



HAL
open science

Etude du ^{210}Pb d'origine atmosphérique dans l'air, la neige, les sols et les sédiments : mesures, inventaires et interprétation à l'échelle globale

Nicolas Preiss

► **To cite this version:**

Nicolas Preiss. Etude du ^{210}Pb d'origine atmosphérique dans l'air, la neige, les sols et les sédiments : mesures, inventaires et interprétation à l'échelle globale. Ingénierie de l'environnement. Université Joseph-Fourier - Grenoble I, 1997. Français. NNT : . tel-00765239v2

HAL Id: tel-00765239

<https://theses.hal.science/tel-00765239v2>

Submitted on 14 Dec 2012

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.

TS 97/GRE1/0031/D
(double)

mf



DOUBLE
DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE



LABORATOIRE DE GLACIOLOGIE ET GEOPHYSIQUE DE L'ENVIRONNEMENT

Associé à l'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER - GRENOBLE I



**Etude du ^{210}Pb d'origine atmosphérique
dans l'air, la neige, les sols et les sédiments:
Mesures, inventaires et interprétation à l'échelle globale**

Nicolas PREISS

Thèse de doctorat de l'Université Joseph Fourier - Grenoble I
(Arrêtés ministériels du 5 Juillet 1984 et 30 mars 1992)

Spécialité : Géophysique et Géochimie

Date de la soutenance : 30 janvier 1997

Composition du jury :

- | | |
|-------------------------------|--------------------|
| M. Laurent CHARLET | Président |
| M. Jean-Pierre LACAUX | Rapporteur |
| M. Michel SERVANT | Rapporteur |
| M. Yves BALKANSKI | Examinateur |
| Mme Marie-Antoinette MELIERES | Examinateur |
| M. Jean JOUZEL | Directeur de Thèse |

Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement - CNRS
Tél (33) 04.76.82.42.00 - Fax (33) 04.76.82.42.01
54, Rue Molière - BP 96 - 38402 Saint Martin d'Hères Cedex France



TS97/GRE1/0031
DOUBLE

CNS

CENTRE NATIONAL DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

LABORATOIRE DE GLACIOLOGIE ET GEOPHYSIQUE DE L'ENVIRONNEMENT

Associé à l'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER - GRENOBLE I



**Etude du ^{210}Pb d'origine atmosphérique
dans l'air, la neige, les sols et les sédiments:
Mesures, inventaires et interprétation à l'échelle globale**

Nicolas PREISS

Thèse de doctorat de l'Université Joseph Fourier - Grenoble I
(Arrêtés ministériels du 5 Juillet 1984 et 30 mars 1992)

Spécialité : Géophysique et Géochimie

Date de la soutenance : 30 janvier 1997

Composition du jury :

M. Laurent CHARLET	Président
M. Jean-Pierre LACAUX	Rapporteur
M. Michel SERVANT	Rapporteur
M. Yves BALKANSKI	Examineur
Mme Marie-Antoinette MELIERES	Examineur
M. Jean JOUZEL	Directeur de Thèse



Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement - CNRS
Tél (33) 04.76.82.42.00 - Fax (33) 04.76.82.42.01
54, Rue Molière - BP 96 - 38402 Saint Martin d'Hères Cedex France

10188108

Avant-Propos

Je remercie Michel Pourchet et Marie-Antoinette Mélières pour m'avoir suivi et supporté pendant ces trois années passées au Laboratoire de Glaciologie.

Je remercie également Jean-Francis Pinglot pour son assistance technique et ses conseils.

Je remercie particulièrement Patrick Wagnon pour avoir sacrifié sa sueur à la récolte et au pompage des pluies de l'Altiplano bolivien. Sans lui il n'y aurait aucune donnée de flux de dépôt de ^{210}Pb mesuré en Amérique du Sud.

Je remercie aussi Christian Vincent qui m'a permis d'effectuer les prélèvements de couches d'hiver de neige sur les glaciers alpins. Surtout que ces missions lui ont coûté quelques plaquettes de chocolat.

Je remercie Jean Mallet de l'ORSTOM pour avoir prélevé bénévolement et sans conditions des échantillons de sols au fin fond de la brousse camerounaise. Ces sols judicieusement choisis ont permis d'enrichir notablement le nombre de données de ^{210}Pb en Afrique.

Je remercie enfin mon grand maître et gourou, Christophe Genthon, qui m'a initié aux arts de la modélisation et accompagné pour une partie de ce travail. Hélas, les principes de ces arts virtuels ne se sont pas correctement imprimés dans mon cortex cérébral.

Je remercie tous les membres du jury pour avoir accepté de perdre une partie de leur temps à la lecture de cet ouvrage et, surtout, d'accepter de le juger.

Je remercie encore Nicole Hermann, ingénieur de recherche à l'Université Pierre Mendès-France, pour son aide concernant la rédaction de ce mémoire. Merci tata.

Je ne remercie pas la société qui génère des docteurs destinés à être chercheur d'emploi.

Cette thèse est dédiée à Michèle, Cécile et Axelle et à tous ceux que j'aime.

Résumé

L'étude présentée ici concerne la répartition du ^{210}Pb atmosphérique à l'échelle globale dans l'environnement. Ce travail débute par une étude expérimentale concernant les mesures de flux de dépôt atmosphérique de ^{210}Pb dans les pluies, les sols et la neige. Une base de données a ensuite été construite en regroupant les mesures effectuées ces quatre dernières décennies. Celle-ci se focalise sur les concentrations de ^{210}Pb dans l'air de surface et sur les flux de dépôt d'origine atmosphérique mesurés aux interfaces atmosphère-surface terrestre (collecteurs artificiels, sols et neige) et eau-sédiment. Cette base de données est ensuite exploitée. Les données de ^{210}Pb atmosphérique sont analysées qualitativement en termes de transport (circulation atmosphérique) et de mécanismes de dépôt, et utilisées quantitativement pour la validation d'un modèle de circulation générale (GCM). En dernière partie, les données de flux de dépôt de ^{210}Pb à l'interface eau-sédiment sont comparées statistiquement aux données de flux de dépôt atmosphérique. Cette comparaison est appliquée à l'étude des transferts entre l'atmosphère et les sédiments et permet ainsi de distinguer quatre différents types de réservoirs aquatiques.

Abstract

The present study concerns the atmospheric ^{210}Pb large scale distribution in the environment. This work begins with an experimental study concerning ^{210}Pb atmospheric deposition flux measurements in rain, soils, and snow. A database has then been built grouping measurements performed during the last forty years. This database focuses on ^{210}Pb concentration in surface air and deposition fluxes measured at the atmosphere-Earth's surface (artificial collectors, soils, and snow) and water-sediment interfaces. The database is then exploited. Atmospheric ^{210}Pb data are analysed qualitatively in terms of transport (atmospheric circulation) and deposition mechanisms, and used quantitatively for the validation of a general circulation model (GCM). In the last part, water-sediment flux data are statistically compared with atmospheric deposition flux data. This comparison is applied to the study of atmosphere-sediment transfert and leads to distinguished four different classes of aquatic systems.

Table des Matières

I - Généralités	10
1. Introduction	10
2. Origine et cycle du ^{210}Pb	12
II - Méthodologie expérimentale	17
1. Méthodes de mesure	17
1.1 Mesure du ^{210}Pb dans les collecteurs artificiels	17
1.2 Mesure du ^{210}Pb dans la neige	21
1.3 Mesure du ^{210}Pb dans les sols	25
1.4 Mesure du ^{210}Pb dans les sédiments lacustres	29
2. Résultats expérimentaux	30
2.1 Mesure du flux atmosphérique de ^{210}Pb à Grenoble	30
2.2 Mesure du flux atmosphérique de ^{210}Pb sur l'Altiplano bolivien ..	35
2.3 Mesure du ^{210}Pb dans les glaciers alpins	37
2.4 Mesure du ^{210}Pb dans les glaciers du Svalbard	40
2.5 Mesure du ^{210}Pb dans différents sols de la planète	43
III - La base de données de ^{210}Pb	49
IV - Application du ^{210}Pb à l'étude de la circulation atmosphérique et du climat	108
1. Répartition globale du ^{210}Pb	109
1.1 Mécanismes mis en jeu dans le cycle atmosphérique du ^{210}Pb ..	109
1.1.1 Les sources	109
1.1.2 Circulation atmosphérique et climat	110
1.2 Commentaires sur les concentrations de ^{210}Pb dans l'air de surface	112

1.2.1 Régions continentales	112
1.2.2 Régions océaniques	118
1.2.3 Régions polaires et subpolaires	119
1.2.4 Distribution en latitude	121
1.3 Commentaires sur les flux de dépôt air-surface	124
1.3.1 Hémisphère Nord	125
1.3.2 Hémisphère Sud	131
1.3.3 Régions polaires	134
1.3.4 Sites de haute montagne	136
1.3.5 Distribution en latitude	137
1.3.6 Vitesse de dépôt superficielle	139
1.4 Conclusion	141
2. Utilisation de la base de données de ²¹⁰ Pb pour la validation d'un modèle couplé climat/aérosols	144
2.1 La base de données de ²¹⁰ Pb synthétisée	145
2.2 Résultats du modèle et comparaison avec les observations ..	146
2.3 Conclusion	153
V - Application du ²¹⁰Pb à l'étude des transferts atmosphère-sédiment	156
1. Le ²¹⁰ Pb dans les sédiments	157
2. Commentaires sur les flux à l'interface eau-sédiment: un aperçu des transferts atmosphère-sédiment	158
2.1 Les Grands Lacs	160
2.2 Les zones côtières	163
2.3 Les océans profonds	163
2.4 Lacs, étangs, tourbières et marais	163
2.5 Comparaison entre les quatre classes de réservoirs	163
VI - Conclusion générale	167
Annexe 1: Radioactivité en Antarctique: Dépôt et Distribution	170

Article 1: "Radionuclides in Antarctica: Deposition and Distribution."

M. Pourchet, S. K. Bartarya, M. Maignan, J. Jouzel, J.-F. Pinglot, A. J. Aristarain, G. Furdada, V. M. Kotlyakov, E. Mosley-Thompson, N. Preiss, and N. W. Young.

Accepté au *Journal of Glaciology*, 1995

Annexe 2: Analyses Radio-isotopiques de Sols et de Sédiments Lacustres 200

Article 2: "Analyses radio-isotopiques de sédiments lacustres du Parc National de Rila."

M. Pourchet, L. Kinova, N. Preiss, K. Veltchev, et E. Pourchet.

Observatoire de Montagne de Moussala OM2, J.-P. Carbonnel et J. N. Stamenov (Eds), fascicule 4, pp. 20-32, ISBN 954-90025-4-3, 1996

Annexe 3: Compilation de Données de Concentrations de ²¹⁰Pb dans l'Air de Surface et de Flux de Dépôt aux Interfaces 215

Article 3: "A compilation of data on lead-210 concentration in surface air and fluxes at the air-surface and water-sediment interfaces."

N. Preiss, M.-A. Mélières, and M. Pourchet

Accepté au *Journal of Geophysical Research (Atmosphere)*, 1996

Annexe 4: Utilisation d'une Base de Données de ²¹⁰Pb pour la Validation d'un Modèle Couplé Climat/Aérosols 266

Article 4: "Use of a new database of lead-210 for global aerosol model validation."

N. Preiss and C. Genthon

Soumis au *Journal of Geophysical Research (Atmosphere)*

Annexe 5: Etude de la Sédimentation Récente de Divers Lacs de l'Altiplano

Article 5: "Sédimentation récente dans le lac Titicaca (Bolivie)."
M. Pourchet, P. Mourguiart, J.-F. Pinglot, N. Preiss, J. Argollo et D. Wirrmann
Compte Rendu de l'Académie des Sciences de Paris, tome 319, Série II, pp. 535-541, 1994

Article 6: "Evaluation des vitesses de sédimentation récente dans les hautes vallées des Andes boliviennes. Son intérêt dans l'estimation des paléo-pollutions atmosphériques."
M. Pourchet, P. Mourguiart, J.-F. Pinglot, N. Preiss, J. Argollo et D. Wirrmann
Compte Rendu de l'Académie des Sciences de Paris, tome 320, Série II, pp. 477-482, 1995

Annexe I: Révisé
enatqitA'1 de 1995

I - Généralités

I - Généralités

1. Introduction

La pollution d'origine anthropique a sensiblement augmenté depuis le siècle dernier, tout d'abord avec la révolution industrielle et, plus récemment, avec l'industrie nucléaire civile et militaire. Les divers polluants: radioéléments, métaux lourds, gaz à effet de serre, etc., engendrés par ces industries se répartissent dans l'environnement et ont des conséquences sur le climat et les écosystèmes.

La distribution à grande échelle de ces polluants sur la planète s'effectue, soit par la circulation atmosphérique, soit par la circulation des eaux (fleuves, océans,...). Dans la distribution atmosphérique, les éléments chimiquement actifs se fixent aux aérosols et, après des temps de résidence variables, se déposent à la surface terrestre via les processus de dépôt sec et humide. Les processus de distribution et de dépôt atmosphériques sont a priori assez similaires lorsque les polluants sont associés à des aérosols de taille comparable. Ainsi l'étude de la répartition d'un seul élément apporte-t-elle des informations essentielles à l'étude du cycle de ces aérosols et donc de ces polluants.

Le travail présenté ici concerne l'étude de la distribution globale du ^{210}Pb d'origine atmosphérique dans l'environnement. Cette étude permet d'accéder à une meilleure compréhension des mécanismes climatiques (circulation générale et précipitations) et environnementaux (transport, dépôt et transferts des polluants sous forme d'aérosols).

Le ^{210}Pb (période radioactive: 22.3 ans) est un radioélément naturel terrigène de la famille radioactive de ^{238}U . Il est généré en continu dans l'atmosphère par l'intermédiaire du ^{222}Rn (période radioactive: 3.8 jours), un gaz rare radioactif. Ce dernier est produit dans la croûte terrestre et s'échappe de la surface des continents non-englacés vers l'atmosphère. Son taux d'émanation est globalement constant à l'échelle du siècle. Le ^{210}Pb ainsi formé dans l'atmosphère se fixe rapidement aux aérosols submicroniques et est réparti autour du globe par la circulation atmosphérique générale. Il se dépose ensuite dans différents milieux naturels par les processus de

dépôts sec et humide. Il est alors transféré entre ces différents milieux et disparaît par désintégration radioactive après environ un siècle (i.e. 5 périodes radioactives). La contribution du ^{210}Pb d'origine anthropique est négligeable comparée à la contribution naturelle.

L'étude présentée ici concerne la répartition du ^{210}Pb atmosphérique à l'échelle globale dans l'environnement et se focalise sur les principaux types de milieux naturels: air, sols, neige et sédiments.

Le travail effectué concerne tout d'abord les mesures de flux de dépôt atmosphérique de ^{210}Pb . Celles-ci ont été élaborées au laboratoire dans les pluies, les sols et la neige. Une interprétation des résultats est présentée, basée sur l'analyse des processus climatiques locaux sur les sites de mesure.

Une base de données a ensuite été construite en regroupant les mesures publiées ces dernières décennies et les mesures effectuées au laboratoire. Cette base de données se focalise sur les concentrations de ^{210}Pb dans l'air de surface et sur les flux de dépôt d'origine atmosphérique. Ces derniers sont mesurés, d'une part à l'interface atmosphère-surface terrestre (collecteurs artificiels, sols et neige), d'autre part à l'interface eau-sédiment.

Cette base de données est ensuite exploitée. Dans un premier temps, les données de ^{210}Pb atmosphérique mesurées à l'interface atmosphère-surface terrestre (concentrations et flux de dépôt) sont analysées qualitativement en termes de transport (circulation atmosphérique) et de mécanismes de dépôt. Cette analyse permet la mise en évidence de comportements régionaux et globaux. Ces données sont ensuite analysées quantitativement par une comparaison avec des données simulées dans des modèles de circulation générale (GCM). Cette application permet la validation de ces modèles. Dans cette optique, la base de données est triée et synthétisée afin d'être le mieux adaptée aux comparaisons entre les observations et les simulations.

En dernière partie, les données de flux de dépôt de ^{210}Pb à l'interface eau-sédiment sont comparées statistiquement aux données de flux de dépôt atmosphérique. Cette dernière analyse est appliquée à l'étude des transferts de ^{210}Pb entre l'atmosphère et les sédiments pour différents types de réservoirs aquatiques: lacs et étangs, tourbières et marais, grands lacs, zones côtières, et océans profonds.

2. Origine et cycle du ^{210}Pb

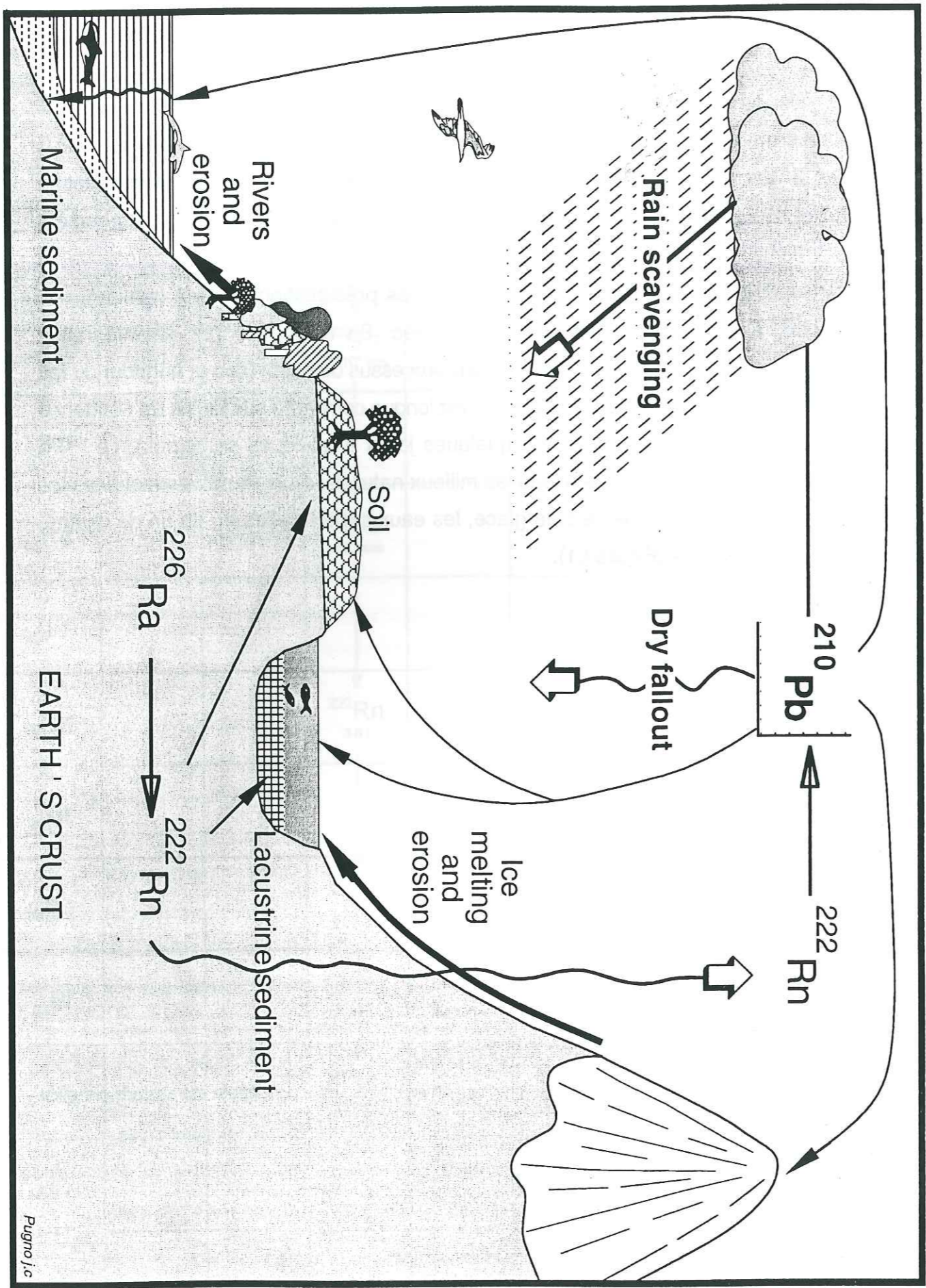
Le ^{210}Pb est un radioélément naturel qui appartient à la famille radioactive de l'uranium-238 (Table I.1). Ce dernier est présent, à des concentrations très variables, dans tous les sols et les roches de la planète. Parmi la filiation radioactive, un des ascendants du ^{210}Pb , le ^{222}Rn (demi-vie: 3.8 jours), est un gaz rare. Cet état confère au ^{222}Rn les propriétés de pouvoir s'échapper de la croûte terrestre, de se répartir dans l'atmosphère avec la circulation générale, et d'être chimiquement inactif. Ses descendants jusqu'au ^{210}Pb étant tous des radioéléments à courte période, on peut considérer que toutes les pertes de ^{222}Rn dans l'atmosphère correspondent à des sources de ^{210}Pb atmosphérique. Du fait de son temps de vie limité, seul le ^{222}Rn situé dans les couches très superficielles du sol et des roches peut s'échapper dans l'atmosphère en diffusant par les pores, failles et interstices présents dans le milieu. Le taux d'émanation du ^{222}Rn dans l'atmosphère est donc spatialement variable puisqu'il dépend de la nature des sols et des roches (contenu en ^{226}Ra , porosité, humidité, etc.). Cependant, étant donné la vitesse de déplacement des masses d'air et le temps nécessaire pour obtenir l'équilibre radioactif de régime du ^{210}Pb à partir du ^{222}Rn , l'étude des sources de ^{210}Pb dans l'atmosphère intègre obligatoirement de très grandes surfaces. Les mesures des taux d'émanation de ^{222}Rn sont actuellement trop éparses pour pouvoir définir des taux régionaux moyens. Du fait de la faible concentration de ^{226}Ra dans les eaux océaniques (environ 100 fois moins que dans les sols et les roches, en moyenne), on considère que les taux d'émanation du ^{222}Rn au-dessus des océans et des mers sont négligeables. Il en est de même pour la glace des calottes polaires (Antarctique, Groenland) qui ne contient pratiquement pas de ^{226}Ra et qui empêche le ^{222}Rn de s'échapper des socles rocheux situés en-dessous. D'autres facteurs peuvent influencer les émanations à grande échelle de ^{222}Rn dans l'atmosphère comme, par exemple, la couverture neigeuse et les sols gelés qui affectent d'immenses étendues dans l'hémisphère nord (Sibérie, Alaska, Canada, etc.) pendant l'hiver boréal. Cependant, si ces éléments diminuent les taux d'émanation, leur influence n'est pas bien quantifiée. On retiendra donc, comme source de ^{210}Pb atmosphérique, seulement les continents non-englacés. On peut noter que ces derniers sont répartis de façon assez hétérogène sur le globe.

Table I.1: Famille radioactive de l'uranium 238

^{92}U	^{238}U 4.5 10^8 ans		^{234}U 2.5 10^5 ans				
^{91}Pa		^{234}Pa 1.18 mn					
^{90}Th	^{234}Th 24.1 j		^{230}Th 7.5 10^4 ans				
^{89}Ac							
^{88}Ra			^{226}Ra 1620 ans				
^{87}Fr							
^{86}Rn			^{222}Rn 3.8 j				
^{85}At				^{218}At ~2 s			
^{84}Po			^{218}Po 3.05 mn		^{214}Po 1.6 10^{-4} s		^{210}Po 138.4 j
^{83}Bi				^{214}Bi 19.7 mn		^{210}Bi 5.01 j	
^{82}Pb			^{214}Pb 26.8 mn		^{210}Pb 22.3 ans		^{206}Pb stable
^{81}Tl				^{210}Tl 1.3 mn		^{206}Tl 4.19 mn	
^{80}Hg					^{206}Hg 8 mn		

Dès sa formation dans l'atmosphère, le ^{210}Pb se fixe très rapidement aux aérosols submicroniques contenus dans l'air (Talbot and Andrew, 1983; Sanak et al., 1981; Martell and Moore, 1974). Il se répartit alors autour du globe par la circulation atmosphérique générale en suivant les courants dominants. Cependant, contrairement au ^{222}Rn qui disparaît uniquement de l'atmosphère par désintégration radioactive, le ^{210}Pb fixé aux aérosols est, soit lessivé par les précipitations (dépôt humide), soit déposé, à un moindre degré, par dépôt sec. Sa disparition par désintégration radioactive est négligeable devant ces deux processus de dépôt (sec et humide) du fait de sa période radioactive de 22.3 ans qui est longue comparée aux temps de résidence des aérosols atmosphériques (de quelques jours à quelques semaines). Le ^{210}Pb atmosphérique se dépose dans tous les milieux naturels; on le retrouve ainsi dans les sols, la végétation, la neige et la glace, les eaux superficielles et, en fin de chaîne, dans les sédiments (Figure I.1).

Figure I.1: Cycle global du ^{210}Pb d'origine atmosphérique: source, transport, dépôt et transferts entre les différents milieux naturels.



Pugno, J.C.

II - Méthodologie expérimentale

II - Méthodologie expérimentale

1. Méthodes de mesure

Les mesures effectuées au laboratoire concernent la détermination du flux de dépôt atmosphérique de ^{210}Pb à partir de différentes méthodes. Le flux peut être mesuré soit à partir de collecteurs naturels, soit à partir de collecteurs artificiels. Les collecteurs naturels, dans lesquels les retombées atmosphériques de ^{210}Pb sont le plus couramment mesurées, sont la neige, les sols et les sédiments lacustres. Les collecteurs artificiels sont des pluviomètres disposés à ciel ouvert et fonctionnant le plus souvent en continu, afin de récolter à la fois les retombées humides et les retombées sèches.

