité de ^{137}Cs remis en suspension par les incendies de forêts en Europe de l'Est et en Fédération de Russie. La différence entre ces deux processus réside principalement dans leur étendue spatio-temporelle. En effet, les incendies sont des phénomènes intenses, sporadiques et localisés tandis que l'utilisation du bois de chauffage est très étendue dans l'espace puisqu'elle concerne l'intégralité du territoire, et régulière dans le temps durant l'hiver. Ainsi, la remise en suspension du ^{137}Cs due aux incendies de forêts peut être qualifiée de « bouffée » de remise en suspension avec des concentrations en particules et en ^{137}Cs significativement plus importantes et entrainant par conséquent des augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols tandis que la remise en suspension du ^{137}Cs par l'utilisation du bois de chauffage est plus continue, élevant ainsi le bruit de fond hivernal et entrainant des augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols à l'occasion de conditions météorologiques particulières.

La remise en suspension par la combustion de biomasse à usage domestique présente également un caractère plus local pour l'ensemble des stations du réseau OPERA que les incendies qui ne concernent ces stations que par un transport longue-distance. De plus, ce processus prend place durant la saison hivernale où les conditions de dispersion des polluants émis localement sont moins efficaces que durant les autres saisons. La combinaison d'une source de remise en suspension locale du ^{137}Cs dans le compartiment atmosphérique et de conditions météorologiques défavorables à la dispersion des particules dans les basses couches de l'atmosphère peut alors expliquer la saisonnalité observée des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs sur l'ensemble du réseau OPERA (figure 5.9). Il apparait ainsi que durant l'hiver, les niveaux d'activité volumique du ^{137}Cs dans les aérosols sont en moyenne plus importants que durant les autres saisons.

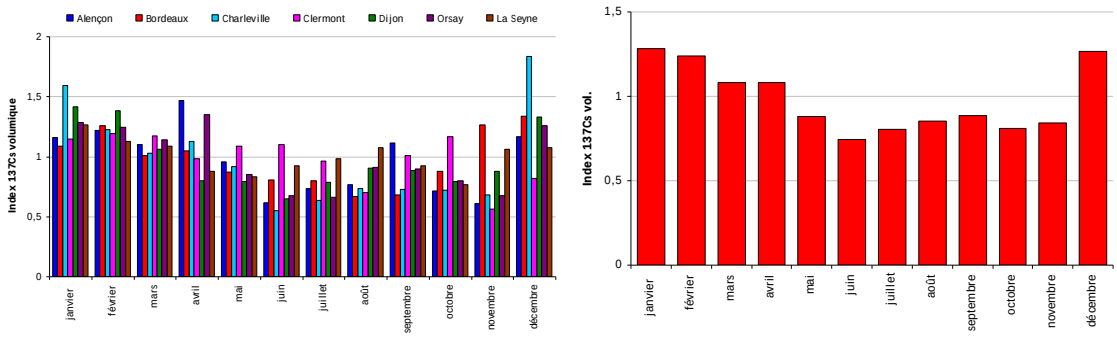


Figure 5.9 : Moyenne mensuelle des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs pondérée par les moyennes respectives sur l'ensemble de la période d'étude pour chacune des stations du réseau OPERA (gauche) et moyennée sur l'ensemble du réseau OPERA (droite).

5.4 – Evaluation de l'influence du niveau de ventilation dans les basses couches de l'atmosphère

Afin de distinguer la contribution la combustion de biomasse à usage domestique et la contribution des conditions météorologiques défavorables à la dispersion des particules en suspension dans les basses couches de l'atmosphère durant cette saison, il est nécessaire d'étudier l'évolution des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs en fonction des conditions de ventilation.

5.4.1 - Introduction

Dans un premier temps, il est nécessaire de pouvoir estimer les conditions de dispersion dans les basses couches de l'atmosphère afin de pouvoir établir leur relation avec l'évolution des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs dans les aérosols. La condition de dispersion dans les basses couches de l'atmosphère peut être approchée par la notion de ventilation de la couche limite que Rigby et al. (2006) définissent comme le produit de la hauteur de la couche limite par l'intensité du vent mesurée à 10 m ($V = \overline{u}.h$, avec V la ventilation, $\overline{u}$ le vent moyen à 10 m et h la hauteur de la couche de mélange). La concentration de la pollution dans cette couche est alors inversement proportionnelle à la ventilation ainsi définie : $\overline{C} \propto 1/V$.

Ayant une estimation de l'intensité du vent fournie par les mesures des paramètres météorologiques effectuées sur les stations OPERA, il est alors nécessaire de disposer de l'information sur la hauteur de la couche de mélange. Cette mesure reste toutefois difficile à approcher puisqu'elle nécessite de réaliser des profils sur la colonne atmosphérique et aucune mesure permettant d'estimer cette hauteur n'est réalisée à proximité, ou dans les environs immédiats, des stations de prélèvement du réseau OPERA. Une alternative pour estimer le niveau de ventilation dans les basses couches est d'utiliser une mesure indirecte de ce niveau de ventilation. Pour cela, il est nécessaire de considérer l'évolution d'un polluant dont l'émission dans les basses couches de l'atmosphère serait constante et dont la concentration dans les basses couches résulterait uniquement des conditions de ventilation.

Dans la littérature, les concentrations du ^{222}Rn et de ses descendants dans les basses couches de l'atmosphère sont régulièrement utilisées pour tracer l'évolution des conditions météorologiques influant sur la dispersion et rendre compte des conditions locales de stabilité de l'atmosphère (Marcazzan et Persico, 1996 ; Paatero et al., 1998 ; Perrino et al., 2001 ; Kataoka et al., 2003 ; Sesana et al., 2003 ; Vecchi et al., 2004). Ces études établissent une anti-corrélation entre la concentration de ce gaz naturellement radioactif et l'intensité du vent (Di Carlo et al., 2009). D'autres études utilisent son évolution pour réaliser des simulations du développement de la hauteur de la couche de mélange (Marcazzan et Persico, 1996 ; Kataoka et al., 1998 ; Sesana et al., 2003 ; Krajny et al., 2005) ou encore pour expliquer des augmentations de concentrations de polluants dans les basses couches (Vecchi et al., 2004 ; Perrino et al., 2009).

Les mesures de la sonde NaI équipant les stations de prélèvement du réseau OPERA rendant compte de la concentration dans les basses couches de l'atmosphère des descendants du ^{222}Rn, ces données peuvent être utilisées pour approcher l'évolution des niveaux de ventilation au niveau des stations du réseau OPERA.

5.4.2 – Matériels et méthodes

5.4.2.1 – Le ^{222}Rn et ses descendants

Le Radon-^{222} ($T_{1/2}$ = 3.825 jours) est un gaz radioactif d'origine naturelle formé par désintégration α du parent Radium-226 ($T_{1/2}$ = 1 600 ans) issu de la chaine de désintégration de l'U-238 (cf. figure 2-9). Initialement, le ^{222}Rn se trouve dans le sol contenant l'U-238. Pour atteindre l'interface matériau-atmosphère, le ^{222}Rn doit tout d'abord se libérer de la phase solide contenant le ^{226}Ra pour arriver dans l'espace libre des pores. Cette phase est appelée la phase d'émanation. Son efficacité dépend de la localisation du ^{226}Ra dans le grain contenant initialement l'U-238, de la géométrie des grains et des pores et de la nature du fluide présent dans les pores (Morawska et Phillips, 1993). Une fois libéré de la phase solide, le ^{222}Rn est transporté jusqu'à l'atmosphère principalement par diffusion. Cette phase est appelée la phase d'exhalation. Une fois l'atmosphère atteint, le ^{222}Rn se désintègre en descendants solides à vies courtes jusqu'au ^{210}Pb, lui-même solide mais de période plus longue ($T_{1/2}$ = 22.3 ans). Les descendants du ^{222}Rn sont principalement des émetteurs α et β. Toutefois, une partie de leur désintégration produit un rayonnement gamma et influence alors le signal de la sonde NaI équipant les stations de prélèvement du réseau OPERA.

La concentration du ^{222}Rn et de ses descendants dans l'atmosphère est fonction de l'efficacité du terme source et des conditions de dispersion dans les basses couches de l'atmosphère. Bien que l'état du sol (perméabilité, porosité…) et les conditions climatiques (humidité, température…) entrainent des fluctuations du potentiel d'exhalation du sol, l'hypothèse est souvent faite que l'alimentation de l'atmosphère en ^{222}Rn est constante et que les fluctuations du terme source sont négligeables par rapport aux variations de la concentration atmosphérique résultante au regard de l'implication des conditions de dispersion (cf. citations partie 5.4.1). Le flux surfacique moyen du ^{222}Rn peut être cartographié afin de quantifier l'importance du terme source

suivant les régions (figure 5.10). De manière générale, il apparait qu'au niveau de chacune des stations du réseau OPERA, il est possible de faire l'hypothèse d'une homogénéité spatiale d'exhalation permettant d'affirmer que les augmentations significatives des concentrations du ^{222}Rn et de ses descendants résultent d'une accumulation dans les basses couches et que l'advection d'une masse d'air ne peut entrainer de telles augmentations mais est, par contre, associée à une diminution de leurs concentrations.

Afin de valider et d'étayer cette dernière hypothèse, l'évolution du signal de la sonde est analysée à différentes échelles de temps et mis en relation avec les conditions météorologiques et les variations d'autres polluants particulaires.

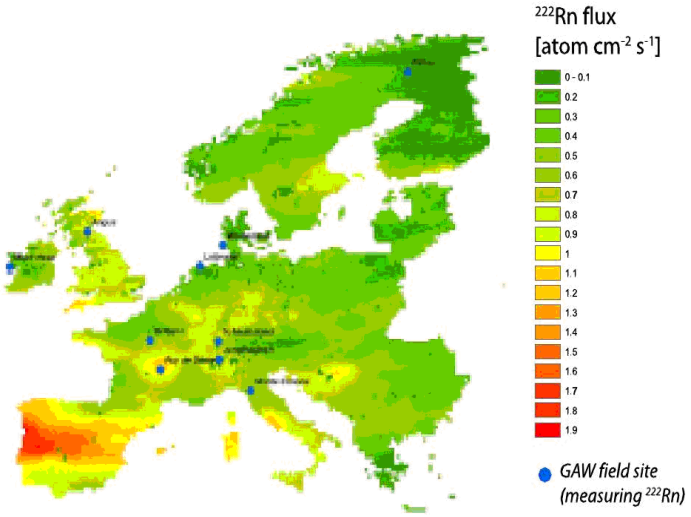


Figure 5.10 : Cartographie du flux surfacique du ^{222}Rn en Europe d'après Szegvary et al. (2009).

5.4.2.2 – Analyse du signal de la sonde NaI

La figure 5.11 présente les évolutions journalières moyennes des sondes de chaque station au cours de la journée, pondérées par les moyennes respectives sur la période 2004-2007. Cette information permet de soustraire le bruit de fond local, différent pour chacune des stations. Pour l'ensemble des stations, le signal de la sonde présente un maximum en fin de nuit et passe par un minimum dans le courant de l'après-midi. Cette tendance journalière peut être rapprochée de la dynamique journalière de la couche limite atmosphérique. Durant la journée, les mouvements convectifs et turbulents entrainent un brassage de l'air dans les basses couches augmentant alors la hauteur effective de la couche de mélange. En fin de journée et jusqu'au lever du soleil, le refroidissement des basses couches entraine une diminution de la hauteur de la couche de mélange.

Ainsi, durant la phase nocturne, le ^{222}Rn et ses descendants s'accumulent dans les premières couches de l'atmosphère en l'absence de mouvements verticaux, entrainant une augmentation progressive du signal de la sonde NaI. Après le lever du soleil, la mise en mouvement vertical de l'atmosphère induit un mélange avec les couches supérieures et une diminution de la concentration du ^{222}Rn et de ses descendants, matérialisée par la diminution du signal de la sonde au cours de l'après-midi.

L'évolution journalière du signal des sondes NaI permet de rendre compte de l'évolution de la hauteur de la couche de mélange lors du cycle diurne.

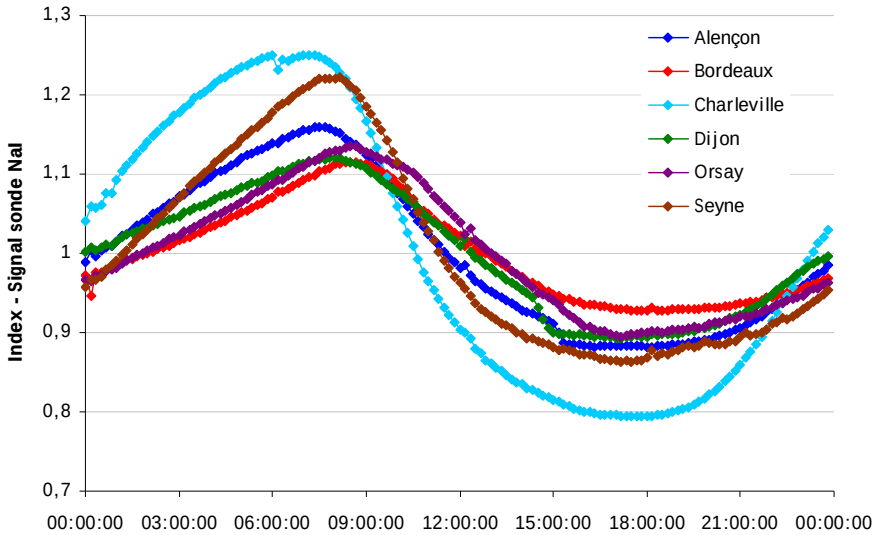


Figure 5.11 : Evolution moyenne journalière du signal de la sonde NaI pour chacune des stations du réseau OPERA pondérée par la moyenne respective de chaque station sur la période 2004-2007.

La figure 5.12 rend compte, quant à elle, de l'évolution moyenne mensuelle du signal des sondes NaI pour chacune des stations du réseau OPERA, pondérées par les moyennes respectives sur la période 2004-2007. Il apparait alors que le signal est minimal durant les mois d'hiver puis augmente progressivement pour atteindre un maximum au début de l'automne suivi à nouveau d'une diminution au début de l'hiver. Cette tendance observée ne correspond pas à la dynamique saisonnière de la couche de mélange atmosphérique qui, pour des raisons similaires à celles qui expliquent les variations diurnes, diminue en hiver, jusqu'à une centaine de mètres, et augmente en été, jusqu'à 2 000m environ.

Ces observations nous amènent donc à reconsidérer l'hypothèse initiale selon laquelle la production de ^{222}Rn est constante au cours du temps. Le potentiel d'exhalation du ^{222}Rn étant notamment lié à la teneur hydrique des sols, ce paramètre parait alors influer sur l'efficacité du terme source du ^{222}Rn et de ses descendants dans l'atmosphère. Ainsi, plusieurs études expérimentales montrent que le coefficient de diffusion du ^{222}Rn diminue lorsque l'humidité du sol augmente (Grasty, 1994 ; Hosoda et al., 2007 ; Papachristodoulou et al., 2007). Ces observations résultent alors du fait que la diffusion du ^{222}Rn dans l'air est très supérieure à sa diffusion dans l'eau. Le potentiel d'exhalation du ^{222}Rn durant l'été est alors supérieur en raison de la sécheresse des sols et de l'apparition de fissures constituant des voies d'export privilégiées au transport du ^{222}Rn vers l'atmosphère. Ce cycle saisonnier du flux de ^{222}Rn et de ses descendants est également reporté par Valeva et al. (2010) avec un minimum en hiver et un maximum à la fin de l'été et au début de l'automne.

Dans ces conditions, l'évolution du signal des sondes NaI dans leur ensemble ne peut rendre compte des conditions de dispersion sur les émissions locales puisque l'hypothèse d'un terme source

constant n'est plus vérifiée. Toutefois, l'hypothèse d'un terme source constant peut être acceptée à l'échelle saisonnière du fait des propriétés des sols contrôlant le potentiel d'exhalation du ^{222}Rn supposées constantes pour une saison donnée, sous réserve que des évènements météorologiques tels que les pluies peuvent entrainer des variations significatives du terme source et nécessitent donc d'être traités séparément.

La figure 5.13 présente alors l'évolution journalière du signal de la sonde NaI à la station de Dijon en fonction des différents mois de l'année et pondérée par la moyenne sur l'ensemble de la période 2004-2007. Même si le niveau moyen et surtout l'amplitude du signal de la sonde sont moins importants pour les mois hivernaux, l'évolution du signal rend tout de même compte de la dynamique de la couche limite atmosphérique avec un minimum du signal dans l'après-midi correspondant au maximum de la hauteur de la couche convective de mélange et un maximum du signal de la sonde en début de matinée correspondant au minimum de la hauteur de la couche de mélange nocturne. Pour la suite de cette étude, les différentes saisons seront alors traitées séparément.

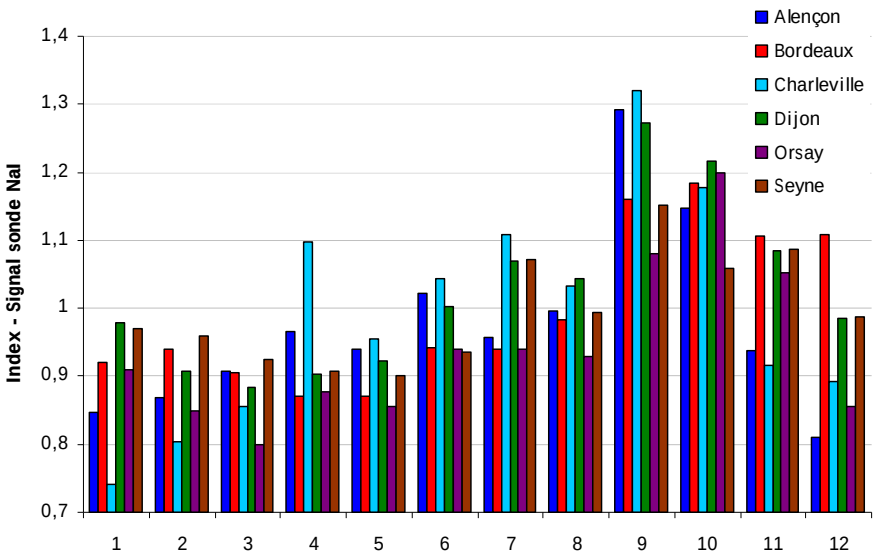


Figure 5.12 : Evolution moyenne mensuelle du signal de la sonde NaI pour chacune des stations du réseau OPERA pondérée par la moyenne respective de chaque station sur la période 2004-2007.

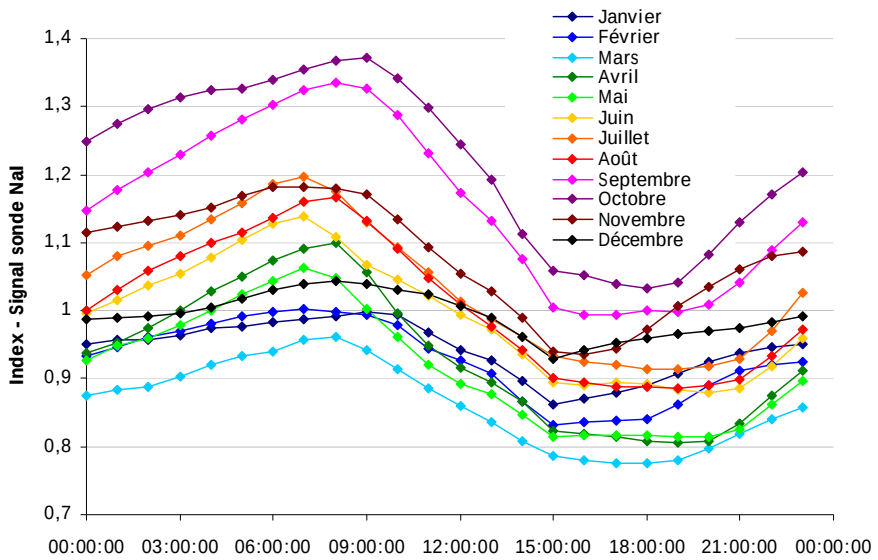


Figure 5.13 : Evolution journalière du signal de la sonde NaI à la station de Dijon en fonction des différents mois de l'année et pondérée par la moyenne sur l'ensemble de la période 2004-2007.

Afin de rendre compte des conditions de dispersion des basses couches de l'atmosphère, une seconde précaution est nécessaire. En effet, la sonde NaI équipant les stations du réseau OPERA est dirigée vers le filtre de prélèvement. Ainsi, lors de certaines décades de prélèvement, l'accumulation de particules sur le filtre entraine une augmentation progressive du signal de la sonde (figure 5.14). Le niveau moyen journalier de la sonde se trouve alors modifié sans que cela rende compte de phénomène de dispersion dans l'atmosphère. Afin de contourner cet artefact, il faut considérer l'amplitude journalière et non pas la moyenne journalière de la sonde. Ainsi, cette grandeur ne tient pas compte de l'augmentation progressive du bruit de fond due à l'accumulation de particules sur le filtre. La considération de l'amplitude journalière des données de la sonde NaI mesurant les concentrations des descendants du ^{222}Rn peut ainsi être utilisée afin de rendre compte de la hauteur de la couche de mélange (Sesana et al., 2003 ; Vecchi et al., 2004).

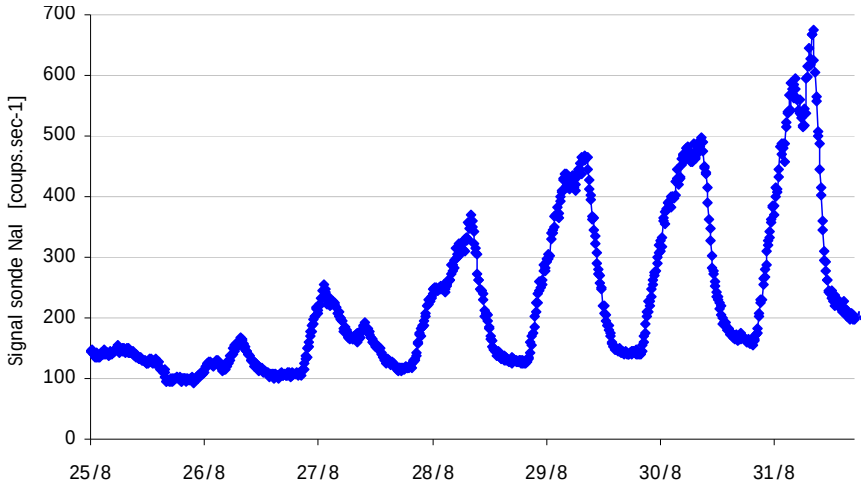


Figure 5.14 : Evolution du signal brut de la sonde NaI de la station de Charleville-Mézières sur la demi-décade de prélèvement du 25 au 31 août 2005.

5.4.2.3 – Influence du vent et de la pluviométrie

Afin de continuer la validation de l'utilisation des données de la sonde NaI pour rendre compte des conditions de dispersion dans les plus basses couches de l'atmosphère, nous comparons l'amplitude de son signal avec les paramètres météorologiques conditionnant ces conditions de dispersion. La figure 5.15 représente l'évolution de l'amplitude journalière du signal de la sonde NaI de Dijon en fonction de l'intensité journalière du vent. Les amplitudes maximales de la sonde correspondent à des journées où l'intensité du vent est minimale. A l'inverse les intensités maximales de vent correspondent à des amplitudes du signal de la sonde minimales. Ces observations sont ainsi en accord avec l'objectif recherché puisqu'une tendance apparait entre les variations du signal de la sonde et un des paramètres contrôlant la ventilation dans les basses couches de l'atmosphère.

Toutefois, la réciproque des observations faites précédemment ne s'applique que dans le cas des bonnes conditions de dispersion, c'est-à-dire qu'aucune amplitude journalière importante de la sonde NaI n'est observée lors des journées où l'intensité du vent est importante. En revanche, les intensités minimales du vent ne correspondent pas uniquement à des amplitudes importantes de la sonde NaI, montrant qu'un autre paramètre influe sur l'évolution de ce signal.

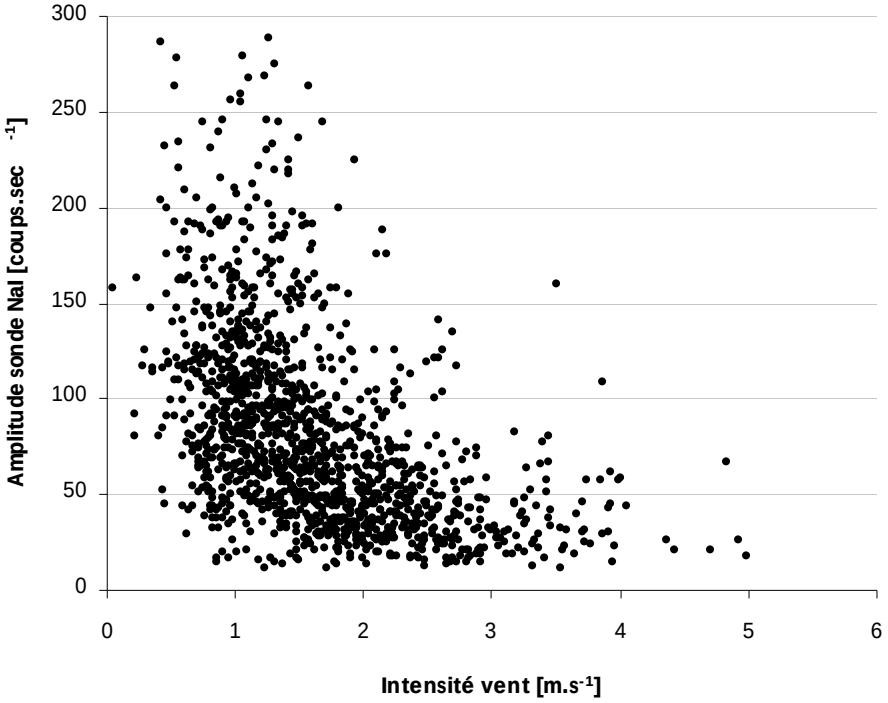


Figure 5.15 : Evolution de l'amplitude journalière du signal de la sonde NaI de Dijon en fonction de l'intensité journalière du vent.

Comme explicité précédemment, les pluies peuvent entrainer des variations significatives du terme source et doivent donc être traités séparément. De plus, les précipitations vont entrainer un rabattement des descendants du ^{222}Rn vers le sol se traduisant par une diminution significative du signal de la sonde NaI. Afin de rendre compte des conditions de dispersion dans les basses

couches de l'atmosphère par l'évolution du signal de la sonde NaI, il est donc préférable de ne pas tenir compte des journées pluvieuses.

Pour synthétiser les différentes remarques énoncées au cours de cette partie, il est donc nécessaire de:

- ne pas considérer un flux d'exhalation du ^{222}Rn constant sur l'ensemble de l'année mais restreindre cette hypothèse aux saisons,
- utiliser l'amplitude journalière du signal de la sonde et non la valeur moyenne afin de se soustraire de l'accumulation des particules sur le filtre entrainant une augmentation progressive du bruit de fond ambiant,
- soustraire de l'analyse les journées pluvieuses.