La détection du ^{210}Pb peut se faire, soit directement par spectrométrie gamma, soit par l'intermédiaire d'un de ces descendants, le ^{210}Po (période radioactive: 138 jours), mesuré par spectrométrie alpha moyennant des processus de séparation chimique. La spectrométrie gamma a l'avantage d'être plus simple puisqu'elle ne nécessite pas de préparation chimique. De plus, elle permet la détection simultanée d'autres radioéléments comme, par exemple, le ^7Be (période radioactive: 53 jours), qui apporte des informations complémentaires en tant que traceur d'origine stratosphérique. Cette méthode est cependant moins précise et nécessite des échantillons de masse environ dix fois plus importante. La spectrométrie alpha nécessite une préparation chimique élaborée préalablement au comptage. Par cette méthode, le ^{210}Pb n'étant pas directement mesuré, il est nécessaire que le ^{210}Po soit en équilibre séculaire avec son parent au moment de la mesure.

1.1 Mesure du ^{210}Pb dans les collecteurs artificiels

La mesure directe du flux atmosphérique de ^{210}Pb s'effectue par la récolte des précipitations et du dépôt sec dans un pluviomètre. Ce dernier est généralement disposé en hauteur (toit de bâtiment, par exemple) afin de limiter la contamination par

les poussières locales. La collecte se déroule en continu pendant la durée nécessaire. Elle présente le désavantage d'être longue puisqu'il faut, au minimum, une année de mesure pour obtenir un flux annuel. De plus, ce flux n'est représentatif que d'une année spécifique. Cependant, ce type de mesure est le plus fiable puisque les perturbations susceptibles de biaiser le résultat lors de la récolte sont assez restreintes comparées à celles relatives aux collecteurs naturels, qui seront développées plus loin. Ici, le vent est le principal élément perturbateur car il peut apporter des poussières du milieu environnant dans le collecteur. Toutefois, dans la plupart des cas, ces perturbations restent assez faibles.

Un avantage majeur des mesures de ^{210}Pb dans les collecteurs artificiels est de permettre l'enregistrement des variations saisonnières. Les mesures réalisées au Laboratoire de Glaciologie sont effectuées sur une base mensuelle, ce qui assure un bon découpage temporel du flux annuel tout en ayant des quantités suffisantes de ^{210}Pb pour avoir une bonne précision de comptage.

Cette méthode de mesure s'effectue en cinq étapes qui se répartissent comme suit:

- installation du collecteur,
- récolte des eaux collectées,
- filtration des eaux,
- comptage des filtres par spectrométrie gamma,
- calcul du flux.

a - Le collecteur

Pour la récolte des retombées atmosphériques de ^{210}Pb , nous utilisons un pluviomètre constitué d'un récipient en plastique (jerrican) assemblé à un entonnoir plastique de 28 cm (0.0615 m^2) d'ouverture. Ce procédé permet de limiter l'évaporation des eaux récoltées. Cet assemblage est posé sur une table localisée sur le toit du laboratoire, à une hauteur d'environ 5 m au-dessus du sol.

Pour éviter l'adsorption du ^{210}Pb sur les parois du collecteur, les eaux collectées sont acidifiées avec de l'acide chlorhydrique. Préalablement à la mise en place du collecteur, 12 ml de HCl (3N) suprapur sont versés dans le récipient, ce qui permet d'obtenir une solution acide avec un pH compris entre 2 et 3 en fin de récolte (selon

la quantité d'eau tombée). Le plomb reste, de ce fait, en permanence sous forme soluble.

b - La récolte

Après 30 jours de collecte en continu des retombées atmosphériques, l'eau issue des précipitations est transvasée dans un cubitainer propre de 10 litres. Le récipient du collecteur est brossé puis rincé avec de l'eau permutée. L'entonnoir est frotté avec une brosse et nettoyé avec 1 ml de HCl (12N) suprapur puis rincé à l'eau permutée. Les eaux de rinçage sont ajoutées aux eaux de pluie récoltées. Le dispositif de collecte est ensuite rapidement replacé sur le toit avec 12 ml de HCl (3N). Ainsi la période de hiatus ne dépasse-t-elle pas une demi-heure pour la collecte, ce qui est une durée négligeable comparée à une période de 30 jours, notamment par temps sec.

c - La filtration

L'eau récoltée est pompée puis filtrée. Dans un premier temps, la filtration se fait avec des filtres sans cendre pour prélever les impuretés insolubles. Ensuite, l'eau est filtrée sur des filtres échangeurs d'ions constitués de résines fortes retenues dans une trame de papier. Nous utilisons ces filtres par paire, un filtre anionique et un filtre cationique, pour capter l'ensemble des particules dissoutes. Afin que la totalité du ^{210}Pb soit piégée dans les filtres, la solution est filtrée quatre fois. Au-delà, on estime que le ^{210}Pb restant dans la solution est négligeable. Après la filtration, les filtres échangeur d'ions, séchés, ainsi que les impuretés insolubles sont protégés dans des rondelles plastifiées et sont insérés dans des boîtes de pétri, où ils sont prêts pour la phase de comptage.

Une étude précédente (*Delmas et Pourchet, 1977*) a montré que l'efficacité optimum des filtres échangeurs d'ions utilisés s'effectue pour une solution ayant un pH de 2,5. La quantité de HCl ajoutée dans le collecteur donne un pH compris entre 2 et 3 selon le volume des précipitations récoltées, ce qui permet d'avoir une bonne efficacité de filtration.

Pour ne pas générer des problèmes de géométrie lors de la phase de comptage par spectrométrie gamma, il est préférable de ne pas utiliser plus de 4 paires de filtres échangeurs d'ions. C'est pour cette raison qu'intervient la première phase de filtration avec des filtres sans cendre. En effet, ces filtres retirent la plupart des impuretés

insolubles de la solution et évitent que les filtres échangeurs d'ions ne se colmatent. Le nombre de filtres sans cendre utilisés est sans importance puisque ceux-ci sont ensuite incinérés dans un four à 400°C, ne laissant que les cendres des impuretés captées.

d - Le comptage

Dans l'atmosphère, le ^{210}Pb n'est pas en équilibre séculaire avec le ^{210}Po . Par spectrométrie alpha, il est donc nécessaire d'attendre environ un an après la récolte pour pouvoir mesurer le ^{210}Pb , via son descendant, le ^{210}Po . Pour cette raison nous utilisons ici la mesure directe du ^{210}Pb par spectrométrie gamma, qui, elle, peut se faire dès la récolte des échantillons.

Le Laboratoire de Glaciologie est équipé d'un détecteur gamma (Germanium H.P. type N, spécifié à bas niveau, efficacité relative 20,6%, Camberra) de configuration en U. Il est placé dans une casemate isolée sous 3 mètres d'épaisseur de terre. Le détecteur est protégé par un blindage en plomb (LEMER spécifié à très faible activité) de 10 cm d'épaisseur, doublé par 25 cm de paraffine borée et 4 mm de cuivre (*Pinglot et Pourchet, 1994*). Ce blindage passif est amélioré par un système électronique anti-compton qui permet de diminuer le bruit de fond d'un ordre de grandeur. Ce système est très utile pour la mesure du ^{210}Pb à faible niveau, car celui-ci émet un rayonnement gamma à basse énergie (46.5 keV) qui correspond à une gamme où le bruit de fond est le plus important, du fait de l'effet Compton. Pour éviter des perturbations causées par le ^{222}Rn et ses descendants à vie courte présents dans l'air, le détecteur est sous balayage d'azote.

Les temps de comptage sont en général de l'ordre de 24h, ce qui permet d'avoir une précision statistique de mesure variant entre 10 et 20% à 2 sigmas. Les radioéléments généralement détectés dans les collecteurs artificiels sont, outre les descendants du ^{222}Rn atmosphérique, le ^7Be qui est l'élément ayant la plus forte activité, le ^{214}Pb issu de la matrice des poussières récoltées et, beaucoup plus rarement, le ^{137}Cs , résidu des essais thermonucléaires atmosphériques et de l'accident de Chernobyl. Le ^{137}Cs détecté aujourd'hui dans les précipitations provient généralement d'injections stratosphériques ou du soulèvement par le vent des poussières provenant de sols contaminés.

Pour cette méthode de mesure, un étalonnage a été fait à partir d'une solution

étalon de ^{210}Pb . Cette solution a été diluée dans 5 litres d'eau permutée, acidifiée puis filtrée dans les mêmes conditions que celles de la mesure. Ainsi obtenons-nous un rendement global qui inclut, à la fois, la filtration et le comptage. Pour une source d'environ 30 Bq, ce rendement est de $23 \pm 3 \%$.

e - Mode de calcul du flux

Le flux mensuel, F ($\text{Bq m}^{-2} \text{ mois}^{-1}$), se calcule selon la relation:

$$F = \frac{A}{s}$$

où A (Bq) est l'activité totale de l'échantillon mesuré et s (m^2) la surface du collecteur. Le flux annuel s'obtient par la somme des flux mensuels. On peut considérer que la décroissance radioactive du ^{210}Pb est négligeable pendant le mois de récolte.

1.2 Mesure du ^{210}Pb dans la neige

La mesure du flux atmosphérique de ^{210}Pb dans la neige s'effectue en général sur les calottes polaires ou sur les glaciers de haute montagne. Le ^{210}Pb fixé aux aérosols se dépose sur le manteau neigeux avec la neige elle-même (dépôt humide) et par dépôt sec. Il s'enfonce ensuite au fur et à mesure que la neige s'accumule et son activité décroît progressivement avec la profondeur du fait de la désintégration radioactive.

Les mesures dans la neige donnent accès au flux de dépôt de ^{210}Pb . Le choix du site est très important car plusieurs phénomènes peuvent perturber l'enregistrement du flux. C'est, par exemple, le cas du vent qui peut redistribuer la neige pendant et après son dépôt, créant des zones d'accumulation (congères) ou d'érosion. Dans ce cas, le flux est surestimé ou sous-estimé selon que le site est en zone accumulée ou érodée; en revanche, l'activité spécifique dans la neige reste inchangée. La fusion, même partielle, du manteau neigeux induit également d'importantes modifications dans l'enregistrement du flux atmosphérique (anomalie négative). En effet, le plomb est un élément très soluble dans l'eau, notamment en milieu acide. Ainsi, lors de la fonte, une partie importante du ^{210}Pb contenu dans le manteau neigeux est-elle emportée avec les

eaux de fusion. Il en résulte un déficit de ^{210}Pb , tant dans la mesure du flux que dans celle de l'activité spécifique dans la neige. Les problèmes causés par la fusion ne sont pas présents dans les glaciers froids (température $< 0^\circ\text{C}$ toute l'année), à très haute altitude ou sur les calottes polaires (Antarctique, Groenland). En revanche, la fusion estivale du manteau neigeux est un sérieux handicap pour les mesures dans les glaciers tempérés et rend impossible des mesures rigoureuses du flux annuel par des prélèvements sur ces glaciers. Il existe cependant un palliatif qui consiste à prélever, au printemps, uniquement la couche de neige déposée pendant l'hiver, avant que celle-ci ne commence à fondre et à percoler. Comme la couche de neige d'hiver enregistre généralement entre 7 et 9 mois de dépôt, il est possible d'avoir une estimation du flux annuel en extrapolant les résultats de ces mois d'hiver sur l'année entière.

La méthode de mesure dans la neige ne diffère de celle dans les collecteurs artificiels que sur deux points: la méthode de prélèvement des échantillons et le mode de calcul du flux de ^{210}Pb . On retrouve ainsi ici des phases de filtration et de comptage par spectrométrie gamma semblables à celles de la méthode précédente.

a - Prélèvement

Les prélèvements de neige de surface peuvent s'effectuer de deux façons:

- en creusant un puits dans la neige, de surface déterminée et de section constante,
- par carottage en utilisant un carottier à neige.

Le premier type de prélèvement permet d'échantillonner d'importantes quantités de neige mais il reste limité à de faibles profondeurs (< 5 mètres). Les prélèvements par carottage sont plus couramment utilisés car ils sont relativement rapides à effectuer (pour de faibles profondeurs) et ils permettent d'échantillonner de grandes profondeurs de neige. En revanche, la surface de prélèvement est assez faible puisque le diamètre du carottier n'excède généralement pas 10 cm. De plus, lors du carottage, il peut y avoir quelques pertes d'échantillons lorsque des morceaux de carotte ne remontent pas ou parce qu'une partie de la carotte est mise sous forme de copeaux pendant l'enfoncement du carottier. Cependant, ces pertes ne dépassent pas 30% et elles sont facilement corrigées pour la mesure du flux de ^{210}Pb , en mesurant la densité du manteau neigeux. Un carottier est fait d'un tube de quelques centimètres de diamètre

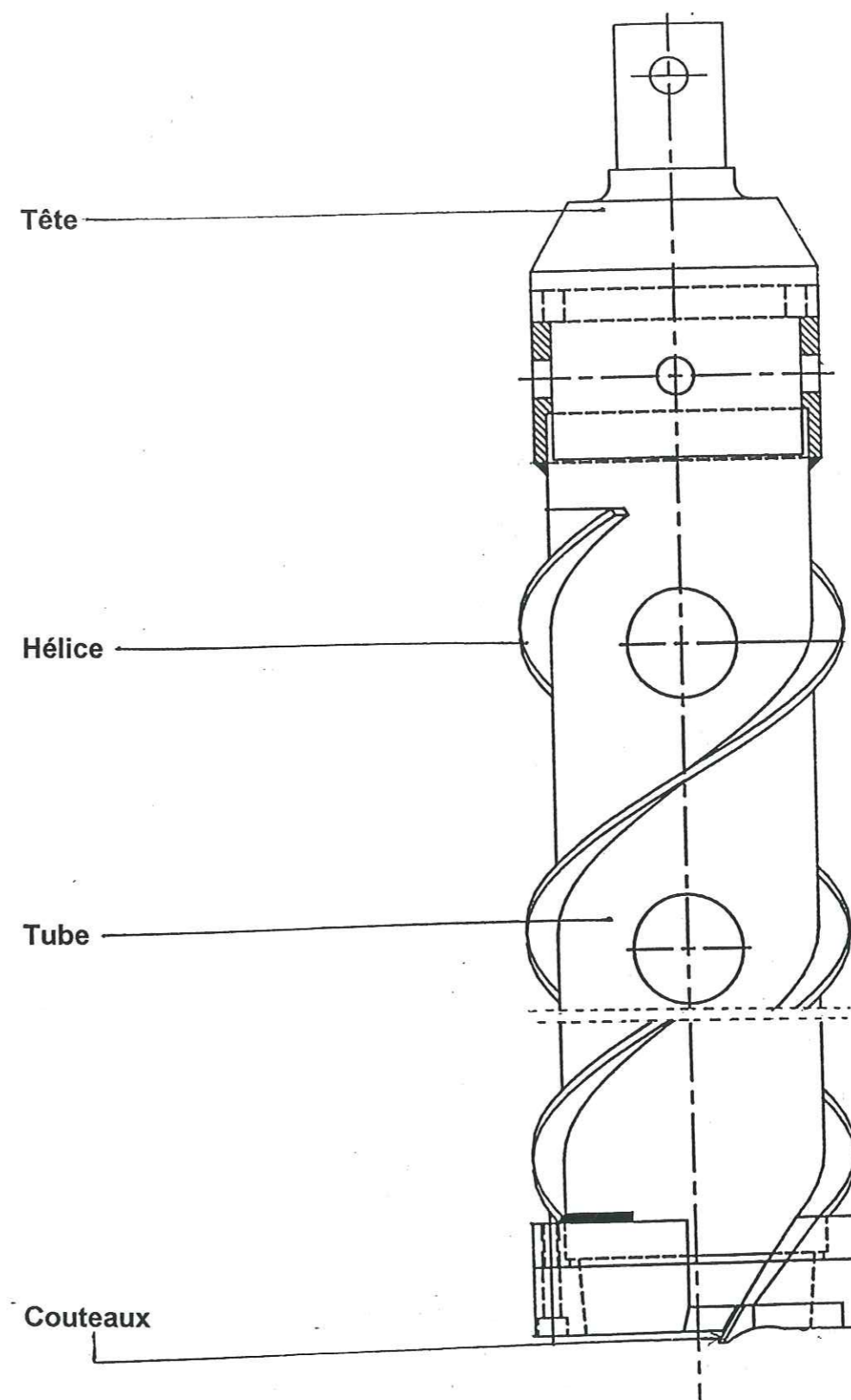


Figure II.1: Schéma du carottier manuel Sippre utilisé pour les prélèvements de neige superficielle (profondeur < 30 m).

assorti d'une hélice extérieure qui laisse remonter les copeaux de neige. Deux couteaux diamétralement opposés sont placés à l'extrémité inférieure du tube pour le découpage de la neige ou de la glace (Figure II.1). Des extracteurs sont parfois situés au-dessus des couteaux, à l'intérieur du tube, afin d'empêcher la carotte de se détacher du carottier. Pour les carottages superficiels (< 20 m de profondeur), on utilise le plus fréquemment des carottiers manuels assez courts (entre 50 et 200 cm). Par contre, les carottiers utilisés pour des carottages plus profonds sont munis d'un moteur intégré et d'une tête rotative et ils sont accrochés à un câble pour descendre et remonter.

Pour nos prélèvements, nous avons utilisé un carottier manuel en fibre de verre de 2 mètres de long et de 7.5 cm de diamètre. La profondeur de carottage n'a jamais dépassé 10 mètres. Pour chaque remontée de carottes, la profondeur du trou et la densité des carottes sont mesurées. Les carottes récoltées sont ensuite scellées dans des gaines en plastique et maintenues congelées jusqu'à leur acheminement au laboratoire. Le poids des échantillons est compris entre 5 et 15 kg de neige.

b - Filtration et comptage

Les carottes sont fondues au laboratoire puis pesées. La filtration se déroule de façon identique à la méthode de mesure par collecteurs artificiels. Pour les mêmes raisons que celles développées dans la méthode précédente, le comptage s'effectue par spectrométrie gamma. Les temps de comptage sont identiques (environ 24 h).

c - Mode de calcul du flux

Le mode de calcul décrit ici ne concerne que celui utilisé pour les mesures dans les couches d'hiver de neige. Les autres modes de calcul du flux sont décrits dans l'annexe 3.

L'activité totale de ^{210}Pb , A (Bq), des échantillons correspondant à la couche d'hiver nous permet de déduire l'activité spécifique moyenne dans la neige, C (Bq kg⁻¹), sur toute la carotte :

$$C = \frac{A}{m}$$

où m est la masse totale des échantillons mesurés. La mesure de la densité pour

chaque échantillon de neige, D (kg m⁻³), lors du prélèvement, permet de connaître l'accumulation massique de neige, P (kg m⁻²), pendant l'hiver:

$$P = \sum D_i d_i$$

où d_i (m) est la longueur de l'échantillon i de densité D_i.

Le flux, F (Bq m⁻² an⁻¹), est égal à :

$$F = \frac{PC}{\tau}$$

où τ est la fraction annuelle pendant laquelle la neige s'est déposée. La durée de dépôt de la couche d'hiver varie généralement entre 7 et 10 mois pour des altitudes comprises entre 2500 m et 4000 m dans les Alpes, ce qui correspond à une valeur de τ comprise entre 0.6 et 0.8. Il s'agit ici d'un flux approximatif puisque la valeur obtenue pour l'hiver est extrapolée sur l'année entière en considérant que le flux estival est identique.

1.3 Mesure du ^{210}Pb dans les sols

La mesure du flux atmosphérique dans les sols est une méthode complémentaire de celle dans la neige car elle permet d'obtenir des données aux basses et moyennes latitudes, et à toutes les altitudes. Cette méthode nécessite cependant, encore plus que pour la neige, un choix judicieux du site de prélèvement car un certain nombre de phénomènes est susceptible de perturber l'enregistrement du flux atmosphérique. En effet, le ^{210}Pb atmosphérique se dépose sur le sol et s'infiltré ensuite lentement par diffusion. On retrouve dans les sols du ^{210}Pb de deux origines différentes: le ^{210}Pb non supporté provenant du dépôt atmosphérique et le ^{210}Pb supporté issu du ^{226}Ra présent dans la matrice du sol. La mesure du flux s'effectue en mesurant, par unité de surface, la totalité du ^{210}Pb non supporté présent dans le sol. Dans ce cas, pour avoir une évaluation correcte du flux atmosphérique, il est nécessaire de prélever des sols non perturbés depuis un siècle (i.e. 5 périodes), laps de temps au-delà duquel on peut considérer que la quantité de ^{210}Pb non supporté est négligeable. De plus l'érosion ou

l'accumulation de ces sols doivent être négligeables sur le siècle car cela entraîne, comme pour la neige, une sous-estimation ou une surévaluation du flux atmosphérique.

Dans les sols, excepté en surface, le ^{210}Pb atmosphérique est déposé depuis assez longtemps pour être en équilibre radioactif avec le ^{210}Po , à la différence des deux cas précédents. Le ^{210}Pb déposé la dernière année, qui n'est pas en équilibre séculaire avec le ^{210}Po , est négligeable comparé à la totalité du ^{210}Pb non supporté présent dans le sol. On peut donc mesurer indirectement le ^{210}Pb , via son descendant, par spectrométrie alpha. Cette méthode nécessite une extraction physico-chimique pour isoler le ^{210}Po de la matrice du sol.

La mesure du ^{210}Pb dans les sols se décompose en quatre étapes:

- le prélèvement et l'échantillonnage,
- la préparation chimique,
- le comptage,
- le calcul du flux.

a - Prélèvement et échantillonnage

Excepté le choix du site qui est assez délicat, le mode de prélèvement des sols est relativement simple. Dans notre cas, nous utilisons des tubes biseautés en PVC d'environ 25 cm de long et de 41 mm de diamètre que nous enfonçons dans le sol. Ces tubes sont ensuite retirés à l'aide d'une pelle ou d'une pince et bouchés à chaque extrémité pour éviter des pertes ou des pollutions pendant le transport. L'échantillonnage peut se faire sur le terrain ou au laboratoire. Les tubes sont alors ouverts et les carottes découpées tous les 1 ou 2 cm selon la résolution voulue. Chaque échantillon est isolé dans une petite boîte ou un sachet en plastique.

b - Préparation chimique

Les échantillons de sols sont d'abord séchés dans une étuve à 60°C , température choisie pour ne pas détruire certains éléments organiques qui pourraient être étudiés ultérieurement. Après 10 jours de séchage, les échantillons sont pesés puis broyés afin d'obtenir une poudre homogène assez fine. La préparation chimique utilisée ici est dérivée de la méthode de *E. Häsanen* (1977). La spectrométrie alpha étant une méthode de détection sensible, il suffit d'une faible quantité d'échantillon pour le

comptage. Pour cela, on prélève environ 0,5 g de matière par échantillon, mesuré avec une précision de 1 mg, et mis dans des bechers en téflon pour la préparation chimique. A chaque échantillon est ajouté 50 μl de traceur représentant généralement une activité du même ordre de grandeur que l'échantillon lui-même. Le traceur que l'on utilise est le ^{208}Po (période radioactive: 2,93 ans) afin d'avoir le même comportement chimique. Les échantillons associés au traceur sont ensuite attaqués avec 3 ml d'eau régale concentrée. L'attaque s'effectue à chaud pendant 1 h 30 sur des plaques électriques. Au fur et à mesure de l'évaporation, de l'eau permutée est rajoutée afin que les échantillons ne sèchent pas. Le but de cette attaque chimique est de dissoudre tout le ^{210}Po issu du ^{210}Pb non supporté. Une partie du ^{210}Po contenu dans la matrice même de l'échantillon (issu du ^{210}Pb supporté) est cependant également dissoute. Lorsque la phase d'attaque est terminée, le ^{210}Po et le ^{208}Po dissous sont déposés par électrodéposition spontanée sur des disques d'argent. L'électrodéposition dure 2 h; elle s'effectue en présence d'acide ascorbique à 10% et de dichlorure d'hydrazinium en solution saturée qui limitent les électrodépositions parasites. Ces dépôts parasites auraient pour effet d'étaler les spectres, lors du comptage.

c - Le comptage

Le laboratoire est équipé de 5 spectromètres alpha (Camberra modèle 7401), munis de détecteurs à diodes silicium ayant une résolution de 18 keV pour ^{241}Am et un bruit de fond de 6 coups/jour entre 3 et 8 MeV. Les détecteurs sont placés dans des chambres à vide afin de minimiser l'absorption des particules alpha entre la source et le détecteur. Il s'agit ici d'un vide primaire à environ $4 \cdot 10^{-4}$ atm.