Dans ces conditions, le signal fournit par les sondes NaI des stations OPERA peut rendre compte des conditions locales de stabilité de l'atmosphère et de l'efficacité de la dispersion dans les basses couches de l'atmosphère en utilisant les concentrations des descendants du ^{222}Rn comme des traceurs naturels du niveau de ventilation conformément à la littérature (Marcazzan et Persico, 1996 ; Kataoka et al., 1998 ; Paatero et al., 1998 ; Perrino et al., 2001; Kataoka et al., 2003 ; Sesana et al., 2003 ; Vecchi et al., 2004 ; Di Carlo et al., 2009).

5.4.2.4 – Relation entre le signal de la sonde NaI et les concentrations de particules en suspension

Pour conforter l'utilisation des données de la sonde NaI, l'amplitude journalière du signal de la sonde est comparée aux variations journalières des mesures de PM_{10} réalisées à proximité des stations du réseau OPERA. Cette mise en relation est nécessaire afin de valider la méthode sur une échelle de temps proche de celle caractéristique des variations de condition de dispersion dans l'atmosphère, et ceci avant de pouvoir étendre son utilisation aux mesures décadaires des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans le compartiment atmosphérique.

Au regard de la figure 5.16 présentant une illustration représentative des évolutions journalières des concentrations en PM_{10} en relation avec les amplitudes journalières des sondes NaI au niveau des stations de la Seyne-sur-Mer et de Dijon, les deux tracés suivent une tendance similaire confirmant que le signal de la sonde rend compte du niveau de ventilation contrôlant la concentration de composés particulaires dans les basses couches de l'atmosphère. Ces variations en phase de l'amplitude du signal de la sonde NaI et de la mesure des niveaux de PM_{10} montrent que le signal de la sonde peut être utilisé pour déterminer soit des périodes d'augmentations de l'empoussièrement dues à des émissions locales, soit des périodes de pollution dues à un épisode d'advection et de transport longue-distance comme cela fut le cas pour l'épisode de transport de poussières sahariennes du 21-22 février 2004 à la station de la Seyne-sur-Mer (figure 5.17). A cette date, la mesure de la concentration en PM_{10} présente une très forte augmentation tandis que l'amplitude de la sonde passe par un minimum local alors que ces deux tracés sont en phase pour les périodes de mesures précédentes. Cette distinction est alors caractéristique d'un épisode de pollution due à un transport longue-distance.

Les deux exemples de la figure 5.16 sont sélectionnés pour illustrer au mieux ces tendances. Toutefois, les émissions de PM_{10} dans l'atmosphère ne sont pas constantes et, à l'inverse de l'hypothèse faite pour les descendants du ^{222}Rn, l'advection d'une masse d'air peut entrainer une augmentation significative de leur concentration simultanément à une diminution de l'amplitude de la sonde, altérant ainsi la relation établie (figure 5.17). Ainsi, le calcul de corrélation entre ces deux grandeurs ne permet pas de rendre compte de manière satisfaisante de la tendance similaire suivie par ces deux mesures. Leur mise en relation nécessite un ajustement en fonction de la station considérée, des saisons, de la pluviométrie locale et de l'influence des épisodes d'advection. Pour chacune des périodes de mesure des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols, la détermination du niveau de ventilation nécessite la considération systématique de l'ensemble des paramètres disponibles (intensité du vent, pluviométrie, saison, niveau d'empoussièrement) afin de caractériser localement l'état de stabilité de l'atmosphère.

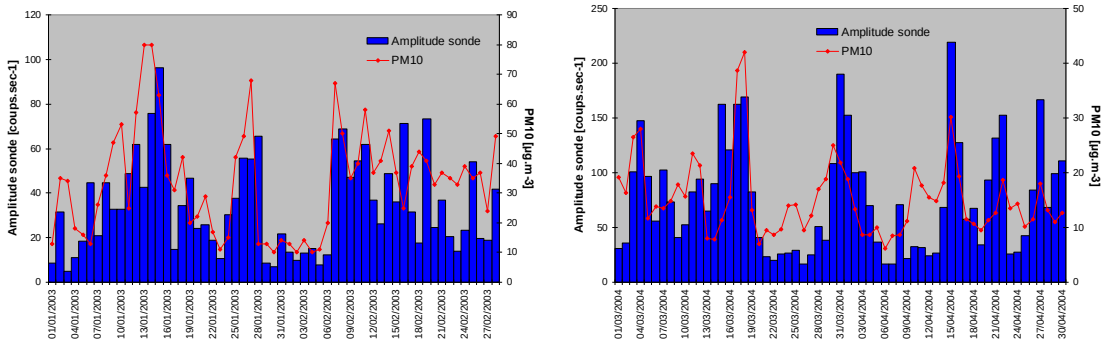


Figure 5.16 : Evolution journalière de l'amplitude du signal de la sonde NaI (barres bleues) et de la concentration en PM_{10} (courbes rouges) à la station de la Seyne-sur-Mer entre janvier et février 2003 (gauche) et à Dijon entre mars et avril 2004 (droite) – Mesures de PM_{10} d'AtmoPACA et d'Atmosf'air - Bourgogne.

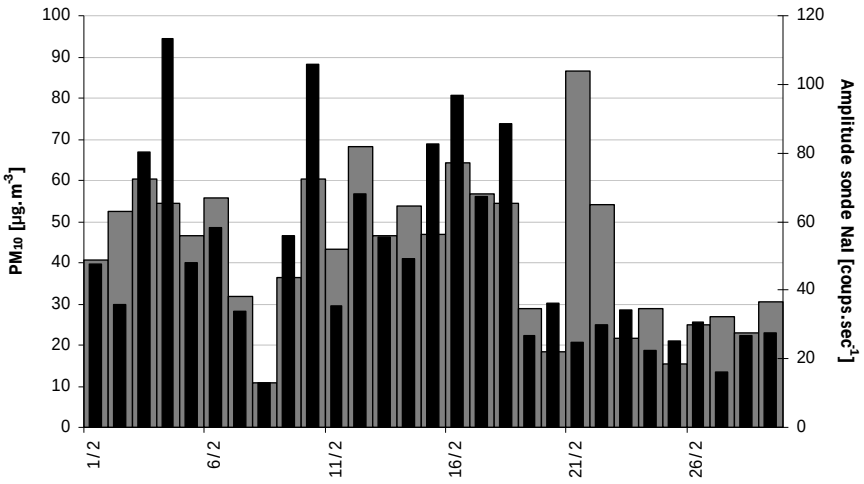


Figure 5.17 : Evolution journalière de l'amplitude du signal de la sonde NaI (barres noires) et de la concentration en PM_{10} (barres grises) à la station de la Seyne-sur-Mer durant le mois de février 2004 (Source des PM_{10} : AtmoPACA).

5.4.2.5 – La détermination du niveau de ventilation

L'ensemble des observations réalisées dans cette partie a montré que le signal fournit par la sonde pouvait renseigner sur l'état de stabilité de l'atmosphère et sur le niveau de ventilation dans les basses couches, sous couvert de quelques précautions, permettant ainsi de distinguer les périodes de mesure influencées par un transport longue-distance des périodes de mesures influencées par les émissions locales de particules. La mesure des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols étant réalisée sur des filtres de prélèvement décadaires, le niveau de ventilation doit être déterminé sur la même base temporelle.

La méthodologie consiste tout d'abord à considérer chacune des stations du réseau OPERA séparément, afin de ne pas tenir compte des différences induites par la localisation de chacune d'elles et de la nature des sols environnants. En second lieu, il est nécessaire de séparer les différentes saisons pour pouvoir s'approcher au mieux de l'hypothèse d'un flux d'exhalation constant de ^{222}Rn. Enfin, chacune des distributions d'amplitudes journalières préalablement définies est divisée en trois catégories : les journées correspondant à un épisode pluvieux sont classées dans la catégorie « pluie », les journées correspondant à une amplitude du signal de la sonde supérieure à la médiane de la distribution sont classées dans la catégories des journées de « mauvaise ventilation » et enfin les périodes de « bonne ventilation » sont associées aux journées dont l'amplitude du signal de la sonde est inférieure à la médiane de la distribution. Ce classement effectué à partir de valeur seuil implique arbitrairement que, pour chacune des saisons, le nombre de jours de bonne et de mauvaise ventilation est proche.

Pour confirmer le classement de chacune des journées, une vérification des paramètres disponibles telles que l'intensité du vent et l'évolution de la concentration en PM_{10} est réalisée. Des calculs de rétro-trajectoires et de rétro-panaches sont également effectués afin de valider la classification. Il apparait alors que pour bon nombre de jours, la classification dans une des deux catégories apparait très peu évidente au regard des différents paramètres disponibles. Ces périodes pourraient ainsi être classées dans une catégorie intermédiaire de ventilation médiane. Toutefois, au regard des vérifications de chacune des périodes de mesures dans chacune des deux catégories, il apparait que ces périodes dites intermédiaires se répartissent de manières relativement égales entre les deux catégories initialement définies. Il en résulte alors un équilibre de leur influence sur chacune des deux catégories.

Une fois le niveau de ventilation déterminé pour chaque journée, un calendrier décadaire est alors obtenu rendant compte de la proportion de chacune des catégories prédéfinies durant les périodes de prélèvement des aérosols correspondant aux mesures des niveaux d'activité en ^{137}Cs (figure 5.18).

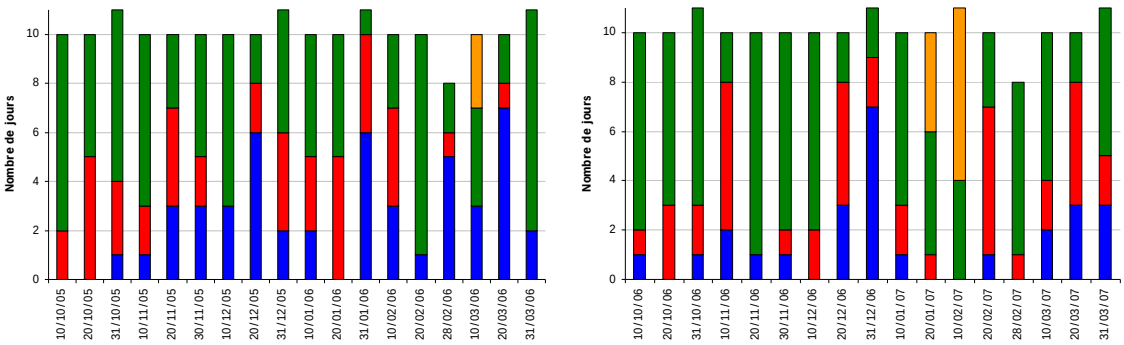


Figure 5.18 : Répartition des niveaux de ventilation (barres bleues : « bonne ventilation », barres rouges : « mauvaise ventilation », barres oranges : absence de données) et des périodes de pluie (barres vertes) pour chacune des décades associées à une mesure du ^{137}Cs dans les aérosols pour la station de Dijon du 01/10/2005 au 31/03/2006 (gauche) et du 01/10/2006 au 31/03/2007 (droite).

De manière évidente, il apparait alors qu'aucune des périodes de prélèvement des aérosols associées à une mesure du ^{137}Cs sur l'ensemble des stations du réseau OPERA ne correspond à un même niveau de ventilation. Afin de pouvoir réaliser des statistiques et d'étudier l'influence des conditions de ventilation sur les niveaux d'activité en ^{137}Cs, il est alors nécessaire de classer chacune des décades de mesure dans une des catégories journalières prédéfinies. Ainsi, chacune des décades est classée dans une catégorie à la condition que plus de la moitié des jours de prélèvements la composant appartiennent à cette catégorie. A titre d'exemple, pour une décade de dix jours, la mention de « mauvaise ventilation » lui sera attribuée à la condition que plus de 5 jours la composant portent la mention « mauvaise ventilation ».

5.4.3 – Résultats et discussion

Au final, chacune des décades de mesure du ^{137}Cs est associée à une période de « mauvaise ventilation », « bonne ventilation », « pluie » ou « indéfinie ». Il est alors possible d'étudier la distribution des niveaux d'activité en ^{137}Cs pour chacune de ces catégories. La figure 5.19 présente ainsi de manière synthétique la répartition des niveaux d'activité en ^{137}Cs sous forme de « boites à moustaches » pour les décades automnales et hivernales de 2003 à 2007 associées aux catégories « bonne ventilation » et « mauvaises ventilation » prédéfinies. Conformément aux résultats obtenus dans la partie 2.1.1, les périodes de pluie correspondent au niveau d'activité en ^{137}Cs les plus faibles pour chacune des stations du réseau OPERA. Pour ne pas surcharger le graphique, les distributions des niveaux d'activité en ^{137}Cs pour la catégorie « pluie » ne sont donc pas représentées sur la figure 5.19.

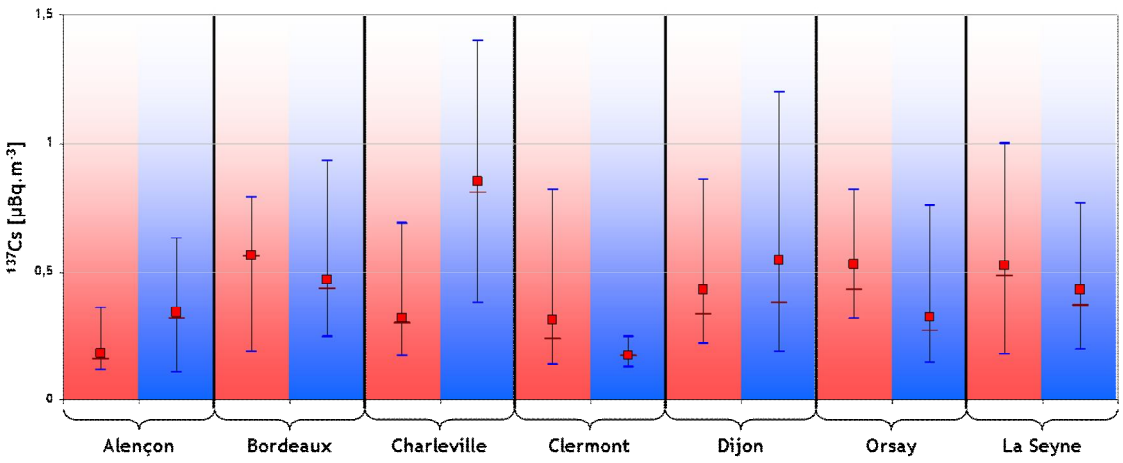


Figure 5.19 : Répartition des niveaux d'activité en ^{137}Cs sous forme de boites à moustaches pour les décades automnales et hivernales de 2003 à 2007 associées aux catégories « mauvaises ventilation » (fond rouge) et « bonne ventilation » (fond bleu) prédéfinies pour chacune des stations du réseau OPERA. Les tirets bleus représentent les valeurs extrêmes, le carrés rouge la moyenne et le tiret central marron la médiane des distributions.

Le premier résultat marquant de cette figure est que l'influence du niveau de ventilation sur les distributions des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols n'est pas identique pour toutes les stations. Cette observation se traduit par une contribution différente sur les augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs de l'influence locale d'une part, associée à de faibles conditions de dispersion et une accumulation des particules émises dans les basses couches de l'atmosphère et de l'influence plus lointaine d'autre part, sans précision sur l'origine, associée à de meilleures conditions de dispersion et pouvant occasionner une advection de pollution. Ainsi, deux groupes peuvent être formés avec d'un côté les stations présentant des niveaux moyens et médians supérieurs lors des décades de mauvaise ventilation et donc associés à une influence prédominante locale : Bordeaux, Clermont-Ferrand, Orsay et la Seyne-sur-Mer, et d'un autre côté les stations présentant un niveau moyen et médian supérieur durant les décades de bonne ventilation : Alençon, Charleville-Mézières et Dijon. Mise à part la station de Bordeaux, il est également notable que les maxima des distributions se répartissent de la même manière.

Les résultats de cette étude apparaissent alors mitigés puisqu'aucune tendance formelle ne se dégage entre les périodes favorables à la dispersion des polluants et les périodes propices à leur accumulation. Toutefois, il est à remarquer qu'à l'exception de la station de Charleville-Mézières où les distributions des niveaux d'activité en ^{137}Cs suivant les conditions de ventilation présentent des différences significatives, les valeurs médianes et moyennes des distributions de chacune des stations en fonction de la catégorie de ventilation sont relativement proches et ne permettent pas d'impliquer de manière générale la météorologie et la diminution des conditions de dispersion durant l'hiver dans les augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs observées lors de certaines décades hivernales.

La conclusion de cette étude est alors que le niveau de ventilation dans les basses couches de l'atmosphère n'est pas le paramètre principal influençant l'activité volumique en ^{137}Cs dans les aérosols durant la saison hivernale. Cette conclusion amène à impliquer le transport longue-distance dans l'augmentation significative du niveau d'activité puisque celles-ci correspondent aux périodes dites de « bonnes ventilation ».

Cette conclusion se trouve renforcée par l'évolution saisonnière de l'activité massique en ^{137}Cs des aérosols mesurée par l'ensemble des stations du réseau OPERA depuis mars 2007 (figure 5.20). En effet, il apparait que cette mesure présente également une saisonnalité avec des augmentations significatives durant la période hivernale et des niveaux plus faibles durant l'été, à rapprocher avec la tendance observée pour l'activité volumique en ^{137}Cs dans les aérosols (figure 5.21). A l'inverse de l'activité volumique qui, par sa définition, rend compte du niveau d'activité en ^{137}Cs par unité de volume et se trouve donc conditionnée par un ensemble de paramètres météorologiques, l'activité massique en ^{137}Cs ne présente aucune dépendance avec les conditions de ventilation ou dispersion. Ainsi, dans le cas d'une source fixe émettant un flux de particules porteuses de ^{137}Cs dans un volume fini, l'activité volumique augmentera au cours du temps tandis que l'activité massique, elle, restera constante. La seule condition à cet exemple porte sur la source et la nature des particules émises et nullement sur les conditions de dispersion de celles-ci après leur émission.

Au regard des résultats précédents et des observations faites à partir des figures 5.20 et 5.21, il est alors possible de conclure que les augmentations significatives des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs durant la saison hivernale résultent d'un changement de processus de remise en suspension du ^{137}Cs, de ses propriétés ou des propriétés des matrices impliquées, représenté par les variations de l'activité massique en ^{137}Cs, et non pas d'un changement de conditions météorologiques et notamment d'une diminution de l'efficacité de la dispersion des polluants localement émis durant les périodes hivernales.

D'après les résultats obtenus dans la partie concernant les poussières sahariennes et l'érosion éolienne en générale, il est apparu que les particules remises en suspension par ce processus étaient caractérisées par une activité massique relativement faible correspondant à celle mesurée durant la période estivale (figure 5.20). Ce résultat est concordant avec la saisonnalité de ce processus puisque la mise en place de l'érosion éolienne nécessite la raréfaction du couvert végétal et une sécheresse des sols. A l'inverse, les particules émises par la combustion de biomasse présentent une activité massique en ^{137}Cs plus importante d'après les résultats obtenus lors de la caractérisation de ce processus, ce qui apparait correspondre à la tendance observée durant la saison hivernale. Les différences saisonnières de l'activité massique en ^{137}Cs semblent ainsi expliquées par une alternance des processus de remise en suspension du ^{137}Cs impliqués dans sa rémanence dans le compartiment atmosphérique.

Toutefois, des variations de l'activité massique en ^{137}Cs des aérosols sont également observées au sein même de la saison hivernale. L'intensification du processus identifié au cours de l'hiver, en relation avec la diminution des températures, pourrait expliquer les augmentations de l'activité volumique en ^{137}Cs mais pas celles de l'activité massique puisque, par définition, cette

mesure n'est pas sensible à la quantité de particules émises mais à leurs propriétés. L'implication d'un autre processus de remise en suspension du ^{137}Cs dans le compartiment atmosphérique durant l'hiver apparait également peu probable pour expliquer ces variations significatives de l'activité massique au sein de la saison puisque de manière générale, aucun autre processus de production de particules pouvant être impliqué de manière significative dans la rémanence atmosphérique du ^{137}Cs n'a pu être identifié dans le cadre de ces travaux ou dans la littérature. L'explication la plus probable à apporter à ces variations intra-saisonnières de l'activité massique en ^{137}Cs apparait alors être un changement des caractéristiques des matrices émettrices, à savoir la combustion du bois.

Communément, les particuliers se servant de la biomasse comme ressource énergétique utilisent durant l'hiver un bois de même nature, provenant d'une exploitation environnante, et présentant alors un niveau de contamination en ^{137}Cs relativement similaire. Ainsi, il semblerait que les particules remises en suspension à l'échelle locale voire régionale présentent une relative constance en termes d'activité massique du fait des habitudes de consommation dans ce domaine. Ainsi, la combustion de biomasse à l'échelle locale ne semble pas impliquée dans les variations significatives observées sur la figure 5.20. En revanche, la biomasse issue de territoires plus fortement marqués par les retombées de l'accident de Tchernobyl présente des niveaux de contamination en ^{137}Cs significativement plus importants que ceux mesurés en France. Dans les pays les plus marqués tels que la Biélorussie, l'Ukraine ou la Fédération de Russie, certains produits forestiers sont impropres à la consommation dans le cadre d'une utilisation comme ressource énergétique en raison de niveaux d'activité en ^{137}Cs supérieurs à la limite définie par l'AIEA (2006) de 750 $Bq.kg^{-1}$. Néanmoins, pour certains territoires de la Fédération de Russie, cette valeur limite est fixée à 1 400 $Bq.kg^{-1}$ (Lujaniene et al., 2007). En comparaison des niveaux moyens d'activité en ^{137}Cs dans le bois couramment mesurés sur le territoire français, de l'ordre de 25 $Bq.kg^{-1}$, il apparait alors que le transport longue-distance de particules issues de la combustion de biomasse, provenant de territoires plus fortement marqués par les retombées de l'accident de Tchernobyl, peut participer aux augmentations significatives des niveaux d'activité massique en ^{137}Cs dans le cas de situations météorologiques favorables à leur transport. Cette hypothèse est ainsi en accord avec les résultats précédents montrant que les augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs hivernaux correspondent à des périodes de « bonne ventilation » et peuvent donc être associées à des épisodes de transport longue-distance.

La dernière partie de cette étude est alors consacrée à la validation expérimentale de ces hypothèses au travers des résultats d'une campagne de mesures réalisées durant l'hiver 2010.

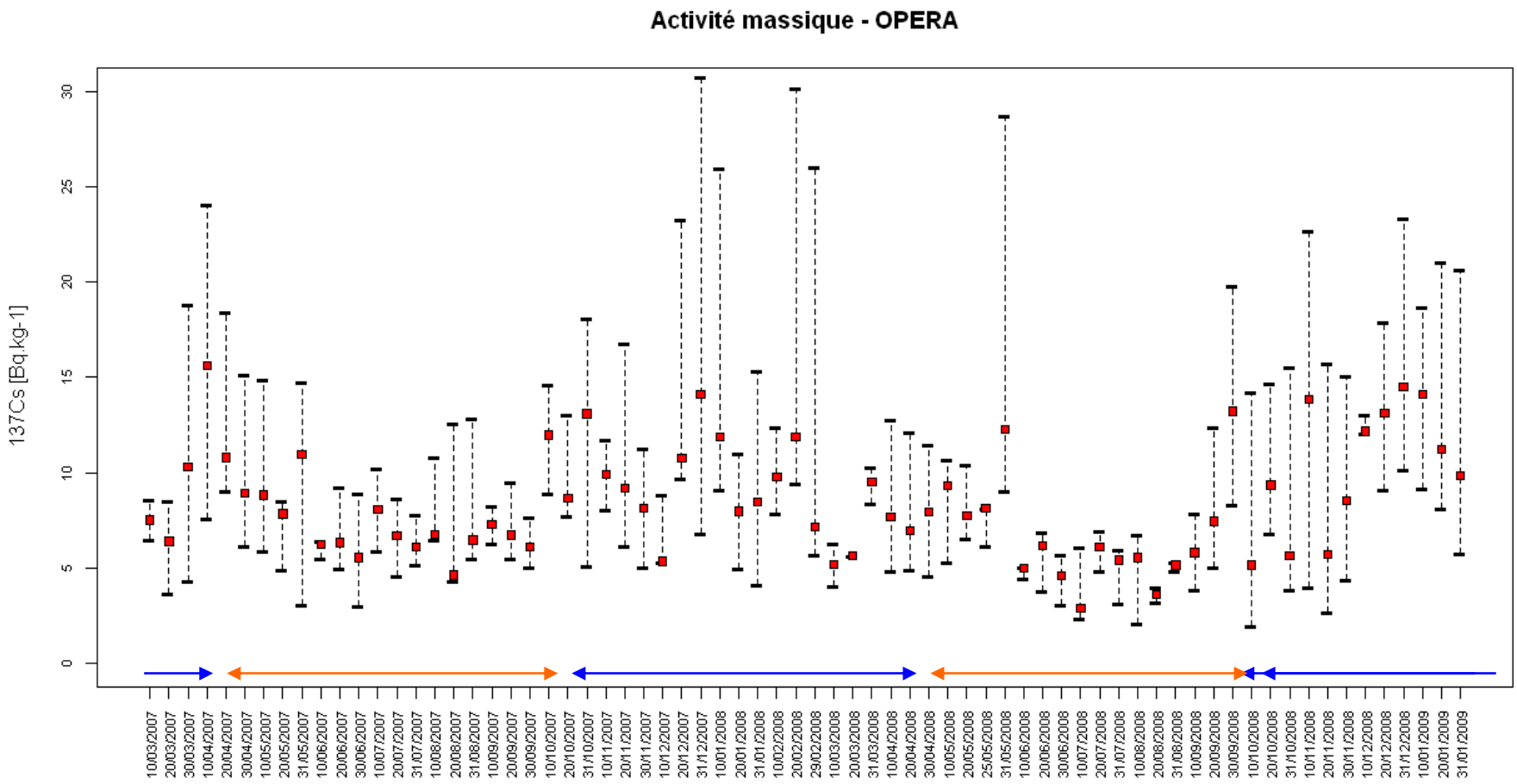


Figure 5.20 : Valeur médiane (carrés rouges) et extrêmes (tirets noirs) pour chaque décade du 01/03/2007 au 31/01/2009 de l'activité massique en ^{137}Cs mesuré par l'ensemble des stations du réseau OPERA. Les flèches de couleurs matérialisent les saisons correspondantes (bleu : hiver, orange : été).