Les temps de comptage sont en moyenne de 24h, ce qui permet d'analyser 5 échantillons par jour. Les résultats du comptage donnent un spectre avec 2 pics distincts centrés à 5.10 et à 5.30 MeV qui correspondent respectivement au ^{208}Po et au ^{210}Po . Le rapport du nombre de coups obtenu pour chacun des deux pics permet d'obtenir l'activité du ^{210}Po à partir de celle, déjà connue, du traceur. Le ^{208}Po ayant le même comportement chimique que le ^{210}Po , cette méthode permet de s'affranchir, dans une certaine limite, des problèmes éventuels présents au cours de l'attaque (réadsorption des éléments dissous dans la matrice) ou de l'électrodéposition.

d - Mode de calcul du flux

Le ^{210}Po étant en équilibre séculaire avec le ^{210}Pb , son activité est identique. A l'issue du comptage, on obtient, pour chaque échantillon, l'activité spécifique de ^{210}Pb total, C_T (Bq kg^{-1}). Cependant, l'objectif est de connaître uniquement l'activité spécifique de ^{210}Pb non supporté, $C_{n.s.}$ (Bq kg^{-1}), qui se définit comme suit:

$$C_{n.s.} = C_T - C_{\text{sup}}$$

où C_{sup} est l'activité spécifique de ^{210}Pb supporté. Pour un sol homogène, on peut considérer que, à l'échelle du siècle, l'activité spécifique du ^{210}Pb supporté est constante en fonction de la profondeur en admettant que celui-ci soit proche de l'équilibre séculaire avec le ^{226}Ra , possédant ainsi une période apparente d'environ 1600 ans. Au-delà d'une certaine profondeur dans le sol, l'activité spécifique de ^{210}Pb non supporté, du fait de la décroissance radioactive, devient négligeable par rapport à l'activité spécifique du ^{210}Pb supporté et on peut écrire:

$$C_{\text{sup}} \approx C_T$$

Si m_i (g) est la masse de l'échantillon i , l'activité de ^{210}Pb non supporté par unité de surface, A (Bq m^{-2}), de l'échantillon i est:

$$A_i = \frac{m_i C_{n.s.}}{s}$$

où s est la surface de prélèvement (en m^2). Le flux, F ($\text{Bq m}^{-2} \text{an}^{-1}$), s'obtient par la relation:

$$F = \lambda \sum A_i$$

où λ (0.03114an^{-1}) est la constante radioactive du ^{210}Pb .

Le flux obtenu par cette méthode est moyenné sur un siècle. Il est donc impossible ici de connaître les variations saisonnières ou le flux correspondant à une période particulière. En revanche, cette méthode permet de s'affranchir des variations interannuelles qui, dans certains cas, peuvent être importantes. Il est, de plus, intéressant d'avoir une moyenne séculaire pour un élément dont le flux est censé rester constant sur cette période.

1.4 Mesure du ^{210}Pb dans les sédiments lacustres

Les flux de ^{210}Pb mesurés dans les sédiments lacustres sont différents des trois autres types de flux car il s'agit ici de l'enregistrement du flux à l'interface eau-sédiment et non plus du flux atmosphérique. Ces flux peuvent être comparables mais, parfois, des phénomènes internes aux régimes lacustres modifient la composante atmosphérique du flux de ^{210}Pb dans les sédiments.

Mise à part la méthode de prélèvement, la mesure du ^{210}Pb dans les sédiments s'effectue de façon rigoureusement identique à celle des sols. Nous parlerons donc uniquement de la méthode de prélèvement.

Prélèvement

Nous utilisons couramment deux méthodes pour le prélèvement de sédiments qui dépendent de la nature et de la profondeur du site étudié. Pour des sites peu profonds (profondeur $< 20 \text{m}$), les prélèvements se font en général manuellement par plongée. Un tube en plexiglass transparent de 40 cm de long est enfoncé dans le sédiment; il est alors fermé sur place aux deux extrémités. Cette méthode permet un contrôle visuel du site de prélèvement et minimise les phénomènes de mixage des sédiments superficiels lors de l'échantillonnage. La deuxième méthode est applicable pour tous les sites où le fonds sédimentaire n'est pas trop chaotique (zones rocheuses, végétation, etc...). Elle consiste à prélever une carotte de sédiment à l'aide d'un carottier à piston. Le carottier utilisé au laboratoire a été conçu de manière à minimiser les perturbations lors du prélèvement, et on peut considérer que seul le premier centimètre de sédiment est perturbé.

Quelle que soit la méthode utilisée, les carottes prélevées sont échantillonnées centimètre par centimètre. Les échantillons sont alors disposés séparément dans des boîtes ou des sachets plastiques.

2. Résultats expérimentaux

2.1 Mesure du flux atmosphérique de ^{210}Pb à Grenoble

Les mesures du flux de ^{210}Pb effectuées en France sont peu nombreuses. Les seules données actuellement disponibles proviennent de mesures en collecteurs artificiels faites à Paris, Bordeaux et sur le littoral méditerranéen (Etang de Vaccarès et Monaco). Les autres mesures effectuées dans les régions proches du Massif alpin proviennent de Suisse et d'Italie. Il semblait donc intéressant d'avoir une donnée à basse altitude, dans les Alpes françaises, d'une part pour combler partiellement le manque de données de flux en Europe, d'autre part pour avoir une mesure qui puisse se comparer avec les mesures effectuées dans la neige, à partir des couches d'hiver déposées sur les glaciers alpins, à haute altitude.

L'enregistrement des retombées atmosphériques en collecteur artificiel a débuté en novembre 1994 et la dernière mesure récoltée correspond au mois d'octobre 1996 (Table II.1). Cela permet d'avoir une valeur annuelle sur 2 ans et deux cycles saisonniers pour deux années aux conditions météorologiques différentes. Le flux annuel moyen obtenu ($115 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$) est proche d'autres valeurs obtenues en France ($109 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ à Paris; $110 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ à Monaco) et il est légèrement inférieur aux flux obtenus en Suisse ($146 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$, en moyenne). Il est par contre deux fois plus faible que le flux mesuré à Ispra, Italie ($224 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$), de l'autre côté des Alpes, à la même latitude. On peut, en revanche, observer un cycle saisonnier semblable entre les deux sites (Figure II.2).

Le flux de dépôt de ^{210}Pb est influencé par les précipitations bien que l'influence de l'origine des masses d'air reste primordiale. Etant donné l'importante variabilité géographique des quantités de précipitations dans une zone de relief comme les Alpes, on peut s'attendre à des variations locales du flux atmosphérique. De même, les tendances saisonnières ne sont généralement pas aussi nettes pour le flux atmosphérique que pour les concentrations dans l'air de surface.

A Grenoble, les deux périodes mesurées (novembre 94-octobre 95 et novembre 95-octobre 96) sont très différentes du point de vue de la répartition saisonnière des

précipitations.

Table II.1: Résultats des mesures de flux de dépôt de ^{210}Pb à Grenoble de novembre 1994 à octobre 1996

a) Année 1994-95

Période	flux de ^{210}Pb F (Bq.m^{-2})	précipitation P (mm)	Rapport F/P (Bq.kg^{-1})	Nb de jours de mesure
8/11/94 au 8/12/94	6.25	71	0.088	30
8/12/94 au 9/01/95	9.0	62	0.145	32
10/01/95 au 9/02/95	9.7 ± 1.4	203	0.048	30
9/02/95 au 10/03/95	5.9 ± 2.3	134	0.044	29
10/03/95 au 6/04/95	2.3 ± 0.4	49	0.047	27
6/04/95 au 09/05/95	5.6 ± 0.8	87	0.064	33
9/05/95 au 8/06/95	25.3 ± 3.0	141	0.179	30
8/06/95 au 10/07/95	4.0 ± 1.0	33	0.121	32
10/07/95 au 9/08/95	11.0 ± 0.8	36	0.306	30
9/08/95 au 08/09/95	7.6 ± 1.3	65	0.117	30
8/09/95 au 9/10/95	22.7 ± 2.2	134	0.170	31
9/10/95 au 6/11/95	5.8 ± 1.0	21	0.279	27
Nov.94-Oct.95	115 ± 16	1036	0.111	365

b) Année 1995-96

Période	flux de ^{210}Pb F (Bq.m ⁻²)	précipitation P (mm)	Rapport F/P (Bq.kg ⁻¹)	Nb de jours de mesure
06/11/95 au 06/12/95	5.6 ± 1.0	64	0.087	30
06/12/95 au 05/01/96	N.A.	113	N.A.	30
05/01/96 au 05/02/96	3.50 ± 0.64	32	0.110	31
05/02/96 au 06/03/96	5.67 ± 0.96	41	0.137	30
06/03/96 au 05/04/96	7.06 ± 0.96	31	0.225	30
05/04/96 au 06/05/96	9.64 ± 1.19	83	0.116	31
06/05/96 au 05/06/96	17.4 ± 1.8	118	0.147	30
05/06/96 au 05/07/96	8.73 ± 1.17	64	0.136	30
05/07/96 au 06/08/96	12.8 ± 1.5	103	0.124	32
06/08/96 au 05/09/96	27.2 ± 2.2	122	0.223	30
05/09/96 au 03/10/96	< 1.3	37	< 0.035	28
03/10/96 au 05/11/96	4.73 ± 0.72	46	0.103	33
Nov.95-Oct.96	115* ± 19*	854	0.135	365

* Avec un flux estimé de $11.3 \pm 5.6 \text{ Bq.m}^{-2}$ pour la période du 06/12/95 au 05/01/96. Ce flux a été estimé en considérant un rapport F/P égal à 0.100 Bq kg^{-1} , valeur intermédiaire entre celle de la période précédente (novembre 95) et celle de la période suivante (janvier 96).

La première période est caractérisée par un hiver très pluvieux (399 mm d'eau cumulée entre le 08.12.1994 et le 10.03.1995) et un été relativement sec (134 mm d'eau cumulée le 08.06.1995 et le 08.09.1995) tandis que la période suivante a vu un hiver sec (186 mm d'eau cumulée entre le 06.12.1995 et le 06.03.1996) et un été

pluvieux (289 mm d'eau cumulée entre le 05.06.1996 et le 05.09.1996). On retrouve cependant des flux rigoureusement identiques pour ces deux périodes. De plus, malgré une répartition différente des précipitations entre les deux périodes de mesure, la répartition du flux reste assez semblable. On observe deux pics de dépôt, au printemps et en fin d'été. Ces pics sont toujours en corrélation avec des pics de précipitation. Les précipitations d'automne et d'hiver n'occasionnent pas de dépôt important de ^{210}Pb car elles sont généralement issues de perturbations provenant de l'Océan Atlantique qui correspondent à des masses d'air océaniques pauvres en ^{210}Pb . Au milieu du printemps et en été, les vents d'ouest sont beaucoup moins dominants et les arrivées de masses d'air continentales en provenance d'Afrique du Nord et d'Eurasie sont plus fréquentes. En conséquence, la quantité de ^{210}Pb dans l'atmosphère (haute et moyenne troposphère) est plus importante. Ainsi les pics de précipitation présents pendant cette période impliquent-ils des dépôts importants de ^{210}Pb (Figure II.2).

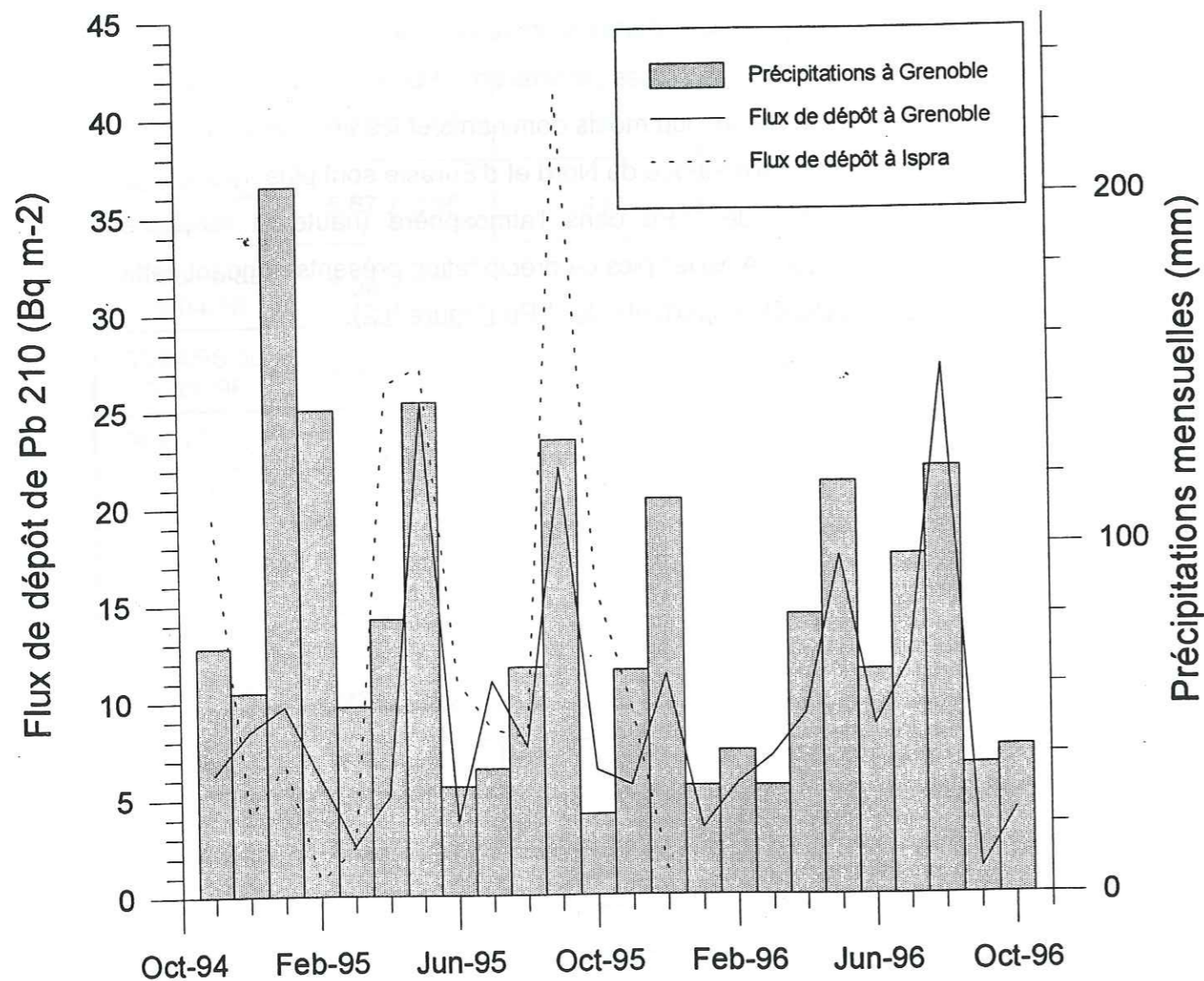


Figure II.2: Distribution mensuelle du flux atmosphérique de ^{210}Pb (en Bq m^{-2} mois $^{-1}$) et des précipitations (mm) à Grenoble de novembre 1994 à octobre 1996. Le flux de dépôt mesuré à Ispra, Italie, est également représenté de novembre 1994 à décembre 1995 (F. D'Alberti, communication personnelle).

2.2 Mesure du flux atmosphérique de ^{210}Pb sur l'Altiplano bolivien

Parmi les résultats rassemblés dans la base de données, aucune valeur de flux de dépôt de ^{210}Pb n'était disponible en Amérique du Sud. La possibilité nous a été offerte de combler cette lacune avec l'installation d'un dispositif similaire à celui installé à Grenoble. Le site de mesure est localisé sur l'Altiplano bolivien, à 4750 m d'altitude, à quelques kilomètres au nord de La Paz, au pied du Huayna Potosi (16.4°S , 68.1°W). Le collecteur a été installé sur le toit d'une cabane, à 3 m au-dessus du sol, à côté d'un lac de montagne. Du fait de la difficulté d'accès du site, la récolte des eaux collectées ne s'est pas effectuée tous les 30 jours, comme à Grenoble, mais à des intervalles de temps irréguliers allant de 42 jours pendant la saison humide à 6 mois pendant la saison sèche. Parallèlement à la mesure du flux de ^{210}Pb , un pluviomètre installé par l'ORSTOM, en place à proximité du collecteur, mesure automatiquement les quantités journalières de précipitations.

Table II.2: Résultats des mesures de flux de dépôt de ^{210}Pb en Bolivie de juin 1995 à mai 1996

Période	Flux de ^{210}Pb F (Bq.m^{-2})	Précipitation P (mm)	Rapport F/P (Bq.kg^{-1})	Nb de jours de mesure
03/06/95 au 01/12/95	16.4 ± 1.9	142	0.116	180
01/12/95 au 12/01/96	18.8 ± 1.8	132	0.143	42
12/01/96 au 08/03/96	18.5 ± 1.8	309	0.060	56
08/03/96 au 15/05/96	21.5 ± 2.2	157	0.137	68
Année 95-96	75 ± 8	740	0.101	346

Le flux annuel de ^{210}Pb mesuré entre début juin 1995 et fin mai 1996 est de $75 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ pour une quantité de précipitation égale à 739 mm an^{-1} (Table II.2). Cette valeur de flux est du même ordre que celle enregistrée à Darwin ($95 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$), situé en Australie à la même latitude (12°S), bien que les précipitations annuelles sur

l'Altiplano soient deux fois plus faibles. On peut penser que l'altitude élevée de ce site influence fortement le flux de dépôt, comme nous le verrons pour la plupart des hauts sommets sur lesquels des mesures sont disponibles. Cependant, ici, la mesure est effectuée sur un immense plateau (l'Altiplano) et se situe dans la couche limite de l'atmosphère, contrairement aux hauts sommets, généralement situés dans la troposphère libre. On retrouve donc des conditions analogues aux basses altitudes concernant les aérosols même si les conditions de température et de pression sont différentes. Cette hypothèse est appuyée par le fait que la concentration moyenne de ^{210}Pb dans l'air de surface à Chacaltaya (0.36 mBq m^{-3}), très proche de Huayna Potosi, est semblable à celles mesurées sur la côte ouest du continent, au niveau de la mer: 0.33 mBq m^{-3} à Lima (Pérou) et 0.35 mBq m^{-3} à Antofagasta (Chili).

La répartition saisonnière du flux atmosphérique semble suivre le cycle de précipitation avec un dépôt de ^{210}Pb important et relativement constant pendant la saison des pluies: 59 Bq m^{-2} soit 78% du dépôt annuel entre décembre et mai pour 597 mm de précipitation, et un faible dépôt pendant la saison sèche: 16 Bq m^{-2} soit 22% du dépôt annuel entre juin et novembre pour 142 mm de pluie. En réalité, cette période de mesure (juin 95-novembre 95) inclut 2 mois de la saison des pluies (octobre et novembre) durant lesquels se concentre la quasi totalité des précipitations (106 mm d'eau). Ainsi, si le flux de dépôt mensuel de ^{210}Pb pendant ces 2 mois est semblable à celui des autres mois de la saison des pluies: en moyenne $10 \text{ Bq m}^{-2} \text{ mois}^{-1}$, peut-on considérer que le dépôt de ^{210}Pb pendant la saison sèche est négligeable comparé au flux annuel. Cette illustration démontre la faible composante du dépôt sec comparé au lessivage des aérosols atmosphériques par les précipitations dans cette région. Le rapport annuel moyen flux/précipitation (101 mBq kg^{-1}) est à peu près identique à celui enregistré à Grenoble et supérieur à ceux observés en Australie. Ce rapport élevé indique une influence continentale importante si on considère que l'hémisphère sud est globalement plus pauvre en ^{210}Pb atmosphérique que l'hémisphère nord. Cela s'explique par le fait que le site de Huayna Potosi est situé dans la partie occidentale du continent sud américain, à une latitude où les vents d'est (alizés) sont dominants. La relative abondance des précipitations sur ce site est due à la proximité de la grande forêt tropicale amazonienne située à moins de 100 km vers l'est. C'est de cette zone que proviennent les masses d'air humides responsables des précipitations pendant la saison des pluies. Ces masses d'air originaires de l'Océan Atlantique ont traversé tout

le continent et ont pu ainsi s'enrichir en ^{210}Pb avant d'atteindre la Cordillère Orientale.

2.3 Mesure du ^{210}Pb dans les glaciers alpins

Les glaciers alpins situés au-dessous de 4000 m sont des glaciers tempérés avec une fusion estivale plus ou moins importante selon l'altitude et l'exposition. Pour avoir des mesures correctes du ^{210}Pb dans la neige, nous avons prélevé uniquement les couches déposées au cours de l'hiver (de septembre à avril, mai ou juin). Ces couches n'ont subi que des fusions superficielles sans percolations notables. On peut donc espérer que la totalité du ^{210}Pb déposé pendant l'hiver soit présente dans les couches de neige étudiées. Dans ces couches de neige, l'activité de ^{210}Pb étant assez faible (entre 0.02 et 0.1 Bq kg^{-1}), il est préférable de mesurer des échantillons de masse importante ($> 5 \text{ kg}$). En conséquence, on rassemble généralement tous les échantillons de la carotte prélevée. Il peut certes être intéressant de mesurer les échantillons séparément pour pouvoir avoir un aperçu des variations saisonnières du ^{210}Pb . Cette méthode a été utilisée pour la mesure de la carotte prélevée au Dôme du Goûter, qui correspond à la dernière couche annuelle de neige, et dont le poids total est suffisamment important pour que celle-ci soit subdivisée en plusieurs échantillons.

Les mesures du flux de ^{210}Pb ont été effectuées dans les Alpes du Nord, dans deux massifs différents et sur quatre glaciers, entre 2400 et 4300 m d'altitude. La plupart des données provient du Massif du Mont-Blanc où les mesures portent sur deux hivers consécutifs (hivers 94-95 et 95-96) (Table II.3).

Pendant l'hiver 1994-95, les Alpes du Nord et, en particulier, le Massif du Mont-Blanc, ont subi d'abondantes précipitations avec des couches de neige pouvant atteindre 10 mètres d'épaisseur au printemps. Il a donc paru intéressant de prélever ces importantes couches d'hiver pour la mesure des retombées atmosphériques de radionucléides. Au printemps 1995, nous avons prélevé 4 carottes dans le cirque d'Argentière, à des altitudes s'échelonnant entre 2400 m et 3300 m, et une carotte au Dôme du Goûter à 4300 m. A 2400 m, le manteau neigeux étant moins épais, nous avons récolté deux carottes pour la mesure du flux.

Dans le cirque d'Argentière, les dépôts hivernaux de ^{210}Pb sont assez variables (de 34 Bq m^{-2} à 81 Bq m^{-2}). Il en va de même pour l'accumulation qui passe de 1130

mm équivalent eau à 2400 m à 3250 mm équivalent eau à 2900 m. En revanche, les concentrations spécifiques dans la neige sont homogènes mais relativement faibles: entre 0.017 Bq kg⁻¹ et 0.025 Bq kg⁻¹. Ces faibles valeurs indiquent que les masses d'air qui ont apporté les précipitations sur le Massif étaient très pauvres en ²¹⁰Pb. Les plus importantes chutes de neige de cet hiver ont eu lieu aux mois de janvier et février 1995. Elles étaient issues de perturbations d'origine Nord-Atlantique qui n'ont cessé de défilé sur l'Europe Occidentale par le nord-ouest pendant cette période. Ces perturbations correspondent à des masses d'air froides et très humides d'origine océanique qui n'ont pas le temps de s'alimenter en éléments terrigènes comme le ²¹⁰Pb. Ainsi ce type de précipitations ne dépose-t-il pas une grande quantité de ²¹⁰Pb mais lessive, en plus grande quantité, d'autres éléments comme le ⁷Be d'origine stratosphérique. Cette dernière remarque est confirmée par l'observation du rapport relatif ²¹⁰Pb/⁷Be, qui est particulièrement faible pour le mois de janvier 1995 dans les précipitations à Grenoble: 0.03 en janvier 1995 contre 0.45 en janvier 1996, indiquant une masse d'air, soit appauvrie en ²¹⁰Pb, soit enrichie en ⁷Be.

Table II.3: Mesure du ²¹⁰Pb dans les couches d'hiver de neige dans les Alpes

Lieu de carottage (glacier)	Date de prélèvement	Alt. ^a m	Accumulation		C _{pb210} ^b Bq kg ⁻¹	F _{pb210} ^c Bq m ⁻²
			neige(m)	eau(mm)		
Argentière 2400	05/05/95	2400	3.00	1470	0.023	34
Argentière 2900	20/06/95	2900	6.50	3250	0.025	81
Améthystes	20/06/95	3300	5.00	2470	0.017	42
Argentière 2900	22/05/96	2900	4.25	1870	0.048	89
Col du Midi	14/05/96	3500	4.55	1930	0.043	82
Dôme du Goûter*	22/06/95	4300	8.00	3400	0.078	260
Saint-Sorlin 1	17/04/96	2900	2.70	1070	0.058	63
Saint-Sorlin 2	17/04/96	3085	3.15	1290	0.066	85

* Mesure correspondant à la dernière couche de neige annuelle (juin 94 - juin 95)

^a Altitude du site de prélèvement

^b Activité spécifique de ²¹⁰Pb dans la neige

^c Dépôt de ²¹⁰Pb dans la couche d'hiver de neige

Si les données mesurées dans le cirque d'Argentière sont homogènes et s'expliquent aisément, il n'en va pas de même des données mesurées au Dôme du Goûter. A cette altitude (4300 m), les glaciers alpins ne subissent pratiquement pas de fusion estivale et les précipitations sont sous forme de neige toute l'année. A partir de repères sur les balises, nous avons prélevé une carotte correspondant à un an d'accumulation (juin 1994-juin 1995). A l'endroit du carottage, l'accumulation est très importante (8 m de neige, équivalent à 3.4 m d'eau). Cette forte accumulation n'est certainement pas causée uniquement par les précipitations; elle l'est aussi par la redistribution de la neige par le vent, ce qui provoque une surestimation de flux de ²¹⁰Pb (260 Bq m⁻² an⁻¹). Cependant, il apparaît ici que l'activité spécifique moyenne (0.078 Bq kg⁻¹) dans la neige est plus de trois fois supérieure à celle observée dans le cirque d'Argentière. Certes, la carotte mesurée au Dôme inclut la couche de neige d'été dans laquelle le ²¹⁰Pb est plus abondant (0.169 Bq kg⁻¹), du fait, en partie, des poussières déposées, mais les activités spécifiques observées dans les autres couches restent toutefois plus importantes que dans le reste du massif. De plus, l'activité spécifique moyenne du ²¹⁰Pb est identique à celle mesurée en surface au col Gnifetti (4450 m) dans le Massif du Mont-Rose (0.067 Bq kg⁻¹, Gaggeler *et al.*, 1983). Il semble donc que, dans les Alpes, le ²¹⁰Pb, qui est pourtant d'origine terrigène, se concentre plus abondamment sur les reliefs situés au-dessus de 4000 m. Il est difficile, à partir de ces données, d'en expliquer les causes, celles-ci étant certainement relatives à la circulation atmosphérique.