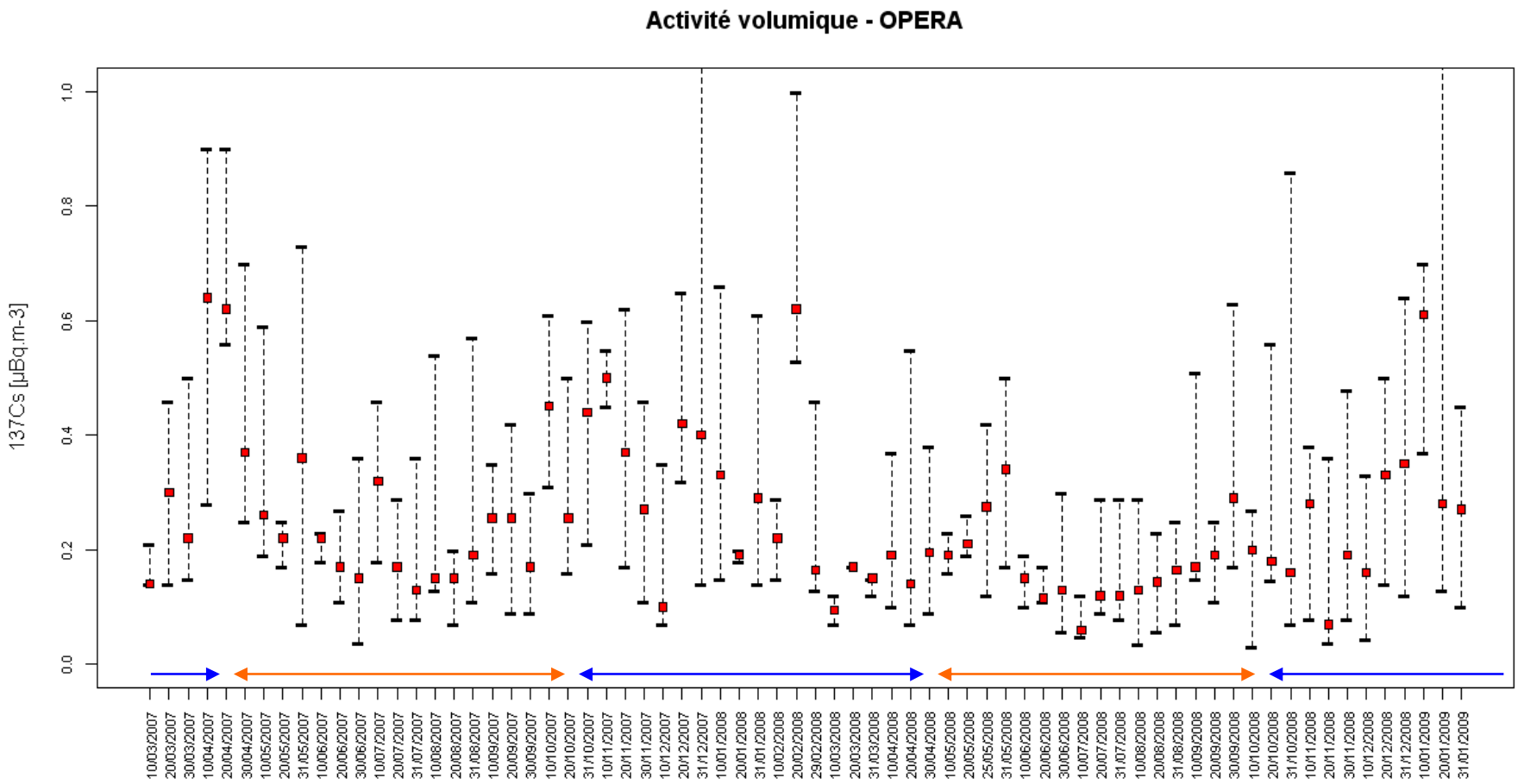


Figure 5.21 : Valeur médiane (carrés rouges) et extrêmes (tirets noirs) pour chaque décade du 01/03/2007 au 31/01/2009 de l'activité volumique en ^{137}Cs mesuré par l'ensemble des stations du réseau OPERA. Les flèches de couleurs matérialisent les saisons correspondantes (bleu : hiver, orange : été).

5.5 – Mise en évidence de l'influence du transport longue-distance sur l'évolution des niveaux d'activité en ^{137}Cs durant l'hiver.

L'objectif de cette étude spécifique est de valider les différents résultats obtenus au moyen d'une campagne de mesures dans l'environnement. Pour cela, il est tout d'abord nécessaire de disposer d'un site de prélèvement influencé de manière significative par le processus de remise en suspension étudié. Idéalement, ce site de prélèvement doit pouvoir être sous l'influence successive d'émissions locales et de transports longue-distance afin de déterminer leur contribution respective sur l'évolution des niveaux d'activité en ^{137}Cs. Afin de pouvoir mettre en relation les variations des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols avec la combustion de biomasse, il est également nécessaire de disposer d'un traceur de ce processus qui puisse permettre de qualifier son influence. Enfin, il est nécessaire de pouvoir distinguer la contribution des émissions locales de celle due à un transport longue-distance.

5.5.1 – Matériels et méthodes

5.5.1.1 – Les sites de prélèvement

Le premier critère à remplir dans la sélection du site de prélèvement est que celui-ci soit influencé de manière significative par les émissions de combustion de biomasse. Il est également préférable que ce site se situe dans une région où les retombées de l'accident de Tchernobyl ont entrainé un dépôt surfacique en ^{137}Cs suffisant pour que les aérosols émis par la combustion du bois local présentent un niveau d'activité de ce radionucléide conséquent, ce qui permettrait d'obtenir des mesures significatives du niveau d'activité en ^{137}Cs sur des durées de prélèvement plus courtes.

La figure 5.22 présente ainsi deux cartes du territoire français, l'une renseignant sur la consommation du bois-énergie par les ménages à l'échelle des régions et la seconde indiquant le dépôt surfacique en ^{137}Cs résultant du cumul des retombées des essais des armes nucléaires dans l'atmosphère et de l'accident de Tchernobyl. Le recoupement de ces deux informations permet alors de présélectionner une zone géographique d'intérêt. Le Nord-est de la France semble ainsi répondre aux deux critères de sélection énoncés.

Dans le but de réaliser une interprétation pertinente des résultats obtenus, il est préférable de connaitre le niveau moyen ambiant en ^{137}Cs dans les aérosols du site de prélèvement. Cette connaissance permettra alors de pouvoir fixer un niveau de référence en fonction des conditions météorologiques autours desquels se répartiront les différentes mesures effectuées lors de la campagne de prélèvement permettant ainsi de mieux comprendre leur influence respective. Cette information n'est disponible qu'au niveau des stations du réseau OPERA.

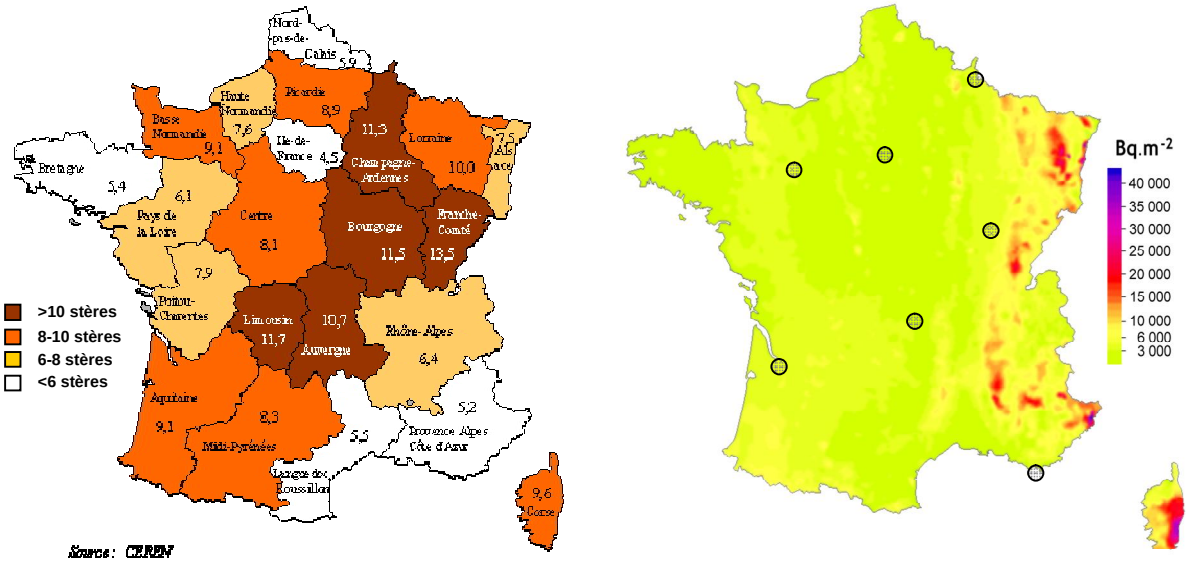


Figure 5.22 : Gauche : Consommation de bois-énergie des ménages en 2001 à l'échelle des régions (source : www.statistiques.developpement-durable.gouv.fr) ; Droite : Dépôts surfacique en ^{137}Cs à l'échelle du territoire français en 2006 (Renaud et al., 2007).

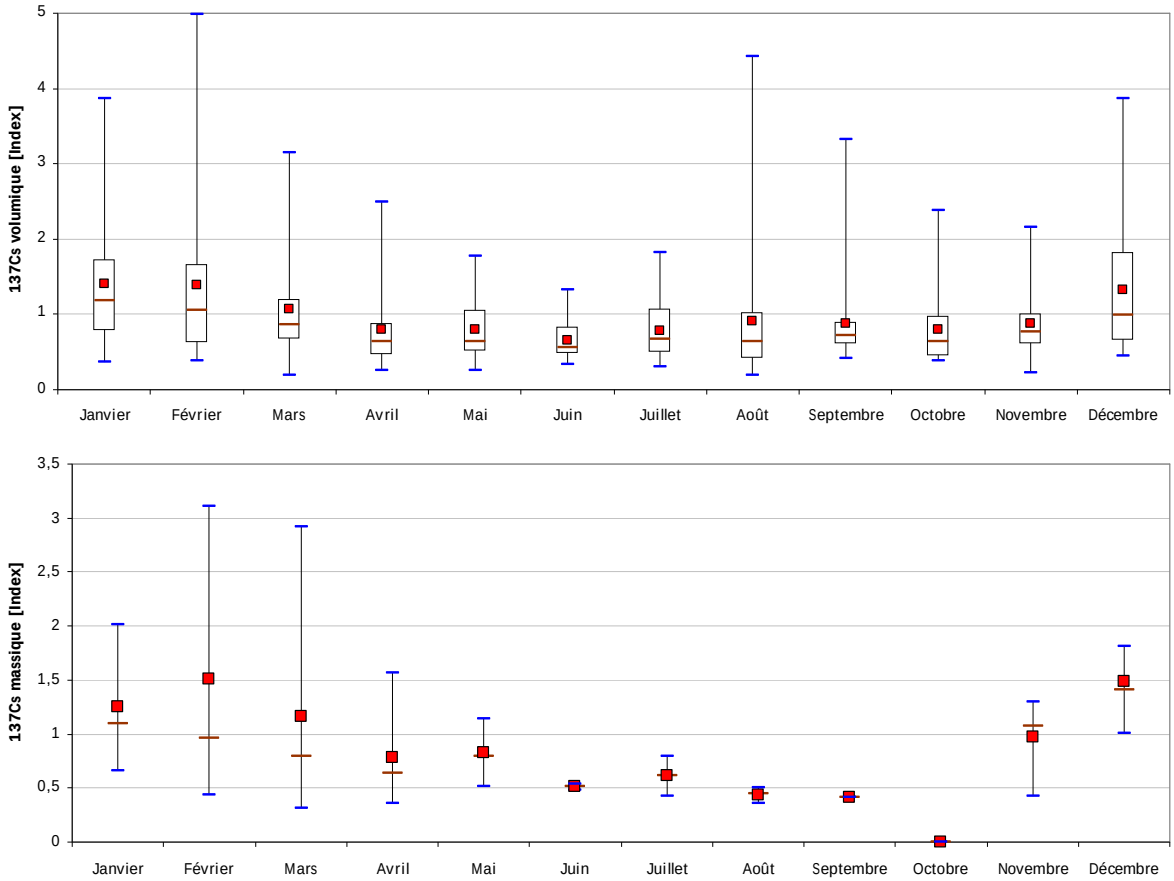


Figure 5.23 : Distributions mensuelles des niveaux d'activité volumique (haut) et massique (bas) en ^{137}Cs dans les aérosols à la station de Dijon, pondérées par les moyennes respectives sur l'ensemble de la période d'étude. Les tirets bleus représentent les valeurs extrêmes, les carrés rouges la moyenne, les tirets centraux marrons la médiane et les extrémités des boites les 1er et 3ème quartiles des distributions.

La station de prélèvement de Dijon se situe dans une des régions (Bourgogne) où la consommation de bois-énergie est la plus forte. De plus, les territoires alentours présentent des dépôts surfaciques en ^{137}Cs plus importants que la moyenne du territoire français. Enfin, cette station présente une importante saisonnalité des niveaux d'activité volumiques et massiques en ^{137}Cs dans les aérosols (figure 5.23). Cette station est alors retenue pour mener la campagne de prélèvement visant à caractériser l'influence de la combustion de biomasse à différentes échelles sur les variations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols.

Comme il en sera discuté ci-après, la caractérisation des différentes échelles d'influence nécessite de devoir modifier la résolution temporelle des prélèvements d'aérosols. Cette modification ne garantie toutefois pas l'obtention de volumes suffisants à la réalisation de mesures supérieures aux limites de détection permettant de quantifier les niveaux d'activité en ^{137}Cs. Il est donc choisi de prendre la station de Dijon comme station de référence sans modifier la résolution temporelle des prélèvements, garantissant ainsi l'obtention de mesures significatives durant la campagne de prélèvement, et d'y ajouter une seconde station dont les prélèvements suivront l'évolution des conditions météorologiques.

La station de référence de Dijon, que nous nommerons pour la suite de cette étude « station TGD », se situe dans une zone d'activité tertiaire et n'est donc pas soumise directement aux émissions locales de combustion de biomasse. Afin de pouvoir être sous cette influence directe, il apparait alors opportun de placer la seconde station, que nous nommerons pour la suite de cette étude « station mobile », à l'intérieur ou au plus proche d'un quartier résidentiel utilisant cette ressource énergétique. En raison de nuisances sonores occasionnées par la filtration de l'air ambiant, la « station mobile » utilisée pour cette étude ne peut être placée à l'intérieur même d'un quartier résidentiel. Les contraintes logistiques imposent également une restriction des sites pouvant accueillir les équipements. La station mobile est alors disposée dans un cimetière, limitant ainsi la nuisance sonore environnante, en périphérie de quartiers résidentiels, permettant une influence significative des émissions locales de combustion de biomasse domestique. La figure 5.24 fournit une illustration de la localisation de chacune des stations utilisées dans le cadre de cette campagne de mesures.

La station TGD se situe au nord de l'agglomération dijonnaise, comptant plus de 250 000 habitants. Elle se situe dans l'enceinte du parc de Météo-France Bourgogne, au sein d'une zone d'activité tertiaire sur une légère butte au regard du reste de l'agglomération. La station mobile se situe au Sud-est de l'agglomération. Les quartiers environnants sont résidentiels avec une grande majorité de maisons individuelles. La parcelle mise à notre disposition par les services de la ville de Dijon est une parcelle ouverte inexploitée. La station mobile est placée en son centre à une cinquantaine de mètres des arbres bordant la parcelle, permettant de limiter leur influence sur l'écoulement de l'air filtré par la station.

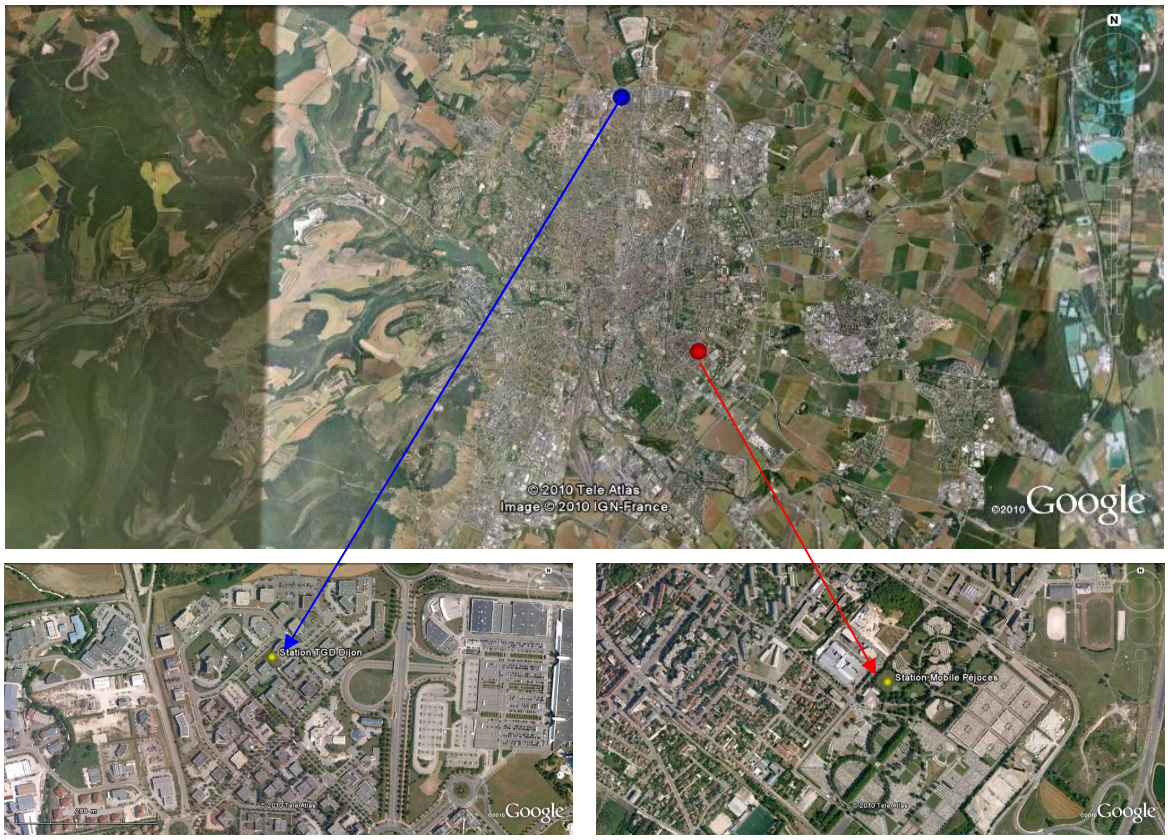


Figure 5.24 : Localisation de la station TGD (bleue) et mobile « rouge » à partir d'images satellites présentant leur situation au regard de l'ensemble de l'agglomération dijonnaise (haut) leur environnement proche respectif (bas-gauche : TGD ; bas-droite : mobile).

5.5.1.2 – Les prélèvements d'aérosols

Chacune des stations de prélèvement utilisées dans le cadre de cette campagne de mesures se compose d'un préleveur d'aérosols OPERA servant à la caractérisation des niveaux d'activité et d'un second préleveur indépendant servant à la mesure de traceurs organiques de la combustion de biomasse et des ions majeurs (figure 5.25).

La cabine OPERA équipant le site de référence au nord de l'agglomération dijonnaise est une cabine nouvelle génération (TGD : Très Grand Débit) fonctionnant en moyenne à 700 $Nm^3.h^{-1}$. Les filtres utilisés pour cette station sont les filtres OPERA décrits dans la partie 1.1.4 et sont changés tous les 5 jours. En raison du débit d'aspiration, le volume total prélevé sur cette période est suffisant pour permettre une mesure significative des niveaux d'activité en ^{137}Cs sur une ½ décade. En parallèle, un second préleveur d'aérosols type « Hi-Vol » est placé à proximité. Le débit de cet appareil est fixé en moyenne à 90 $m^3.h^{-1}$ durant la campagne de mesure. Les filtres utilisés sont en fibres de quartz pour permettre la mesure des traceurs organiques et des ions majeurs. Les périodes d'échantillonnage de cet appareil correspondent à celles de la cabine OPERA TGD.

La station installée au sud de l'agglomération, appelé « station mobile », dispose également d'un préleveur d'aérosols type Hi-Vol, fonctionnant également avec des filtres en fibres de quartz. La différence avec le premier site est le type de station OPERA utilisée. Celle-ci est une station

d'ancienne génération fonctionnant à un débit moyen de 300Nm^3.h^{-1}. Le type de filtre utilisé pour cette station est identique aux filtres utilisés pour la station TGD. Les changements des filtres de ces deux équipements sont réalisés simultanément en fonction des conditions météorologiques. Pour des raisons de mobilité, l'ensemble de ces équipements est placé sur une remorque. Le prélèvement est donc rehaussé d'environ 70 cm.

Pour l'ensemble de ces deux stations, les paramètres météorologiques sont mesurés au moyen des équipements décrits dans la partie 1.1.4.

Figure 5.25 : Station OPERA TGD et cabine Hi-Vol sur le site de référence au nord de l'agglomération dijonnaise (gauche) et remorque intégrant la station d'ancienne génération du réseau OPERA et la cabine Hi-Vol (droite).

5.5.1.3 – Les données météorologiques

Un des objectifs de cette campagne étant de valider par des mesures de terrain les résultats obtenus lors de l'étude sur la relation entre les variations des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols et celles des conditions météorologiques, il est alors essentiel de pouvoir distinguer les périodes favorables à la dispersion des particules émises localement, des périodes favorables à leur accumulation dans les basses couches. Afin de faire correspondre ces différentes périodes aux prélèvements atmosphériques, pour pouvoir isoler et distinguer leur contribution, il est nécessaire d'avoir accès à cette information en amont du prélèvement. Ainsi, il n'est pas possible d'utiliser les données de la sonde NaI qui ne permettent dans le meilleur des cas qu'une estimation en temps réel du niveau de ventilation avec une lecture directe sur la station. La solution retenue est alors d'utiliser des données de prévisions météorologiques issues d'un modèle opérationnel.

Le modèle AROME (Applications de la Recherche à l'Opérationnel à Méso-Echelle), développé par les chercheurs et prévisionnistes de Météo-France en collaboration avec plusieurs laboratoires universitaires et services météorologiques européens, est utilisé par Météo-France depuis décembre 2008. Ce modèle est qualifié de régional à maille très fine (2.5 km) fournissant des prévisions détaillées à l'échelle de la France. Sa résolution spatiale permet de rendre compte de phénomènes locaux et de prévoir leur développement. Parmi les nombreux paramètres simulés, AROME modélise l'état vertical de l'atmosphère et fournit des prévisions de radiosondages pour des

échéances de 3 à 30 heures. Ce modèle produit également une coupe temporelle et verticale de certains paramètres météorologiques permettant de synthétiser différentes informations comme la direction et l'intensité du vent sur l'ensemble de la colonne atmosphérique et également de rendre compte de l'état de saturation de l'atmosphère et de prévoir par exemple l'apparition de brouillard (figure 5.26). A partir de ces simulations, il est alors possible de prévoir les inversions thermiques et les différentes conditions de dispersion au regard de l'évolution verticale de la courbe d'état et des intensités de vent associées.

En début de campagne, trois périodes de situations météorologiques différentes sont arbitrairement définies pour leur influence sur les conditions de dispersion afin d'étudier les variations des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols associés et pour répondre aux objectifs énoncés en introduction de cette partie. La première condition météorologique définie est la situation de mauvaise ventilation. Cette situation doit se caractériser par un vent très faible et une inversion thermique dans les basses couches afin de restreindre la dispersion des polluants émis localement et provoquer une accumulation mais également de limiter les contributions extérieures et le transport longue-distance. Ce type de situation météorologique est censé permettre de caractériser les émissions locales sans apport extérieur et permettre d'estimer leur contribution sur les niveaux d'activité en ^{137}Cs.

La seconde condition météorologique définie correspond à une situation de bonne dispersion. Cette situation doit correspondre à une absence d'inversion thermique, permettant un volume de dispersion des particules localement émises plus important, et à une intensité de vent significative. Ce type de situation doit alors permettre de caractériser la contribution du transport longue-distance. Toutefois, au regard des résultats obtenus dans la partie 2.4.6 et d'un dépôt surfacique inhomogène en ^{137}Cs à l'échelle de l'Europe entrainant une contamination en ^{137}Cs plus importante des produits forestiers originaires de l'est de l'Europe, la contribution du transport longue-distance peut varier en fonction de la provenance des masses d'air. Ainsi, il apparait nécessaire de distinguer deux sous-catégories de condition de bonne dispersion liées à l'origine océanique ou continentale de la masse d'air. Cette distinction peut être faite à partir des prévisions des modèles à une échelle synoptique rendant compte des mouvements des masses d'air à grande échelle et étayée par la visualisation de la direction du vent local sur l'ensemble de la colonne atmosphérique obtenue à partir des simulations du modèle régional. Les mesures réalisées dans le cas de situation de bonne dispersion d'origine océanique doivent permettre de valider que les particules mises en suspension par la combustion de biomasse issue de territoires présentant des dépôts surfaciques en ^{137}Cs significativement moins importants et leur transport jusqu'à la station de prélèvement n'entrainent pas d'augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs.

Durant l'ensemble de la campagne de mesure, les sorties du modèle AROME sur l'agglomération dijonnaise sont récupérées quotidiennement et analysées pour déterminer les conditions de dispersion à venir et optimiser les prélèvements effectués afin de distinguer les contributions des différentes situations définies. La figure 5.27 présente sous forme de calendrier la distribution de chacune des situations météorologiques définies précédemment pour l'ensemble de la campagne de mesure, ainsi que les radiosondages caractéristiques de chacune des situations.

Sur ce calendrier apparaissent également des périodes de coupure. La station mobile étant placée sur une parcelle de cimetière à proximité d'un incinérateur, les prélèvements sont interrompus lors des phases d'exploitation de celui-ci. Cette précaution permet de ne pas être influencé par les particules émises lors de la combustion des matériaux placés dans l'incinérateur et de rester représentatif d'un environnement urbain classique.

Les horaires d'ouverture du site sont une seconde caractéristique intrinsèque au site de prélèvement retenu. L'accès à la station mobile n'est alors possible que durant la journée. Il est alors nécessaire d'anticiper les changements de situation météorologique pouvant se produire dans le courant de la nuit. Concrètement, lorsque le modèle AROME prévoit un changement de condition de dispersion dans le début de la nuit, le filtre correspondant à cette situation doit être mis en place au plus tard à 18 heures, horaire de fermeture du site. Bien que cela entraine un chevauchement d'une situation donnée sur un filtre de prélèvement différent, la durée de superposition peut être négligée au regard des temps de prélèvement finaux obtenus pour chaque type de situation.

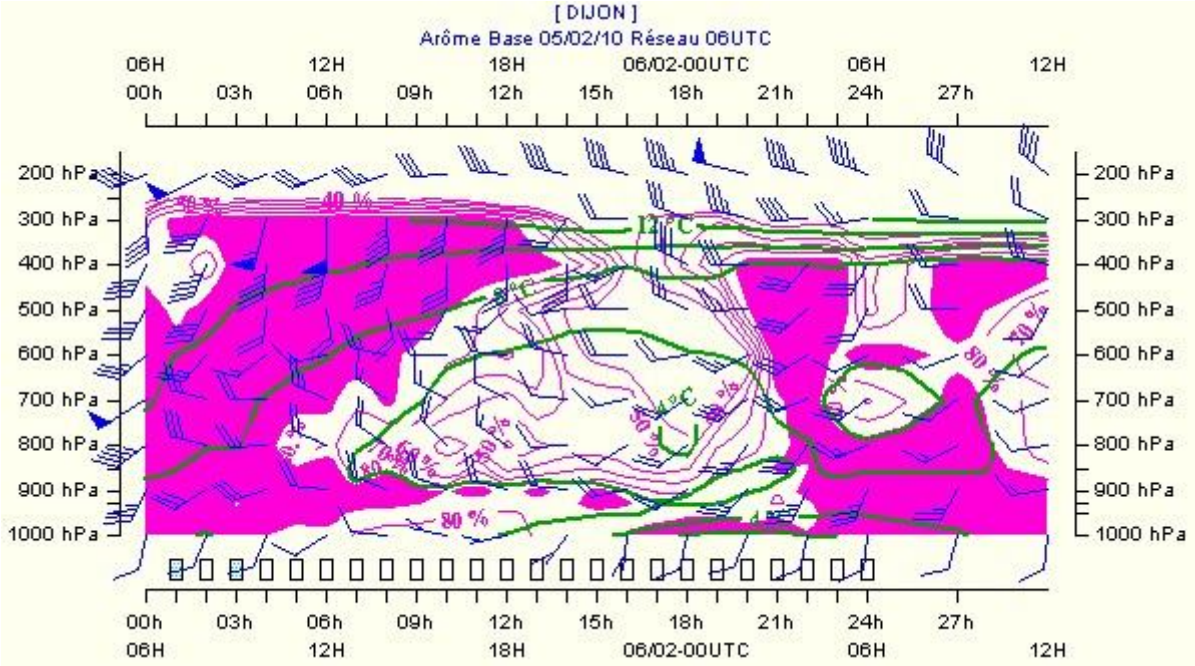


Figure 5.26 : Coupe temporelle et verticale issue du modèle AROME sur l'agglomération de Dijon pour la journée du 05/02/2010 à 6UTC jusqu'au 06/02/2010 à 12UTC.