Au cours de l'hiver 1995-96, les précipitations ont été beaucoup plus faibles que l'année précédente dans les Alpes du Nord. A titre indicatif, les mois de janvier, février et mars 1996 réunis ont subi deux fois moins de précipitations que le seul mois de janvier 1995 à Grenoble. Ces faibles précipitations sont principalement dues à un régime dominant de perturbations originaires de l'Atlantique qui défilent sur l'Europe par le sud-ouest en passant par la péninsule Ibérique et qui alimentent la France par le sud. On a pu ainsi observer un phénomène inverse par rapport à celui de l'année précédente avec de fortes chutes de neige sur les Alpes du Sud et un hiver "sec" dans le nord. Il est cependant intéressant de constater que le flux de ²¹⁰Pb mesuré à 2900 m sur le glacier d'Argentière est identique à celui de l'hiver 94-95 pour une accumulation deux fois inférieure. Cette observation implique une activité spécifique dans la neige deux fois plus élevée. On peut l'expliquer par le fait que les perturbations

arrivant par le sud de l'Europe fassent remonter des masses d'air d'origine nord-africaine riches en ^{210}Pb . Il est aussi possible que ces masses d'air océaniques s'alimentent en ^{210}Pb au-dessus de la péninsule Ibérique et de la Provence. Une autre hypothèse est que la plus grande régularité des précipitations au cours de l'hiver 95-96 ait lessivé tout aussi efficacement le ^{210}Pb atmosphérique, malgré le fait que les quantités d'eau impliquées soient moindres que l'hiver précédent.

Un carottage a aussi été effectué, ce printemps 1996, au col du Midi (3500m), à une distance approximativement intermédiaire entre le Cirque d'Argentière et le Dôme du Goûter. Les mesures montrent un flux et une concentration en ^{210}Pb identiques aux résultats de la mesure effectuée sur le Glacier d'Argentière indiquant le même type de dépôt atmosphérique.

Outre le massif du Mont-Blanc, nous avons prélevé deux carottes sur le glacier de Saint-Sorlin, près du pic de l'Etendard, dans le massif des Grandes Rousses situé dans la partie méridionale des Alpes du Nord. L'accumulation observée est plus faible mais les flux mesurés sont identiques indiquant une concentration spécifique en ^{210}Pb dans la neige plus importante (0.06 Bq kg^{-1}).

2.4 Mesure du ^{210}Pb dans les glaciers du Svalbard

Le Svalbard est un archipel composé de deux îles principales : le Spitzberg et le Nordaustlandet. Ces îles font partie des terres les plus septentrionales du globe (80°N) et sont situées à 1000 km au nord de l'Europe. La plupart des données de flux de ^{210}Pb disponibles dans la base de données pour les régions arctiques provient de la calotte groenlandaise. Il est donc utile de compléter ces données par des mesures de ^{210}Pb dans les glaciers du Svalbard. Cependant, bien que situé à très haute latitude, le Svalbard est soumis à un climat polaire tempéré du fait de l'influence du courant de dérive Nord-Atlantique dans cette partie de l'Océan Arctique. Ainsi, contrairement à la calotte froide du Groenland, les glaciers du Svalbard, situés à basse altitude ($< 1000\text{m}$), subissent une fusion estivale importante et sont considérés comme des glaciers tempérés.

Les carottes ont été prélevées sur 10 glaciers répartis du nord au sud de l'île du Spitzberg (Figure II.3).

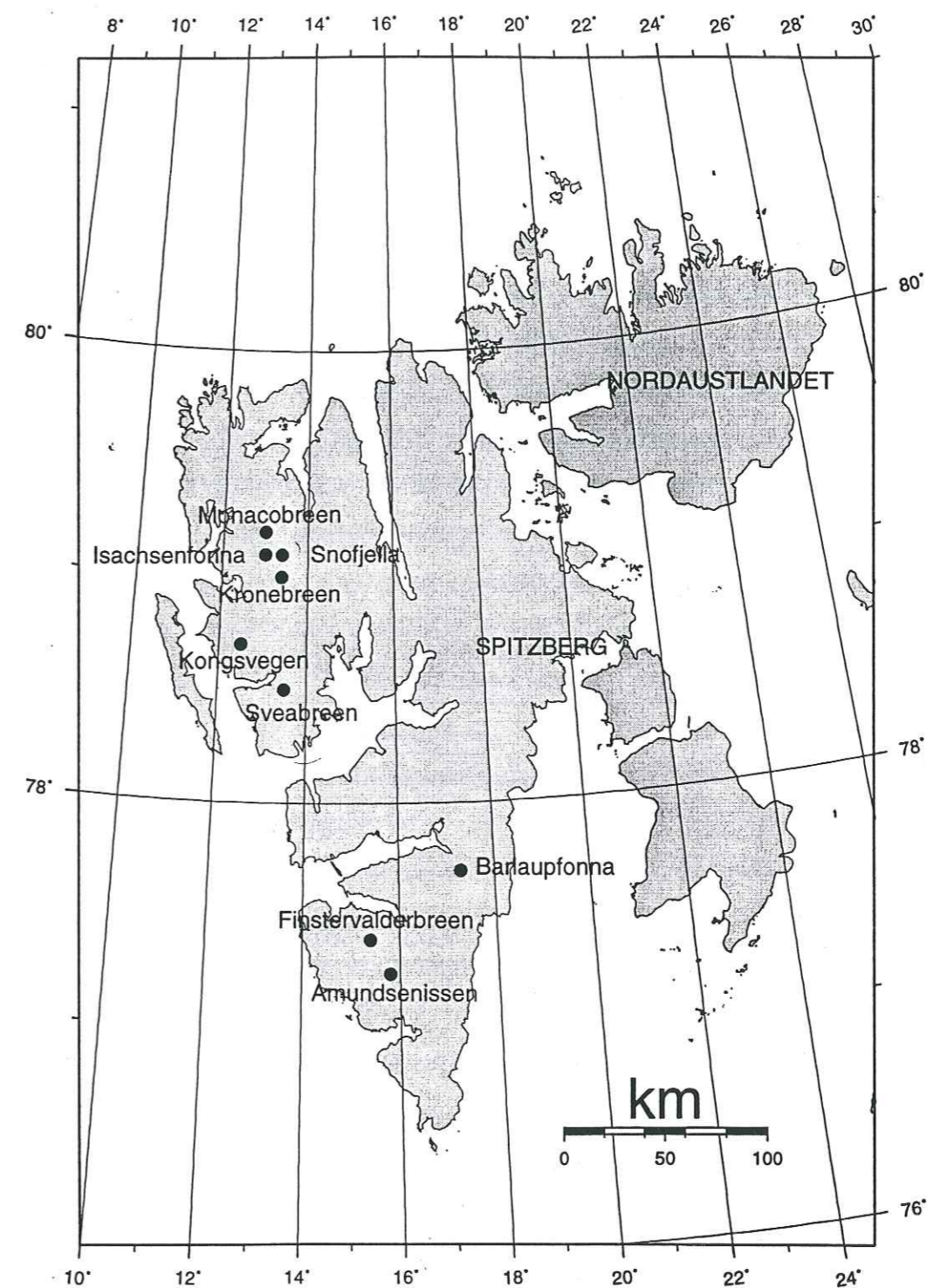


Figure II.3: Répartition géographique des glaciers du Svalbard dans lesquels les couches d'hiver ont été prélevées.

Un certain nombre de couches d'hiver a été rassemblé afin d'avoir des mesures plus précises et des valeurs plus consistantes. Les données montrent que, même sur une petite surface comme le Spitzberg, le ^{210}Pb est inégalement réparti (Table II.4). De plus, le flux comme l'activité spécifique montrent des variations interannuelles très marquées. Cette observation est particulièrement visible dans les mesures effectuées au Finstervalderbreen où le flux varie d'un facteur 2 entre les hivers 93-94 et 94-95. Ces écarts sont reliés aux variations importantes des précipitations entre ces deux hivers. La même tendance est observée au Kongsvegen, mais pour des raisons différentes, car si les précipitations restent identiques entre les deux hivers, l'activité spécifique dans la neige varie énormément. Cette variation interannuelle de l'activité spécifique est difficile à interpréter; il est possible que l'approvisionnement du Svalbard en ^{210}Pb varie fortement d'une année à l'autre du fait de la provenance de masses d'air d'origines très différentes. Ces variations interannuelles du flux rendent difficiles une interprétation des variations géographiques.

Table II.4: Mesure du ^{210}Pb dans les couches d'hiver de neige au Svalbard

Lieu de carottage (glacier)	Date de prélèvement	n Nb de carotte	Accumulation		$C_{\text{pb}210}^b$ Bq kg $^{-1}$	$F_{\text{pb}210}^c$ Bq m $^{-2}$
			neige(m)	eau(mm)		
Isach.-Snof.-Mon. ¹	avril 1992	7	-	900	0.022	20
Kronebreen	avril 1996	9	1.77	695	0.097	68
Kongsvegen	avril 1996	2	2.03	815	0.100	82
Kongsv.-Sveabr. ²	avril 1990	5	-	754	0.041	31
Finstervalderbreen	avril 1994	6	-	1290	0.049	63
Finstervalderbreen	avril 1995	7	-	510	0.057	29
Barlaupfonna	avril 1991	2	-	1350	0.074	100
Amundsenissen	avril 1991	4	-	1685	0.030	51

¹ mesures groupant les couches d'hiver des glaciers Isachsenfonna, Snofjella et Monacobreen

² mesures groupant les couches d'hiver des glaciers Kongsvegen et Sveabreen

^a Altitude du site de prélèvement

^b Activité spécifique de ^{210}Pb dans la neige

^c Dépôt de ^{210}Pb dans la couche d'hiver de neige

Cependant, en moyenne, les flux mesurés au Svalbard apparaissent bien

supérieurs à ceux observés au Groenland, d'une part parce que les précipitations y sont plus abondantes, d'autre part parce que les masses d'air qui atteignent l'archipel sont certainement plus riches en ^{210}Pb . La principale source de ^{210}Pb est constituée par le vaste continent Eurasien dont les masses d'air alimentent le Svalbard par le sud-est. En particulier, en hiver, lorsque le front polaire descend jusqu'aux moyennes latitudes, des masses d'air continentales riches en ^{210}Pb s'humidifient au-dessus de l'Océan Arctique et alimentent abondamment le Svalbard par le sud-est. Les glaciers du sud de l'île (Barlaupfonna, Amundsenissen) reçoivent ainsi d'importantes quantités de neige, plus enrichies en ^{210}Pb sur la façade est (Barlaupfonna) où le flux est équivalent à celui observé aux latitudes tempérées. En comparaison, les précipitations sont moins abondantes et plus appauvries en ^{210}Pb sur les glaciers du nord-est, bien que les données des couches d'hiver de l'année 95-96 montrent des concentrations spécifiques importantes (Kronebreen, Kongsvegen). Malheureusement, il n'existe pas de mesure sur les glaciers du sud, cette année là, pour établir une comparaison.

En conclusion, bien que situé à très haute latitude, le Svalbard est soumis à d'importantes retombées de ^{210}Pb du fait de sa position particulière :

- proximité d'un grand continent (Eurasie) qui fournit l'approvisionnement en ^{210}Pb et dont l'influence se fait particulièrement sentir en hiver lorsque le front polaire arctique descend jusqu'aux moyennes latitudes,
- influence de la dérive nord-atlantique sur le climat local (températures modérées, précipitations abondantes).

2.5 Mesure du ^{210}Pb dans différents sols de la planète

La mesure du flux atmosphérique de ^{210}Pb par l'intermédiaire des sols est un moyen pratique comparé aux précédents. D'une part la méthode de prélèvement est rapide, d'autre part les sites sont souvent faciles d'accès contrairement aux mesures dans la neige. La difficulté majeure est la sélection judicieuse des sols qui ne doivent pas être perturbés ni être soumis à des érosions ou à des accumulations importantes.

Plusieurs sols provenant de sites très divers ont été analysés, ce qui nous a permis d'avoir des données dans des régions vierges de mesures. Ainsi les mesures dans les sols ont-elles permis l'accès à des données dans des zones tropicales comme

l'Afrique (Cameroun) et l'Asie (Népal) et dans des régions plus voisines (Bulgarie, Alpes du sud)(Table II.5). A l'exception de la mesure effectuée au Népal, l'évaluation du flux de ^{210}Pb a toujours été établie à partir de 3 carottes par site afin de vérifier la reproductibilité des mesures. Les profils de ^{210}Pb montrent généralement une décroissance régulière résultant d'une diffusion homogène dans les sols (Figure II.4). Certaines irrégularités apparaissent parfois du fait de transferts certainement générés par l'activité biologique (végétation, vie animale). Les activités du ^{210}Pb supporté sont très variables. Dans notre étude, les plus faibles concentrations de ^{210}Pb supporté mesurées (0.008 Bq kg^{-1}) correspondent à des sols organiques situés dans un environnement calcaire (Queyras, France)(Figure II.4a), tandis que les plus fortes activités spécifiques (0.160 Bq kg^{-1}) ont été mesurées dans des sols situés dans un environnement granitique avec de fortes teneurs en ^{238}U (Pic du Moussala, Bulgarie)(Figure II.4b).

Dans les trois sols mesurés au Cameroun, sur les bord du lac Barombi Mbo, deux sols ont enregistré des valeurs de flux identiques tandis que la mesure du troisième sol indique une valeur presque 15 fois inférieure aux deux autres. Ce dernier sol est inondé lorsque le lac est en crue, il n'est donc pas surprenant que la valeur du flux atmosphérique soit biaisée à cet endroit car les eaux entraînent une partie des éléments déposés sur le sol. La seule valeur de flux de ^{210}Pb disponible dans cette région du globe a été mesurée dans les précipitations à Lagos, Nigéria ($285 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$). Cependant, celle-ci correspond seulement à 6 mois de mesure dans une région où les précipitations sont très inégalement réparties dans l'année. Elle est toutefois identique au flux obtenu dans les deux sols prélevés au Cameroun. La forte valeur de flux obtenue au Cameroun ($278 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$) peut être la conséquence de deux phénomènes: (1) les précipitations sont relativement abondantes à l'Equateur et (2), comme le montre une étude du cycle saisonnier de la concentration en ^{210}Pb dans l'air de surface en Côte d'Ivoire (Nho et al., 1996), l'influence des masses d'air sahariennes, relativement riches en ^{210}Pb , constitue une bonne source d'approvisionnement.

Au Népal, il n'existe qu'une valeur issue d'un seul prélèvement de sol. Bien que mesurée à haute altitude (3660 m), cette valeur ($284 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$) est assez semblable

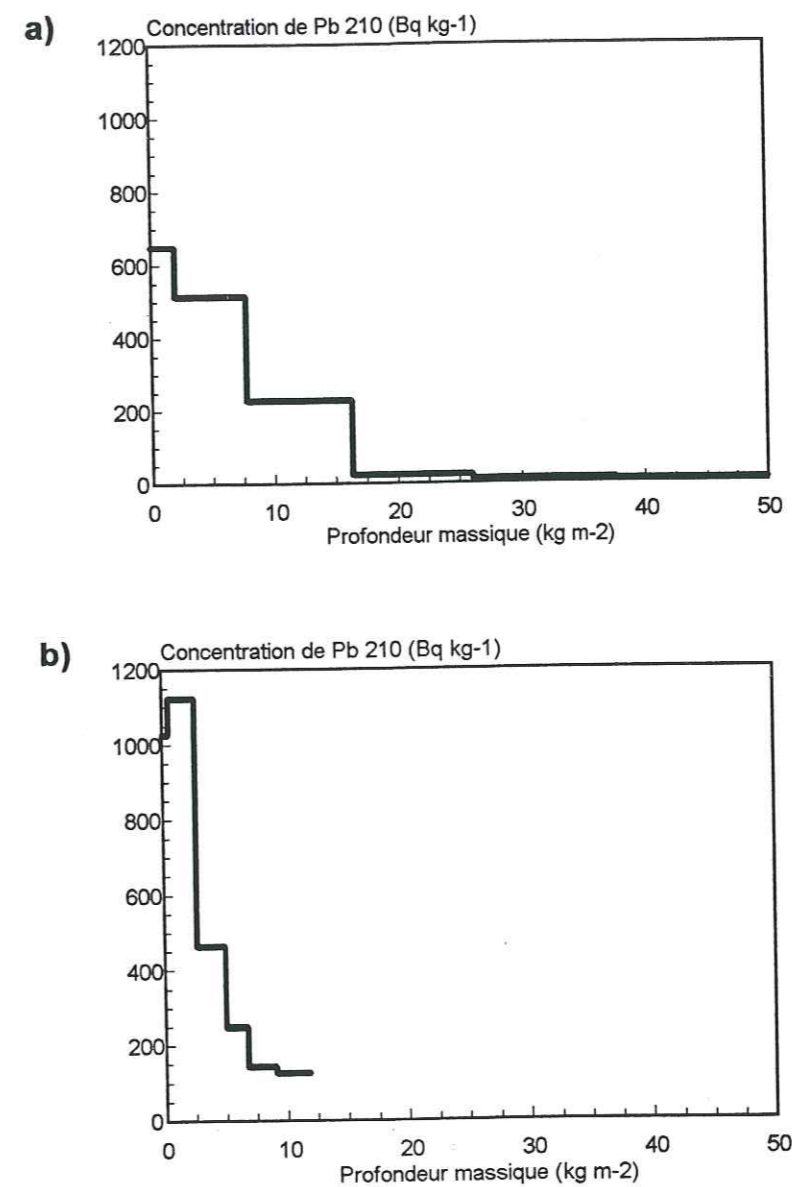


Figure II.4: Profils de ^{210}Pb total (en Bq kg^{-1}) dans les sols: (a) sol organique dans un environnement calcaire (Queyras, France) et (b) sol organique dans un environnement granitique (Pic du Moussala, Bulgarie); La profondeur massique représente la masse de matière sèche par unité de surface (en kg m^{-2}).

au flux atmosphérique de ^{210}Pb mesuré dans des collecteurs artificiels à Gangtok, en Inde ($230 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$), situé à la même latitude, sur les rebords de la chaîne himalayenne et avec un climat similaire (fortes moussons). Cependant, bien que le profil mesuré dans le sol ne montre pas de perturbations majeures, des prélèvements complémentaires sont nécessaires pour confirmer cette valeur.

Table II.5: Flux de ^{210}Pb mesurés dans différents sols de la planète

Site de mesure	Localisation (latitude, longitude)	Altitude (m)	Flux de ^{210}Pb ($\text{Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$)
Caméroun: lac Barombi Mbo	4.7°N, 9.3°E		
BM1		301	19
BM4		310	279
BM7		320	277
Népal: Singla Pass	28.2°N, 85.2°E	3660	284
Bulgarie: Massif de Rila	42.1°N, 23.5°E		
Carotte AB		2710	132
Carotte CD		2585	75
Carotte EF		2560	104
Carotte GH		2390	122
France: Massif du Queyras	44.7°N, 6.9°E	2550	
QuA			187
QuB			153
QuC			150

En Bulgarie, 4 carottes de sol ont été prélevées dans le massif de Rila (Annexe 1) dans une même vallée mais à des altitudes différentes. Les quatre sols donnent des résultats variant entre 75 et 132 $\text{Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$. La valeur moyenne ($108 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$) correspond assez bien aux autres valeurs d'Europe continentale. Les précipitations assez abondantes sur ces reliefs (1050 mm/an au sommet du Moussala) ainsi que les sources potentielles de ^{210}Pb , nombreuses dans cette région (Eurasie, Péninsule Arabique, Afrique du Nord), ne semblent pas avoir notablement influencé le flux local.

Les trois carottes prélevées dans le massif du Queyras, France, donnent des résultats homogènes. Le flux moyen mesuré ($163 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$) est certes supérieur aux valeurs mesurées dans les régions voisines: Grenoble et Monaco. Cette valeur peut s'expliquer par le fait que, d'une part les précipitations sont certainement plus abondantes qu'à Monaco (influence orographique), d'autre part le climat est différent de celui de Grenoble avec une influence méditerranéenne et donc nord-africaine plus importante.

III - La base de données de ^{210}Pb

III - La base de données de ^{210}Pb

Jusqu'à ces dernières années, le ^{210}Pb a surtout été utilisé comme un outil dans la mesure des taux de sédimentation récente et dans la mesure de l'accumulation de neige sur les glaciers et les calottes polaires. Son utilisation en tant que traceur atmosphérique est souvent restée limitée à des études locales. Dès la fin des années 70, *Turekian et al.* (1977) tentent d'établir un premier modèle sur la répartition globale du radon et de ses descendants à partir d'observations sur les émanations de ^{222}Rn et sur les flux de dépôt de ^{210}Pb . Quelques années plus tard, *Lambert et al.* (1982) poursuivent le même type d'étude mais, cette fois-ci, à partir des concentrations atmosphériques de ces deux éléments. Ils appliquent leurs observations à l'étude des échanges troposphère-stratosphère et fournissent une des premières bases de données sur les concentrations de surface de ^{210}Pb . Depuis le début des années 90, après l'éclosion et le développement rapide des modèles numériques de circulation générale, le ^{222}Rn et le ^{210}Pb sont de plus en plus introduits comme traceurs dans des modèles d'aérosols. Il a donc semblé nécessaire de compiler les données de ^{210}Pb utiles à la validation de ces modèles. Ces observations concernent principalement les concentrations dans l'atmosphère et les flux de dépôt.

Parallèlement, le nombre très important de mesures de ^{210}Pb dans les sédiments des différents systèmes aquatiques, nécessaire à l'étude de la sédimentation de ces milieux, rend disponible un grand nombre de données de flux à l'interface eau-sédiment à travers le globe. Ces données permettent d'élaborer une étude sur les transferts atmosphère-sédiment.

L'ensemble de ces résultats a été regroupé dans une base de données accessible sur le serveur Web (http://glaciog.grenet.fr/equipes/glacier/donn_html). Cette base est réactualisée tous les 6 mois.

La base de données a été établie à partir des mesures de ^{210}Pb dans différents milieux, effectuées au cours des quarante dernières années. Ces mesures sont principalement issues de recherches bibliographiques. Certaines données proviennent de communications personnelles. Des données supplémentaires de flux de ^{210}Pb ont

été rajoutées, à partir de mesures effectuées au Laboratoire de Glaciologie, pour couvrir les zones les plus démunies.

La base de données est divisée en 2 groupes majeurs:

- 1- Les données de ^{210}Pb relatives aux mesures à l'interface atmosphère-surface,
- 2- Les données de ^{210}Pb relatives aux mesures à l'interface eau-sédiment.

Dans le premier groupe, 2 types de données très différentes mais complémentaires sont présentées:

- a- Les concentrations de ^{210}Pb dans l'air de surface (Table III.1):
 - les données annuelles (Table III.1a),
 - les données mensuelles (Table III.1b),
- b- Les flux de dépôt atmosphériques mesurés à partir de différents collecteurs:
 - par la mesure directe en collecteurs artificiels (Table III.2a),
 - par la mesure des inventaires dans les sols (Table III.2b),
 - par la mesure du dépôt dans la neige (Table III.2c).

Dans le second groupe, nous présentons les flux de ^{210}Pb à l'interface eau-sédiment (Table III.3) en distinguant les différents types de réservoirs aquatiques (lacs, tourbières et marais, sites côtiers et océans profonds). A cause du nombre important de valeurs existantes dans la bibliographie concernant ce type de mesure, l'inventaire que nous avons dressé est sans doute incomplet.

Dans cette base de données, les sites sont groupés par régions (zones polaires, continents et océans) et latitudes. Pour chaque site, la localisation, l'altitude et les précipitations annuelles sont données. Quand elles sont disponibles, les périodes d'échantillonnages ou d'observations sont indiquées. Les données de concentration reportées dans la base sont moyennées sur la période d'observation. Les données de flux de dépôt sont moyennées ou extrapolées sur l'année.

Légendes des tables

Dans chaque table (à l'exception de la table III.1b), les informations suivantes sont indiquées lorsqu'elles sont disponibles:

a) Les 5 premières colonnes comprennent consécutivement:

- le nom du site de mesure ("Place name"),
- la localisation du site en degrés (latitude et longitude)("Location"),
- l'altitude du site en mètres ("Alt."); les altitudes indiquées entre parenthèses sont approximatives,
- les précipitations annuelles en millimètres d'eau ("Prec."); les données de précipitations suivies de "#" sont dérivées de l'article d'où provient la donnée de ^{210}Pb : les précipitations suivies de "##" sont issues des rapports AERE (C13); toutes les autres données de précipitations sont issues d'un CD-ROM sur des données météorologiques corrigées et interpolées (L14),
- la méthode de mesure ("Meth." ou "method").

b) La dernière colonne des tables contient:

- le code de référence ("Ref."); le premier code de référence correspond à l'article à partir duquel la donnée est dérivée; quand elle existe, la deuxième référence indique l'article original dans lequel la donnée est publiée.