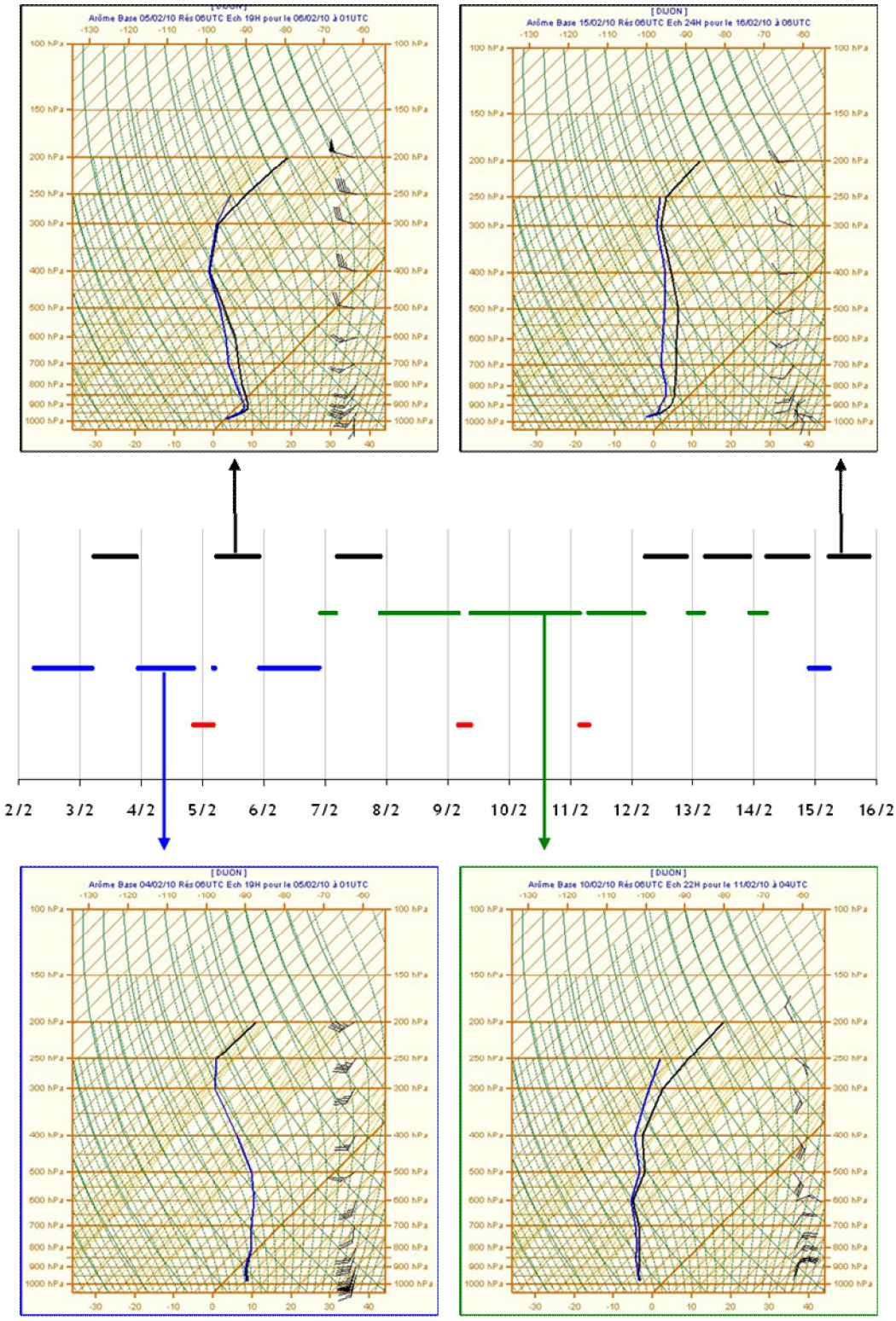


Figure 5.27 : Calendrier des différentes conditions météorologiques rencontrées durant le mois de février 2010 sur l'agglomération de Dijon, défini à partir des prévisions de radiosondages du modèle AROME de Météo-France. Les tracés noirs correspondent aux périodes de mauvaise dispersion associées à des inversions thermiques nocturnes, les tracés verts aux périodes de bonne ventilation avec un flux d'air continental, les tracés bleus aux périodes de bonne ventilation avec un flux d'air océanique et les tracés rouges aux périodes de coupures des appareils. Les radiosondages entourant le calendrier illustrent les situations météorologiques associées.

5.5.1.4 – La fréquence des prélèvements

D'après l'ensemble des résultats de la chronique OPERA atmosphérique, le niveau ambiant actuel en ^{137}Cs nécessite la filtration d'un volume d'air important afin d'obtenir une mesure supérieure aux limites de détection pour ce radionucléide. En moyenne, le volume nécessaire est de l'ordre de 35 000 m^3. Le débit moyen de la station OPERA composant la station mobile ne permet donc pas de réaliser un filtre de prélèvement à chaque changement de condition météorologique. En effet, ces situations peuvent être observées sur des durées continues de l'ordre de la ½ journée ou de la journée mais en aucun cas sur une durée de 5 jours, durée correspondante au volume nécessaire pour envisager une mesure significative du ^{137}Cs dans les aérosols. L'alternative retenue est alors de considérer uniquement trois filtres de prélèvement OPERA correspondants à chacune des situations météorologiques définies. A chaque retour d'une situation météorologique donnée, le filtre correspondant est alors repositionné sur la station de prélèvement permettant d'additionner les volumes et donc les particules filtrées afin d'atteindre une quantité de matière suffisante à la quantification du ^{137}Cs. Au final, chaque filtre de prélèvement obtenu est équivalent à une moyenne de la situation météorologique correspondante.

Concernant les filtres de prélèvement de la cabine HiVol, la restriction sur la quantité de matière nécessaire à une mesure significative est beaucoup moins forte. Toutefois, afin de pouvoir comparer les résultats objectivement les résultats, ces filtres suivent le même protocole que ceux de la station OPERA avec des temps de prélèvement identiques.

5.5.1.5 – Les mesures

La mesure des niveaux d'activité en ^{137}Cs et autres radionucléides est réalisée par le LMRE conformément à la méthode décrite dans la partie 1.2.1 à partir des filtres des cabines OPERA. Seule une distinction est faite pour le filtre concernant la situation de bonne dispersion océanique en raison du faible volume de prélèvement (table 5.7) et du faible niveau d'activité en ^{137}Cs attendu. Ce filtre est alors mesuré au Laboratoire Souterrain de Modane (IRSN).

Afin de pouvoir déterminer les contributions respectives des différents paramètres conditionnant les niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols (intensité des sources, conditions de dispersion, transport longue-distance), il est nécessaire de disposer d'un traceur de la combustion de biomasse qui permette de quantifier la contribution de ce processus sur les particules prélevées par les équipements. Le lévoglucosan (1,6-anhydro-β-D-glucopyranose), marqueur spécifique de la combustion de substances contenant de la cellulose, est couramment utilisé dans les études visant à quantifier l'impact de la combustion de biomasse sur les concentrations de particules en suspension dans l'atmosphère (Simoneit, 2002 ; Leithead et al., 2006 ; Schmidl et al., 2008 ; Bari et al., 2009 ; Caseiro et al., 2009). En raison de son origine spécifique et de sa stabilité lors de son transport dans l'atmosphère, le lévoglucosan est utilisé dans cette étude comme traceur moléculaire de la combustion de biomasse.

Les filtres des cabines Hi-vol sont ainsi destinés à mesurer la concentration de ce composé organique caractéristique de la combustion de biomasse. Cette mesure est réalisée au Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement (LGGE) de Grenoble. Sur ces mêmes filtres, une mesure du carbone élémentaire (EC) et organique (OC) est également réalisée ainsi que la détermination des ions majeurs (Cl^-, NO_3^-, SO_4^{2-}, $C_2O_4^{2-}$, Na^+, NH_4^+, K^+, Ca^{2+}, Mg^{2+}). Les analyses EC/OC sont réalisées selon la méthode EUSAAR et les espèces ioniques analysées par chromatographie ionique. En amont de ces différentes analyses, 3 mesures de filtres blancs sont effectuées.

5.5.2 – Résultats

En fin de période, 3 types de prélèvement se composant chacun de 2 filtres sont réalisés au niveau de chaque station. La table 5.7 présente les caractéristiques basiques de chacun d'eux. Les prélèvements de la station mobile se répartissent sur la période du 02/02/2010 au 16/02/2010 conformément au calendrier établi sur la figure 5.27. Ainsi, seules les durées de ces prélèvements sont reportées dans la table 5.7. Pour la station TGD, les prélèvements sont réalisés en continu entre les dates reportées.

	Equipement	Descriptif du prélèvement	Code	Durée / date du prélèvement	Volume prélevé
Station mobile	OPERA	Bonne dispersion océanique	ST-M_BVO	77.07 heures	23 186 m3
	Hivol	Bonne dispersion océanique	ST-M_BVO	77.07 heures	7 213 m3
	OPERA	Mauvaise dispersion	ST-M_MV	115.38 heures	36 055 m3
	Hivol	Mauvaise dispersion	ST-M_MV	115.38 heures	10 799 m3
	OPERA	Bonne dispersion continentale	ST-M_BVC	113.72 heures	35 125 m3
	Hivol	Bonne dispersion continentale	ST-M_BVC	113.72 heures	10 644 m3
Station TGD	OPERA	1ère décade fév. 2010 (1/2)	ST-TGD_A	02-05/02/2010	45 368 m3
	Hivol	1ère décade fév. 2010 (1/2)	ST-TGD_A	02-05/02/2010	6 155 m3
	OPERA	1ère décade fév. 2010 (2/2)	ST-TGD_B	05-10/02/2010	72 299 m3
	Hivol	1ère décade fév. 2010 (2/2)	ST-TGD_B	05-10/02/2010	10 415 m3
	OPERA	2nde décade fév. 2010 (1/2)	ST-TGD_C	10-15/02/2010	71 943 m3
	Hivol	2nde décade fév. 2010 (1/2)	ST-TGD_C	10-15/02/2010	10 395 m3

Table 5.7 : Synthèse des dates, durées et volumes des prélèvements réalisés durant la campagne de Dijon en février 2010.

Les principaux résultats des analyses réalisées sur les filtres obtenus durant la période de prélèvements sont reportés dans la table 5.8. Pour l'ensemble des mesures, les valeurs obtenues se trouvent supérieures aux limites de détection grâce notamment au traitement spécifique de l'échantillon ST-M_BVO en spectrométrie gamma.

	Cs-137 vol. [µBq.m^{-3}]	Cs-137 mass. [Bq.kg^{-1}]	K-40 [µBq.m^{-3}]	Cs-137 / K-40 [10^{-3}]	Pb-210 [µBq.m^{-3}]	Be-7 [µBq.m^{-3}]	Be-7 / Pb-210	Lévo. [ng.m^{-3}]	OC [µg.m^{-3}]	EC [µg.m^{-3}]
Station mobile										
ST-M_BVO	0.09 ± 0.04	10.4 ± 4.6	5.6 ± 1.2	16 ± 11	342 ± 33	3 ^{210} ± 290	9.4 ± 1.8	519	2.09	0.98
ST-M_MV	0.40 ± 0.09	16.0 ± 3.6	7.1 ± 1.6	56 ± 27	580 ± 60	2 180 ± 200	3.8 ± 0.7	1 267	5.33	1.09
ST-M_BVC	0.85 ± 0.14	21.3 ± 3.5	9.9 ± 2.3	86 ± 36	1080 ± 100	4 000 ± ^{40}0	3.7 ± 0.7	563	5.90	0.91
Station TGD										
ST-TGD_A	0.16 ± 0.06	9.2 ± 3.4	6.2 ± 2.0	26 ± 20	287 ± 27	2 930 ± 270	10.2 ± 1.9	1 219	5.03	1.18
ST-TGD_B	0.45 ± 0.08	18.7 ± 3.3	5.6 ± 1.2	80 ± 33	590 ± 60	3 520 ± 320	6.0 ± 1.2	787	4.49	1.07
ST-TGD_C	0.73 ± 0.11	27.4 ± 4.1	4.6 ± 1.4	159 ± 80	790 ± 80	2 220 ± 200	2.8 ± 0.5	500	3.56	0.54

Table 5.8 : Résultats des analyses effectuées sur les filtres OPERA et les filtres HiVol – L'abréviation lévo. correspond à la mesure du lévoglucosan.

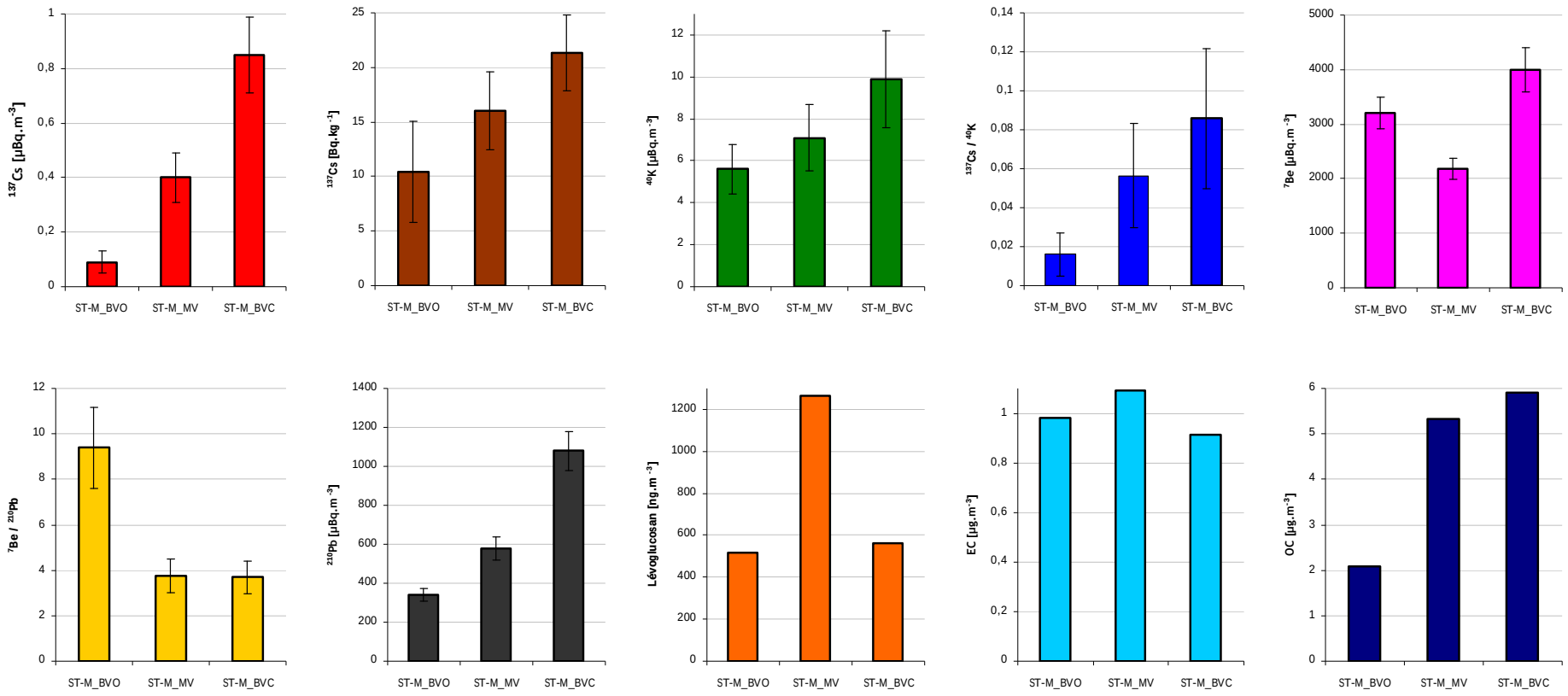


Figure 5.28 : Graphiques des niveaux d'activité volumique du ^{137}Cs (rouge), ^{40}K (vert), 7Be (rose) ^{210}Pb (gris), de l'activité massique en ^{137}Cs (marron), des rapports des niveaux d'activité ^{137}Cs / ^{40}K (bleu) et ^{7}Be / ^{210}Pb (jaune) et des concentrations en lévoglucosan (orange), EC (bleu clair) et OC (bleu foncé) pour la station mobile en fonction des situation météorologiques définies.

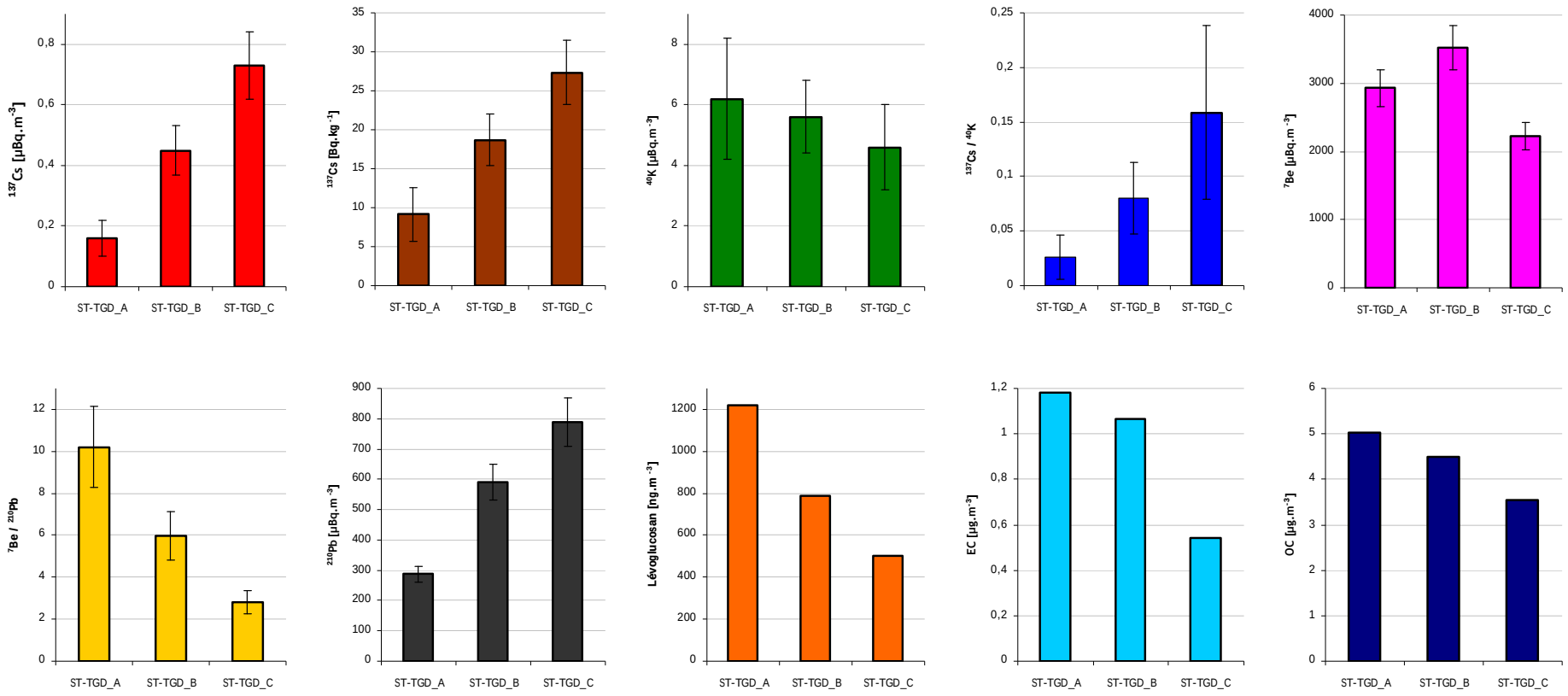


Figure 5.29 : Graphiques par ½ décade des niveaux d'activité volumique du ^{137}Cs (rouge), ^{40}K (vert), 7Be (rose) ^{210}Pb (gris), de l'activité massique en ^{137}Cs (marron), des rapports des niveaux d'activité ^{137}Cs / ^{40}K (bleu) et ^{7}Be / ^{210}Pb (jaune) et des concentrations en lévoglucosan (orange), EC (bleu clair) et OC (bleu foncé) pour la station TGD.

Les niveaux d'activité volumique et massique en ^{137}Cs dans les aérosols prélevés à la station mobile en fonction des conditions de dispersion et de l'origine du transport longue-distance se trouvent dans la gamme des valeurs obtenues sur l'ensemble de la chronique OPERA pour la station de Dijon. Les valeurs obtenues pour les filtres ST-M_MV et ST-M_BVC se trouvent au dessus du niveau moyen calculé sur la période d'étude, respectivement de 0.36 µBq.m^{-3} et 12.9 Bq.kg^{-1}. Les niveaux d'activité et rapports des niveaux d'activité des autres radionucléides se trouvent également de la gamme des valeurs de la chronique OPERA de Dijon. Les mêmes remarques peuvent être faites pour les résultats de mesures de la station TGD.

Les concentrations en carbone élémentaire et organique sont classiques d'un milieu urbain. Avec une moyenne de 821 et 781 ng.m^{-3} respectivement pour la stations mobile et la station TGD, les concentrations en lévoglucosan sont représentatives d'un milieu influencé par la combustion de biomasse (Bari et al., 2010). Les résultats d'analyses effectuées sur les filtres Hi-Vol peuvent être utilisés pour déterminer un profil chimique de chaque échantillon. La somme des composés détectés permet d'obtenir une estimation de la concentration de particules en suspension puis de déterminer les contributions respectives de chacun des composés. La figure 5.30, représentant la concentration de particules en suspension déterminée à partir de la pesée gravimétrique des filtres des cabines OPERA en fonction de la concentration estimée par le bilan massique des différents composés détectés, montre une bonne correspondance entre ces deux grandeurs permettant de conclure que l'ensemble de composés détectés donne une bonne représentation de la composition chimique de l'aérosol prélevé.

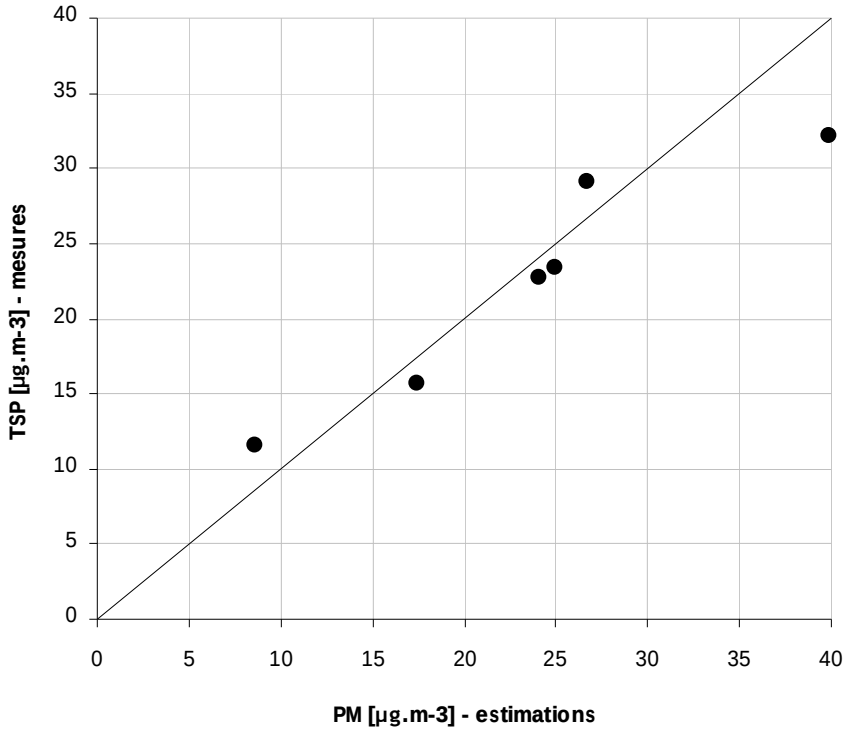


Figure 5.30 : Concentration de particules en suspension déterminée par pesée des filtres des cabines OPERA (TSP) en fonction de la concentration estimée à partir du bilan massique des différents composés détectés (PM).

Un facteur de conversion du carbone organique (OC) en matière organique (OM) estimé à 1.78 en utilisant une valeur moyenne des valeurs de la littérature, est appliqué afin de réaliser le bilan massique. Les résultats du profil chimique obtenu pour chaque échantillon sont donnés dans la table 5.9 et représentés dans la figure 5.31.

	OM	EC	Cl^-	NO_3^-	SO_4^{2-}	NH_4^+	K^+	Ca^{2+}
ST-M_BVO	32.0	8.4	5.7	26.6	12.1	10.1	1.0	4.1
ST-M_MV	40.6	4.7	1.9	26.0	14.6	10.0	0.7	1.4
ST-M_BVC	32.6	2.8	1.5	29.0	20.5	10.1	0.6	2.9
ST-TGD_A	56.9	7.5	3.0	17.3	5.7	5.6	0.8	3.2
ST-TGD_B	35.1	4.7	1.3	30.7	16.3	8.3	0.6	3.0
ST-TGD_C	21.7	1.9	2.0	33.9	25.0	11.9	0.6	3.0

Table 5.9 : Bilan massique de chaque échantillon à partir des filtres de prélèvement Hi-Vol exprimé en pourcentage.