Les informations suivantes concernant les labels des colonnes sont spécifiques à chaque table:

a) Table III.1a

- colonne "Meth.": "air" indique qu'il s'agit d'un échantillonnage d'air de surface,
- colonne "S.P.": durée de la période de mesure (en année); les signes (- et +) indiquent que la période de mesure est légèrement inférieure ou supérieure (respectivement) au nombre d'années indiqué,
- colonne "Conc.": concentration de ^{210}Pb dans l'air de surface moyenné sur la période d'observation (en mBq SCM^{-1})*.

b) Table III.1b

- colonne "Place name": nom du site de mesure; les valeurs indiquées entre parenthèses correspondent à la période de mesure (en années),
- colonne "Jan" à "Dec": concentrations moyennes mensuelles de ^{210}Pb dans l'air de surface (en mBq SCM^{-1}); les signes (- et +) indiquent que la période de mesure, pour le mois en question, est inférieure ou supérieure (respectivement) au nombre d'années indiqué dans la première colonne; le nombre de signes correspond au nombre d'années en moins ou en plus,
- colonne "Ref.": code de référence.

c) Table III.2a

- colonne "method":
"bulk" indique que le flux de ^{210}Pb est mesuré en continu incluant les dépôts secs et humides,
"wet" indique que le ^{210}Pb n'est récolté que lorsqu'il y a des précipitations, n'incluant alors que le dépôt humide,
- colonne "S.P.": durée de la période de mesure (en année),
- colonne "conc.": rapport entre le flux de dépôt de ^{210}Pb et les précipitations (en mBq kg^{-1}),
- colonne "flux": flux de dépôt annuel de ^{210}Pb (en $\text{Bq m}^{-2} \text{an}^{-1}$); le flux est moyenné sur la période d'observation; les astérisques indiquent que le flux, F, est calculé selon la relation: $F = P \times C$, où P est la quantité moyenne de précipitation annuelle et C est la concentration moyenne annuelle de ^{210}Pb dans les eaux récoltées; il s'agit donc d'une approximation du flux de dépôt annuel.

d) Table III.2b

- colonne "method":
"soil" indique que le ^{210}Pb est mesuré dans un sol,
"lichen" indique que le ^{210}Pb est mesuré sur des lichens,
- colonne "Invent.": inventaire de ^{210}Pb dans le sol; cette valeur représente l'activité totale de ^{210}Pb d'origine atmosphérique par unité de surface (en Bq m^{-2}),
- colonne "flux": flux de dépôt annuel de ^{210}Pb moyenné sur le siècle (en Bq m^{-2}

an^{-1}).

e) Table III.2c

- colonne "Prec.": accumulation annuelle de neige en quantité d'eau équivalente (en mm an^{-1}),
- colonne "method":
"snow" indique que la mesure s'effectue à partir de carottes de neige dans un glacier froid (pas de fusion estivale),
"f.s." indique que la mesure s'effectue à partir des retombées de neige fraîche,
"w.s.l." indique que la mesure n'est effectuée qu'à partir de la couche de neige accumulée dans l'hiver; la donnée de flux de dépôt qui en résulte est alors extrapolée sur l'année entière,
- colonne "P.O.": période d'observation de la mesure (en année),
- colonne "Invent.": inventaire de ^{210}Pb dans la neige; cette valeur représente l'activité totale de ^{210}Pb d'origine atmosphérique par unité de surface (en Bq m^{-2}); elle n'est répertoriée que lorsque la quantité totale de ^{210}Pb dans le manteau neigeux est mesurée, ce qui implique une épaisseur de neige correspondant à plus d'un siècle d'accumulation,
- colonne "flux": flux de dépôt annuel de ^{210}Pb moyenné sur la période d'observation (en $\text{Bq m}^{-2} \text{an}^{-1}$).

f) Table III.3

- colonne "collector types": les sédiments sont classifiés selon les types de réservoirs aquatiques suivants:
 - "m.l.": grands lacs (surface $> 1000 \text{ km}^2$),
 - "lake": étangs, petits et moyens lacs,
 - "s.marsh": marais salants,
 - "p. bog": tourbières,
 - "est.": estuaires,
 - "bay": baies,
 - "fjord": fjords,
 - "lag.": lagunes,
 - "c.m.": marges continentales (plateaux, talus et canyons),

"d.o." océans profonds (bassins et fosses),

"mar." autres sites marins,

- colonne "depth": profondeur du site d'échantillonnage (en mètres),

- colonne "Invent.": inventaire de ^{210}Pb dans les sédiments; il représente l'activité totale de ^{210}Pb non supporté par unité de surface (en Bq m^{-2}),

- colonne "flux": flux de dépôt de ^{210}Pb à l'interface eau-sédiment moyenné sur le siècle (en $\text{Bq m}^{-2} \text{an}^{-1}$).

* "SCM" signifie mètre cube standard.

Table III.1: Concentrations de plomb 210 dans l'air de surface

a) Données annuelles

Place name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	Prec. (mm)	Meth.	S.P. (y)	Conc. (mBq.SCM-1)	Ref.
ARCTIC REGIONS							
Franz Joseph Lands							
Site 1	80.0 55.0	0	339	air		0.013	L9-N7
Greenland							
Thule	76.6 -68.6	259	117	air	6	0.265	L11
Thule	76.6 -68.6	259	117	air	2+	0.21	L9-P14
Thule	76.6 -68.6	259	117	air	1.5	0.35	L9-F7
Thule	76.6 -68.6	259	117	air	1	0.15	L13
Kap Tobin	70.4 -22.0	22	451	air	2+	0.27	L9-F7
Constable Point	70.7 -22.6	50		air	2+	0.27	L11
Dye 3	65.2 -43.5	2480	570#	air	1	0.18	D12
Alaska							
Barrow	71.2 -156.5	4	115	air	12	0.43	L11
Barrow	71.2 -156.5	4	115	air	1+	0.52	L9-F7
Anchorage	61.2 -150.0	0	376	air	1	0.31	L9-M21
NORTH AMERICA							
CANADA							
Ontario							
Moosonee	51.3 -80.5	10	429	air	12	0.53	L11
Moosonee	51.3 -80.5	10	429	air	2	0.48	L9-F7
Moosonee	51.3 -80.5	10	429	air	1	0.23	L13
Moosonee	51.3 -80.5	10	429	air	2+	0.31	L9-P14
Pickering	43.9 -79.0		777	air	1+	0.51	J7
Nanticoke	42.8 -80.2		874	air	1+	0.69	J7
Sault-Ste-Marie				air	2	0.35	J7
Sudbury				air	2	0.32	J7
North bay				air	2	0.24	J7
Elliot lake				air	2	0.55	J7
Nordic Townsite				air	2	0.39	J7
Denisore Townsite				air	2	0.31	J7
Quirke Townsite				air	2	0.39	J7
Stollery lake				air	2	0.25	J7
Esker lake				air	2	0.36	J7
U.S.A.: West-Central							
Montana							
Helena EML	46.4 -112.0		330	air	2	0.60	G4
Helena	46.6 -112.0	1187	373	air	2+	0.54	L9-F7
Idaho							
Rexburg	43.8 -111.8	1502	334	air	8	0.74	L11
Oregon							
Beaverton	45.5 -122.9	10	1261	air	8	0.38	L11
Colorado							
Rocky Flats EML	40.0 -105.1	1700	485	air	2	0.60	G4
Rocky Flats	40.0 -105.2	1738	485	air	2-	0.44	L9-F7
Rocky Flats	40.0 -105.2	1814	485	air	1-	0.68	L9-F7
Rocky Flats	40.0 -105.2	1830	485	air	2+	0.51	L9-F7
Utah							
Salt Lake City	40.5 -110.5	1300	275	air	2	0.62	G4
Salt Lake City	40.8 -110.8	1516	275	air	1	0.96	L9-M21
Salt Lake City	40.8 -110.8	1516	275	air	1-	0.54	L9-F7

Table III.1a (suite)

Place name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	Prec. (mm)	Meth.	S.P. (y)	Conc. (mBq.SCM-1)	Ref.
Arkansas							
Fayetteville	36.1 -94.2	450	1173	air		0.53	L9-N7
California							
Richmond	37.9 -122.3	20	493	air	2+	0.26	L9-F7
Los Angeles	34.0 -118.3	0	350	air	1	0.54	L9-M21
U.S.A.: East							
New England							
Montague (Mass.)	42.6 -72.5	100	1098	air	1	0.52	G4
Winchester (Mass.)	42.5 -71.2		1107	air	1	0.75	S14
Winchester (Mass.)	42.5 -71.1		1107	air	1	0.52	L9-M21
New York							
New York City EML	40.7 -74.0	56	1137	air	7	0.58	L11
New York City	40.7 -74.0	56	1137	air	2+	0.58	L9-F7
Pennsylvania-N.J.							
Scranton SURE 2	41.7 -76.0		1182	air	1	0.62	G4
Chester (N.J.)	40.8 -74.7	268	1189	air	6	0.49	L11
Ohio							
Zanesville SURE 4	40.0 -82.3	275	1003	air	1	0.88	G4
Indiana							
Fort Wayne SURE 7	41.0 -85.2	245	941	air	1	0.87	G4
Illinois							
Springfield	39.8 -89.7	180	920	air	1	0.97	L9-M21
Virginia-Del.-Mar.							
Washington (W.D.C.)	38.9 -77.0	50	1059	air	2	0.52	L9-P14
Washington (W.D.C.)	38.9 -77.0	82	1059	air	1	0.41	L13
Millsboro (Del)	38.5 -75.3	0	1060	air	1	0.53	G4
Lewisburg (WVa) S.9	37.5 -80.2		1049	air	1	0.78	G4
Kentucky							
Rockport SURE 5	37.5 -87.0		1188	air	1	0.92	G4
Carolina							
Durham (N.C) SURE 8	35.5 -78.5		1231	air	1	0.67	G4
Tennessee							
Pulaski SURE 6	35.2 -87.0	200	1317	air	1	0.98	G4
Louisiana							
New Orleans	30.0 -90.1	0	1527	air	1	0.77	L9-M21
Florida							
Miami	25.8 -80.3	7	1486	air	8	0.40	L11
Miami	25.8 -80.3	7	1486	air	2	0.31	L9-F7
Miami	25.8 -80.3	4	1486	air	1	0.14	L13
CENTRAL AMERICA-WEST INDIES							
Porto Rico							
San Juan	18.5 -66.1	0	1506	air	1	0.31	L9-M21
Panama							
Balboa	9.0 -79.6	23	2106	air	2+	0.185	L9-F7
Panama	9.0 -79.5	20	2151	air	2	0.116	L9-P14
Miraflores	9.0 -79.5	10	2151	air	1	0.13	L13
ATLANTIC OCEAN							
Bermuda (BBS)	32.2 -64.7	0	1699#	air	1	0.35	T4
Falkland Islands	-51.8 -58.5	68	654	air	7	0.05	L11

Table III.1a (suite)

Place name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	Prec. (mm)	Meth.	S.P. (y)	Conc. (mBq.SCM-1)	Ref.
EUROPE							
Norway							
Tromso	69.7 19.0	0	770	air		0.167	L9-N7
Finland							
Ivalo	68.6 27.4	140	415#	air	6	0.229	P20
Sodankyla	67.4 26.6	118	510	air	8	0.240	P20
Nurmijarvi	61.0 26.0	50	622	air	1	0.25	L9-M23
Seutula (Helsinki)	60.2 25.0	10	627	air	1	0.44	A10
Helsinki	60.2 25.0	9	600#	air	8	0.300	P20
Denmark							
Riso	55.7 12.1	10	587	air	3-	0.21	
Russia							
Moscow	55.8 37.7	150	577	air		0.25 0.31	N8
United Kingdom							
Chilton	51.5 -1.5	350	741	air	5	0.23	P7
Ireland							
Clones	54.2 -7.2		1020	air	1	0.14 0.03	P21
Dundalk	54.0 -6.5		850	air	1	0.20 0.02	P21
Mullingar	53.5 -7.3		970	air	1	0.15 0.02	P21
Dublin (site 1)	53.4 -6.2		900	air	1	0.24 0.06	P21
Dublin (site 2)	53.3 -6.2		900	air	1	0.22 0.02	P21
Galway	53.3 -9.0		600	air	1	0.22 0.04	P21
Rosslare	52.2 -6.3		980	air	1	0.36 0.05	P21
Caherciveen	51.9 -10.2		1470	air	1	0.17 0.02	P21
Midleton	51.9 -8.2		1040	air	1	0.31 0.04	P21
Germany							
Brunswick	52.3 10.5	100	686	air		0.37	L9-N7
Poland							
Warsaw	52.2 21.0	150	512	air	9	0.32	K10
Czech Republic							
Praha	50.1 14.4	200	530	air	6.5	0.60	R11
Switzerland							
Fribourg	46.8 7.2	(500)	1206	air	11	0.46	V3
Oberschrot	46.7 7.3		1206	air	0.8	1.14	S17
Jungfrauoch	46.5 8.0	3450		air	1	0.18	
Mte Ceneri	46.1 8.9	554	1670	air	1	0.74	S17
France							
Verdun	49.2 5.4	200	855	air	7	0.50	C14
Paris	48.8 2.3	50	734#	air	0.1	0.48	L9-L15
Orsay	48.8 2.2	50	615	air	7	0.60	C14
Flers	48.7 -0.6	200	846	air	6-	0.43	C14
Dijon	47.3 5.0	250	860	air	7-	0.80	C14
Bordeaux	44.8 -0.6	10	853	air	7	0.59	C14
Toulouse	43.6 1.4	150	700#	air	4+	0.52	L9-M24
Toulon	43.1 5.9	10	662	air	7	1.09	C14
Italy							
Ispra	45.8 8.6	251	1523#	air	5	1.09	D15
Portugal							
Sacavem	38.8 -9.1	0	676	air	5	0.181	C8

Table III.1a (suite)

Place name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	Prec. (mm)	Meth.	S.P. (y)	Conc. (mBq.SCM-1)	Ref.
ASIA							
Japan							
Okushiri (Hokkaido)	42.1 139.4		1301	air	2	0.65 0.07	T10
Wajima (Ishikawa)	37.4 136.9		1972	air	2	0.66 0.13	T10
Chiba	35.6 140.1	0	1430	air		0.37	L9-A9
Izumo (Shimane)	35.4 132.6		1764	air	2	0.60 0.04	T10
Hachijojima	33.1 139.7		2937	air	2	0.41 0.085	T10
Onna (Okinawa)	26.5 127.8		1684	air	2	0.36 0.06	T10
India							
Srinagar	34.2 74.9	1598	728	air	3	0.98	R7
Srinagar	34.2 74.9	1598	865	air	5	0.88	L9-M22
Gulmarg	34.1 74.2	2743	1156	air	2	0.59	L9-M22
Nainital	29.4 79.4	1935	1256	air	4	0.63	L9-M22
Dehli	28.7 77.2	219	694	air	5	0.93	L9-M22
Gangtok	27.3 88.7	2000	2052	air	5	1.04	L9-M22
Calcutta	22.6 88.4	0	1470	air	5	0.96	L9-M22
Nagpur	21.2 79.2	311	1324	air	5	0.88	L9-M22
Bombay	18.9 72.9	18	2237	air	8	0.70	L9-M22
Bangalore	13.0 77.6	922	836	air	5	0.67	L9-M22
Ootacamund	11.4 76.7	2235	1502	air	5	0.56	L9-M22
Thumba	8.5 77.0	0	1806	air	2	0.51	L9-R8
PACIFIC OCEAN							
Amchitka (Aleout.)	51.5 179.1	0	834	air	3-	0.003	L9-N7
Chichijima	27.1 142.2		1270	air	2	0.35 0.045	T10
Honolulu (Hawaii)	21.3 -157.8	0	1205	air	1-	0.178	L9-M21
Mauna Loa (Hawaii)	19.5 -155.6	3401	1366	air	12	0.37	L11
Mauna Loa (Hawaii)	19.5 -155.6	3401	1366	air	2-	0.23	L9-F7
Mauna Loa (Hawaii)	19.5 -155.6	3394	1366	air	2	0.174	L9-P14
Mauna Loa (Hawaii)	19.5 -155.6	3394	1366	air	1	0.22	L13
Tutuila (Am. Samoa)	-14.3 -170.6	77	3455	air	4	0.06	L11
Tutuila (Am. Samoa)	-14.3 -170.6	77	3455	air	0.5	0.021	L9-F7
Pascua Island	-27.2 -109.4	41	1113	air	4	0.045	L11
Pascua Island	-27.2 -109.4	41	1113	air	2+	0.029	L9-F7
Norfolk Island	-29.0 168.0	10	1329	air	11	0.11	L11
Chatham Island	-44.0 -176.0	100	988	air	10	0.07	L11
SOUTH AMERICA							
Ecuador							
Guayaquil	-2.2 -79.9	7	1122	air	4	0.515	L11
Guayaquil	-2.2 -79.9	7	1122	air	2+	0.27	L9-F7
Guayaquil	-2.2 -79.9	7	1122	air	2-	0.35	L9-P14
Peru							
Lima	-12.0 -77.1	13	87	air	4	0.46	L11
Lima	-12.0 -77.1	13	87	air	2+	0.31	L9-F7
Lima	-12.0 -77.1	3	87	air	2	0.103	L9-P14
Lima	-12.0 -77.1	30	87	air	1	0.116	L13
Bolivia							
Chacaltaya	-16.4 -68.1	5220	793	air	12	0.405	L11
Chacaltaya	-16.4 -68.1	5220	793	air	2+	0.24	L9-P14
Chacaltaya	-16.4 -68.1	5220	793	air	2+	0.21	L9-F7
Chacaltaya	-16.4 -68.1	5220	793	air	1	0.39	L13
Uruguay							
Durazno	-33.3 -56.5	84		air		0.75 0.32	L11

Table III.1a (suite)

Place name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	Prec. (mm)	Meth.	S.P. (y)	Conc. (mBq.SCM-1)	Ref.
Chile							
Antofagasta	-23.6 -70.3	31	6	air	4	0.43	L11
Antofagasta	-23.6 -70.3	31	6	air	2+	0.26	L9-P14
Antofagasta	-23.6 -70.3	31	6	air	1+	0.31	L9-F7
Antofagasta	-23.6 -70.3	31	6	air	1	0.24	L13
Santiago	-33.5 -70.7	520	527	air	4	0.34	L11
Santiago	-33.5 -70.7	520	527	air	1+	0.27	L9-P14
Santiago	-33.5 -70.7	520	527	air	2-	0.36	L9-F7
Santiago	-33.5 -70.7	520	527	air	1-	0.32	L13
Puerto Montt	-41.5 -73.0	7	2106	air	4	0.05	L11
Puerto Montt	-41.5 -73.0	7	2106	air	2-	0.047	L9-F7
Puerto Montt	-41.5 -73.0	7	2106	air	1.5	0.068	L9-P14
Puerto Montt	-41.5 -73.0	5	2106	air	1	0.070	L13
Punta Arenas	-53.1 -70.9	35	500	air	4	0.03	L11
Punta Arenas	-53.1 -70.9	35	500	air	2-	0.026	L9-F7
Punta Arenas	-53.1 -70.9	35	500	air	2	0.037	L9-P14
Punta Arenas	-53.1 -70.9	3	500	air	1	0.048	L13
AFRICA							
Ivory Coast							
Lamto	6. -5.			air	1	0.59	N8
South Africa							
Pretoria	-25.8 28.2	1400	689	air	2+	0.75	L11
Cape Point	-34.4 18.5	274	783	air	0.75	0.13	L11
INDIAN OCEAN							
Reunion Island	-21.2 55.8	181	2790	air	2	0.11	L11
Amsterdam Island	-37.8 77.7	40	1075	air	1.5	0.018	L9-S16
Marion Island	-46.9 37.7	10	2064	air	0.75	0.03	L11
Kergelen Islands	-49.4 70.2	0	871	air	1-	0.012	L9-S16
OCEANIA							
Australia							
Townsville	-19.6 146.8	0	1134##	air	2-	0.23	L9-B26
Brisbane	-27.5 153.0	0	1174##	air	1.5	0.26	L9-B26
Perth	-32.0 115.8	0	932##	air	2-	0.22	L9-B26
Perth	-32.0 116.0	100	932##	air	10.5	0.31	L11
Sydney	-33.9 151.2	0	1226##	air	1.5	0.24	L9-B26
Melbourne	-37.8 145.0	0	665##	air	4.5	0.19	L9-B26
Cape Grim	-41.0 145.0	50	1522	air	11	0.11	L11
New Zealand							
Lower Hutt	-41.2 174.9	10	1283	air	6	0.075	L11
Invercargill	-46.4 168.4	10	1063	air	11	0.075	L11

Table III.1 (suite)

Place name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	Prec. (mm)	Meth.	S.P. (y)	Conc. (mBq.SCM-1)	Ref.
ANTARCTICA							
Marsh	-62.2 -59.0	10		air	3-	0.02	L11
Antarctica Penins.	-63.9 -61.7	13		air	2	0.014	L9-F7
Palmer	-64.8 -64.1	30		air	3-	0.02	L11
Dumont-d'Urville	-66.7 140.0	40		air	19	0.033	L9-S16
Mawson station	-67.6 62.9	10	431#	air	6	0.03	L11
Mawson station	-67.6 62.9	10	431#	air	1	0.020	L9-S16
Base Roi Baudoin	-70.4 24.3	0		air	1	0.027	L9-C4
Base Roi Baudoin	-70.4 24.3	0		air	0.25	0.075	L9-W6
G.V.Neumayer st.	-70.6 -8.4	10	350#	air	4	0.031	W5
Little America V	-78.2 -162.2	50		air	2-	0.014	L9-L10
South Pole station	-90.0 0.	2800	130#	air	11	0.035	L11
South Pole station	-90.0 0.	2800	130#	air	2	0.021	L9-F7
South Pole station	-90.0 0.	2800	130#	air	5	0.010	L9-L10
South Pole station	-90.0 0.	2800	130#	air	0.14	0.046	L9-M26

Table III.1: Concentrations de plomb 210 dans l'air de surface

b) Donnees mensuelles

Site	Jan.	Feb.	Mar.	Apr.	May	Jun.	Jul.	Aug.	Sep.	Oct.	Nov.	Dec.	Ref.
ARCTIC REGIONS													
Greenland													
Thule (5)	0.43(-)	0.36(-)	0.44(-)	0.39(-)	0.25(-)	0.10	0.10(-)	0.08	0.15	0.20	0.35	0.37	L11
Constable Point (2)	0.275	0.35	0.63	0.26	0.16(-)	0.085	0.08(-)	0.13(-)	0.15	0.22(+)	0.43(+)	0.45(+)	L11
Alaska													
Barrow (5)	0.88(-)	1.00(-)	0.76(-)	0.47(-)	0.22(-)	0.06	0.07	0.08	0.09	0.25	0.55	0.90	L11
NORTH AMERICA													
Canada													
Moosonee, Ont. (5)	0.83	0.77	0.63	0.50(-)	0.30(-)	0.19(-)	0.25	0.32	0.28	0.36	0.55	0.78	L11
U.S.A.													
Beaverton, Or. (5)	0.51	0.58	0.28	0.24	0.22(-)	0.18	0.19	0.27	0.52	0.52	0.52	0.61	L11
Rexburg, Id. (5)	0.95	0.81	0.59	0.44	0.42	0.44	0.59(-)	0.65	0.72	0.75	0.84	1.28	L11
Chester, N.J. (5)	0.63(-)	0.61	0.48	0.41	0.37	0.40	0.49	0.56	0.50	0.63	0.62	0.72	L11
New York, N.Y. (4)	0.70	0.64	0.56	0.45	0.48(-)	0.42	0.51	0.60(-)	0.59	0.59	0.80	0.74	L11
Montgomery, AL. (4)	0.80	0.70	0.76	0.73	0.58	0.76	0.68	1.15	0.93	0.98	1.05(-)	0.82(+)	L11
Miami, FL. (5)	0.34	0.34	0.41	0.41	0.44	0.32	0.36(-)	0.36	0.34(-)	0.35	0.46	0.48	L11
EUROPE													
Finlande													
Ivalo (6)	0.39	0.355	0.38	0.22	0.125	0.14	0.12	0.14	0.15	0.19	0.23	0.29	P20
Sodankyla (8)	0.37	0.34	0.36	0.26	0.15	0.145	0.14	0.15	0.18	0.195	0.27	0.33	P20
Helsinki (8)	0.40	0.42	0.41	0.32	0.23	0.22	0.21	0.23	0.22	0.29	0.31	0.36	P20
France													
Verdun (7)	0.54	0.60(-)	0.40(-)	0.35	0.40	0.39	0.52	0.55	0.54	0.59	0.58	0.60	C14
Orsay(Paris) (7)	0.70	0.65(-)	0.47(-)	0.41	0.54	0.45	0.63	0.60	0.61	0.76	0.83	0.65	C14
Fliers (6)	0.44	0.47(-)	0.34(-)	0.30(-)	0.40(-)	0.34	0.36	0.46	0.48	0.51	0.52	0.54	C14
Dijon (7)	1.07	0.87(-)	0.64(-)	0.51(-)	0.64	0.57	0.75	0.78	0.78	0.99	0.93	0.95	C14
Bordeaux (7)	0.58	0.66(-)	0.54(-)	0.37	0.55	0.48	0.54	0.66	0.57	0.73	0.63	0.78	C14
Toulon (7)	1.11	1.02(-)	1.01(-)	0.77	0.95	0.95	1.34	1.49	1.17	1.23	1.00	0.98	C14
Italy													
Ispra (5)	1.65	1.65	0.93	0.58	0.54	0.55	0.77	0.90	0.71	1.55	1.67	1.52	D15
PACIFIC OCEAN													
Northern Pacific													
Mauna Loa (Hawaii) (5)	0.22	0.29	0.42	0.49	0.41	0.40	0.31	0.20	0.23	0.21	0.18	0.18	L11
Southern Pacific													
Tutuila Is. (4)	0.04(-)	0.045	0.03	0.03	0.06	0.07	0.06	0.07	0.09	0.095	0.06	0.05(-)	L11
Norfolk Is. (5)	0.11	0.10	0.08	0.10	0.09	0.09(-)	0.11(-)	0.03	0.03	0.11	0.12	0.11(-)	L11

Table III.1b (suite)

Site	Jan.	Feb.	Mar.	Apr.	May	Jun.	Jul.	Aug.	Sep.	Oct.	Nov.	Dec.	Ref.
SOUTH AMERICA													
Ecuador													
Guayaquil (4)	0.57	0.38	0.38	0.52	0.63	0.60	0.75	0.56	0.50	0.41	0.43	0.46	L11
Peru													
Lima (4)	0.37	0.33	0.51	0.51	0.51(-)	0.61(-)	0.46(-)	0.48(-)	0.38	0.43	0.30	0.27	L11
Bolivia													
chacaltaya (5)	0.18	0.22	0.25	0.42	0.39	0.35	0.46	0.40	0.43	0.37	0.31	0.27	L11
Chile													
Antofagasta (4)	0.27	0.29(-)	0.45	0.44	0.51	0.73	0.71	0.54	0.38	0.34	0.25	0.24	L11
Santiago (4)	0.22	0.27(-)	0.34(-)	0.40	0.51	0.50	0.45	0.46	0.30	0.25(-)	0.22(-)	0.17(-)	L11
AFRICA													
South Africa													
Pretoria (2)	0.48(+)	0.47(+)	0.54(+)	0.89	0.96	1.06	1.07	0.90	1.00	0.64	0.53(+)	0.48(+)	L11
INDIAN OCEAN													
Reunion Is. (2)	0.11	0.115	0.065	0.075	0.10(+)	0.09	0.13	0.12(+)	0.165	0.12(+)	0.13(+)	0.13	L11
OCEANIA													
Australia													
Perth (5)	0.25(-)	0.25(-)	0.29	0.35	0.44	0.27(-)	0.20(-)	0.19	0.19	0.19(-)	0.17(-)	0.19(-)	L11

Table III.2a: Flux de depot atmospherique de plomb 210 mesures en collecteurs artificiels

Place Name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	method	S.P. (y)	conc. (mBq.kg-1)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
NORTH AMERICA								
CANADA								
Ontario								
ELA (kenora)	49.7 -93.8	(350)	630	bulk			76	B28
Ottawa	45.4 -75.7	60	680##	bulk	3	217	147*	P7
U.S.A : West								
Washington								
Seattle	47.6 -122.3	0	1104	bulk	7		73	B10-N3
Tacoma	47.2 -122.5	10	991#	bulk	1-	59	58 2	M17
California								
Berkeley	38.0 -122.3	10	625#	bulk	1	51	32 2	M17
Palo Alto	37.5 -122.2	0	490#	bulk	1	51	25	F4
Los Angeles	34.0 -118.3	10	360#	bulk	1	97	35	F4
U.S.A : Central								
Utah								
Salt Lake City	40.8 -111.8	1300	584#	bulk	1	134	78 3	M17
Arkansas								
Fayetteville	36.0 -94.2	(400)	1165#	wet	1	82	96	G3
Texas								
College Station	30.6 -96.4	50	1223#	bulk	1	83	93 3	M17
College Station	30.6 -96.4	58	1220#	bulk	2	144	176	B10
Gavelston	29.3 -94.8	11	1170#	bulk	3	146	171	B10
U.S.A.: East								
Wisconsin								
Vilas Co	46.1 -89.7	(500)	808#	bulk	1	321	259	T12
New England								
New Haven 1 (Conn.)	41.3 -72.9	0	1390#	bulk	1	144	200	T4
New Haven 2 (Conn.)	41.3 -72.9	0	1212##	bulk	4	140	170	B8-B7
New Haven 3 (Conn.)	41.3 -72.9	0	1097#	bulk	1	98	107 3	M17
New Jersey								
Chester	40.8 -74.7	268	1285#	bulk	3	142	182	K14
Illinois								
Argonne Nat. Lab.	41.8 -87.7	500	917#	bulk	1	144	132 5	M17
Virginia								
Norfolk	37.0 -76.3	0	1374#	bulk	2	105	144	T5&O2
Tennessee								
Oak Ridge	36.0 -84.3	(400)	1220#	bulk	2	139	170	O2
Florida								
Miami	25.8 -81.2	0	1185#	bulk	1	35	42 2	M17
CENTRAL AMERICA-WEST INDIES								
Bahamas Islands								
Nassau	25.0 -77.3	0	1200##	bulk	2	81	97*	P7

Table III.2a (suite)

Place Name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	method	S.P. (y)	conc. (mBq.kg-1)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
ATLANTIC OCEAN								
Bermuda (BBS)	32.2 -64.7	0	1699#	bulk	1	68	115	T4
Stanley (Falkland)	-51.7 -58.0	0	650	bulk	1.5	49	32*	P7
Argentina Islands	-65. -64.	0	250##	bulk	0.25	7.4	1.9*	P7
EUROPE								
Norway								
Tromso	69.7 19.0	0	769	bulk	0.5	44	34*	P7
Bodo	67.3 14.3	0	1247	bulk	2	95	118*	P7
Russia								
Moscow	55.7 37.7	120	577	bulk			107 10	T2-B14
United Kingdom								
Brotherswater	54.5 -3.0		2108#	?		70	147	E9
Milford Haven	51.7 -5.0	0	916#	bulk	3	103	85 13	P7
Plymouth	50.4 -4.2	0	1240	?			68	T7-C10
Netherland								
Den Burg (Texel)	53.1 4.8	0	745	bulk	2		72	Z1
Germany								
Saarland	49.3 7.0	(200)	801	bulk			104	G2
Czech Republic								
Prague	50.1 14.4	200	530	bulk	6		187	R11
Austria								
Linz	48.3 14.3	(250)	974	bulk	1.5	117	114*	P7
Gosausee	47.5 13.5	(1000)	1204	bulk	0.5	106	128*	P7
Switzerland								
Dubendorf	47.4 8.6	400	1100#	bulk	4	127	140	S1
Porte du Scex	46. 6.5	400	1123	bulk	1		152	D5
France								
Paris	48.8 2.3	50	680#	bulk	2	160	109	B10-T8
Grenoble	45.2 5.7	220	930#	bulk	2	124	115 16	P19
Bordeaux	44.8 -0.6	0	1030#	bulk	2	55	57	B10-T8
Monaco	43.8 7.4	0	883	bulk			110	C8-H4
Etang de Vaccares	43.5 4.6	10	500#	bulk	1	164	82	R10-H8
Italy								
Ispra	45.8 8.6	251	1523#	bulk	5	147	224 34	D5
Portugal								
Sacavem (Lisboa)	38.8 -9.1	0	676#	bulk	5	83	56 12	C8
ASIA								
Japan								
Kitami	43.8 143.9	84	817#	bulk	2	267	217	T13
station1 Esachi	41.9 140.1	0	1271#	bulk	2	228	290	F6
station2	41.9 140.3	100	1500#	bulk	2	295	443	F6
station3	41.9 140.4	500	1697#	bulk	2	274	465	F6
station4 Hakodate	41.7 140.7	0	1100#	bulk	2	233	256	F6
Hakodate	41.7 140.7	3	966#	bulk	2	267	257	T13
Akita	39.7 140.1	18	1512#	bulk	2	240	362	T13
Sendai	38.2 140.9	45	988#	bulk	2	198	196	T13
Kanazawa	36.6 136.7	48	2318#	bulk	2	163	380	T13&S15

Table III.2a (suite)

Place Name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	method	S.P. (y)	conc. (mBq.kg-1)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
INDIA								
Tokyo	35.7 139.5	58	1604#	bulk	2	140	222	T13&S15
Misasa	35.4 133.9	160	1728#	bulk	2	153	264	T13
Osaka	34.7 135.5		1548	bulk	2		170	K12-M20
Tanabe	33.7 135.4	17	1443#	bulk	2	142	202	T13
Hachijojima	33.1 139.8	79	2792#	bulk	2	118	327	T13
Nagasaki	32.7 129.9	19	1743#	bulk	2	207	359	T13
Naha	26.2 127.7	110	1743#	bulk	2	152	262	T13
INDIA								
Srinagar	34.2 74.9	1598	728#	bulk	5	250	182 48	J3
Delhi	28.7 77.3	219	740#	bulk	5	151	112 42	J3
Gangtok	27.3 88.6	2000	3053#	bulk	5	75	230 126	J3
Calcutta	22.5 88.4	3	1337#	bulk	4	79	106 40	J3
Nagpur	21.2 79.0	311	975#	bulk	4	104	101 29	J3
Bombay	19.0 72.9	0	2167#	bulk	5	111	240 57	J3
Bangalore	13.0 77.6	922	1000#	bulk	5	87	87 31	J3
Ootacamund	11.2 76.7	2235	1326#	bulk	5	72	91 24	J3
INDOCHINA								
Singapore	1.3 103.8	0	2682	bulk	2.5	53	142*	P7
AFRICA								
Nigeria								
Lagos	6.5 3.3	0	1657	bulk	0.5	172	285*	P7
PACIFIC OCEAN								
NORTHERN PACIFIC								
Midway	28.2 -177.4	10	492#	bulk	1+	73	36	T14
Chichijima	27.1 142.2	20	1330#	bulk	2	125	166	T13
Oahu (Hawaii)	21.3 -158.0	1000	589#	bulk	1+	76	45	T14
Enewetak	11.3 162.3	0	1078#	bulk	0.6	22	24 3	T1
Fanning	4.0 -159.0		1520#	bulk	1-	36	54	T14
SOUTHERN PACIFIC								
Suva, Fiji	-18.2 178.4	0	3463	bulk			80 20	T2
Rarotonga	-21.3 -159.8	0	2127	bulk			52	T2
SOUTH AMERICA								
Bolivia								
Huayna Potosi	-16.4 -68.1	4750	740#	bulk	1	101	75 8	P22
OCEANIA								
AUSTRALIA								
Queensland								
Townsville	-19.2 146.8	0	1134##	bulk	7		38 12	T2-B15
Samford	-27.3 152.8	(100)	1195	bulk	6		62 12	T2-B15
Brisbane	-27.5 153.0	0	1174##	bulk	7		65 8	T2-B15

Table III.2a (suite)

Place Name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	method	S.P. (y)	conc. (mBq.kg-1)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
Northern Territory								
Darwin	-12.3 130.7	0	1538##	bulk	7		95 25	T2-B15
Alice Springs	-23.7 133.8	500	250##	bulk	6		57 10	T2-B15
Western Australia								
Port Hedland	-20.3 118.7	0	318##	bulk	6		32 10	T2-B15
Perth	-32.1 115.8	0	932##	bulk	7		43 12	T2-B15
Wokalup	-33.2 115.8	(100)	925	bulk	6		47 18	T2-B15
Southern Australia								
Adelaide	-34.9 138.6	0	760##	bulk	7		53 12	T2-B15
Meadows	-35.2 138.7	(300)	690	bulk	6		58 13	T2-B15
New South Wales								
Sydney	-33.9 151.2	0	1226##	bulk	7		53 15	T2-B15
Berry	-34.8 150.7	(100)	1048	bulk	6		70 18	
Victoria-Tasmania								
Melbourne	-37.7 145.0	0	665##	bulk	1	118	80*	P7
Melbourne	-37.7 145.0	0	665##	bulk	7		50 12	T2-B15
Warragul	-38.2 145.9	50	828	bulk	7		67 13	T2-B15
Hadspen	-41.5 147.1		741	bulk	6		53 8	T2-B15
Hobart	-42.8 147.3		800##	bulk	7		30	T2-B15
NEW ZEALAND								
Northern Island								
Kaitaia	-35.2 173.3		1512	bulk	7		62 20	T2
Auckland	-36.9 174.8	0	1350	bulk	5		50 12	T2
New Plymouth	-39.0 174.0	0	1600	bulk	6		73 15	T2
Havelock North	-39.7 176.8	(100)	961	bulk	7		30 2	T2
Wellington	-41.3 174.8	0	1156	bulk	6		57	T2
Southern Island								
Greymouth	-42.5 171.2	0	1988	bulk	6		125 12	T2
Christchurch	-43.5 172.7	0	859	bulk	3		23 2	T2
Ohakea	-43.6 172.7	0	1071##	bulk	1	22	23*	P7
Dunedin	-45.8 170.3	0	703	bulk	7		30 8	T2
Invercargill	-46.5 168.3	0	1034	bulk	6		35 12	T2

Table III.2b: Flux de depot atmospherique de plomb 210 mesures dans les sols.

Place Name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	method	invent. (Bq.m-2)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
NORTH AMERICA							
CANADA							
Yukon							
Kluane lake	61.0 -138.3	750	568	soil	670	21	M19
Silver Creek	61.0 -138.3	770	568	soil	1750	54	M19
Kluane site 2	61.0 -138.3	1420	568	soil	970	30	M19
Kluane site 3	61.0 -138.3	1420	568	soil	1380	43	M19
Whitehorse	60.7 -134.8	700	288	soil	1220	38	M19
Wolf Creek	60.7 -134.8	600	288	soil	970	30	M19
White Pass	59.7 -135.2	970	618	soil	650	20	M19
U.S.A : West							
Washington							
Washington coast							
site 1 (n=2)	47.4 -124.3	0	2433	soil	3660	114	C12
site 2	47.3 -124.2	0	2433	soil	4080	127	C12
site 3	47.1 -124.1	0	2433	soil	7480	233	C12
site 4	46.8 -124.1	0	1941	soil	1605	50	C12
site 5 (n=2)	46.7 -123.9	0	1843	soil	3660	114	C12
site 6	46.4 -124.0	0	1817	soil	3470	108	C12
Mean (n=8)						122	52
California							
Mendocino PF2	39.3 -123.8	21	965	soil	1245	39	M6
Mendocino PF1	39.3 -123.8	122	965	soil	1690	53	M6
Foothills SJTM1	40.7 -122.3	457	1055	soil	2375	74	M6
Foothills SQ1	40.7 -122.3	680	1055	soil	2220	69	M6
Sierra Nevada							
core SL1	40. -121.	1676		soil	3260	102	M6
core WL1	40. -121.	1814		soil	4480	140	M6
core SQ2	40. -121.	2097		soil	3930	122	M6
core KPM1	40. -121.	2774		soil	4910	153	M6
core SQ3	40. -121.	2798		soil	3735	116	M6
Mean (n=5)						127	20
U.S.A : Central							
Iowa							
Williams prairieIAA	41.8 -91.8	220	843	soil	5200	162	G4
Nebraska							
Niobrara prairieNEA	42.8 -100.3	855	524	soil	4550	142	G4
Colorado							
Boulder	40.0 -105.3	(1700)	485	soil	8570	267	M3
Broomfield CO A	39.5 -105.0	1646	418	soil	3200	100	G4
Oklahoma							
Springer prairieOKA	36.6 -97.6	335	762	soil	5020	156	G4
New Mexico							
Santa Fe T.W.S.F	35.7 -106.3	(2000)	390	soil	13900	432	N1
Santa Fe F.W.A.A	35.7 -106.3	(2000)	390	soil	6970	217	N1
Arkansas							
Pope County AR A	35.5 -93.1	400	1248	soil	6020	187	G4
Texas							
Potter County TX A	35.1 -101.9	1120	519	soil	4620	144	G4

Table III.2b (suite)

Place Name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	method	invent. (Bq.m-2)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
U.S.A: East							
New England							
Camels Hump (Verm)	44.3 -72.9	1036	914	soil	9830	306	G4
Pine park (NH) NH B	44.0 -72.0	120	1077	soil	4050	126	G4
Mt Moosilake (NH)	44.0 -71.0	701	1132	soil	4900	153	G4
Montague (Mass.)	42.6 -72.5	100	1098	soil	4030	126	G4
Branford (Conn.)	41.3 -72.8	10	1106	soil	4270	133	N1-M2
New Haven (Conn.)	41.3 -72.9	0	1106	soil	5390	168	B1
East Haven (Conn.)	41.3 -72.9	0	1106	soil	4270	133	B1
New York							
White face Mt	44.4 -74.0	1341	893	soil	12270	382	G4
Webb Royce swamp	44.2 -73.4	95	861	soil	3930	122	G4
Rhinebeck	41.9 -73.9		1117	soil	5690	177	K11
7 League farm NY A	41.2 -73.7	110	1171	soil	4170	130	G4
Pennsylvania-New Jersey							
Woodbourne SURE 2	41.8 -75.9	440	1011	soil	4250	132	G4
Emporium	41.5 -78.2		1064	soil	4780	149	N1
Cooksburgh	41.3 -79.2		1089	soil	6390	199	N1
Lewisburgh	41.0 -77.0		1074	soil	4270	133	N1
Ohio							
Zanesville SURE 4	40.0 -82.3	275	1003	soil	5330	166	G4
Indiana							
Fort Wayne SURE 7	41.0 -85.2	245	941	soil	4000	125	G4
Sourwood SURE 5	37.9 -86.7	120	1159	soil	5230	163	G4
Illinois							
Mettler Wood IL A	40.2 -89.1	225	912	soil	6330	197	G4
Virginia-Delaware-Maryland							
Lewes (Del) SURE 3	38.8 -75.3	0	1088	soil	4270	133	G4
Maryland (Mar)	38.8 -77.0	0	1059	soil	6390	199	N1-F2
Greenbriar (WVa)	38.0 -80.3	1000	1010	soil	5830	182	G4
Sandstone f. (WVa)	38.0 -81.0	600	1023	soil	3270	102	G4
North Carolina							
Bluff Mt	36.4 -81.6	1342	1296	soil	5570	173	G4
Raleigh SURE 8	36.0 -79.0	120	1162	soil	4480	140	G4
Tennessee							
Oak Ridge	36.0 -84.3	(400)	1317	soil	7390	230	O2
Pulaski SURE 6	35.2 -87.0	200	1317	soil	4170	130	G4
ATLANTIC OCEAN							
Madeira Island							
station A	32.7 -17.0		1186	soil	1596	50	C8
station C	32.7 -17.0		1186	soil	2394	72	C8
station D	32.7 -17.0		1186	soil	3420	106	C8
station E	32.7 -17.0		1186	soil	512	16	C8
Mean (n=4)						61 38	

Table III.2b (suite)

Place Name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	method	invent. (Bq.m-2)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
EUROPE							
Sweden							
Rogen	62.3 12.3	(800)	533	lichen	2020	63 11	P10
United Kingdom							
Brotherswater	54.5 -3.0		2535#	soil	5200	162	E9
Brotherswater	54.5 -3.0		2535#	soil	4780	149	A12
Blelham	54.4 -3.0		1814#	soil	3689	115	A12
Devoke Water	54.4 -3.3		1840#	soil	5616	175	A12
Germany							
Constance	47.5 9.5		1337	soil	4175	100	D8-H3
France							
Queyras (n=3)	44.7 6.9	2550		soil	4900	163	P19
Bulgaria							
Mt Moussala (Rila)			1050#				
core 1	42.1 23.5	2710		soil	4250	132	P19
core 2	42.1 23.5	2585		soil	2420	75	P19
core 3	42.1 23.5	2560		soil	3340	104	P19
core 4	42.1 23.5	2390		soil	3925	122	P19
Mean (n=4)						108 25	
Portugal							
Vagos	40.7 -8.7		1143	soil	228	7	C8
Serra da Estrela	40.3 -7.5		1101	soil	1880	58	C8
Luso	40.3 -8.5		1276	soil	570	18	C8
Sacavem A	38.8 -9.1	0	618	soil	1750	54	C8
Sacavem B	38.8 -9.1	0	618	soil	847	25	C8
Sacavem C	38.8 -9.1	0	618	soil	1527	46	C8
Mean (n=3)						42 15	
Arrabida	38.5 -9.0		650	soil	2430	73	C8
Beja	38.0 -7.9		587	soil	1140	35	C8
Azinhal	37.3 -7.5		526	soil	1026	32	C8
Conceicao-Tavira	37.1 -7.6		500	soil	980	31	C8
ASIA							
Japan							
Hakodate HAP-78	41.7 140.7	0	1266	soil	14000	430	K12
Fuchu FU-76	35.7 139.5		1481	soil	5700	180	K12
Shiga SAT-76	35.1 135.9		1778	soil	8000	250	K12
China							
Sheng County	29.4 120.6		1468	soil	10600	330	X1
Sanmen County	29.0 121.7		1346	soil	11400	355	X1
Nepal							
Singla Pass	28.2 85.2	3660		soil	9120	284	P19
AFRICA							
Cameroun							
Barombi Mbo (n=2)	4.7 9.3	310		soil	8930	278	P22
South Africa							
Durban	-29.8 31.0	0	1054	soil	3470	108	N1

Table III.2b (suite)

Place Name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	method	invent. (Bq.m-2)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
ANTARCTIC PENINSULA							
South Shetland Is.							
King George Is. 1	-62.1 -58.4		400#	lichen	121	3.8 0.1	R9
King George Is. 2	-62.1 -58.4		400#	lichen	207	6.4 0.3	R9
King George Is. 3	-62.1 -58.4		400#	moss	222	6.9 0.4	R9
King George Is. 4	-62.1 -58.4		400#	moss	346	10.8 0.4	R9
King George Is. 5	-62.1 -58.4		400#	moss	234	7.3 0.4	R9
Horseshoe Is.	-60. -60.		400#	lichen	344	10.7 0.3	R9
Livingston Is. 1	-62.6 -60.5		400#	lichen	175	5.4 0.3	R9
Livingston Is. 2	-62.6 -60.5		400#	lichen	315	9.8 0.3	R9
Livingston Is. 3	-62.6 -60.5		400#	lichen	412	12.8 0.4	R9
Livingston Is. 4	-62.6 -60.5		400#	lichen	154	4.8 0.2	R9
Livingston Is. 5	-62.6 -60.5		400#	lichen	570	17.7 0.5	R9
Livingston Is. 6	-62.6 -60.5		400#	moss	237	7.4 0.3	R9
Livingston Is. 7	-62.6 -60.5		400#	moss	263	8.2 0.3	R9
Livingston Is. 8	-62.6 -60.5		400#	moss	368	11.5 0.3	R9
Livingston Is. 9	-62.6 -60.5		400#	moss	198	6.2 0.2	R9
mean (n=15)						8.6 3.6	

Table III.2c: Flux de depot atmospherique de plomb 210 mesures dans la neige.