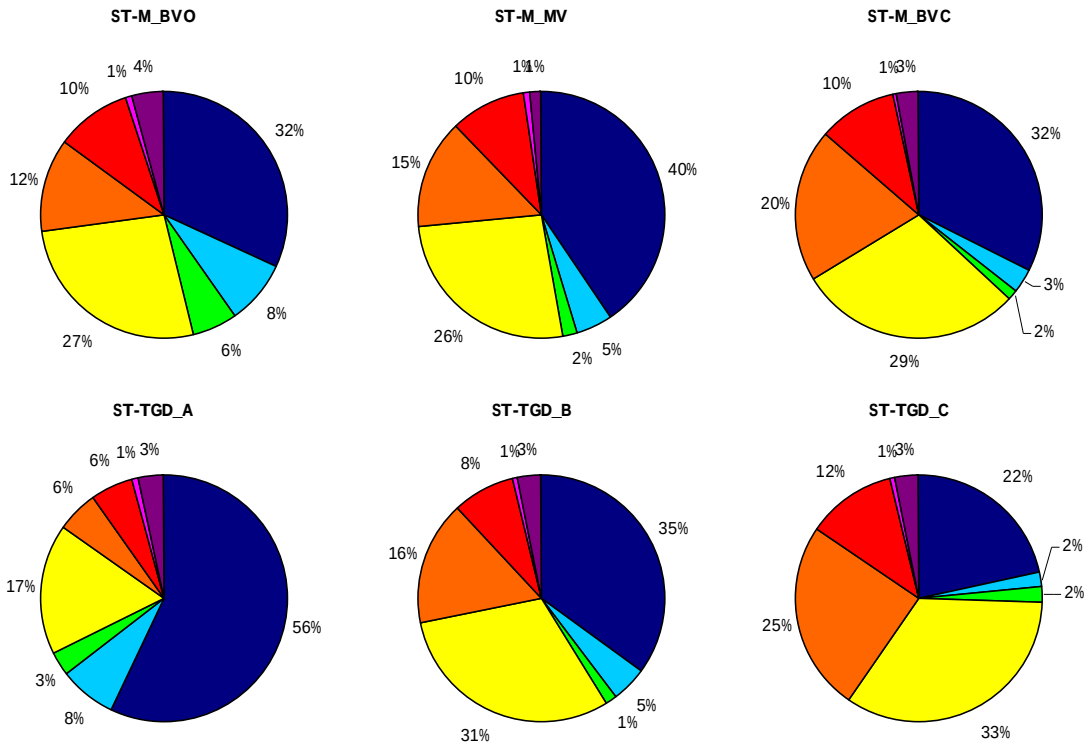


Figure 5.31 : Bilans massiques pour chaque échantillon à partir des filtres de prélèvement Hi-Vol, exprimés en pourcentage. Les codes couleurs correspondent aux entêtes de la table 5.9.

Il ressort ainsi que tous les prélèvements présentent des profils chimiques relativement homogènes indiquant une faible variabilité des sources d'émission à l'exception du prélèvement ST-TGD_A qui présente une fraction organique plus importante. Pour l'ensemble des échantillons, le carbone organique est majoritaire suivi du nitrate à l'exception du prélèvement ST-TGD_C où ce classement est inversé. La domination de la fraction carbonée indique ainsi une prépondérance des

sources de combustion. En faisant l'hypothèse que le carbone organique provient uniquement de la combustion véhiculaire et de la combustion de biomasse, il est alors possible d'utiliser les concentrations en carbone élémentaire et les rapports de source de la littérature pour estimer la part respective de chacune de ces deux sources. Il apparait ainsi que la contribution de la combustion de biomasse à la concentration en OC est significativement majoritaire pour chacun des prélèvements (table 5.10). En moyenne, la combustion de biomasse serait impliquée à hauteur de 90 % dans les concentrations de carbone organique sur l'agglomération de Dijon durant la campagne de mesure contre 10 % pour la combustion véhiculaire.

	% $[OC]_{véhiculaire}$	% $[OC]_{biomasse}$
ST-M_BVO	22.9	77.1
ST-M_MV	7.1	92.9
ST-M_BVC	7.2	92.8
ST-TGD_A	8.8	91.2
ST-TGD_B	10.5	89.5
ST-TGD_C	6.1	93.9

Table 5.10 : Contribution respective de la combustion de biomasse et de la combustion véhiculaire sur les concentrations en carbone organique pour chacun des prélèvements.

Les concentrations en lévoglucosan obtenues ainsi que la prépondérance des fractions carbonées dans les échantillons et l'influence majoritaire de la combustion de biomasse sur la concentration en OC permettent de conclure que le site de prélèvement retenu pour cette campagne de mesure correspond bien aux critères prédéfinis en introduction de cette partie, à savoir un site représentatif d'un milieu influencé par la combustion de biomasse permettant d'étudier la contribution de ce processus sur la remise en suspension du ^{137}Cs dans l'atmosphère en relation avec différentes conditions de dispersion. De plus, la relative stabilité des sources observée à partir des profils chimiques de la figure 5.31 permet d'étudier les variations des niveaux d'activité en ^{137}Cs en relation avec les différentes conditions météorologiques définies.

5.5.3 – Discussion

Dans un premier temps, les résultats obtenus peuvent être utilisés pour vérifier la distinction faite entre les différentes conditions météorologiques à partir des prévisions du modèle de Météo-France. Notamment, le niveau d'activité en ^{210}Pb est couramment utilisé pour distinguer les masses d'air continentales des océaniques. Etant issu de la chaine de désintégration de l'uranium-238 et introduit dans l'atmosphère à la suite de l'émanation du radon-222, le niveau d'activité en ^{210}Pb sera d'autant plus important dans une masse d'air que le temps de résidence au dessus des surfaces continentales aura été important. La figure 5.28, permet d'observer les

variations des niveaux d'activité en ^{210}Pb suivant les conditions météorologiques déterminées au moyen des simulations numériques. Ainsi, le prélèvement ST-M_BVO, se rapportant à la situation de bonne dispersion océanique, présente le plus faible niveau d'activité en ^{210}Pb tandis que le prélèvement ST-M_BVC, associé à un flux d'air continental, présente un niveau significativement plus important, le prélèvement ST-M_MV, correspondant aux conditions de mauvaise dispersion, présentant une valeur intermédiaire. Ces observations recoupent le classement des conditions météorologiques obtenu à partir des modèles de prévision. Egalement, le ^{7}Be, radionucléide naturel cosmogénique, peut rendre compte des mélanges verticaux de l'atmosphère en raison de son mode de production (cf. 1.2.2.1). Etant produit en altitude, sa concentration au niveau du sol sera d'autant plus importante mouvements des couches supérieures de l'atmosphère vers la couche limite de surface seront marqués. Ainsi, il apparait que les deux prélèvements correspondants aux situations de bonne dispersion présentent des niveaux d'activité en ^{7}Be significativement plus importants que le prélèvement correspondant à une situation de stabilité de l'atmosphère. Ce résultat participe également à la validation des différentes conditions météorologiques. Enfin, les rapports des niveaux d'activité de ces deux radionucléides naturels apportent une confirmation supplémentaire au découpage des situations effectués puisque le prélèvement ST-M_BVO présente une valeur de ce rapport plus élevée que les deux autres prélèvements, signant une contribution principalement océanique en comparaison des deux autres filtres.

Les variations des niveaux d'activité de ces radionucléides permettent de valider la méthodologie appliquée et les résultats de prévision du modèle de Météo-France. Cette validation permet alors de pouvoir étudier la contribution des conditions météorologiques, de l'intensité des sources de combustion ainsi que des différentes échelles d'influence sur les variations des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols durant cette campagne de mesure.

Tout d'abord, la contribution de la source de combustion de biomasse, considérée dans son ensemble, sur les concentrations en particules dans l'atmosphère peut être approchée par les mesures de concentrations en lévoglucosan. De manière attendue, cette concentration est significativement plus importante pour le prélèvement ST-M_MV, correspondant à un faible niveau de ventilation et donc une accumulation des particules émises localement dans les basses couches de l'atmosphère en comparaison des deux autres situations de bonne dispersion. L'interprétation de cette observation montre que les sources locales de combustion de biomasse émettent une quantité significative de particules dans l'atmosphère, qui se trouvent en plus fortes concentrations dans les basses couches lors des périodes de mauvaises conditions de dispersion (apparition d'une couche d'inversion et absence de vent). Lors des périodes de bonne dispersion (mélange convectif et turbulent), l'intensité des sources locales étant constante, les diminutions des concentrations en lévoglucosan résultent d'une meilleure ventilation et sont la conséquence d'une variation des conditions météorologiques. Ces observations permettent également de montrer que les quantités de particules issues de la combustion de biomasse transportées par un flux d'air océanique ou continental semblent similaires et n'entrainent pas d'augmentation significative de leur concentration. Au niveau des filtres de prélèvement, il en résulte ainsi une concentration de particules issues de la combustion de la biomasse plus importante pour le prélèvement ST-M_MV que

pour les deux autres prélèvements. Dues aux conditions météorologiques particulières associées à ce prélèvement, ces particules sont issues de processus de combustion de biomasse locaux. Leurs caractéristiques sont ainsi représentatives des particules mises en suspension localement par ce processus. Pour les deux autres prélèvements, les aérosols prélevés rendent compte des émissions locales auxquelles vient s'ajouter un transport longue-distance.

Les résultats de la figure 5.28 permettent alors de conclure sur l'influence des conditions météorologiques et de l'intensité des sources locales. Ainsi, le filtre de prélèvement ST-M_MV, réalisé pendant des conditions météorologiques défavorables à la dispersion des polluants et propices à leur accumulation, ne correspond pas au maximum du niveau d'activité volumique en ^{137}Cs mesuré durant la campagne et présente un niveau intermédiaire, relativement proche de la moyenne. Ceci permet alors de vérifier les résultats obtenus lors de l'étude précédente et confirme que la baisse de l'efficacité de la dispersion durant la saison hivernale n'est pas la principale explication aux augmentations significatives des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs, bien que ces conditions météorologiques particulières participent à une augmentation générale du bruit de fond ambiant. Ce filtre de prélèvement correspond au maximum de la concentration en lévoglucosan et se trouve donc être le plus influencé par les particules émises lors de la combustion de biomasse. Les augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs ne s'expliquent donc pas non plus par une augmentation des quantités de particules émises dans l'atmosphère, bien que ce paramètre participe également à l'augmentation générale du bruit de fond ambiant.

L'augmentation la plus significative du niveau d'activité volumique en ^{137}Cs est observée pour le prélèvement ST-M_BVC, associé à de bonnes conditions de ventilation dans les basses couches de l'atmosphère et un transport de masses d'air en provenance du continent européen. Toutefois, ce prélèvement présente une concentration en lévoglucosan du même ordre que le prélèvement associé aux mêmes conditions de dispersion, mais pour un flux d'air océanique. La quantité de particules issues de la combustion de la biomasse n'est donc pas responsable de cette variation du niveau d'activité volumique en ^{137}Cs. C'est donc l'activité spécifique des particules émises qui se trouve directement impliquée dans l'augmentation significative du niveau d'activité en ^{137}Cs.

Ainsi, la combustion de biomasse à partir de matrices présentant des niveaux d'activité en ^{137}Cs plus importants en relation avec des dépôts surfaciques correspondants, entraine la remise en suspension de particules porteuses de ^{137}Cs dont l'activité spécifique est significativement plus importantes que les particules émises localement sur l'agglomération de Dijon. Suivant les conditions météorologiques à l'échelle synoptique, leur transport jusqu'aux stations atmosphériques du réseau OPERA entraine alors des augmentations significatives des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs en relation avec des augmentations des niveaux d'activité massique. Cette conclusion est alors confortée par les résultats obtenus pour les activités spécifiques en ^{137}Cs en fonction des différentes conditions météorologiques. Il apparait ainsi un gradient ouest-est de l'activité massique moyenne des particules émises par la combustion de biomasse, en relation avec la contamination spécifique des matrices brûlées en raison d'un dépôt surfacique en ^{137}Cs correspondant.

5.5.4 – Conclusion de l'étude de Dijon

Cette étude spécifique basée sur les résultats d'une campagne de mesures réalisée sur l'agglomération dijonnaise au cours de l'hiver 2010 a permis de valider plusieurs hypothèses formulées au cours de ce chapitre et de conforter différents résultats.

L'ensemble des mesures et des données utilisées dans le cadre de cette étude a permis de différencier les contributions respectives de l'intensité du terme source, en utilisant un traceur de la combustion de biomasse, le lévoglucosan, des conditions de ventilation dans les basses couches de l'atmosphère, au moyen des prévisions de radiosondages du modèle AROME de Météo-France, ainsi que de l'origine des émissions, en utilisant les prévisions à l'échelle synoptique du modèle ALADIN de Météo-France sur les variations des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs dans les aérosols.

Trois situations météorologiques distinctes ont été étudiées. La première, correspondant à des conditions de ventilation réduites, a permis de caractériser la contribution des émissions locales. Cette période de prélèvement a montré les plus fortes concentrations en lévoglucosan, mettant ainsi en évidence une accumulation des particules issues de la combustion locale de la biomasse dans les basses couches. Les deux situations suivantes, correspondant à des conditions de ventilation efficaces ont permis de caractériser l'influence du transport longue distance en association avec la contribution locale. Les concentrations en lévoglucosan pour ces deux situations présentent des valeurs similaires, signe que la dispersion des émissions locales ainsi que l'advection de particules plus lointaines sont comparables. La distinction entre ces deux périodes de prélèvement s'effectue par l'origine du transport longue-distance avec dans un cas une composante océanique et dans le second, une composante continentale. Les mesures annexes de radionucléides naturels tels que le ^{210}Pb et le ^{7}Be ainsi que le rapport des niveaux d'activité de ces deux radionucléides confirment la distinction des périodes de prélèvement effectuée.

La mesure du niveau d'activité volumique en ^{137}Cs pour les trois périodes montre des variations significatives. La plus faible valeur est obtenue pour la période de bonne ventilation avec une origine océanique des masses d'air, une valeur intermédiaire est mesurée lors de la période de ventilation réduite et enfin la plus forte valeur est obtenue dans le cas de bonne ventilation avec une origine continentale. Le classement obtenu met ainsi en évidence la contribution longue distance des particules issues de la combustion de la biomasse sur les augmentations significatives des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs et notamment la contribution des émissions en provenance des territoires présentant des dépôts surfaciques en ^{137}Cs plus importants. Les émissions locales contribuent dans une moindre mesure à la rémanence du ^{137}Cs dans l'atmosphère. Afin que celles-ci aient une contribution significative, il est alors nécessaire de se trouver en situation de ventilation réduite permettant l'accumulation des particules localement émises dans les basses couches. Toutefois, même lors de telles situations, les niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs atteints ne correspondent pas aux augmentations significatives observées dans le cas d'advection de masses d'air continentales en provenance des territoires aux dépôts surfaciques en ^{137}Cs importants.

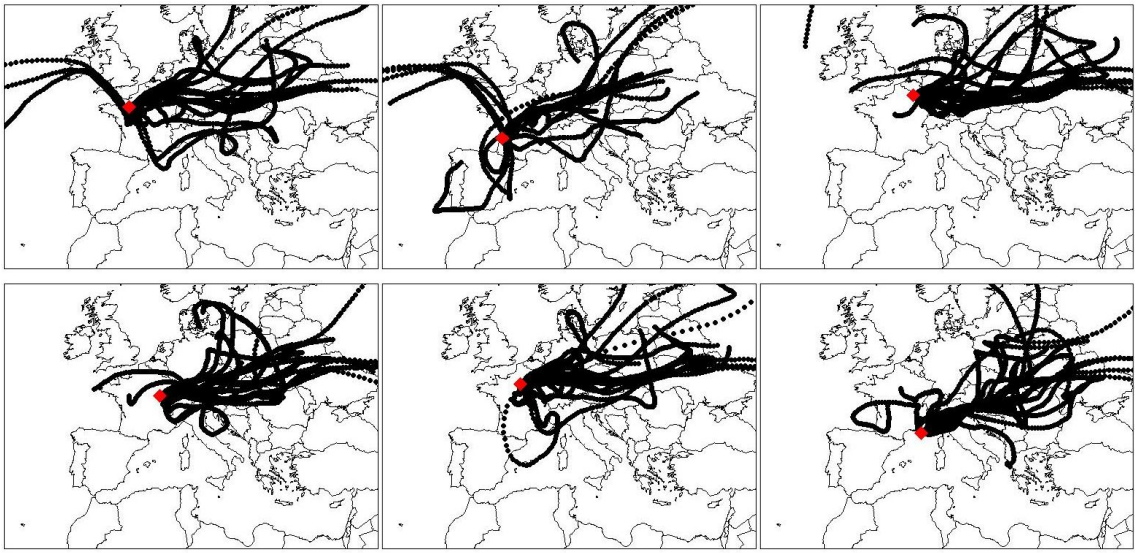


Figure 5.32 : Rétro-trajectoires associées à la période de mesure du 11 au 20 février 2003 pour les stations, de gauche à droite, d'Alençon, Bordeaux, Charleville-Mézières, Dijon, Orsay et la Seyne-sur-Mer. Les rétro-trajectoires ont une durée de 120 heures et débutent à 12 UTC de chaque jour de la décade de mesure.

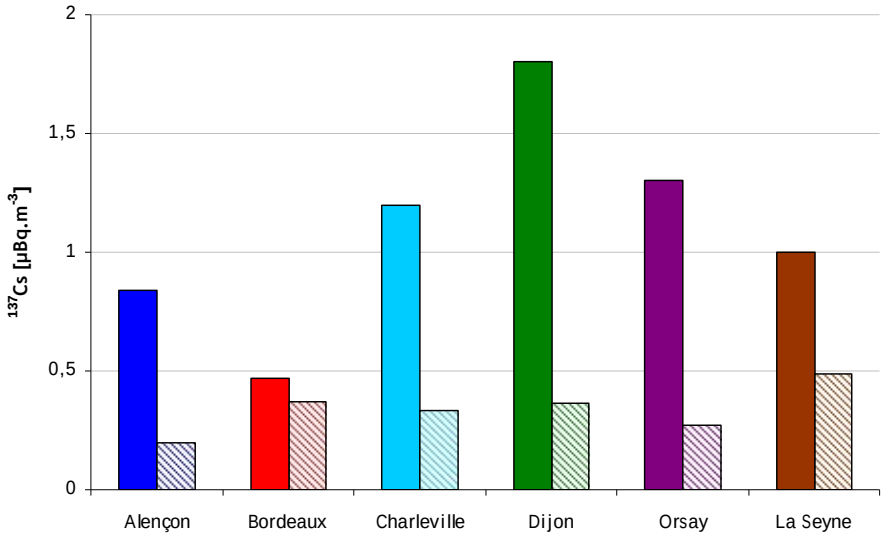


Figure 5.33 : Niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs durant la période de mesure du 11 au 20 février 2003 (barres pleines) et moyennes sur la période d'étude (barres hachurées) pour les stations du réseau OPERA.

La décade de mesures du 11 au 20 février 2003 permet d'illustrer les conclusions de cette partie. Cette période est associée pour l'ensemble du territoire français et pour la quasi-totalité de la durée des prélèvements à un flux d'air continental avec des masses d'air en provenance de l'est de l'Europe (figure 5.32). Les mesures de l'activité volumique du ^{137}Cs pendant cette période présentent des augmentations significatives pour l'ensemble des stations du réseau OPERA en

comparaison des niveaux moyens respectifs sur l'ensemble de la période d'étude (figure 5.33). Cet exemple confirme la contribution du transport longue-distance de particules issues de la combustion de biomasse en provenance de territoires présentant un dépôt surfacique en ^{137}Cs important. Même si la station de Bordeaux ne présente qu'une faible augmentation au regard du niveau moyen sur la période d'étude, il apparait néanmoins que toutes les stations du réseau OPERA peuvent être impactées par ces épisodes, quelque soit leur localisation et leur position longitudinale.

5.6 – Conclusion

Après avoir étudié les incendies de forêt, ce chapitre s'est intéressé à l'utilisation du bois comme moyen de chauffage durant l'hiver.

Une expérience en laboratoire reproduisant les conditions de combustion d'une cheminée domestique a été réalisée. Elle a permis d'estimer le facteur d'émission du ^{137}Cs par ce processus dans l'atmosphère. Les particules issues de la combustion de la biomasse présentent un enrichissement important en termes d'activité massique en ^{137}Cs, en comparaison de la matrice source, le bois. Au regard des particules émises par l'érosion éolienne, ces particules se caractérisent par une activité massique en ^{137}Cs significativement plus importante.

La contribution de filière bois-énergie sur la remise en suspension du ^{137}Cs dans le compartiment atmosphérique a été estimée à 10^{11} Bq chaque année, à l'échelle du territoire français. Ce processus est ainsi également impliqué dans la rémanence atmosphérique du ^{137}Cs.

Les données des sondes NaI, mesurant la concentration des descendants du ^{222}Rn, ont permis d'évaluer les conditions de dispersion des polluants particulaires dans les plus basses couches de l'atmosphère. La réduction des conditions de ventilation durant l'hiver n'explique pas les augmentations significatives de l'activité volumique en ^{137}Cs observées au cours de cette saison, amenant alors à impliquer la contribution d'un transport longue-distance. La saisonnalité des niveaux d'activité massique en ^{137}Cs étaye cette conclusion.

Une étude de terrain a été réalisée afin de confirmer que la combustion de biomasse, à partir de matrices présentant un marquage en ^{137}Cs plus important, avec un transport longue-distance associé, est responsable des augmentations des activités massiques et volumiques en ^{137}Cs. La réduction des conditions de dispersion dans les basses couches, accumulant les particules émises localement, contribue à l'augmentation du bruit de fond ambiant durant l'hiver. Les augmentations significatives des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs correspondent, quant à elles, à des advections de masses d'air continentales en provenance de territoires présentant un marquage en ^{137}Cs plus importants. La concentration de particules issues de la combustion de biomasse étant maximale pour la période de mauvaise ventilation, correspondant donc à la contribution des émissions locales, les augmentations associées au transport longue-distance ne sont pas dues à une intensité du terme source plus importante mais bien à une activité spécifique supérieure des particules émises.

CHAPITRE 6 : Synthèse

Cette synthèse a pour objectif de mettre en évidence les principales variations caractéristiques des niveaux d'activité en ^{137}Cs dans les aérosols pour chacune des stations, en relation avec les différents processus identifiés et caractérisés au cours de cette étude.

6.1 – Caractéristiques du réseau OPERA

La figure 6.1 présente sous la forme d'un graphique à trois entrées l'activité volumique en ^{137}Cs en fonction de la masse totale de particules en suspension et de leur activité massique en ^{137}Cs en regroupant l'intégralité des mesures du réseau OPERA, à l'exception de la station du Puy-de-Dôme, puisque ces mesures n'y sont pas disponibles. La considération de ces résultats de mesures dans leur intégralité fait apparaitre les caractéristiques générales des particules porteuses du ^{137}Cs.

Les augmentations significatives de la masse totale de particules en suspension (TSP) résultent majoritairement de la présence de grosses particules dans les basses couches de l'atmosphère. Sur la figure 6.1, ces augmentations sont associées à des niveaux d'activité massique en ^{137}Cs faibles ou moyens. Conformément aux résultats du chapitre 3, cette tendance est caractéristique des évènements de transport de poussières minérales.

A l'opposé, les augmentations significatives de l'activité massique en ^{137}Cs sont associées à des niveaux de TSP majoritairement moyens ou faibles. Conformément aux résultats des chapitres 4 et 5, cette tendance est caractéristique des particules issues de la combustion de biomasse.

Sur cette figure synthétisant l'ensemble de la chronique OPERA depuis 2007, date à partir de laquelle on lieu les pesée des filtres, aucun évènement ne se caractérise par des augmentations significatives simultanées de niveau d'activité massique en ^{137}Cs et du niveau en TSP. Les augmentations significatives de l'activité volumique en ^{137}Cs résultent alors de l'augmentation de l'un des deux paramètres précédents ou de leur combinaison modérée.

La seconde partie de la figure 6.1 présente également sous la forme d'un graphique à trois entrées l'activité volumique en ^{137}Cs en fonction du niveau d'activité volumique en ^{40}K et du rapport des niveaux d'activité de ces deux radionucléides. Conformément aux résultats du chapitre 2, ces deux mesures sont proportionnelles à la masse totale de particules en suspension et à l'activité massique en ^{137}Cs, respectivement.

Les mêmes tendances que sur la première partie du graphique sont observées, sur une base de données plus étendues (2000-2009).

Ces observations confirment d'une part que les particules à l'activité massique en ^{137}Cs plus élevée que la moyenne ne contribuent que faiblement à l'augmentation de la masse totale de particules en suspension. Ces particules sont donc majoritairement de fines particules, conformément aux résultats du chapitre 3, issues de processus de combustion. Ces particules vont avoir une activité massique en ^{137}Cs proportionnelle à la contamination de la matrice source. Pour les particules issues de la combustion de biomasse présentant un marquage significatif en ^{137}Cs, leur

transport va contribuer aux augmentations de l'activité volumique en ^{137}Cs, en fonction également de leur concentration.

D'autre part, ces observations confirment que les évènements de transport de poussières sahariennes se caractérisent par de faibles activités massiques en ^{137}Cs et leur contribution aux augmentations significatives de l'activité volumique en ^{137}Cs va être conditionnée par l'intensité de l'évènement.

Finalement, il apparait que les propriétés des particules remises en suspension par les processus étudiés au cours de cette étude caractérisent l'ensemble des augmentations de l'activité volumique en ^{137}Cs.

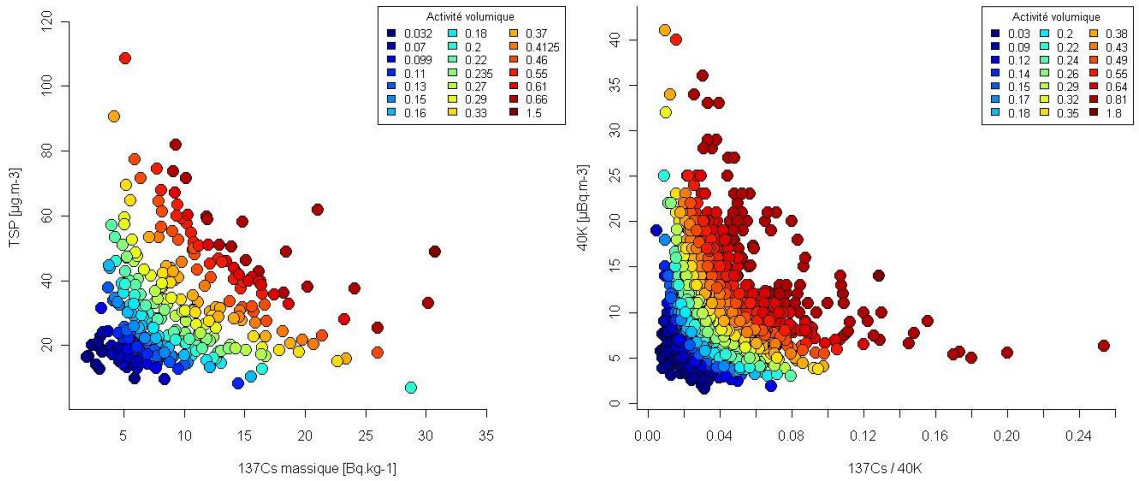


Figure 6.1 : Gauche : Activité volumique en ^{137}Cs dans les aérosols (échelle de couleur en $\mu Bq.m^{-3}$) en fonction de la masse totale de particules en suspension (TSP) et de l'activité massique en ^{137}Cs des aérosols pour l'ensemble des stations du réseau OPERA à l'exception de la station du Puy-de-Dôme. Droite : Activité volumique en ^{137}Cs dans les aérosols (échelle de couleur en $\mu Bq.m^{-3}$) en fonction de l'activité volumique en ^{40}K et du rapport des niveaux d'activité ^{137}Cs / ^{40}K pour l'ensemble des stations du réseau OPERA à l'exception de la station du Puy-de-Dôme.

6.2 – Caractéristiques des différentes stations du réseau OPERA

Cette partie reprend les principales caractéristiques des variations des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs pour les différentes stations OPERA en se basant sur les figures 6.2 et 6.3. Ces graphiques décomposent les valeurs reportées dans la figure 6.1 pour chacune des stations.

6.2.1 - Alençon

La station d'Alençon se caractérise par le niveau d'activité moyen en ^{137}Cs dans les aérosols le plus faible de l'ensemble du réseau OPERA. Ce résultat s'explique par la localisation de cette station dans une région où la densité de dépôt en ^{137}Cs est la plus faible du réseau, par le climat et par l'influence prépondérante des masses d'air océaniques.