Place name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	method	P.O. invent. (y)	flux (Bq.m-2)	Ref.	
ARCTIC REGIONS								
Svalbard								
Isachs-Snofj-Monaco	79. 13.		1350#	w.s.l.	0.7	30	P17	
Kongsvegen-Sveabr.	78.7 13.		1130#	w.s.l.	0.7	47	P17	
Barlaupfonna	77.7 17.3		2025#	w.s.l.	0.7	150	P17	
Finstervalderbreen	77.4 15.4	600	1300#	w.s.l.	1.4	61	P17	
Amundsenissen	77.2 15.8		2530#	w.s.l.	0.7	77	P17	
Greenland								
Camp Century	77.2 -61.0	1885	320#	snow		15.5	R2-C5	
Camp Century	77.2 -61.8	1880	310#	snow	20	10.8	N5	
site 1	77. -60.	(1600)		snow	2	8.4	D11	
site 2	77. -60.	(1700)		snow	2	8.8	D11	
North Central	74.7 -39.3	2930	130#	snow	5	6.4	N5	
Summit 2	72.2 -38.8	3100		f.s.	0.12	6.6	D13	
Summit	72.2 -38.8	3100	206#	snow	2	4.1	D14	
Summit	72.2 -38.8	3100	241#	snow	5	6.4	D14	
GISP 2	72.3 -38.8	3100		snow	74	6.1	D13	
GISP 2	72.3 -38.8	3100		snow	30	5.4	D13	
GISP 2	72.3 -38.8	3100	218#	snow	133	230	7.2	D14
Station Crete	71.1 -37.3	3174	350#	snow	30	7.8	G1	
site 6	67. -42.	2500		snow	2	8.3	D11	
Dye 3	65.2 -43.5	2480	540#	snow	90	19.5	N5	
Dye 3	65.2 -43.5	2480	570#	f.s.	1	5.7	D12	
Dye 3 (site 7)	65. -43.5	2500	434#	snow	2	5.9	D11	
South Dome	63.5 -44.6			snow	30	12	K9-K13	
NORTH AMERICA								
Canada:Yukon								
St Elias Mounts	60.8 -139.5	2600	390#	snow		6.5	K2-W1	
Mt Logan	60.6 -140.5	5340	370	snow	150	470	14.5	M19
U.S.A.:Washington								
Mt Olympus	47.8 -123.7	2000	650#	snow		27	K2-W1	
Mexico								
Mt Orizaba	19.0 -97.3	5400	110#	snow		6.7	K2-W1	
Mt Popocatepetl	19.0 -98.7	4700	59#	snow		1.5	K2-W1	
SOUTH AMERICA								
Peru								
Quelccaya ice cap	-13.9 -70.8	5670	1280#	snow	7	28	P17&T11	
EUROPE								
Switzerland								
Colle Gnifetti							G5	
Core A	45.9 7.9	4450	370#	snow	150	25		
Core B	45.9 7.9	4450	320#	snow	150	21		
Core C	45.9 7.9	4450	330#	snow	150	22		

Table III.3 (suite)

Place Name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	collector type	depth (m)	invent. (Bq.m-2)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
U.S.A.: East								
New England								
Little lg pond (Ma)	45. -69.			lake		13170	410	D7
E.Richardson p.(Ma)	45. -69.			lake		5590	174	D7
Second pond (Ma)	45. -69.			lake		4960	154	D7
Klondike pond (Ma)	45. -69.			lake		4770	149	D7
Mountain pond 1(Ma)	45. -70.			lake		4550	142	D7
Mountain pond 2(Ma)	45. -70.			lake		1890	59	D7
Ledge pond (Ma)	45. -69.			lake		1630	51	D7
Speck pond (Ma)	45. -69.			lake		3850	120	D7
Unnamed pond (Ma)	45. -69.			lake		2810	88	D7
Tumbledown p.(Ma)	45. -69.			lake		2700	84	D7
Branch pond (Verm)	44. -72.			lake		4110	128	D7
Solitude pond (NH)	44. -71.			lake		2400	75	D7
Carter pond (NH)	44. -71.			lake		2330	73	D7
Dream lake (NH)	44. -71.			lake		1520	47	D7
Mirror lake (NH)	44. -72.			lake		18720	583	E2-V1
Fitchburgh 85-1	42.5 -71.8	(200)	1122	lake		4280	133	B13
Fitchburgh 85-2	42.5 -71.8	(200)	1122	lake		5230	163	B13
East Haven (Conn.)	41.3 -72.9	0	1106	s.marsh		5350	167	B1
Farm river K.(Conn)	41.5 -73.		1106	lake		4280	133	T2-M2
Farm r.s.marsh (-)	41.5 -73.		1106	s.marsh		5350	167	T2-M13
New York								
Adirondack Park:								
Carry Falls Res.	44.4 -74.7		1023	lake		7400	230	24 K11
Cranberry lake	44.2 -74.8		1023	lake		6960	217	20 K11
Stillwater Res.	43.9 -75.0		1187	lake		14400	448	K11
Woods lake	43.9 -75.0		1187	lake		2370	74	8 K11
Sagamore lake	43.8 -74.8		1187	lake		2000	62	6 K11
Darts lake	43.8 -74.9		1187	lake		7590	236	23 K11
Tamarack lake	43.3 -74.9		1142	lake		1300	40	K11
mean (n=7)							164	88
Long Island marsh 1	41.0 -72.5	10	978	s.marsh		2220	69	A6
Long Island marsh 2	41.0 -72.5	10	978	s.marsh		2130	66	A6
Wisconsin								
Trout lake	46.0 -89.4	(500)	782	lake		3430	106	K2
lake Mendota	43.0 -89.2	(200)	823	lake		1720	53	K2
Ohio								
lake Rockwell 1	41.2 -81.3	(300)	979	lake		90000	2800	M16
Virginia-Delaware-Maryland								
Delaware marsh(Del)	39.5 -75.6	0	1070	s.marsh		3740	117	O2
Chesapeake bay								
Upper bay	39. -76.	0	1109	est.		11200	345	H5
Middle bay	38. -76.	0	1084	est.		5700	177	H5
Lower bay	37. -76.	0	1187	est.		5300	168	H5
Potomac estuary								
core 17	38.8 -77.0	0	1059	est.		59700	1860	B3
core 10	38.5 -77.0	0	1050	est.		8830	275	B3
core 11	38.5 -77.3	0	1023	est.		18450	575	B3
core 5	38.3 -76.8	0	1050	est.		3210	100	B3
core 7	38.3 -76.9	0	1050	est.		37600	1170	B3
core 3	38.2 -76.8	0	1050	est.		12850	400	B3
core 4	38.2 -76.8	0	1050	est.		15100	470	B3
core 1	38.0 -76.3	0	1093	est.		1860	58	B3

Table III.3 (suite)

Place Name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	collector type	depth (m)	invent. (Bq.m-2)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
Wallops Is.(n=3)								
James river m. (Va)	37.1 -77.6	10	1076	s.marsh		>6050	>188	O2
Back marsh (Va)	36.9 -76.0	0	1187	s.marsh		6800	212	O2
Florida								
9 lakes mean	28. -82.		1353	lake		5460	170	B4
CENTRAL AMERICA								
Mexico								
Guaymas basin	27. -111.	0		mar.		3950	123	R2-B12
Mazatlan slope	22. -108.	0		mar.		5880	183	R2-B12
Mitla lagoon	17.0 -100.3	0	1299	lag.		6800	212	P1
ATLANTIC OCEAN								
North Atlantic								
#W. European basin (20.W)								
core 11898#2	15 59.0 -20.2	0	1286	d.o.	2790	4750	148	T7
core 11896#3	14 58.7 -19.5	0	1254	d.o.	1756	1910	60	T7
core 11891#2	11 55.2 -20.3	0	1577	d.o.	2080	3210	100	T7
core 11889#4	9 53.7 -21.3	0	1460	d.o.	3275	7160	223	T7
core 11886#4	8 52.5 -22.2	0	1398	d.o.	4005	7900	246	T7
core 11884#2	7 51.7 -22.6	0	1329	d.o.	2365	1830	57	T7
core 11882#3	5 50.7 -21.8	0	1314	d.o.	3547	4110	128	T7
core 11882#5	5 50.7 -21.8	0	1314	d.o.	3560	5110	159	T7
core 11881#4	4 49.8 -21.2	0	1168	d.o.	4067	4300	134	T7
core 11880#5	3 47.8 -19.7	0	1080	d.o.	4540	4010	125	T7
core 11878#4	1 47.2 -22.5	0	1112	d.o.	3945	2920	91	T7
mean (n=11)							134	60
Bay of Biscay								
core KG 162	47.5 -8.7	0	990	mar.	2110	2670	83	T3-M4
core KG 167	47.5 -9.2	0	985	mar.	2825	5000	156	T3-M4
core KG 182	47.5 -9.2	0	985	mar.	2810	2670	83	T3-M4
mean (n=3)							107	42
Golfe de Gascogne								
core KTB 88	44.8 -2.1	0	715	c.m.	445	27780	865	R10
core KTB 109	44.8 -2.2	0	715	c.m.	880	25690	800	R10
core KJ 21	44.7 -2.4	0	715	c.m.	2000	12420	387	R10
core KTB 71 (n=2)	44.7 -2.3	0	715	c.m.	2300	22400	698	R10
core KTB 61	44.7 -2.6	0	700	c.m.	2985	9045	282	R10
core KTB 62	44.7 -2.6	0	700	c.m.	2985	13809	430	R10
mean (n=7)							594	239
#N.W. Atlantic continental margin								
core 83-G-9 AK	40.5 -70.9	0	1023	c.m.	78	13300	415	B20
core 83-G-9 LVA	40.5 -70.9	0	1023	c.m.	78	12700	394	B20
core 83-G-9 BK	39.8 -70.9	0	856	c.m.	1250	15200	472	B20
core 83-G-9 CK	39.2 -70.7	0	754	c.m.	2700	8000	249	B20
core 83-G-9 LVC	39.2 -70.7	0	754	c.m.	2700	3500	109	B20
core Oc:152 LVF	39.9 -70.9	0	856	c.m.	500	8330	260	B20
core Oc:152 LVE	39.8 -70.9	0	856	c.m.	1200	12000	373	B20
core Oc:86 G	39.0 -72.2	0	669	c.m.	1935	6000	187	B20-S11
core Oc:86 F	38.8 -71.8	0	649	c.m.	2600	7330	228	B20-S11
core Oc:86 E	38.2 -71.5	0	731	c.m.	2975	4830	151	B20-S11
core Oc:86 D	37.6 -71.0	0	895	c.m.	3950	5500	171	B20-S11

Table III.3 (suite)

Place Name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	collector type	depth (m)	invent. (Bq.m-2)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
N.W.Atlant.slope	39.1 -70.9	0	754	c.m.	152		27	F3-B6
Central ridge 527-3	36.8 -33.3	0	1017	mar.	2705	13000	405	T3-N2
#Madeira abyssal plain								
core 161	34.9 -20.5	0	547	d.o.	5161	5500	171	T3-K5
core 11145#1	32.2 -24.7	0	496	d.o.	5400	1670	52	T3
core 11334#1	31.5 -24.4	0	434	d.o.	5400	3330	104	T3
core 11137#3	31.5 -24.8	0	464	d.o.	5400	2170	68	T3
core 11333#1	31.3 -25.3	0	480	d.o.	5400	3830	119	T3
core 11143#1	31.2 -25.2	0	480	d.o.	5400	3000	93	T3
mean (n=6)							101	42
#Hatteras Abyssal plain								
core 77-6-4	30. -71.	0		d.o.		3330	104	T3-S3
core 77-6-2	26. -72.	0		d.o.		3330	104	T3-S3
#Cape Verde Abyssal plain								
core 76-4-11	22. -27.	0		d.o.	5030	2830	88	T3-S3
core 76-4-10	21. -25.	0		d.o.	4660	2170	68	T3-S3
core 76-4-9	17. -23.	0		d.o.	3374	4830	150	T3-S3
mean (n=3)							102	43
Puerto Rico trench	20. -67.	0		d.o.	8100	1330	41	T3-S3
Venezuela basin								
core 2A	15.2 -69.3	0	788	d.o.	3950	2830	88	T3-L1
core 2B	15.2 -69.3	0	788	d.o.	3950	2500	78	T3-L1
core 2C	15.2 -69.3	0	788	d.o.	3950	3000	93	T3-L1
mean (n=3)							86	7

EUROPE								
SCANDINAVIA-FINLAND								
Finland								
Laukunlampi	62.4 29.1		606	lake	<26	7590	240	A2-A3
Lovojarvi	61.9 25.9		621	lake	<17	7440	233	A2-A3
Paajarvi	61.0 25.1		630	lake	<87	9070	280	A2-A3
Kununniemensuo bog	62.1 30.2		611	p.bog	4	1785	56	E4-E7
Karjausuo bog	61.7 25.3		604	p.bog	4	1445	44	E4-E7
Takakillo				lake		2600	81	O3
Norway								
Spongatjern				lake		5365	167	D7
Fiskeloyse				lake		4590	143	D7
Botnavatn				lake		4220	131	D7
Oyste Branalsvatn				lake		4140	129	D7
Hovvatn		493		lake		4030	125	D7
Blavatn				lake		3590	112	D7
Holmvatn		676		lake		3590	112	D7
Dorsvatn				lake		3550	111	D7
Oyusvatn		748		lake		3290	102	D7
Bravatn				lake		3030	94	D7
Oppljosvatn				lake		3000	93	D7
Svinstolvatn				lake		2960	92	D7
Gronlinvatn		514		lake		2630	82	D7
mean (n=13)							115	24

Table III.3 (suite)

Place Name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	collector type	depth (m)	invent. (Bq.m-2)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
Sweden								
1. Tunturijarvi	68. 21.			lake		436	950	30 E4
1. Nattajarvi	67. 21.			lake		461	1430	44 E4
1. Ala Makkarijarvi	67. 21.			lake		461	2380	74 E4
1. Ellisjaur	66. 19.			lake		493	3080	96 E4
1. Sarvatj	66. 20.			lake		527	1890	59 E4
1. Rensjon	64. 16.			lake		521	1190	37 E4
1. Vaster-Tackelsjon	63. 16.			lake		499	2020	63 E4
1. Ramsjon	62. 16.			lake		542	2500	78 E4
1. Karsvattnet	62. 15.			lake		589	1070	33 E4
1. Uggsjon	61. 15.			lake		602	4400	137 E4
1. Bjorken	60. 15.			lake		670	1890	59 E4
1. Saxen	60. 14.			lake		722	710	22 E4
1. Skarvsjon S1	58. 14.			lake		627	3080	96 E4
1. Skarvsjon S2	58. 14.			lake		627	1070	33 E4
1. tussjon	57. 13.			lake		798	120	4 E4
1. Hallsjon	56. 15.			lake		523	2860	89 E4
1. Sannen	56. 15.			lake		523	3920	122 E4
1. Krageholmsjon	55.7 13.5	43		lake	7	612	6290	196 19 S8
1. Havgardssjon BPM	55.5 13.3	51		lake		600	6070	189 E4
1. Havgardssjon B	55.5 13.3	51		lake	4	594	4170	130 D10
1. Havgardssjon C3	55.5 13.3	51		lake	5	594	4270	133 D10
Norbotten F II	65. 18.			sed		545	830	26 11 E4
Norbotten Fen III	65. 18.			sed		545	480	15 E4
Vasterbotten F I	64. 16.			sed		521	1430	44 15 E4
Frierfjorden F1	59. 9.	0	1010	fjord			5940	185 15 E4
Frierfjorden F6	59. 9.	0	1010	fjord			8320	259 22 E4
Edsviken bay (B.S.)	59. 18.	0	492	bay			4170	130 11 E4
Edsviken bay	59. 18.	0	492	bay			4050	126 19 D10
Gullmarsfjorden C3	58.5 12.	0	723	fjord			7130	222 15 E4
Gullmarsfjorden C1	58.5 12.	0	723	fjord			7260	226 11 E4
Stenungsund s. A3	58. 13.	0	758	mar.			1890	59 E4
Stenungsund s. HgI	58. 12.	0	741	mar.			4620	144 E4
Stenungsund s. HgII	58. 12.	0	741	mar.			3080	96 E4
Skaggerak	58. 10.	0	612	mar.			6550	204 15 E4
Shore mosse bog H1	57. 14.			p.bog			1190	37 4 E4
Shore mosse bog H2	57. 14.			p.bog			2380	74 7 E4
Baltic Sea		0		mar.			5360	167 R2-B12
Denmark								
Skallingen penins.1	55.5 8.3	0	704	s.marsh			6420	200 P2
Skallingen penins.2	55.5 8.3	0	704	s.marsh			5360	167 P2
Varde river estuary	55.5 8.3	0	704	est.			17000	530 P2
Raised bog	55. 9.	0	774	p.bog			3950	123 P2
Bornholm basin	55. 14.	0	560	mar.	73		4820	150 P2
WEST EUROPE								
United Kingdom								
Rostherne M. RM11	52. -1.			lake			2380	74 A2
Rostherne M. N79	52. -1.			lake			2020	63 A2
Newton Mere	52. -1.			lake			2020	63 A2
Llyn Peris A	52. -3.5			lake			14450	450 A2-E6
Llyn Peris B	52. -3.5			lake			15740	490 A2-E6
Llyn Padarn A	52. -3.5			lake			2150	67 O3
Llyn Padarn E	52. -3.5			lake			5940	185 O3

Table III.3 (suite)

Place Name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	collector type	depth (m)	invent. (Bq.m-2)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
Ireland								
Lough Neagh B43	54.6 -6.4		961	lake		3790	118	O3-B11
lake Augher	54.5 -7.2	(70)	1020	lake		4820	150	A2-O1
Lower l.Erne SM1	54.5 -7.7		1091	lake		7710	240	A2-O1
Lower l.Erne FM1	54.5 -7.7		1091	lake		7060	220	A2-O1
Upper l.Erne FM2	54.3 -7.5		1020	lake		5460	170	A2-O1
Bellacorick bog 1	54.2 -9.5	90	1444	p.bog		3568	111	M12
Bellacorick bog 2	54.2 -9.5	90	1444	p.bog		3441	107	M12
Clara bog	53.3 -7.7	50	818	p.bog		1728	54	M12
Kippure bog (n=3)						65	17	M12
core 1	53.2 -6.3		900	p.bog		1480	46	M12
core 2	53.2 -6.3		900	p.bog		2396	71	M12
core 3	53.2 -6.3		900	p.bog		2548	79	M12
North Sea	54. 4.	0	733	mar.		1380	43	Z1
Belgium								
lake Mirwart (n=3)							120	4 A2-O4
core 1	50.0 5.3	200	994	lake		3920	122	A2-O4
core 2	50.0 5.3	200	994	lake		3690	115	A2-O4
core 3	50.0 5.3	200	994	lake		3920	122	A2-O4
Switzerland								
lake Constance 1			1337					
core ROM1	47.5 9.5	395		lake		2340	73	D8
core SM1	47.5 9.5	395		lake		2630	82	D8
core SM2	47.5 9.5	395		lake		2830	88	D8
core AR1	47.5 9.5	395		lake		6580	205	D8
core LA3	47.5 9.5	395		lake		6170	192	D8
core KT1	47.5 9.5	395		lake		2020	63	D8
core KT2	47.5 9.5	395		lake		4340	135	D8
mean (n=7)						120	59	
lake Constance 2	47.5 9.5	395	1337	lake		5620	175	22 V3-V4
Greifensee	47.3 8.7	400	1371	lake		1770	55	5 W4
lake Zurich		406	1371					
Tiefenbrun. (n=2)	47.2 8.7			lake	34	6940	216	V3
center lake (n=3)	47.2 8.7			lake	135	9560	298	V3
Herrliberg	47.2 8.7			lake	111	13000	405	V3
Oberrieden	47.2 8.7			lake	105	9550	297	V3
E.core 1	47.2 8.7			lake	61	3020	94	V3-E8
E.core 2	47.2 8.7			lake	61	2680	83	V3-E8
M.Tiefenbrunnen	47.2 8.7			lake	34	6420	200	V3-M11
M.center of lake	47.2 8.7			lake	135	11240	350	V3-M11
mean (n=11)						250	100	
lake Lucerne	47.0 8.3	434	1486	lake		3210	100	B2
lake Geneva	46.3 6.2	372	1218	lake		2300	71	K2-K3
lake Major	46. 8.5	194	1333	lake	100	3350	104	V2
France								
lac Pavin	45.9 2.8	1197	1034	lake		7000	217	K2-K3
lac Noir d'Emparis	45.0 6.3	2440		lake	6	3530	110	P3
tourbiere du lait	45.0 6.3	2190		p.bog	2	3530	110	P3
lac Lerie	45.0 6.3	2400		lake	2	5460	170	P3
Etang de Thau C1	43.4 3.6	0		lake	5	6210	193	M27
Etang de Thau C2	43.4 3.6	0		lake	5	4280	133	M27
Etang de Thau C3	43.4 3.6	0		lake	5	4175	130	M27
Etang de Thau C4	43.4 3.6	0		lake	5	5730	178	M27
Etang du Canet C1	42.7 3.0	0	641	lake	1	10020	310	D1
Etang du Canet C2	42.7 3.0	0	641	lake	1	3760	120	D1

Table III.3 (suite)

Place Name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	collector type	depth (m)	invent. (Bq.m-2)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
EAST EUROPE								
Black Sea								
station 9	42.9 31.4	0	964	mar.	2094	9020	281	C1
station 18	42.5 37.6	0	1035	mar.	2050	3210	100	C1
Bulgaria								
Rila massif								
Ice-covered l. A	42.1 23.5	2709		lake	12.5	9204	286	P17
Ice-covered l. B	42.1 23.5	2709		lake	14.5	9127	283	P17
L. Ferdinand II D	42.1 23.5	2577		lake	5.6	11923	370	P17
L. Alekovo F	42.1 23.5	2545		lake	8.6	9685	301	P17
mean (n=4)						310	41	
Albania-Ex-Yugoslavia								
lake Ohrid	42.2 19.3	10	2153	lake		2250	70	R2
MEDITERANNEAN SEA								
Golfe du Lion								
core BF9	43.2 4.8	0	559	c.m.	95	19160	597	R10
core R2	42.6 3.2	0	641	c.m.	56	12310	383	R10
core CZ	43.0 3.4	0	641	c.m.	79	13755	428	R10
core S3	42.4 3.7	0	608	c.m.	766	11720	365	R10
core CYANECO	42.4 3.6	0		c.m.	1000	19270	600	R10
core R5	42.4 3.9	0	608	c.m.	1584	6904	215	R10
mean (n=6)						431	148	
Golfe du Lion ETR1	42.6 4.9	0	517	mar.	1738	2330	73	Y1
Golfe du Lion ETR2	42.0 5.1	0	596	mar.	2200	500	16	Y1
Central Plain GYW	40.6 7.2	0	440	mar.	2780	< 170	< 5	Y1
Gulf Valencia ETE	40.1 1.7	0	490	mar.	1700	2330	73	Y1
Sardaigne Sud SR5	38.4 9.4	0	608	mar.	2094	1000	31	Y1
Alboran sea SRG2	36.3 0.1	0	386	mar.	2600	13300	415	Y1
AFRICA								
Marocco								
dayat Affougah	33.8 -6.2	330	396	lake	11	3700	115	F1
dayat-es-Roumi	33.7 -4.8	1400	1100	lake	14	6440	200	F1
lac Azigza	32.8 -5.3	1800	850	lake	30	6920	215	F1
Cameroun								
l.Bini	7.5 13.5	1079	1612	lake	2	14400	447	P9
l.Mbalang(n=2)	7.3 13.7	1130	1612	lake	50	450	12	P9
l.Tizong (n=2)	7.3 13.7	1160	1612	lake	48	10950	340	P9
l.Gegouba (n=2)	7.2 13.7	1180	1612	lake	50	7100	220	P9
l.Wum (n=2)	6.5 10.0	1197	2253	lake	45	1150	36	P9
l.Enep (n=2)	6.3 10.0	697	2253	lake	104	2150	67	P9
l.Illum	6.3 10.0	960	2253	lake	50	4600	143	P9
l.Oku	6.2 10.5	2227	1998	lake	52	3780	117	P9
l.Bamboulouwe (n=9)			2053			2227	255	
cores 1 (n=3)	5.8 10.2			lake	28	14400	448	P9
cores 2 (n=2)	5.8 10.2			lake		8450	263	P9
cores 5 (n=2)	5.8 10.2			lake	-	3650	113	P9
cores 6 (n=2)	5.8 10.2			lake	-	6200	193	P9

Table III.3 (suite)

Place Name #	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	collector type	depth (m)	invent. (Bq.m-2)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
l.Menene	5.7 10.5		2015	lake	15	4500	140	P9
l.Nefo	5.7 10.5	1100	2015	lake	64	9550	297	P9
l.Petponoum	5.7 10.7	1120	2015	lake	12	5700	177	P9
l.Baleng	5.5 10.5	1374	2139	lake	52	1510	47	P9
l.Barombi (centre)	4.7 9.3	301	2852	lake	110	2370	74	P9
l.Barombi (bord, n=3)	4.7 9.3	301	2852	lake	-	8060	251	P9
l.Ossa	3.8 10.0	1	2605	lake	10	3060	95	P9

ASIA

RUSSIA: SIBERIA

lake Baikal	Alt. (m)	prec. (mm)	collector type	depth (m)	invent. (Bq.m-2)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
station 10	60.0 107.8	294	m.l.	1300	2700	84	E1
station 8	53.9 108.4	286	m.l.	930	5100	159	E1
station 7	53.5 108.0	294	m.l.	230	4700	146	E1
station 6	53.2 107.8	260	m.l.	1710	4300	134	E1
station 9	52.9 107.9	261	m.l.	900	3400	106	E1
station 5	52.4 106.0	303	m.l.	600	3100	97	E1
station 4	52.4 106.2	303	m.l.	100	1100	34	E1
station 3	52.4 106.1	303	m.l.	280	1400	44	E1
station 1	51.8 104.5	494	m.l.	1340	960	30	E1
station 2	51.7 105.2	460	m.l.	1510	1300	40	E1
mean (n=10)						87	49

SOUTH-EAST ASIA

Japan	Alt. (m)	prec. (mm)	collector type	depth (m)	invent. (Bq.m-2)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.	
lake Suigetsu	35.5 135.8	0	1778	lake	30	18600	580	M5
lake Nakaumi	35.5 133.3	0	1666	lake	<5	20800	650	M5
lake Shinji		0	1666					
core 15G	35.5 133.0			lake	(5)	5140	160	M5
core 49L	35.5 133.0			lake	(5)	8030	250	M5
core 40L	35.5 133.0			lake	(5)	11560	360	M5
core 30E	35.5 133.0			lake	(5)	9950	310	M5
mean (n=4)							270	86
lake Biwa		85						
core 2P	35.3 136.2		2039	lake	90	4500	140	M5
core 3E	35.0 136.0		1822	lake	<5	1280	40	M5

China

Changjiang estuary	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	collector type	depth (m)	invent. (Bq.m-2)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
core G16	32.5 126.0	0	1360	est.		6740	210	X1
core G15	32.3 125.5	0	1210	est.		6420	200	X1
core G14	32.0 124.8	0	996	est.		4500	140	X1
core G24	31.7 126.0	0	1406	est.		7390	230	X1
core C2-2	31.2 122.4	0	922	est.		4820	150	X1
core G9	31.2 123.0	0	796	est.		5140	160	X1
core G4	31.0 122.5	0	783	est.		52300	1630	X1
core G5	31.0 123.0	0	717	est.		36000	1120	X1
core G11	31.0 123.2	0	717	est.		7390	230	X1
core G20	29.7 125.0	0	1585	est.		9150	285	X1
core G21	29.4 125.6	0	1960	est.		8030	250	X1

Table III.3 (suite)

Place Name	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	collector type	depth (m)	invent. (Bq.m-2)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
Zhujiang estuary								
ZHU 5	22.5 113.7	0	1936	est.		120000	3725	M1
ZHU 7	22.5 113.7	0	1936	est.		16000	500	M1
ZHU 10	22.5 113.7	0	1936	est.		10000	300	M1
Jinzhou bay BO 1		0		bay		14400	449	M1

MIDDLE EAST

Israel	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	collector type	depth (m)	invent. (Bq.m-2)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
lake Kinneret	32.8 35.5	-209	412	lake		1000	30	I1

SOUTH AMERICA

Bolivia

Lake Titicaca	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	collector type	depth (m)	invent. (Bq.m-2)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
core LK1	-16.2 -68.9	3810	774	m.l.	11	364	11	P11
core LK2	-16.2 -68.9	3810	774	m.l.	2	1761	55(111)*	P11
core HJ1	-16.2 -68.7	3810	774	m.l.	4	2145	73(96)*	P11
core HJ2	-16.2 -68.7	3810	774	m.l.	1	2193	69(148)*	P11
core SJ1	-16.4 -69.0	3810	774	m.l.	7	292	9(25)*	P11
core SJ2	-16.4 -69.0	3810	774	m.l.	5	1958	62(96)*	P11
Lukurmata	-16.4 -68.8	3810	774	m.l.	2	1500	47(90)*	B27
Ichu Kkota valley								
core IK0	-16.2 -68.3	4300		p.bog		1310	40	P12
core IK1	-16.2 -68.3	4310		lake		5220	162	P12
core IK2	-16.2 -68.3	4450		lake		4730	147	P12
core IK3	-16.2 -68.3	4690		lake		0	0	P12
core IK4	-16.2 -68.3	4810		lake		0	0	P12
Ovejuyo	-16.2 -68.3	4000		p.bog		2570	80	P13
Siberia	-18. -65.	2500		p.bog		3290	102	P13

ANTARCTIC REGIONS

South Orkney Is.