Egalement, il n'apparait que peu d'augmentations de la masse totale de particules en suspension et des niveaux d'activité massique en ^{137}Cs moyens, sans augmentation significative. Ces deux observations montrent que cette station est peu influencée par les évènements importants de transport de poussières sahariennes ou de transport de particules en provenance des territoires fortement marqués par les dépôts en ^{137}Cs.

6.2.2 - Bordeaux

Bien qu'également soumise au climat océanique et à l'influence majoritaire des masses d'air atlantiques, la station de Bordeaux présente un nombre plus important d'augmentations significatives du niveau d'activité volumique en ^{137}Cs. Ces augmentations se caractérisent par un empoussièrement plus important que la moyenne et une activité massique en ^{137}Cs moyenne.

Cette tendance s'explique principalement par la contribution de panaches de poussières sahariennes. Ayant contourné la péninsule ibérique, leur temps de transport est plus important que dans le cas des panaches impactant La Seyne-sur-Mer. Une partie des plus grosses particules a alors sédimenté, entrainant une diminution de la masse totale en suspension associée à une légère augmentation de l'activité massique en ^{137}Cs.

6.2.3 – Charleville-Mézières

L'activité volumique en ^{137}Cs à la station de Charleville-Mézières se caractérise par des augmentations significatives importantes, multipliant le bruit de fond ambiant jusqu'à plus de 4 fois la valeur moyenne.

Ces augmentations significatives des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs apparaissent conditionnées par l'activité massique des particules, la masse totale de particules en suspension apparaissant quant à elle secondaire. Ajoutées à la saisonnalité marquée, ces observations impliquent majoritairement l'utilisation du bois-énergie dans la rémanence atmosphérique du ^{137}Cs. La simultanéité de ces augmentations avec les autres stations les plus proches et la mise en évidence par le tracé de rétro-panaches, montrent que celles-ci résultent majoritairement de transports à grandes échelles en provenance des territoires fortement marquées par les retombées de l'accident de Tchernobyl.

6.2.4 – Clermont-Ferrand

La principale caractéristique de la station de Clermont-Ferrand est sa position géographique centrale. Cette station se trouve ainsi sous l'influence intermittente d'épisodes de transport de poussières sahariennes, de masses d'air en provenance de l'est de l'Europe ainsi que de masses d'air océaniques.

Les niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs sont ainsi dans la moyenne du réseau OPERA, tout comme les niveaux d'empoussièrement ou d'activité massique en ^{137}Cs. Egalement, les variations observées sont moins significatives que pour les autres stations.

La rémanence atmosphérique du ^{137}Cs au niveau de cette station résulte donc d'une influence modérée des différents processus étudiés.

6.2.5 - Dijon

Les niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs se caractérisent par des augmentations significatives importantes en comparaison du niveau moyen. Le maximum atteint sur l'ensemble de la chronique OPERA et toutes stations de plaine confondues est mesuré à cette station.

La majorité des augmentations de l'activité volumique correspond à des augmentations significatives de l'activité massique en ^{137}Cs. Ces augmentations ont lieu principalement en hiver et peuvent atteindre 40 $Bq.kg^{-1}$ lors d'épisodes d'advection de masses d'air continentales. Les tendances observées à cette station présentent de fortes analogies avec celles de Charleville-Mézières, dues à leur position géographique sous influence continentale.

La rémanence atmosphérique du ^{137}Cs au niveau de cette station résulte alors principalement de l'utilisation du bois-énergie.

6.2.6 – Orsay

La station d'Orsay occupe une position centrale entre la station d'Alençon, principalement influencée par le climat océanique, et les stations de Charleville-Mézières et Dijon, subissant un climat semi-continental. Les variations significatives observées, provenant d'un transport longue-distance, correspondent ainsi aux mêmes tendances observées sur les stations voisines.

En raison du transport plus important, les augmentations de l'ensemble des paramètres se trouvent atténuées au niveau de cette station. Les profils observés se rapprochent alors de ceux de la station de Clermont-Ferrand, sans prépondérance d'un paramètre sur les variations de l'activité volumique.

6.2.7 – Puy-de-Dôme

La station du Puy-de- Dôme est la seule station d'altitude du réseau OPERA (1 465 m). Elle présente des augmentations des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs et ^{40}K plus importantes que pour les stations de plaine, avec des maximums de 2.33 ± 0.26 et 72 ± 9 $\mu Bq.m^{-3}$ respectivement. Les moyennes de ces deux radionucléides sont toutefois similaires à celles observées pour les stations de plaine et relativement proches de celles de la station de la Seyne-sur-Mer.

Les niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs présentent une saisonnalité, mais à l'inverse des stations de plaine, un maximum est observé au printemps, un maximum secondaire à l'automne, et un minimum de l'activité en ^{137}Cs durant les mois d'hiver (figure 6.4). Les précédentes études

menées sur cette station ont mis en évidence une relation entre les niveaux d'activité en ^{137}Cs et les concentrations en Ca^{2+} permettant de conclure à une remise en suspension d'origine minérale du ^{137}Cs durant la période estivale (Bourcier, 2009).

Le profil de cette station est très nettement différents des profils déjà étudiés. L'activité volumique en ^{40}K couvre une étendue de valeurs beaucoup plus importante en comparaison des autres sites et l'activité volumique en ^{137}Cs apparait être directement liée aux variations de l'activité en ^{40}K. Il en résulte alors un lien faible entre les variations de l'activité volumique en ^{137}Cs et les variations du rapport des niveaux d'activité ^{137}Cs / ^{40}K.

Ce profil obtenu est alors caractéristique d'une station fortement influencée par les épisodes de transport de poussières minérales.

6.2.8 – La Seyne-sur-Mer

L'activité volumique en ^{137}Cs à la station de la Seyne-sur-Mer présente le niveau moyen le plus important du réseau avec 0.49 $\mu Bq.m^{-3}$. Les augmentations observées à cette station sont significatives et fréquentes.

La masse totale de particules en suspension présente une plage de valeurs importantes et un niveau minimum élevé en comparaison des autres stations. A l'inverse, l'activité massique en ^{137}Cs ne présente pas de grandes variations et un niveau moyen relativement bas. L'activité volumique résultante en ^{137}Cs apparait alors être directement conditionnée par la masse de particules en suspension et donc par l'intensité de l'évènement de transport de particules.

Le profil obtenu est comparable à celui de la station du Puy-de-Dôme et caractéristique de l'influence majoritaire des épisodes de transport de poussières sahariennes.

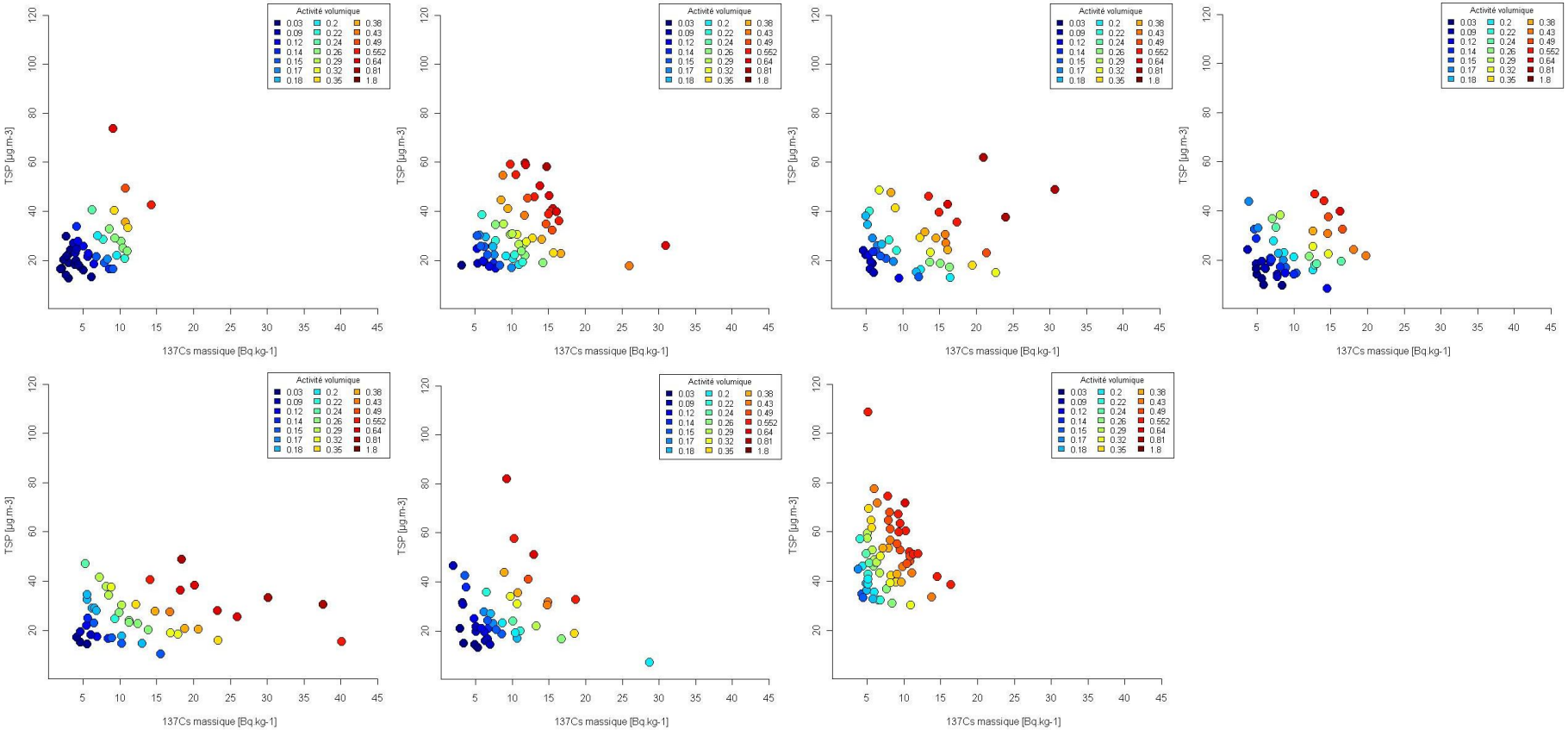


Figure 6.2 : Activité volumique en ^{137}Cs dans les aérosols (échelle de couleur en µBq.m^{-3}) en fonction de la masse totale de particules en suspension (TSP) et de l'activité massique en ^{137}Cs des aérosols pour (de gauche à droite) les stations d'Alençon, Bordeaux, Charleville-Mézières, Clermont-Ferrand, Dijon, Orsay et La Seyne-sur-Mer.

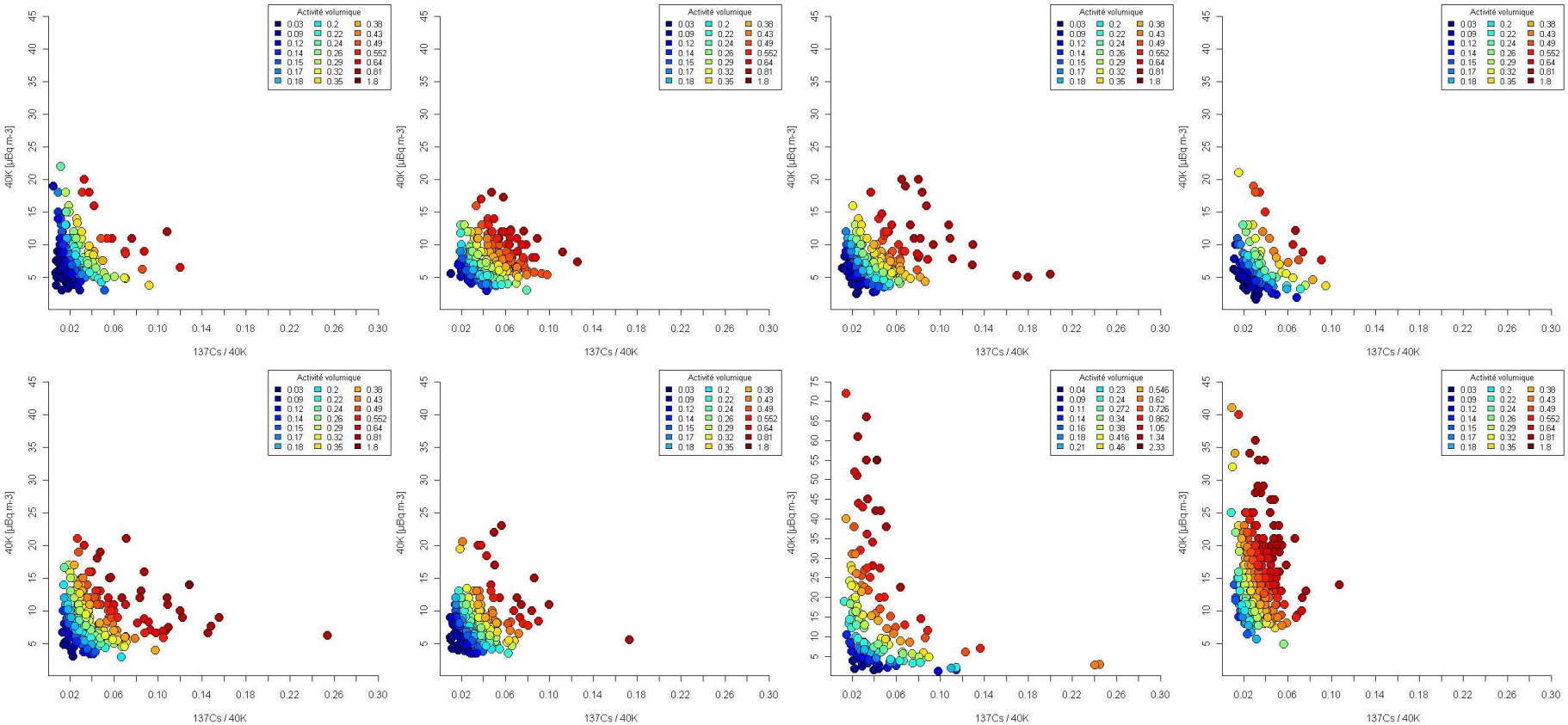


Figure 6.3 : Activité volumique en ^{137}Cs dans les aérosols (échelle de couleur en µBq.m^{-3}) en fonction de l'activité volumique en ^{40}K et du rapport des niveaux d'activité ^{137}Cs / ^{40}K pour (de gauche à droite) les stations d'Alençon, Bordeaux, Charleville-Mézières, Clermont-Ferrand, Dijon, Orsay, Puy-de-Dôme et La Seyne-sur-Mer.

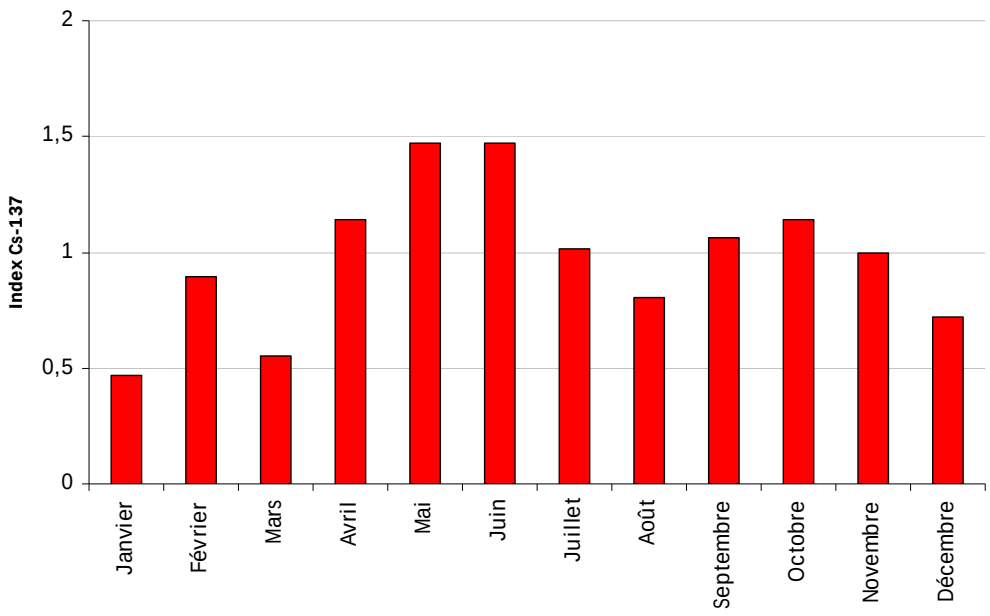


Figure 6.4 : Moyennes mensuelles de l'activité volumique en ^{137}Cs à la station du Puy-de-Dôme, pondérée par la moyenne sur la période d'étude.

6.3 – Conclusion

Ces différentes observations montrent que la représentation de l'activité volumique en ^{137}Cs en fonction de la masse totale de particules en suspension et de l'activité massique en ^{137}Cs, ou en fonction de leurs estimations, permet de renseigner sur les processus participant à la rémanence de ce radionucléide pour chaque station.

La position géographique des stations est déterminante dans l'implication des différents processus de remise en suspension du ^{137}Cs, confirmant la prédominance du transport longue distance sur la rémanence de ce radionucléide.

Conclusion

Les principaux processus engagés dans la rémanence atmosphérique d'un radionucléide artificiel, le ^{137}Cs, au niveau des stations du réseau OPERA, ont été identifiés, étudiés et caractérisés au cours de cette étude.

Plusieurs méthodes d'analyses statistiques considérant les séries temporelles des mesures décadaires du ^{137}Cs et le calcul des rétro-trajectoires associées ont permis de localiser les régions participant à la remise en suspension du ^{137}Cs. La méthode de classification simple de l'origine des masses d'air, ainsi que la méthode d'analyse des temps de résidence et des champs de probabilité conditionnelle ont montré l'implication du transport longue distance sur les variations significatives des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs.

L'application de la méthode des champs de contribution, considérant les mesures sur l'ensemble de la période d'étude, de 2000 à 2009, et le tracé de plus de 47 000 rétro-trajectoires a permis une localisation plus précise des principales régions impliquées dans la rémanence du ^{137}Cs, ainsi qu'une hiérarchisation entre ces régions. L'application de cette méthode d'analyse statistique à des mesures complémentaires, telles que l'activité massique en ^{137}Cs et la masse totale de particules en suspension, a ensuite permis de mettre en évidence les principales caractéristiques des processus à étudier pour chacune des régions identifiées.

La région saharienne est apparue comme l'une des régions privilégiées de remise en suspension du ^{137}Cs, caractérisée par le transport de grandes quantités de particules et une faible contribution aux augmentations de l'activité massique en ^{137}Cs, en relation avec les densités de dépôts observées dans cette région. Plusieurs moyens techniques complémentaires ont été utilisés pour détecter le passage des panaches de poussières sahariennes au niveau des stations OPERA. Une relation a ainsi pu être établie entre ces évènements de transport de particules et les augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs.

La station de la Seyne-sur-Mer est la plus fréquemment impactée par le transport de poussières sahariennes, suivie de la station implantée au sommet du Puy-de Dôme. En raison de l'altitude de transport de ces épisodes, les évènements impactant la station du Puy-de-Dôme sont plus intenses et entrainent les augmentations les plus significatives de l'ensemble du réseau OPERA. Sur l'ensemble de la période d'étude, ces deux stations présentent des niveaux moyens d'activité en ^{137}Cs très proches.

Lors d'un épisode d'intensité exceptionnel, permettant une détermination journalière, il est apparu que le niveau d'activité volumique en ^{137}Cs pouvait être supérieur à 4 $\mu Bq.m^{-3}$, pour un niveau moyen en France de 0.32 $\mu Bq.m^{-3}$.

Enfin, le recensement d'un grand nombre d'évènements significatifs a permis de quantifier l'export total en ^{137}Cs de ces évènements, estimé entre 10^{11} et 10^{13} Bq par an. A l'échelle de la France, le dépôt annuel moyen associé à ces évènements est inférieur à 1 $Bq.m^{-2}$, soit une contribution inférieure à 1 % des dépôts surfaciques antérieurs. Pour une station aux

caractéristiques représentatives du réseau OPERA, ces évènements contribueraient pour 30% au bruit de fond ambiant en ^{137}Cs.

Les territoires fortement impactés par les retombées de l'accident de Tchernobyl ont été identifiés comme les principaux contributeurs à la rémanence atmosphérique du ^{137}Cs au niveau des stations OPERA. La caractérisation de l'épisode d'incendies de forêt en 2002 dans l'est de l'Europe a mis en évidence que ces évènements peuvent être à l'origine d'un transport de particules porteuses de ce radionucléide sur de très grandes distances et entrainer des augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs à plusieurs milliers de kilomètres.

Bien que d'autres évènements de grande ampleur se soient produits sur d'autres territoires, les situations météorologiques correspondantes n'ont pas transporté les panaches de fumées en direction des stations du réseau OPERA. Ainsi, seuls les évènements de grandes ampleurs dans les territoires fortement marqués ont pu être caractérisés. Les incendies à l'échelle régionale n'ont montré aucune implication dans les augmentations significatives des niveaux d'activité en ^{137}Cs.

Une estimation des quantités totales de ^{137}Cs remis en suspension à l'échelle de la saison sur l'ensemble des territoires présentant un marquage important en ^{137}Cs a été réalisée. Il est ainsi estimé qu'annuellement, de l'ordre de 10^{13} Bq de ^{137}Cs sont remis en suspension dans l'atmosphère par l'ensemble des incendies en Europe ainsi qu'en Fédération de Russie.

La combustion de bois comme moyen de chauffage durant l'hiver est le dernier processus identifié comme ayant une implication significative dans la rémanence atmosphérique du ^{137}Cs.

Une expérience en laboratoire reproduisant les conditions de combustion d'une cheminée domestique a permis d'estimer le facteur d'émission du ^{137}Cs par ce processus, dans l'atmosphère. Les particules émises se caractérisent par une activité massique en ^{137}Cs significativement plus importante que la moyenne mesurée sur le réseau OPERA. Ces résultats ont permis d'estimer la contribution de filière bois-énergie sur la remise en suspension du ^{137}Cs dans le compartiment atmosphérique à 10^{11} Bq chaque année, à l'échelle du territoire français.

La mesure de la concentration des descendants du ^{222}Rn par les sondes NaI, a montré que la réduction des conditions de ventilation durant l'hiver n'est pas suffisante pour expliquer les augmentations significatives de l'activité volumique en ^{137}Cs observées au cours de cette saison.

Les résultats d'une étude de terrain ont alors montré que le transport longue-distance de particules issues de la combustion de biomasse, à partir de matrices présentant un marquage en ^{137}Cs plus important, était responsable des augmentations des activités massiques et volumiques en ^{137}Cs. La réduction des conditions de dispersion dans les basses couches, accumulant les particules émises localement, contribue quant à elle à l'augmentation du bruit de fond ambiant durant l'hiver.

La position géographique des stations de prélèvement est apparue déterminante dans l'implication des différents processus étudiés. Ainsi, les variations de l'activité volumique en ^{137}Cs de la station la plus méridionale sont apparues conditionnées par la fréquence et l'intensité des évènements de transport de poussières sahariennes. La même observation a été faite à la station

d'altitude située au sommet du Puy-de-Dôme. En revanche, pour les stations situées sur la partie est de la France, Dijon et Charleville-Mézières, les augmentations des niveaux d'activité volumique en ^{137}Cs sont principalement dues au transport de particules issues de la combustion de biomasse et sont conditionnées par leur activité massique.

Pour affiner les enseignements de ces travaux, plusieurs études peuvent être mises en perspective. Tout d'abord, la détermination de la phase porteuse du ^{137}Cs permettrait de mieux appréhender le transport longue distance observé au cours de cette étude. La comparaison de la phase porteuse observée dans les aérosols avec celle observée dans les matrices émettrices permettrait également de compléter la compréhension de l'implication des différents processus identifiés. Cette comparaison pourrait alors servir de base à l'étude physique des processus identifiés. Les niveaux d'activité observés à l'heure actuelle étant à l'état de trace, il pourrait être envisagé dans un premier temps de coupler aux mesures de routine du ^{137}Cs un système de comptage optique des particules équipé en amont d'un système de séparation des aérosols en fonction de leur diamètre. La détermination directe de la phase porteuse du ^{137}Cs demanderait des temps de prélèvement inévitablement longs et pourra être envisagée consécutivement à une amélioration des techniques de prélèvement.

Dans la continuité de l'étude menée sur la combustion de biomasse, il apparait intéressant de déterminer l'activité des fumées d'incendies afin de pouvoir calculer le facteur d'émission de ce processus. Cet objectif implique alors de devoir analyser au préalable l'ensemble des systèmes soumis à ce processus (sol, litière, végétation, …) ainsi que de pouvoir réaliser des prélèvements atmosphériques à proximité immédiate des incendies. Ces implications amènent à se placer dans un environnement sous contrôle comme dans le cas d'incendies expérimentaux. (Kashparov et al. (2000) et Yoschenko et al. (2006).

La sélection des périodes de prélèvement sous l'influence majoritaire d'un des principaux processus impliqués dans la rémanence atmosphérique du ^{137}Cs, permettrait de parfaire leur caractérisation. La majorité de ces processus pouvant être couplée à des modèles de prévision, il apparait envisageable de réaliser en routine des prélèvements en distinguant chacun des processus afin de mettre en évidence leurs propriétés.

Cette étude s'étant consacrée à la caractérisation des principaux processus impliqués dans la rémanence atmosphérique du ^{137}Cs, il peut être envisagé de compléter ces travaux par l'étude de processus dits secondaires, dont l'influence serait moins manifeste mais qui participeraient tout de même, à des échelles spatio-temporelles plus réduites à la remise en suspension de ce radionucléide. Une première piste pourrait être ainsi l'influence des pollens. Egalement, on pourra s'intéresser à l'influence des embruns dans les environnements côtiers dans le cas de rejets liquides pour l'étude plus globale de radionucléides artificiels autres que le ^{137}Cs. Afin d'affiner l'étude de la remise en suspension à une échelle locale, des expérimentations peuvent être envisagées avec des prélèvements couplés à différentes hauteurs ou avec différents couverts de sol. Ces

perspectives d'étude compléteraient les différents processus déjà caractérisés au cours de ces travaux.

Ayant une connaissance quantitative des principaux processus impliqués dans la rémanence atmosphérique du ^{137}Cs, il serait également possible de simuler une contamination et d'en modéliser son évolution en fonction de la sensibilité aux différents processus de plusieurs environnements. Il serait ainsi possible d'estimer la période de disparition de radionucléides d'intérêt en fonction des environnements contaminés et d'estimer la contribution de la remise en suspension sur l'activité atmosphérique à différentes échelles de temps.

Dans son ensemble, cette étude a apporté plusieurs éléments nécessaires à la compréhension de l'évolution spatio-temporelle des niveaux d'activité de radionucléides artificiels dans le compartiment atmosphérique. Elle permettra ainsi d'affiner les prévisions des transferts de contamination en fonction des environnements contaminés et de mieux appréhender l'évolution post-accidentelle attendue à moyen et long termes, suite à un rejet atmosphérique anormalement élevé.

Bibliographie

Aarnio, P., Martikainen, J., Husseinb, T., Valkamac, I., Vehkamäkib, H., Sogachevab, L., Härkönenc, J., Karppinenc, A., Koskentaloa, T., Kukkonenc, J., Kulmalab. M., 2007. Analysis and evaluation of selected PM10 pollution episodes in the Helsinki Metropolitan Area in 2002. Atmospheric Environment, doi:10.1016/j.atmosenv.2007.02.008

Abe Takuya, Kosako Toshiso, Komura Kazuhisa, 2009. Relationship between variations of 7Be, 210Pb and 212Pb concentrations and sub-regional atmospheric transport: Simultaneous observation at distant locations. Journal of Environmental Radioactivity, 1–9.

ADEME, 2008. R. Bourguet, O. Sebart. De la forêt à votre foyer, le chauffage au bois.

ADEME, 2009. Le Bois énergie et la qualité de l'air. Note de synthèse.

Afeti, G.M., Resch, F.J., 2000. Physical characteristics of Saharandust near the Gulf of Guinea. Atmospheric Environment 34,1273–1279.

AIEA, 1996. One decade after Chernobyl. Summing up the Consequences of the Accident. Proceedings of an International Conference. Vienna, 8-12 April 1996

AIEA, 2001. Present and future environmental impact of the Chernobyl accident, IAEA-TECDOC-1240, Vienna.

AIEA, 2005. Environmental Consequences of the Chernobyl Accident and Their Remediation: Twenty Years of Experience. Report of the UN Chernobyl Forum Expert Group "Environment" (EGE). Vienna, August 2005

AIEA, 2009. Annual report. Vienna

Airaq, 2008. Chauffage au bois et pollution atmosphérique. Synthèse Airaq, Atmo Aquitaine, N° 48, Novembre 2008

Alastuey, A., Querol, X., Castillo, S., Escudero, M., Avila, A., Cuevas, E., Torres, C., Romero, P.M., Exposito, F., Garcia, O., Diaz, J.P., Van Dingenen, R., Putaud J.P., 2005. Characterisation of TSPand PM2.5 at Izan˜ a and Sta. Cruz de Tenerife (Canary Islands, Spain) during a Saharan Dust Episode (July 2002). Atmospheric Environment 39, 4715–4728

Almeida, S.M., Pio, C.A., Freitas, M.C., Reis, M.A., Trancoso, M.A., 2005. Source apportionment of fine and coarse particulate matter in a sub-urban area at the Western European Coast. Atmospheric Environment 39, 3127–3138.

Alpert, P., Kishcha, P., Shtivelman, A., Krichak, S.O., Joseph, J.H., 2004. Vertical distribution of Saharan dust based on 2.5-year model predictions. Atmospheric Research 70, 109–130.

Amiro B.D., Sheppard SC., Johnston F.L., Evenden W.G., Harris D.R., 1996. Burning radionuclide question: What happens to iodine, cesium and chlorine in biomass fires? The Science of the Total Environment 187, 93-103.

Andersson K. G., Fogh C. L., Roed J., 1999. Occupational exposure at a contemplated belarussian power plant fired with contaminated biomass. Radiation Protection Dosimetry 83, 339-344.

Anspaugh L.R., Shinn J.H., Phelps P.L., Kennedy N.C. 1975. Resuspension and redistribution of plutonium in soils. Health Physics 29, 571-582.

Arimoto, R., Ray, B.J., Lewis, N.F., Tomza, U., Duce, R.A.,1997. Mass particle size distribution of atmospheric dust andthe dry deposition of dust to the remote ocean. Journal ofGeophysical Research D 102, 15867–15874.

Arimoto R., 2001. Eolian Dust and Climate: Relationships to sources, transport, and deposition. Earth Sciences Reviews 54, 29-42.

Ashbaugh L.L., 1983. A statistical Trajectory Technique for Determining Air Pollution Source Regions. Journal of the Air Pollution Control Association 33, 1096-1098.

Ashbaugh L.L., Malm W.C., Sadeh W.Z., 1985. A residence time probability analysis of sulphur concentrations at Grand Canyon National Park. Atmospheric Environment 19, 1263-1270.

Baggoura B., Noureddine A., Benkrid M., 1998. Level of natural and artificial radioactivity in Algeria. Applied Radiation Isotopes. Vol. 49, n°7, 867-873.

Barci-Funel G., Dalmasso J., Barci V.L., Ardisson G., 1995. Study of the transfer of radionuclides in trees at a forest site. The Science of the Total Environment 173/174, 369-373.

Bari M.A., Baumbach G., Kuch B., Scheffknecht G., 2009. Wood smoke as a source of particle-phase organic compounds in residential areas. Atmospheric Environment 43, 4722–4732.

Bari M.A., Baumbach G., Kuch B., Scheffknecht G., 2010. Temporal variation and impact of wood smoke pollution on a residential area in southern Germany. Atmospheric Environment 44, 3823-3832.

Begum B.A., Kim E., Jeong C.H., Lee D.W., Hopke P.K., 2005. Evaluation of the potential source contribution function using the 2002 Quebec forest fire episode. Atmospheric Environment 39, 3719–3724.

Bergametti, G., Gomes, L., Coude-Gaussen, G., Rognon, P., Le Coustumer, M.N., 1989. African Dust Observed over Canary Islands : Source-Regions Identification and Transport Pattern for some Summer Situations. Journal of Geophysical Research 94, 14855-14864.

Bihari A., Dezso Z., 2008. Examination of the effect of particle size on the radionuclide content of soils. Journal of Environmental Radioactivity 99, 1083-1089.

Bessagnet, B., Menut L., Aymoz G., Chepfer H., Vautard R., 2008. Modeling dust emissions and transport within Europe: The Ukraine March 2007 event. Journal of Geophysical Research 113.

Birmili W., Schepanski K., Ansmann A., Spindler G., Tegen I., Wehner B., Nowak A., Reimer E., Mattis I., Muller K., Bruggemann E., Gnauk T., Herrmann H., Wiedensohler A., Althausen D., Schladitz A., Tuch T., Loschau G., 2007. An episode of extremely high PM concentrations over Central Europe caused by dust emitted over the southern Ukraine. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions 7, 12231-12288.

Borbely-Kiss, I., Kiss, A.Z., Koltay, E., Szabo, Gy., Bozo, L., 2004. Saharan dust episodes in Hungarian aerosol: elemental signatures and transport trajectories. Aerosol Science 35, 1205–1224.

Borge R., Lumbreras J., Vardoulakis S., Kassomenos P., Rodriguez E., 2007. Analysis of long-range transport influences on urban PM10 using two-stage atmospheric trajectory clusters. Atmospheric Environment 41, 4434–4450.

Bouisset P., Barker E., Masson O., Gurriaran R., Cagnat X., Mekhlouche D., Aubry S., Hadjaj M., Saey L., 2004. Concentration de ^{137}CS et de 7Be dans les aérosols en France métropolitaine et à Tahiti de 1959 à 2002. Radioprotection 39, 367-381.

Bourcier L., Sellegri K., Masson O., Zangrando R., Barbante C., Gambaro A., Pichon J.-M., Boulon J., Laj P., 2010. Experimental evidence of biomass burning as a source of atmospheric ^{137}Cs, puy de Dôme (1465 m a.s.l.), France. Atmospheric Environment 44, 2280-2286.

Brandt J., Christensen J.H., Frohn L.M., 2002. Modelling transport and deposition of caesium and iodine from the Chernobyl accident using the DREAM model. Atmospheric Chemistry and Physics 2, 397-417.

Breuning-Madsen, H., Awadzi, T.W., 2005. Harmattan dust deposition and particle size in Ghana. Catena 63, 23–38.

Bristow C.S., Drake N., Armitage S., 2009. Deflation in the dustiest place on Earth: The Bodélé Depression, Chad. Geomorphology 105, 50–58.

Bücher, A., Lucas, G., 1984. Sédimentation éolienne intercontinentale, poussières sahariennes et géologie. Bulletin des Centres de Recherches Exploration-Production Elf-Aquitaine 8, 151–165.

Caillet S., Arpagaus P., Monna F., Dominik J., 2001. Factors controlling 7Be and 210Pb atmospheric deposition as revealed by sampling individual rain events in the region of Geneva, Switzerland. Journal of Environmental Radioactivity 53, 241-256.

Callot, Y., Marticorena, B., , Bergametti, G., 2000. Geomorphologic approach for modelling the surface features of arid environments in a model of dust emissions: application to the Sahara desert. Geodinamica Acta 13, 245–270.

Camacho A., Valles I., Vargas A., Gonzalez-Perosanz M., Ortega X., 2009. Activity size distributions for long-lived radon decay products in aerosols collected in Barcelona (Spain). Applied Radiation and Isotopes 67, 872–875.

Caseiro A., Bauer H., Schmidl C., Pio C.A., Puxbaum H., 2009. Wood burning impact on PM10 in three Austrian regions. Atmospheric Environment 43, 2186–2195.

CEC, 1998. Atlas of caesium deposition on Europe after the Chernobyl accident. In: communities, Opote (Ed.). Commission of the European Communities, Luxembourg.

Charron A., Plaisance H., Sauvage S., Coddeville P., Galloo J.C., Guillermo R., 1998. Intercomparison between three receptor-oriented models applied to acidic species in precipitation. The Science of the Total Environment 223, 53-63.

Coen, M.C., Weingartner, E., Schaub, D., Hueglin, C., Corrigan, C., Schwikowski, M., Baltensperger, U., 2003. Saharan dust events at the Jungfraujoch: detection by wavelength dependence of the single scattering albedo and analysis of the events during the years 2001 and 2002. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions 3, 5547–5594.

Colle C., Adam C., Garnier–Laplace J., Roussel-Debet S., 2005. Césium 137 et environnement. Fiche radionucléide. IRSN.

Coudé-Gaussen, G., 1981. Etude détaillée d'un échantillon de poussières éoliennes prélevé au Tanezrouft, le 10 décembre 1980. Recherches Géographiques à Strasbourg 16/17, 121–130.

Coudé-Gaussen, G., Désiré, E., Regrain, R., 1988. Particularité des poussières sahariennes distales tombées sur la Picardie et l'Ile de France le 7 mai 1988. Hommes et Terres du Nord 4, 246–251.

Coudé-Gaussen G., 1991. Les poussières Sahariennes. British Library. J. Libbey Eurotext, Paris, 485pp.

Coz, E., Gomez-Moreno, F.J., Pujadas, M., Casuccio, G.S., Lersch, T.L., Artiñano, B., 2009. Individual particle characteristics of North African dust under different long-range transport scenarios. Atmospheric Environment, 1–14.

D'Almeida, G.A., 1986. A model for Saharan dust transport. Journal of Climate and Applied Meteorology 25, 903–916.

Danesi, P.R., Moreno, J., Makarewicz, M., Louvat, D., 2008. Residual radionuclide concentrations and estimated radiation doses at the former French nuclear weapons test sites in Algeria. Applied Radiation and Isotopes 66, 1671– 1674.

DGEMP, 2007. Bilan énergétique de la France pour 2007. Ministère de l'écologie, de l'énergie, du développement durable et de l'aménagement du territoire. pp.30.

Di Carlo P., Pitari G., De Luca N., Battisti D., 2009. Observations of surface radon in Central Italy. Environ. Geol. 58, 431-436.

Directive du Parlement Européen et du Conseil du 21 mai 2008 concernant la qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'Europe. 2008/50/CE.

Dordevic, D., Vukmirovic, Z., Tosic, I., Unkasevic, M., 2004. Contribution of dust transport and resuspension to particulate matter levels in the Mediterranean atmosphere. Atmospheric Environment 38, 3637–3645.

Draxler, R.R., Rolph, G.D., 2003. HYSPLIT.Model access via NOAA ARL READY website (http://www.arl.noaa.-gov/ready/hysplit4.html). NOAA air Resources Laboratory, Silver Spring, MD.

Dueñas C., Fernández M.C., Cañete S., Pérez M., 2009. ^{7}Be to ^{210}Pb concentration ratio in ground level air in Málaga (36.7°N, 4.5°W). Atmospheric Research 92, 49–57.

Duncan B.N., Martin R.V., Staudt A.C., Yevich R., Logan J.A., 2003. Interannual and seasonal variability of biomass burning emissions constrained by satellite observations. Journal of Geophysical research 108.

EMEP/CCC-Report 8/2007. EMEP Particulate Matter Assessment Report.

Engelstaedter, S., Tegen, I., Washington, R., 2006. North African dust emissions and transport. Earth-Science Reviews 79, 73–100.

Escudero, M., Castillo, S., Querol, X., Avila, A., Alarcon, M., Vianna, M., Alastuey, A., Cuevas, E., Rodriguez, S., 2005. Wet and dry African dust episodes over eastern Spain. Journal of Geophysical Research 110, 1-15.

Escudero, M., Querol, X., Pey, J., Alastuey, A., Pérez, N., Ferreira, F., Alonso, S., Rodriguez, S., Cuevas, E., 2007. A methodology for the quantification of the net African dust load in air quality monitoring networks. Atmospheric Environment 41, 5516–5524.

EurObserv'ER, 2009. Etat des énergies renouvelables en Europe. 9e bilan EurObserv'ER. pp. 171.

FAO, 2009. Situation des forêts du monde. Organisation des nations unies pour l'alimentation et l'agriculture. Rome 2009.

Fesenko S. V., Sukhova N. V., Spiridonov S. I., Sanzharova N. I., Avila R., Klein D., Bado P. M., 2003. Distribution of ^{137}Cs in the Tree Layer of Forest Ecosystems in the Zone of the Accident at the Chernobyl Nuclear Power Plant. Russian Journal of Ecology 34, 104-109.

Fogh C.L., Roed J., Andersson K.G., 1999. Radionuclide resuspension and mixed deposition at di!erent heights. Journal of Environmental Radioactivity 46, 67-75.

Forsten C., Wandinger U., Wotawa G., James P., Mattis I., Althausen D., Simmonds P., O'Doherty S., Jennings S.G., Kleefeld C., Schneider J., Trickl T., Kreipl S., Jäger H., Stohl A., 2001. Transport of boreal forest fire emissions from Canada to Europe. Journal of Geophysical Research 106, 22887-22906.

Frazen L.G., Hjelmroos, M., Kallberg, P., Brorstrom-Lunden, E., Juntto, S., Savolainen, A.L., 1994. The "yellow snow" episode of northern Fennoscandia, March 1991 – A case study of long-distance transport of soil, pollen and stable organic compounds. Atmospheric Environment 28, 3587-3604.

Garger E.K., Hoffman F.O., Thiefbent K.M., 1997. Uncertainty of the long-term resuspension factor. Atmospheric Enuironment Vol. 31, 1647-1656.

Garger E. K., Paretzke H. G., Tschiersch J., 1998. Measurement of resuspended aerosol in the Chernobyl area. Radiat. Environ. Biophys. 37, 201–208.

Garland J.A., 1982. Resuspension of particulate material from grass. Experimental programme 1979-1980. Environmental and Medical Sciences Division.

Garland J.A., Pomeroy I.R.1994. Resuspension of fall-out material following the Chernobyl accident. Journal of Aerosol Science 25, 793-806.

Gerasopoulos E., Zanis P., Stohl A., Zerefos C.S, Papastefanou C., Ringer W., Tobler L., Hubener S., Gaggeler H.W., Kanter H.J., Tositti L., Sandrini S., 2001. Climatology of ^{7}Be at four high-altitude stations at the Alps and the Northern Apennines. Atmospheric Environment 35, 6347–6360.

Giglio L., Descloitres J., Justice C.O., Kaufman Y.J., 2003. An Enhanced Contextual Fire Detection Algorithm for MODIS. Remote Sensing of Environment 87, 273–282.

Giglio L., van der Werf G. R., Randerson J. T., Collatz G. J., Kasibhatla P., 2006. Global estimation of burned area using MODIS active fire observations. Atmospheric Chemistry and Physics 6, 957-974.

Gillies, J.A., Nickling, W.G., McTainsh, G.H., 1996. Dust concentrations and particle-size characteristics of an intense dust haze event: inland delta region, Mali, West Africa. Atmospheric Environment 30, 1081–1090.

Gimenez, J., Pastor, C., Castañer, R., Nicolas, J., Crespo, X., Carratala, A., 2010. Influence of Saharan dust outbreaks and atmospheric stability upon vertical profiles of size-segregated aerosols and water vapor. Atmospheric Environment 44, 338-346.

Gobbi, G.P., Barnaba, F., Ammannato, L., 2007. Estimating the impact of Saharan dust on the year 2001 PM10 record of Rome, Italy. Atmospheric Environment 41, 261–275.

Gomes L., Arrue J.L., Lopez M.V., Sterk G., Richard D., Gracia R., Sabre M., Gaudichet A., Frangi J.P., 2003. Wind erosion in a semiarid agricultural area of Spain: the WELSONS project Catena 52, 235–256.

Goor F., Thiry Y., 2004. Processes, dynamics and modelling of radiocaesium cycling in a chronosequence of Chernobyl-contaminated Scots pine (Pinus sylvestris L.) plantations. Science of the Total Environment 325, 163-180.

Goudie, A.S., Middleton, N.J., 2001. Saharan dust storms: nature and consequences. Earth-Science Reviews 56, 179–204.

Goudie, A.S., 2009. Dust storms: Recent developments. Journal of Environmental Management 90, 89–94.

Grasty R.L., 1994. Summer outdoor radon variations in Canada and their relation to soil moisture. Health Physics 66, 185-193.

Gregory, J.M., Wilson, G.R., Singh, U.B., Darwish, M.M., 2004. TEAM: integrated, process-based wind-erosion model. Environmental Modelling & Software 19, 205–215.

Griffin, D.W., Kubilay, N., Koçak, M., Gray, M.A, Borden, T.C, Shinn, E.A., 2007. Airborne desert dust and aeromicrobiology over the Turkish Mediterranean coastline. Atmospheric Environment 41, 4050–4062.

Guerrero-Rascado, J.L., Ruiz, B., Alados-Arboledas, L., 2008. Multi-spectral Lidar characterization of the vertical structure of Saharan dust aerosol over southern Spain. Atmospheric Environment 42, 2668–2681.

Guerzoni, S., Molinaroli, E., Chester, R., 1997. Saharan dust inputs to western Mediterranean Sea : depositional patterns, geochemistry and sedimentological implications. Deep-Sea Research II 44, 631-654.

Han Y.J., Holsen T.M., Hopke P.K., 2007. Estimation of source locations of total gaseous mercury measured in New York State using trajectory-based models. Atmospheric Environment 41, 6033–6047.

Hernandez, F., Alonso-Pérez, S., Hernandez-Armas, J., Cuevas, E., Karlsson, L., Romero-Campos, P.M., 2005. Influence of major African dust intrusions on the ^{137}Cs and ^{40}K activities in the lower atmosphere at the Island of Tenerife. Atmospheric Environment 39, 4111–4118.

Hernandez, F., Rodriguez, S., Karlsson, L., Alonso-Pérez, S., Lopez-Perez, M., Hernandez-Armas, J., Cuevas, E., 2008. Origin of observed high ^{7}Be and mineral dust concentrations in ambient air on the Island of Tenerife. Atmospheric Environment 42, 4247–4256.

Hodzic A., Madronich S., Bohn B., Massie S., Menut L., Wiedinmyer C., 2003. Wildfire particulate matter in Europe during summer 2003: meso-scale modeling of smoke emissions, transport and radiative effects. Atmospheric Chemistry and Physics Discussion 7, 4705-4760.

Hosoda M., Shimo M., Sugino M., Furukawa M., Fukushi M., 2007. Effect of Soil Moisture Content on Radon and Thoron Exhalation. Journal of nuclear science and technology 44, 664-672.

Ichoku C., Kaufman Y., 2005. A method to derive smoke emission rates from MODIS fire radiative energy measurements. IEEE Transactions on geoscience and remote sensing 43.

IFFN, 2005, Interannual and seasonal variability of biomass burning emissions constrained by satellite observations. International Forest Fire News 32.

IFFN, 2006. Forest Fires in Portugal in 2005 – An Overview. International Forest Fire News 34.

IFFN, 2007. Advance Publication of Wildland Fire Statistics for Russia 1992-2007. International Forest Fire News 37.

Ioannidou A., Manolopoulou M., Papastefanou C., 2005. Temporal changes of 7Be and 210Pb concentrations in surface air at temperate latitudes (40°N). Applied Radiation and Isotopes 63, 277–284.

Ipatyev V., Bulavik I., Baginsky V., Goncharenko G., Dvornik A., 1999. Forest and Chernobyl: forest ecosystems after the Chernobyl nuclear power plant accident: 1986-1994. Journal of Environmental Radioactivity 42, 9-38

IRSN, 2004. La radioécologie. IRSN

Isotopic Compositions of the Elements, 2001. Bohlke J.K., Laeter J.R., De Bièvre P., Hidaka H., Peiser H.S., Rosman K.J.R., Taylor P.D.P. J. Phys. Chem. Ref. Data 34, 2005.

Jasiulionis R., Wershofen H., A study of the vertical diffusion of the cosmogenic radionuclides, ^{7}Be and ^{22}Na in the atmosphere. Journal of Environmental Radioactivity 79, 157–169.

Hladil J., Strnad L., Salek M., Jankovska V., Simandl P., Schwarz J., Smolik J., Koptikova L., Rohovec J., Bohmova V., Langrova A., Kocianova M., Melichar R., Adamovic J., 2008. An anomalous atmospheric dust deposition event over Central Europe, 24 March 2007, and fingerprinting of the SE Ukrainian source. Bulletin of Geosciences 83, 175-206.

JRC, 2008. Forest Fires in Europe 2007. Report N°8. pp.82.

Justice C.O., Giglio L., Korontzi S., Owens J., Morisette J.T., Roy D., Descloitres J., Alleaume S., Petitcolin F., Kaufman Y., 2002. The MODIS fire products. Remote Sensing of Environment 83, 244–262.

Kallos, G. et al., 1997. The regional weather forecasting system SKIRON: An overview. Proceedings of the Symposium on Regional Weather Prediction on Parallel Computer Environments, 109-122.

Karlsson, L., Hernandez, F., Rodriguez, S., Lopez-Perez, M., Hernandez-Armas, J., Alonso-Perez, S., Cuevas, E., 2008. Using ^{137}Cs and ^{40}K to identify natural Saharan dust contributions to PM10 concentrations and air quality impairment in the Canary Islands. Atmospheric Environment 42, 7034–7042.

Kashparov V. A., Lundin S. M., Kadygrib A. M., Protsak V. P., Levtchuk S. E., Yoschenko V. I., Kashpur V. A., Talerko1 N. M., 2000. Forest fires in the territory contaminated as a result of the Chernobyl accident: radioactive aerosol resuspension and exposure of fire-fighters. Journal of Environmental Radioactivity 51, 281-298.

Kaskaoutis, D.G., Kambezidis, H.D., Nastos P.T., Kosmopoulos, P.G., 2008. Study on an intense dust storm over Greece. Atmospheric Environment 42, 6884–6896.

Kataoka T., Yunoki E., Shimizu M., Mori T., 1998. Diurnal variation in Radon concentration and mixing-layer depths. Boundary-Layer Meteorology 89, 225–250.

Kataoka T., Yunoki E., Shimizu M., Mori T., 2003. Concentrations of ^{222}Rn, its short-lived daughters and ^{212}Pb and their ratios under complex atmospheric conditions and topography. Boundary-Layer Meteorology 107, 219–249.

Kelly, J.T., Chuang, C.C., Wexler, A.S., 2007. Influence of dust composition on cloud droplet formation. Atmospheric Environment 41, 2904–2916.

Koçak, M., Mihalopoulos, N., Kubilay, N., 2007. Contributions of natural sources to high PM10 and PM2:5 events in the eastern Mediterranean. Atmospheric Environment 41, 3806–3818.

Koren I., Kaufman Y.J., Washington R., Todd M.C., Rudich Y., Martins J.V., Rosenfeld D., 2006. The Bodélé depression: a single spot in the Sahara that provides most of the mineral dust to the Amazon forest . Environmental Research Letters 1.

Krajny E., Osrodka L., Skowronek J., Skubacz K., Wojtylak M., 2005. Diurnal variation of the mixing-layer height and polonium concentration in the air. International Journal of Environment and Pollution 25, 95-104.

Kubilay, N., Nickovic, S., Moulin, C., Dulac, F., 2000. An illustration of the transport and deposition of mineral dust onto the eastern Mediterranean. Atmospheric Environment 34, 1293}1303.

Kulan A., 2006. Seasonal ^{7}Be and ^{137}Cs activities in surface air before and after the Chernobyl event. Journal of Environmental Radioactivity 90, 140-150.

Kulan A., Aldahan A., Possnert G., Vintersved I., 2006. Distribution of ^{7}Be in surface air of Europe. Atmospheric Environment 40, 3855–3868.

Külzer, S., Ries, R., Schütz, L., 1997. A Lagrangian method to descripe Saharan Dust Transport towards Europe. Journal of Aerosol Sciences 28, 461-462.

Kutlakhmedov Y., Davydchuk V., Arapis G., Kutlakhmedova-Vyshnyakova V., 1999. Radiocapacity of forest ecosystems. Contaminated Forests. I.Linkov and W.R. Schell (eds.). 51-61.

Lai S., Holsen T.M., Hopke P.K., Liu P., 2007. Wet deposition of mercury at a New York state rural site: Concentrations, fluxes, and source areas. Atmospheric Environment 41, 4337–4348.

Laurent, B., Marticorena, B., Bergametti, G., Mei, F., 2006. Modeling mineral dust emissions from Chinese and Mongolian deserts. Global and Planetary Change 52, 121–141.

Lawrence, C.R., Neff, J.C., 2009. The contemporary physical and chemical flux of aeolian dust: A synthesis of direct measurements of dust deposition. Chemical Geology 267, 46–63.

Lenes, J.M., Darrow, B.A., Walsh, J.J., Prospero, J.M., He, R., Weisberg, R.H., Vargo, G.A., Heil, C.A., 2008. Saharan dust and phosphatic fidelity: A three-dimensional biogeochemical model of Trichodesmium as a nutrient source for red tides on the West Florida Shelf. Continental Shelf Research 28, 1091– 1115.

Likuku A.S., 2006. Factors influencing ambient concentrations of ^{210}Pb and ^{7}Be over the city of Edinburgh (55.9 °N, 03.2 °W). Journal of Environmental Radioactivity 87, 289-304.

Littmann, T., 1991 [a]. Rainfall, temperature and dust storm anomalies in the African Sahel. Geographical Journal 157, 136–160.

Littmann, T., 1991 [b]. Recent African dust deposition in West Germany—sediment characteristics and climatological aspects. Catena Supplement 20, 57–73.

Livens F.R., Baxter M.S., 1988. Particle size and radionuclide levels in some West Cumbrian soils. The Science of the Total Environment 70, 1-17.

Loye-Pilot M.D., Martin J.M., 1996. Saharan dust input to the Western Mediterranean: An eleven year record in Corsica. The impact of desert dust across the Mediterranean. Guerzoni, Chester.

Lu, H., Shao, Y., 2001. Toward quantitative prediction of dust storms: an integrated wind erosion modelling system and its applications. Environmental Modelling & Software 16, 233–249.

Lujaniene G., Ogorodnikov B. I., Budyka A. K., Skitovichh V. I., Lujanas V., 1997. An Investigation of Changes in Radionuclide Carrier Properties. Journal of Environmental Radioactivity 35, 71-90.

Lujaniene G., Aninkevicius V., Lujanas V., 2007. Artificial radionuclides in the atmosphere over Lithuania. Journal of Environmental Radioactivity, 1-12.

Lupu A., Maenhaut W., 2002. Application and comparison of two statistical trajectory techniques for identification of source regions of atmospheric aerosol species. Atmospheric Environment 36, 5607–5618.

Maher, B.A., Prospero, J.M., Mackie, D., Gaiero, D., Hesse, P.P., Balkanski, Y., 2010. Global connections between aeolian dust, climate and ocean biogeochemistry at the present day and at the last glacial maximum. Earth-Science Reviews 99, 61–97.

Marcazzan G., Persico F., 1996. Evaluation of mixing layer depth in Milan town from temporal variation of atmospheric radioactive aerosols. Journal of Aerosol science 27, 21-22.

Masson, O., Piga, D., Gurriaran, R., D'Amico D., 2010. Impact of an exceptional Saharan dust outbreak in France: PM10 and artificial radionuclides concentrations in air and in dust deposit. Atmospheric Environment 44, 2478-2486.

Mattsson, J.O., Nihlén, T., 1996. The transport of Saharan dust to southern Europe: a scenario. Journal of Arid Environments 32, 110–111.

McTainsh, G.H., Walker, P.H., 1982. Nature and distribution of Harmattan dust. Zeitschrift für Geomorphologie 26, 417–435.

McTainsh, G.H., NicHing, W.G., Lynch, A.W., 1997. Dust deposition and particle size in Mali, West Africa. Catena 29, 307-322.

Meloni, D., di Sarra, A., Di Iorio, T., Fiocco, G., 2005. Influence of the vertical profile of Saharan dust on the visible direct radiative forcing. Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer 93, 397–413.

Meloni, D., di Sarra, A., Monteleone, F., Pace, G., Piacentino, S., Sferlazzo, D.M., 2008. Seasonal transport patterns of intense Saharan dust events at the Mediterranean island of Lampedusa. Atmospheric Research 88, 134–148.

Métivier J.M., Masson O., Piga D., Clavreul A., 2010. Poussières sahariennes au dessus de la France. Conférence Francophone Esri. Versailles.

Mikami, M., Shi, G.Y., Uno, I., Yabuki, S., Iwasaka, Y., Yasui, M., Aoki, T., Tanaka, T.Y., Kurosaki, Y., Masuda, K., Uchiyama, A., Matsuki, A., Sakai, T., Takemi, T., Nakawo, M., Seino, N., Ishizuka, M., Satake, S., Fujita, K., Hara, Y., Kai, K., Kanayama, S., Hayashi, M., Du, M, Kanai, Y., Yamada, Y., Zhang, X.Y., Shen, Z., Zhou, H, Abe, O., Nagai, T., Tsutsumi, Y., Chiba, M., Suzuki, J., 2006. Aeolian dust experiment on climate impact: An overview of Japan–China joint project ADEC. Global and Planetary Change 52, 142–172.

Miller, J. M., 1987. The use of back air trajectories in interpreting atmospheric chemistry data: a review and bibliography. NOAA Technical Memo. ERL ARL-155, Air Resources Laboratory, NOAA Environmental Research Laboratories, Silver Spring, Maryland, U.S.A., pp.60.

Mitsakou, C., Kallos, G., Papantoniou, N., Spyrou, C., Solomos, S., Astitha, M., Housiadas, C., 2008. Saharan dust levels in Greece and received inhalation doses. Atmospheric Chemistry and Physics 8, 7181-7192.

Morawska L., Phillips C.R., 1993. Dependence of the radon emanation on radium distribution and internal structure of the material. Geochimica et Cosmochimica Acta 57, 1783-1797.

Moulin, C., Lambert, C.E., Dayan, U., Masson, V., Ramonet, M., Bousquet, P., Legrand, M., Balkanski, Y.J., Guelle, W., Marticorena, B., Bergametti, G., Dulac, F., 1998. Satellite climatology of African dust transport in the Mediterranean atmosphere. Journal of Geophysical Research 103, 13137- 13144.

Myttenaere, C., 1992. Conséquences écologiques des accidents nucléaires de Kyshtym et de Tchernobyl (URSS). Radioprotection 27, 291-297.

Nickovic S., Kallos G., Papadopoulos A., Kakaliagou O., 2001. A model for prediction of desert dust cycle in the atmosphere. Journal of Geophysical Research 106, 18113-18129.

Nicolas J., Chiari M., Crespo J., Orellana I.G., Lucarelli F., Nava S., Pastor C., Yubero E., 2008. Quantification of Saharan and local dust impact in an arid Mediterranean area by the positive matrix factorization (PMF) technique. Atmospheric Environment 42, 8872–8882.

Niemi J. V., Tervahattu H., Vehkamaki H., Martikainen J., Laakso L., Kulmala M., Aarnio P., Koskentalo T., Sillanpaa M., Makkonen U., 2005. Characterization of aerosol particle episodes in Finland caused by wildfires in Eastern Europe. Atmospheric Chemistry and Physics 5, 2299-2310.

OCDE, 2002. Chernobyl, Assessment of Radiological and Health Impacts. 2002 Update of Chernobyl: Ten Years On. OCDE publications pp. 157.

Ozer, P., Erpicum, M., Cortemiglia, G.C., Luchettti, G., 1998. A dustfall event in November 1996 in Genoa, Italy. Weather 53, 140–145.

Paatero J., Hatakka J., Viisanen Y., 1998. Variations of particle-bound Radon-222 progeny in northern Finland due to vertical mixing of the lower troposphere. Journal of Aerosol Science 29, 739-740.

Pace G., di Sarra A., Meloni D., Piacentino S., Chamard P., 2006. Aerosol optical properties at Lampedusa (Central Mediterranean). 1. Influence of transport and identification of different aerosol types. Atmospheric Chemistry and Physics 6, 697-713.

Paliouris G., Taylor H.W., Wein R.W., Svoboda J., Mierzynski B., 1995. Fire as an agent in redistributing fallout ^{137}Cs in the Canadian boreal forest. The Science of the Total Environment 160/161, 153-166.

Papachristodoulou C., Ioannides K., Spathis S., 2007. The effect of moisture content on radon diffusion through soil: assessment in laboratory and field experiments. Health Physics 92, 257-264.

Papastefanou C., Ioannidou A., 1996. Influence of Air Pollutants in the 7Be Size Distribution of Atmospheric Aerosols. Aerosol Science and Technology 24, 102-106.

Papastefanou C., Manolopoulou M., Stoulos S., Ioannidou A., Gerasopoulos E., 2005. Cesium-137 in air late after the Chernobyl reactor accident. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 264, 699-700.

Papastefanou C., 2006. Radioactive nuclides as tracers of environmental processes. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. Vol. 267, N°2 315-320.

Park S.U., Chang L.S., Lee E.H., 2005. Direct radiative forcing due to aerosols in East Asia during a Hwangsa (Asian dust) event observed on 19–23 March 2002 in Korea. Atmospheric Environment 39, 2593–2606.

Pavese G., De Tomasi F., Calvello M., Esposito F., Perrone M.R., 2009. Detection of Sahara dust intrusions during mixed advection patterns over south-east Italy: A case study. Atmospheric Research, 1-16.

Pederzoli A., Mircea M., Finardi S., di Sarra A., Zanini G., 2010. Quantification of Saharan dust contribution to PM10 concentrations over Italy during 2003-2005. Atmospheric Environment 44, 4181-4190.

Pérez N., Pey J., Castillo S., Viana M., Alastuey A., Querol X., 2008. Interpretation of the variability of levels of regional background aerosols in the Western Mediterranean. Science of the total environment 407, 527-540.

Perrino C., Pietrodangelo A., Febo A., 2001. An atmospheric stability index based on radon progeny measurements for the evaluation of primary urban pollution. Atmospheric Environment 35, 5235–5244.

Perrino C., Canepari S., Catrambone M., Dalla Torre S., Rantica E., Sargolini T., 2009. Influence of natural events on the concentration and composition of atmospheric particulate matter. Atmospheric Environment 43, 4766–4779.

Perry, K.D., Cahill, T.A., Eldred, R.A., Dutcher, D.D., 1997. Long-range transport of North African dust to the eastern United States. Journal of Geophysical Research 102, 11225–11238.

Prasad A.K., El-Askary H., Kafatos, M., 2010. Implications of high altitude desert dust transport from Western Sahara to Nile Delta during biomass burning season. Environmental Pollution 158, 3385-3391.

Prospero J.M., Ginoux P., Torres O., Nicholson S., Gill T.E., 2002. Environmental characterization of global sources of atmospheric soil dust identified with the Nimbus 7 total ozone mapping spectrometer. Reviews of Geophysics 40.

Pye, K., 1992. Aeolian dust transport and deposition over Crete and adjacent parts of the Mediterranean Sea. Earth Surface Processes and Landforms 17, 271–288.

Querol X., Alastuey A., Rodriguez S., Plana F., Ruiz C.R., Cots N., Massagué G., Puig O., 2001. PM10 and PM2.5 source apportionment in the Barcelona Metropolitan area, Catalonia, Spain. Atmospheric Environment 35, 6407–6419.

Rapport ECP-5, 1995, Contamination of surfaces by resuspended material. Final report. CEC/CIS Joint program on the consequences of the Chernobyl accident.

Ratmeyer, V., Balzer, W., Bergametti, G., Chiapello, I., Fischer, G., Wyputta, U., 1991. Seasonal impact of mineral dust on deep-ocean particle flux in the eastern Atlantic Ocean. Marine Geology 159, 241–252.

Ratmeyer V., Balzer W., Bergametti G., Chiapello I., Fischer G., Wyputta U., 1999. Seasonal impact of mineral dust on deep-ocean particle flux in the eastern subtropical Atlantic Ocean. Marine Geology 159, 241–252.

Reid J. S., Koppmann R., Eck T. F., Eleuterio D. P., 2005. A review of biomass burning emissions part II: intensive physical properties of biomass burning particles. Atmospheric Chemistry and Physics 5, 799-825.

Renaud, P., Garcia-Sanchez, L., Metivier, J.-M., Pourcelot, L., Champion, D., 2005. Interprétation phénoménologique et analytique de la relation pluie-dépôt utilisée pour la reconstitution cartographique des dépôts de 137Cs en France consécutifs a l'accident de Tchernobyl. Rapport IRSN-DEI. IRSN.

Renaud, P., Champion, D., Brenot, J., 2007. Les retombées radioactives de l'accident de Tchernobyl sur le territoire français. Conséquences environnementales et exposition des personnes. Paris.

Renaud P., 2008. Les essais atmosphériques. Fiche information DCOM/DEI. IRSN.

Riccio A., Giunta G., Chianese E., 2007. The application of a trajectory classification procedure to interpret air pollution measurements in the urban area of Naples (Southern Italy). Science of the Total Environment 376, 198–214.

Riesen T.K., 2002. Radiocaesium in forests — A review on most recent research. Environmental review 10, 79-90.

Rigby M., Timmis R., Toumi R., 2006. Similarities of boundary layer ventilation and particulate matter roses. Atmospheric Environment 40, 5112–5124.

Rodriguez S., Querol X., Alastuey A., Mantilla E., 2002. Origin of high summer PM10 and TSP concentrations at rural sites in Eastern Spain. Atmospheric Environment 36, 3101–3112.

Rodriguez S.,, Querol X., Alastuey A., Viana M., , Alarcon M., Mantilla E., Ruiz C.R., 2004. Comparative PM10–PM2.5 source contribution study at rural, urban and industrial sites during PM episodes in Eastern Spain. Science of the Total Environment 328, 95–113.

Rosner G., Winkler R., 2001. Long-term variation(1986-1998) of post-Chernobyl ^{90}Sr, ^{137}Cs, ^{238}Pu and ^{239,240}Pu concentrations in air, depositions to ground, resuspension factors and resuspension rates in south Germany. The Science of the Total Environment 273, 11-25.

Roy B.,. Pouliot G.A., Gilliland A., Pierce T., Howard S., Bhave P.V., Benjey W., 2007. Refining fire emissions for air quality modeling with remotely sensed fire counts: A wildfire case study. Atmospheric Environment 41, 655–665.

Sala, J.Q., Cantos, J.O., Chiva, E.M., 1996. Red dust within the Spanish Mediterranean area. Climatic Change 32, 215–228.

Schimmak W., Schultz W., 2006. Migration of fallout radiocaesium in a grassland soil from 1986 to 2001. Part I: Activity-depth profiles of ^{134}Cs and ^{137}Cs. Science of the Total Environment 368, 853-862.

Schlatter, T., 1995. Long distance dust. Weatherwise 48, 38–39.

Schmidl C., Bauer H., Dattler A., Hitzenberger R., Weissenboeck G., Marr I.L., Puxbaum H., 2008. Chemical characterisation of particle emissions from burning leaves. Atmospheric Environment 42, 9070–9079.

Schwikowski M., Seibert P., Baltensperger U., Gäggeler H.W., 1995. A study of an outstanding saharan dust event at the high-alpine site Jungfraujoch, Switzerland. Atmospheric Environment 29, 1829-1842.

Seibert P., Kromp-Kolb H., Baltensperger U., Jost D.T., Schwikowski M., Kasper A., Puxbaum H., 1994. Trajectory analysis of aerosol measurements at high Alpine sites. In Transport and Transformation of Pollutants in the Troposphere, 689-693.

Sesana L., Caprioli E., Marcazzan G.M., 2003. Long period study of outdoor radon concentration in Milan and correlation between its temporal variations and dispersion properties of atmosphere. Journal of Environmental Radioactivity 65, 147–160.

Shaw W.J., Allwine K.J., Fritz B.G., Rutz F.C., Rishel J.P., Chapman Z.G., 2008. An evaluation of the wind erosion module in DUSTRAN. Atmospheric Environment 42, 1907–1921.

Shcheglov A.I., 1999. Dynamics of radionuclide redistribution and pathways in forest environments: Long-term field research in different landscapes. Contaminated Forests. I.Linkov and W.R. Schell (eds.). 23-39.

Simoneit B.R.T., 2002. Biomass burning — a review of organic tracers for smoke from incomplete combustion. Applied Geochemistry 17, 129–162.

Sofiev M., Vankevich R., Lotjonen M., Prank M., Petukhov V., Ermakova T., Koskinen J., Kukkonen J., 2009. An operational system for the assimilation of the satellite information on wild-land fires for the needs of air quality modelling and forecasting. Atmospheric Chemistry and Physics 9, 6833-6847.

Sogacheva L., Hamed A., Facchini M. C., Kulmala M., Laaksonen A., 2007. Relation of air mass history to nucleation events in Po Valley, Italy, using back trajectories analysis. Atmospheric Chemistry and Physics 7, 839-853.

Soukhova N.V., Fesenko S.V., Klein D., Spiridonov S.I., Sanzharova N.I., Badot P.M., 2003. ^{137}Cs distribution among annual rings of different tree species contaminated after the Chernobyl accident. Journal of Environmental Radioactivity 65, 19–28.

Spezzano P., 2005. Distribution of pre- and post-Chernobyl radiocaesium with particle size fractions of soils. Journal of Environmental Radioactivity 83, 117-127.

Stohl A., 1996. Trajectory statistics – A new method to establish source-receptor relationships of air pollutants and its application to the transport of particulate sulphate in Europe. Atmospheric Environment 30, 579-587.

Stohl A., 1998. Computation, accuracy and applications of trajectories – A review and bibliography. Atmospheric Environment 32, 947-966.

Stohl A., Eckhardt S., Forster C., James P., Spichtinger N., Seibert P., 2002. A replacement for simple back trajectory calculations in the interpretation of atmospheric trace substance measurements. Atmospheric Environment 36, 4635–4648.

Stohl A., Forster C., Eckhardt S., Spichtinger N., Hunstrieser H., Heland J., Schlager H., Wilhelm S., Arnold F., Cooper O., 2003. A backward modeling study of intercontinental pollution transport using aircraft measurements. Journal of Geophysical Research 108.

Strebl F., Gerzabek M.H., Bossew P., Kienzl K., 1999. Distribution of radiocaesium in an Austrian forest stand. The Science of the Total Environment 226, 75-83.

Sukhinin A.I., French N., Kasischke E., Hewson J., Soja A., Csiszar I., Hyer E., Loboda T., Conrad S., Romasko V., Pavlichenko E.,. Miskiv S., Slinkina O., AVHRR-based mapping of fires in Russia: New products for fire management and carbon cycle studies. Remote Sensing of Environment 93, 546– 564.

Swap R., Ulanski S., Cobbett M., Garstang M., 1996. Temporal and spatial characteristics of Saharan dust outbreaks. Journal of Geophysical Research 101, 4205-4220.

Szegvary T., Conen F., Ciais P., 2009. European 222Rn inventory for applied atmospheric studies. Atmospheric Environment 43, 1536–1539.

Tafuro A.M., Barnaba F., De Tomasi F., Perrone M.R., Gobbi G.P., 2006. Saharan dust particle properties over the central Mediterranean. Atmospheric Research 81, 67– 93.

Talbot, R.W., Harriss, R.C., Browell, E.V., Gregory, G.L., Sebacher, D.I., Beck, S.M., 1986. Distribution and geochemistry of aerosols in the tropical North Atlantic troposhere: relationship to Saharan dust. Journal of Geophysical Research 91 ŽD4., 5173–5182.

Tanaka T.Y., Kurosaki Y., Chiba M., Matsumura T., Nagai T., Yamazaki A., Uchiyama A., Tsunematsu N., Kai K., 2005. Possible transcontinental dust transport from North Africa and the Middle East to East Asia. Atmospheric Environment 39, 3901–3909.

Tanaka T.Y., Chiba M., 2006. A numerical study of the contributions of dust source regions to the global dust budget. Global and Planetary Change 52, 88–104.

Tegen I., Fung I., 1994. Modeling og mineral dust in the atmosphere: sources, transport, and optical thickness. Journal of Geophysical Research 99, 22897-22914.

Thiry Y., Goor F., Riesen T., 2002. The true distribution and accumulation of radiocaesium in stem of Scots pine (Pinus sylvestris L.). Journal of Environmental Radioactivity 58, 243–259.

Tokuyama H., Igarashi S., 1998. Seasonal Variation in the Environmental Background level of Cosmic-Ray-Produced ^{22}Na at Fukui City, Japan. Journal of environmental radioactivity 38, 147-161.

Tomadin, L., Lenaz, R., Landuzzi, V., Mazzucotelli, A., Vannucci, R., 1984. Wind-blown dusts over the central Mediterranean. Oceanologica Acta 7, 13–23.

Torres-Padron M.E., Gelado-Cabalerro M.D., Collado-Sanchez C., Siruel-Matos P.J., Cardona-Castellano P.J., Hernandez-Brito J.J., 2002. Variability of dust inputs to the CANIGO zone. Deep Sea Research 49, 3455-3464.

UNSCEAR, 1993. Report 1993, Annexe B: Exposures from man-made sources radiation.

UNSCEAR, 2000. Report to the General Assembly, Sources and Effects of Ionizing Radiation. United nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation.

Veleva B., Valkov N., Batchvarova E., Kolarova M., 2010. Variation of short-lived beta radionuclide (radon progeny) concentrations and the mixing processes in the atmospheric boundary layer. Journal of Environmental Radioactivity 101, 538–543.

Vallés I., Camacho A., Ortega X., Serrano I., Blazquez S., Perez S., 2009. Natural and anthropogenic radionuclides in airborne particulate samples collected in Barcelona (Spain). Journal of Environmental Radioactivity 100, 102–107.

Van derWerf G. R., Randerson J. T., Giglio L., Collatz G. J., Kasibhatla P. S., Arellano, Jr A. F., 2006. Interannual variability in global biomass burning emissions from 1997 to 2004. Atmospheric Chemistry and Physics 6, 3423-3441.

Vasconcelos L., Kahl J., Liu D., Macias E., White H., 1996. Spatial resolution of a transport inversion technique. Journal of Geophysical Research 101, 19337-19342.

Vecchi R., Marcazzan G., Valli G., Ceriani M., Antoniazzi C., 2004. The role of atmospheric dispersion in the seasonal variation of PM1and PM2.5 concentration and composition in the urban area of Milan (Italy). Atmospheric Environment 38, 4437–4446.

Viana M., Querol X., Alastuey A., Cuevas E., Rodriguez S., 2002. Influence of African dust on the levels of atmospheric particulates in the Canary Islands air quality network. Atmospheric Environment 36, 5861–5875.

Viana, M., Kuhlbusch T.A.J., Querol X., Alastuey A., Harrison R.M., Hopke P.K., Winiwarter W., Vallius M., Szidat S., Prévôt A.S.H., Hueglin C., Bloemen H., Wåhlin P., Vecchi R., Miranda A.I., Kasper-Giebl A., Maenhaut W., Hitzenberger R., 2008. Source apportionment of particulate matter in Europe: A review of methods and results. Aerosol Science 39, 827–849.

Wagenbach, D., Geis, K., 1989. The mineral dust record in a high alpine glacier ŽColle Gnifett, Swiss Alps.. In: Leinen, M., Sarnthein, M. ŽEds.., Paleoclimatology and Paleometeorology: Modern and Past Patterns of Global Atmospheric Transport. Kluwer Academic Publishing, Dordrecht, pp. 543–564.

Wagenpfeil F., Paretzke H.G., Peres J.M., Tschiersch J., 1999. Resuspension of coarse particles in the region of Chernobyl. Atmospheric Environment 33, 3313-3323.

Wagenpfeil F., Tschiersch J., 2001. Resuspension of coarse fuel hot particles in the Chernobyl area. Journal of Environnemental Radioactivity 52, 5-16.

Warren A., Chappell A, Todd M.C., Bristow C., Drake N., Engelstaedter S., Martins V., M'bainayel S., Washington R., 2007. Dust-raising in the dustiest place on earth. Geomorphology 92, 25–37.

Washington R., Todd M., Middleton N.J., Goudie A.S., 2003. Dust-storm Source Areas Determinated by the Total Ozone Monitoring Spectrometer and Surface Observations. Annals of the Association of American Geographers 93, 297-313.

Wershofen H., Arnold D., 2005. Radionuclides in Ground-level Air in Braunschweig –Report of the PTB Trace Survey Station from 1998 to 2003. PTB-Ra-45.

Winkler R., Dielt F., Frank G., Tschiersch J., 1998. Temporal variation of ^{7}Be and ^{210}Pb size distributions in ambient aerosol. Atmospheric Environment 32, 983-991.

Witham C., Manning A., 2007. Impacts of Russian biomass burning on UK air quality. Atmospheric Environment 41, 8075–8090.

Wotawa G., De Geer L.-E., Becker A., D'Amours R., Jean M., Servranckx R., Ungar K., 2006. Inter- and intra-continental transport of radioactive cesium released by boreal forest fires. Geophysical Research Letters 33.

Yoschenko V.I., Kashparov V.A., Protsak V.P., Lundin S.M., Levchuk S.E., Kadygrib A.M., Zvarich S.I., Khomutinin Yu.V., Maloshtan I.M., Lanshin V.P., Kovtun M.V., Tschiersch J., 2006 [a]. Resuspension and redistribution of radionuclides during grassland and forest fires in the Chernobyl exclusion zone: part I. Fire experiments. Journal of Environmental Radioactivity 86, 143-163.

Yoschenko V.I., Kashparov V.A., Levchuk S.E., Glukhovskiy A.S., Khomutinin Yu.V., Protsak V.P., Lundin S.M., Tschiersch J., 2006 [b]. Resuspension and redistribution of radionuclides during grassland and forest fires in the Chernobyl exclusion zone: part II. Modeling the transport process. Journal of Environmental Radioactivity 87, 260-278.

Zhao, W., Hopke P. K., Zhou L., 2007. Spatial distribution of source locations for particulate nitrate and sulfate in the upper-midwestern United States. Atmospheric Environment 41, 1831–1847.

Zhou, L., Hopke P.K., Liu W., 2004. Comparison of two trajectorybased models for locating particle sources for two rural New York sites. Atmospheric Environment 38, 1955–1963.

Résumé

Les stations atmosphériques de l'observatoire permanent de la radioactivité dans l'environnement mesurent depuis 1959 les niveaux d'activité de radionucléides naturels et artificiels dans les aérosols. Aujourd'hui, le Cs-137 (30.07 ans), radionucléide artificiel issu des essais nucléaires atmosphériques et de divers accidents, est encore mesuré, à l'état de traces dans les basses couches de l'atmosphère, bien qu'il n'existe plus de rejet significatif. Cette étude s'est intéressée à identifier et caractériser les processus qui expliquent sa rémanence.

Les territoires fortement impactés par les retombées de l'accident de Tchernobyl sont apparus les principaux contributeurs à la rémanence atmosphérique du Cs-137 dans les aérosols prélevés en France. Dans ces régions, les incendies de forêt constituent le processus de remise en suspension du Cs-137 le plus significatif durant la saison sèche et à l'origine d'épisodes de transport longue distance. Il est estimé qu'annuellement de l'ordre de 10^{13} Bq de Cs-137 sont réintroduits dans l'atmosphère par ce processus.

En relation avec de fortes augmentations de la masse totale de particules en suspension, le Sahara est la seconde région contribuant à la rémanence du Cs-137 dans le compartiment atmosphérique au travers d'épisodes de transport de poussières sahariennes. Il est estimé que l'ensemble de ces évènements contribue en moyenne pour 1/3 du bruit de fond ambiant en Cs-137 à l'échelle de la France.

Le dernier processus identifié est l'utilisation de bois comme moyen de chauffage durant l'hiver. Bien que le facteur d'émission de ce processus soit faible, l'étendue spatiale des régions sources et les quantités utilisées durant l'hiver font de ce processus un terme source significatif au regard des niveaux moyens à l'état de traces. A l'échelle de la France, de l'ordre de 10^{11} Bq de Cs-137 sont réintroduits dans l'atmosphère par ce processus. Durant cette saison, la diminution des conditions de ventilation dans les basses couches de l'atmosphère entraîne une élévation du niveau moyen tandis que les augmentations significatives de l'activité volumique sont dues à un transport longue distance en provenance de l'est de l'Europe.

Mots-clefs : ^{137}Cs, Remise en suspension, Rétro-dispersion, Poussières sahariennes, Incendies, Bois de chauffage.

Abstract

Since 1959, atmospheric sampling stations of the environmental radioactivity permanent observatory measure both natural and artificial radioactivity in ambient air. Nowadays, Cs-137 (30.07 years), an artificial radionuclide mainly issue from atmospheric weapons tests and several accidents, is still measured at trace level in the lower atmosphere although there is no significant release anymore. This study has aimed to identify and to characterize the processes which explain this persistence.

Areas highly contaminated by Chernobyl accident are the major contributors to the Cs-137 atmospheric persistence in France. In these areas, wildfires are the most significant resuspension processes during the dry season and can lead to long range transport events. Around 10^{13} Bq of Cs-137 are yearly resuspended by this process.

In connection with significant increases of total suspended particles, Sahara is the second area involved in the atmospheric Cs-137 persistence due to dust transport events. The whole of these events has a mean contribution of around 1/3 of the Cs-137 background level at the French scale.

The last identified process is the wood burning during winter. Even if its emission factor is low, spatial extent of source areas and quantities used at the season scale do of wood burning a significant process compared to ambient trace levels. At the French scale, around 10^{11} Bq of Cs-137 are yearly resuspended by this process. During this season, the decrease of ventilation conditions in the lower atmosphere leads to an increase of the background level whereas significant increases are due to long range transport events from Eastern Europe.

Key-words: ^{137}Cs, Resuspension, Back-dispersion, Saharan dust, Wildfires, Wood-burning.