Signy Island	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	collector type	depth (m)	invent. (Bq.m-2)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
Moss lake	-60.7 -45.6	48	268#	lake	10	1043	32 2	A11
Sombre lake	-60.7 -45.6	10	268#	lake	11	4410	137 4	A11
Heywood lake	-60.7 -45.6	4	268#	lake	5	1270	40 2	A11
mean (n=3)							70 58	

South Shetland Is.

Horseshoe Island	Location Lat. Long.	Alt. (m)	prec. (mm)	collector type	depth (m)	invent. (Bq.m-2)	flux (Bq.m-2.y-1)	Ref.
Lake Skua	-60. -60.			lake	1	40	1.2	R9
Lake Zano	-60. -60.			lake	5	280	8.7	R9
Livingston Island								
Lake Asa	-62.6 -60.5			lake	1	120	3.7	R9

* For the lake Titicaca, fluxes written between brackets are calculated through the followed relation: $F = rCs$.
Where 'r' is the sedimentation rate and 'Cs' is the 210Pb concentration at the water-sediment interface (see Pourchet & Al. (1994)).

Références de la base de données

- A2** Appleby, P. G. and F. Oldfield. (1983). "The assessment of ^{210}Pb data from sites with varying sediment accumulation rates." *Hydrobiologia*, **103**: 29-35.
- A3** Appleby, P. G., F. Oldfield, R. Thomson, P. Huttunen, and K. Tolonen. (1979). " ^{210}Pb dating of annually laminated lake sediments from Finland." *Nature*, **280**: 53-55.
- A6** Armentano, T. V. and G. M. Woodwell. (1975). "Sedimentation rates in a Long Island marsh determined by ^{210}Pb -dating." *Limnol. Oceanogr.*, **20**: 452-456.
- A9** Abe, M. and S. Abe. (1978). "Trends of the chemical state of polonium-210 in the atmosphere." N.R.E. III, p. 430-439, April 23-28, Houston, Texas, United States
- A10** Asikainen, M., L. Blomqvist, and K. Sinkko. (1977). Radionuclides in ground-level air. Studies on environmental radioactivity in Finland, 1971-1975. Report n° STL-A21, pp. 7-20, Institute of Radiation Protection, Helsinki, Finland.
- A11** Appleby, P. G., V. J. Jones, and J.C. Ellis-Evans. (1995). "Radiometric dating of lake sediments from Signy Island (maritime Antarctic): evidence of recent climatic change." *J. Paleolimnol.* **13**: 179-191.
- A12** Appleby, P. G..(1995). Personal Communication.
- B1** Benninger, L. K., D. M. Lewis and K. K. Turekian. (1975). The use of natural ^{210}Pb as a heavy metal tracer in river-estuarine systems. In Marine chemistry in the coastal environment, Symp. Ser. 18, T.M. Church (Ed), pp. 201-210, American Chemical Society, New York.
- B2** Bloesch, J. and R. D. Evans. (1982). "Lead-210 dating of sediments compared with accumulation rates estimated by natural markers and measured with sediment

traps." *Hydrobiologia*, **92**: 586-597.

B3 Brush, G. S., E. A. Martin, R. S. Defries, and C. A. Rice. (1982). "Comparisons of ^{210}Pb and pollen methods for determining rates of estuarine sediment accumulation." *Quatern. Res.*, **18**: 196-217.

B4 Binford, M. W. and M. Brenner. (1986). "Dilution of ^{210}Pb by organic sedimentation in lakes of different trophic states, and application to studies of sediment-water interactions." *Limnol. Oceanogr.*, **31**(3): 583-595.

B6 Biscaye, P. E., R. F. Anderson, and B. L. Deck. (1988). *Cont. Shelf Res.*, **8**: 855-904.

B7 Benninger, L. K. (1976). The Uranium-series radionuclides as tracers of geochemical processes in Long Island Sound. Ph.D. Thesis, Yale University, New Haven, Conn., United States.

B8 Benninger, L. K. (1978). " ^{210}Pb balance in Long Island Sound." *Geochem. Cosmochem. Acta*, **42**: 1165-1174.

B10 Baskaran, M., C. H. Coleman, and P. H. Santschi. (1993). "Atmospheric deposition fluxes of ^7Be and ^{210}Pb at Gavelston and College Station, Texas." *J. Geophys. Res.*, **98**(D11): 20555-20571.

B11 Battarbee, R. W. (1978). "Observations on the recent history of Lough Neagh and its drainage basin." *Phil. Trans. R. Soc. B.*, **281**: 303-345.

B12 Bruland, K. W. (1974). Pb-210 geochronology in the coastal marine environment. Ph.D. Diss., University of California, San Diego, United States.

B13 Benoit, G. and H. F. Hemond. (1991). "Evidence for diffusive redistribution of ^{210}Pb in lake sediments." *Geochem. Cosmochem. Acta*, **55**: 1963-1975.

B14 Baranov, V. I. and V. D. Vilenskii. (1965). " Pb-210 in the atmosphere and in fallout." *Sov. Atom. Energy*, **18**: 645-648.

B15 Bonnyman, J., and J. Molina-Ramos. (1971). Concentrations of lead-210 in rain-water in Australia during the years 1964-1971. *Tech. Rep. CXRL/7*, Commonwealth X-ray and Radium Laboratory, Melbourne, Australia .

B19 Bhandari, N. and V. N. Nijampurkar. (1981). Radiometric chronology of some himalayan glaciers. Symposium on variations in global water budget, Oxford, United Kingdom.

B20 Buesseler, K. O., H. D. Livingston, and E. R. Sholkovitz. (1985-86). " $^{239,240}\text{Pu}$ and excess ^{210}Pb inventories along the shelf and slope of the Northeast U.S.A." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **76**: 10-22.

B26 Bonnymann, J., J.C. Duggleby, and J. Molina-Ramos. (1971). "The concentrations of radioactive isotopes in Australian surface air during the period may 1965 - may 1970." *Techn. Rep. CKRL/5*, Commonwealth X-ray and Radium Laboratory, Melbourne, Australia.

B27 Binford, M. W., M. Brenner, and D. R. Engstrom. (1991). Patrones de sedimentacion temporal en la zona litoral del Huinamarca. In El lago Titicaca, C. Dejoux and A. Iltis (Eds), pp. 47-58, ORSTOM-Hisbol, La Paz, Bolivia.

B28 Brunskill, J. G., and P. Wilkinson. (1987). "Annual supply of U238 , U234 , Th230 , Ra226 , Pb210 , Po210 and Th232 to lake 239 (ELA, Ontario) from terrestrial and atmospheric sources." *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, **44**: 215-230.

C1 Crusius, J. and R. F. Anderson. (1992). "Inconsistencies in accumulation rates of Black Sea sediments inferred from records of Laminae and ^{210}Pb ." *Paleoceanography*, **7**(2): 215-227.

C2 Coale, K. H., and K. W. Bruland. (1986). Dynamic processes in the chemistry of the upper ocean. J.D. Burton, P.G. Brewer, and R. Chasselet (Eds), pp.159-172, Plenum, New York.

C3 Crozaz, G., E. Piccioto, and W. De Breuck. (1964). "Antarctic snow chronology with Pb-210." *J. Geophys. Res.*, **69**: 2594-2604.

C4 Crozaz, G., and P. Fabri. (1966). "Mesure du polonium a l'échelle de 10^{-13} Curies, traçage par le ^{208}Po et application a la chronologie des glaces." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **1**: 446-448.

C5 Crozaz, G., and C. C. Langway Jr. (1966). "Dating Greenland firn ice core with Pb-210." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **1**: 194-196.

C7 Crozaz, G.. (1967). Mise au point d'une méthode de datation des glaciers basée sur la radioactivité du plomb-210. Ph. D. Thesis, Université Libre de Bruxelles, Bruxelles, Belgium.

C8 Carvalho, F. P. (1990). Contribution a l'étude du cycle du polonium-210 et du plomb-210 dans l'environnement. Thèse de doctorat, Université Sophia-Antipolis, Nice, France.

C9 Christensen, E. R., and P. K. Bhunia. (1986). "Modeling radiotracers in sediments: Comparison with observations in lakes Huron and Michigan." *J. Geophys. Res.*, **91**(C7): 8559-8571.

C10 Clifton, R. J..(1991). The use of radionuclides (unsupported ^{210}Pb , ^7Be and ^{137}Cs) in describing the mixing characteristics of estuarine sediments. In Radionuclides in the study of marine processes, P.J. Kershaw and D.S. Woodhead (Eds), pp. 255-264, Elsevier Sci., New York.

C12 Carpenter, R., J. T. Bennett, and M. L. Peterson. (1981). ^{210}Pb activities in and

fluxes to sediments of the Washington continental slope and shelf." *Geochem. Cosmochem. Acta*, **45**(7): 1155-1172.

C13 Cambray, R. S., K. Playford, G. N. J. Lewis, and R. C. Carpenter. (1989). Radioactive fallout in air and rain: results to the end of 1987. AERE Report n° 13226, UKAEA Harwell, United Kingdom.

C14 Calmet, D.. (1996). Données IPSN/DPRE/SERE/LMRE, Commissariat a l'Energie Atomique (C.E.A.), Orsay, France.

D1 DeConinck, J. N., M. Bernat and B. Chassefiere. (1983). "Etude des isotopes de U, Th et du Pb-210 dans les sédiments de l'étang de Canet (Pyrennee-Orientales)." *Oceanol. Act.*, **6**(2): 131-138.

D2 Durham, R. W., and S. R. Joshi. (1981). "Sedimentation rates in Western Nipigon bay, Lake Superior, using the ^{210}Pb method." *Sci. Tot. Environ.*, **22**: 51-59.

D3 Durham, R. W., and S. R. Joshi. (1984). Lead-210 dating of sediment from some Northern Ontario lakes. In Quaternary dating method, pp. 75-85, W.C.Mahaney (Ed), Elsevier Sci., Amsterdam, Netherland.

D4 Durham, R. W., and S. R. Joshi. (1980). "The ^{210}Pb and ^{137}Cs profiles in sediment cores from lakes Matagami and Quevillon, Northwest Quebec, Canada." *Can. J. Earth Sci.*, **17**: 1746-1750.

D5 Dominik, J., D. Burrus, and J. P. Vernet. (1987). "Transport of the environmental radionuclides in an alpine watershed." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **84**: 165-180.

D6 Durham, R. W., and S. R. Joshi. (1980). "Recent sedimentation rates, ^{210}Pb fluxes and particle settling velocities in lake Huron, Laurentian Great lakes." *Chem. Geol.*, **31**: 53-66.

D7 Davis, R. B., C. T. Hess, S. A. Norton, D. W. Hanson, K. D. Hoagland, and D. S. Anderson. (1984). "¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb dating of sediments from soft-water lakes in New England (USA) and Scandinavia, a failure of ¹³⁷Cs dating." *Chem. Geol.*, **44**: 151-185.

D8 Dominik, J., A. Mangini, and G. Müller. (1981). "Determination of recent deposition rates in lake Constance with radioisotopic methods." *Sedimentology*, **28**: 653-677.

D10 Dearing, J. A., H. Håkanson, B. Liedberg-Jönsson, A. Persson, S. Skansjö, D. Widholm, and F. El Daoushy. (1987). "Lake sediment use to quantify the erosional response to land use change in Southern Sweden." *OIKOS*, **50**: 60-78.

D11 Dibb, J. E.. (1990). "Recent deposition of ²¹⁰Pb on the Greenland ice sheet: Variations in space and time." *Ann. Glaciol.*, **14**: 51-54.

D12 Dibb, J. E., and J. L. Jaffrezo. (1993). "Beryllium-7 and lead-210 in aerosol and snow in the Dye-3 gas aerosol and snow sampling program." *Atmosph. Env.*, **27A**(17/18): 2751-2760.

D13 Dibb, J. E.. (1990). "Beryllium-7 and lead-210 in the atmosphere and surface snow over the Greenland ice sheet in the summer of 1989." *J. Geophys. Res.*, **95**(D13): 22407-22415.

D14 Dibb, J. E.. (1992). "The accumulation of ²¹⁰Pb at Summit, Greenland, since 1855." *Tellus*, **44B**: 72-79.

D15 D'Alberti, A.. (1996). "Personnal Communication".

E1 Edgington, D. N., J. Val Klump, J. A. Robbins, Y. S. Kusner, V. D. Pampura, and I. V. Sandimirov. (1991). "Sedimentation rates, residence times and radionuclides inventories in lake Baikal from ¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb in sediment cores." *Nature*, **350**: 601-604.

E2 Evans, J. E., T. C. Johnson, E. C. Alexander Jr, R. S. Lively, and S. J. Eisenreich. (1981). "Sedimentation rates and depositional processes in lake Superior from ²¹⁰Pb geochronology." *J. Great Lakes Res.*, **7**(3): 299-310.

E3 El-Daoushy, F.. (1987). The Pb210 global cycle: dating and tracing applications. First International Summer School on "Low-level measurements and their applications to environmental radioactivity", Sept. 27 to Oct. 10, 1987, La Rabida, Andalucia, Spain.

E4 El-Daoushy, F. (1986). "Scandinavia limnology of sediments and heavy metals." *Hydrobiologia*, **143**: 267-276.

E6 Elner, J., and C. Wood. (1980). "The history of two linked but contrasting lakes in N. Wales from a study of pollen, diatoms and chemistry in sediment cores." *J. Ecol.*, **68**: 95-121.

E7 El-Daoushy, F., and K. Tolonen. (1984). "Lead-210 and heavy metal contents in dated ombrotrophic peat hummocks from Finland." *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*, **223**: 392-399.

E8 Erten, H. N., H. R. Von Gunten, E. Rössler, and M. Sturm. (1985). "Dating of sediments from lake Zurich (Switzerland) with ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs." *Schweiz. Z. Hydro.*, **47**: 5-11.

E9 Eakins, J. D., R. S. Cambray, K. C. Chambers, and A. E. Lally. (1984). The transfer of natural and artificial radionuclides to Brotherswater from its catchment. In Lake sediments and environmental history, pp.125-144, E.Y. Haworth and J.W.G.Lund (Eds), Leicester University Press.

F1 Flower, R. J., A. C. Stevenson, J. A. Dearing, I. D. L. Foster, A. Airey, B. Rippey, J. P. S. Wilson, and P. G. Appleby. (1989). "Catchment disturbance inferred from paleolimnological studies of three contrasted sub-humid environments in Marocco." *J. Paleolimnol.*, **1**: 293-322.

F2 Fisenne, I. M.. (1968). Distributions of lead-210 and radium-226 in soils. Report UCRL-18140, pp. 145-158, U.S. D.O.E., Washington.

F3 Fisher, N. S., J. K. Cochran, S. Krishnaswami, and H. D. Livingstone. (1988). "Predicting the ocean flux of radionuclides on sinking biogenic debris." *Nature*, **335**: 622-625.

F4 Füller, C., and D. E. Hammond. (1983). "The fallout rate of Pb-210 on the Western coast of the United States." *Geophys. Res. Lett.*, **10**(12): 1164-1167.

F5 Farmer, J. G.. (1978). "The determination of sedimentation rates in lake Ontario using the ²¹⁰Pb dating method." *Can. J. Earth Sci.*, **15**: 431-437.

F6 Fukuda, K., and S. Tsunogai. (1975). "Pb-210 in precipitation in Japan and implication for the transport of continental aerosols across the ocean." *Tellus*, **27**: 514-521.

F7 Feely, H. W., E. Laurence Toonkel, and J. R. Larsen. (1980). Radionuclides and trace metals in surface air. Report EML-380, Environmental Measurement Laboratory, New York.

G1 Goldberg, E. D.. (1963). Geochronology with lead-210. In *Radioactive Dating*, pp. 121-131, IAEA, Vienna, .

G2 Glöbel, B., H. Muth, and E. Oberhausen. (1965). *Strahlentherapie*, **131**: 218.

G3 Gavini, M. B., J. N. Neck and P. K. Kuroda. (1974). "Mean residence times of the long-lived radon daughters in the atmosphere." *J. Geophys. Res.*, **79**(30): 4447-4452.

G4 Graustein, W. C., and K. K. Turekian. (1986). "²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs in air and soils measure the rate and vertical profile of aerosol scavenging." *J. Geophys. Res.*, **91**:

7065-7075.

G5 Gaggeler, H., H. R. Von Gunten, E. Rössler, H. Oeschger, and U. Schotterer. (1983). "²¹⁰Pb dating of cold alpine firn/ice cores from Colle Gniffetti, Switzerland." *J. Glaciol.*, **29**(101): 165-177.

H3 Hemmerich, R.. (1980). Bestimmung des Pb-210 Flusses an Bodenprofilen. Staatsexamenarbeit, Institut für Umweltphysik, Universität Heidelberg, Deutschland.

H4 Heyraud, M.. (1982). Contribution a l'étude du polonium-210 et du plomb-210 dans les organismes marins et leur environnement. Thèse de doctorat d'Etat, p. 144, Université Pierre et Marie Curie, Paris.

H5 Helz, G. R., G. H. Setlock, A. Y. Cantillo, and W. S. Moore. (1985-86). "Processes controlling the regional distribution of ²¹⁰Pb, ²²⁶Ra, and anthropogenic zinc in estuarine sediments." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **76**: 23-34.

H6 Hermanson, M. H.. (1990). "²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs chronology of sediments from small, shallow Arctic lakes." *Geochim. Cosmochim. Acta*, **54**: 1443-1451.

H8 Hussain, N., T. Church, M. Heyraud, S. Fowler, S. Heussner, A. Monaco, P. Biscaye, and R. F. Anderson. (1990). "Systematics of radon daughters (²¹⁰Pb - ²¹⁰Po). Atmospheric fallout to coastal regions." *EOS transactions*, **73**(2): 72.

I1 Imboden, D. M., and M. Stiller. (1982). "The influence of radon diffusion on the ²¹⁰Pb distribution in lake sediments." *J. Geophys. Res.*, **87**(C1): 557-565.

J1 Joshi, L. U., and T. L. Ku. (1979). "Measurement of ²¹⁰Pb from a sediment core of the coast of California." *J. Radioanalyt. Chem.*, **52**(2): 329-334.

J3 Joshi, L. U., C. Rangarajan, and S. Gopalakrishnan. (1969). "Measurement of lead-210 in surface air and precipitation." *Tellus*, **21**: 107-112.

J6 Joshi, S. R., and M. E. Fox. (1985). "The ^{210}Pb and ^{137}Cs profiles in sediment cores from Bay of Quinte, lake Ontario." *J. Radioanalyt. Nuclear Chem.*, **90**(1): 207-215.

J7 Joshi, S. R. (1985). "Recent sedimentation rates and ^{210}Pb fluxes in Georgian Bay and lake Huron." *Sci. Tot. Environ.*, **41**: 219-233.

K2 Koide, M., A. Soutar, and E. D. Goldberg. (1972). "Marine geochronology with ^{210}Pb ." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **14**: 442-446.

K3 Krishnaswami, S., D. Lal, J. Martin, and M. Meybeck. (1971). "Geochronology of lake sediments." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **11**: 407.

K4 Koide, M., K. Bruland, and E. D. Goldberg. (1976). " ^{226}Ra chronology of a coastal marine sediment." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **31**: 31-36.

K5 Kershaw, P. J.. (1985). " ^{14}C and ^{210}Pb in NE Atlantic sediment: Evidence of biological reworking in the context of radioactive waste disposal." *J. Environ. Radioact.*, **2**: 115-134.

K9 Koide, M., R. Michel, E. D. Goldberg, M. Heron, and C. C. Langway Jr. (1979). "Depositional history of artificial radionuclides in the Ross ice shelf, Antarctica." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **44**: 205-223.

K10 Kownacka, L., Z. Jaworowski, and M. Suplinska. (1990). "Vertical distribution and flows of lead and natural radionuclides in the atmosphere." *Sci. Tot. Environ.*, **91**: 199-221.

K11 Kada, J., and M. Heit. (1992). "The inventories of anthropogenic Pb, Zn, As, Cd and the radionuclides ^{137}Cs and excess ^{210}Pb in lake sediments of the Adirondack region, U.S.A." *Hydrobiologia*, **246**: 231-241.

K12 Kurata, T., and S. Tsunogai. (1986). "Exhalation rates of ^{222}Rn and deposition rates of ^{210}Pb at the Earth's surface estimated from ^{226}Ra and ^{210}Pb profiles in soils." *Geochem. J.*, **20**: 81-90.

K13 Koide, M., E. D. Goldberg, M. M. Heron, and C. C. Langway Jr.(1977). "Transuranic depositional history in South Greenland firn layers." *Nature*, **269**: 137-139.

K14 Knuth, R.H., E.O. Knutson, H.W. Feely, and H.L. Volchok. (1983). "Size distribution of atmospheric Pb and ^{210}Pb in rural New Jersey: Implications for wet and dry deposition.", in Precipitation Scavenging, Dry Deposition, and Resuspension, H.R. Pruppacher, R.G. Semonin, and W.G.N. Slinn (Eds), pp. 1325-1335, Elsevier, New York.

L1 Li, W. Q., N. L. Guinasso, K. H. Cole, and M. D. Richardson.(1985). "Radionuclides as indicators of sedimentary processes in abyssal caribbean sediments." *Mar. Geol.*, **68**: 187-204.

L6 Lambert, G., B. Ardouin, and A. Mesbah-Bendezu. (1983). Atmosphere to snow transfert in Antarctica. In Precipitation, scavenging, dry deposition and resuspension, H.R. Pruppacher, R.G. Semonin, and W.G.N. Slinn (Eds), pp.1289-1300, Elsevier, New York.

L9 Lambert, G., G. Polian, J. Sanak, B. Ardouin, A. Buisson, A. Jegou et J. C. Le Roulley.(1982). "Cycle du radon et de ses descendants : application à l'étude des échanges troposphère-stratosphère." *Ann. Geophys.*, **48**: 497-531.

L10 Lockhart, L. B., R. L. Patterson, and A. W. Saunders. (1966). "Airborne radioactivity in Antarctica." *J. Geophys. Res.*, **71**(8): 1985-87.

L11 Larsen, R. J., and C. G. Sanderson. (1995). "EML Surface Air Sampling Program, 1990-1993 Data." Report n° EML-572, Environmental Measurement Laboratory, U.S. Departement of Energy, New York.

L13 Lockhart, Jr., L. B., R. L. Patterson, Jr., A. W. Saunders, Jr., and R. W. Black. (1964). "Summary report on fission product radioactivity in the air along the 80th meridian (West), 1957-1962." NRL Report 6104, U.S. Naval Research Laboratory, Washington, D.C..

L14 Legates, D. R., and C. J. Willmott. (1992). Monthly average surface air temperature and precipitations. Digital data on a 30 minutes geographic (lat/long) 360x270 grid. In Global ecosystems database version 1.0: disc A. 48 independent and 4 derived single attribute spatial layers on CD-ROM, 47.2MB, NOAA National Geophysical Data Center, Boulder, CO, United States.

L15 Lambert, G., J. Labeyrie, et B. Ardouin. (1965). "Sur l'existence d'une structure zonale de la basse atmosphère, principalement dans l'hémisphère sud." *C. R. Acad. Sci. Paris*, **261**: 3857-3860.

M1 Ming, X., Z. Chenghui, M. Zhibang, L. Zhuocheng, and Z. Xiuyun. (1981). "²¹⁰Pb dating method and sedimentation rates in Zhujiang estuary and Jinzhou bay." *Kexue Tongbao*, **28**(6).

M2 Mac Caffrey, R. J.. (1977). A record of the accumulation of sediment and trace metals in a Connecticut, U.S.A., salt marsh. Ph.D Thesis, Yale University, New Haven, Conn., United States.

M3 Moore, H. E., and S. E. Poet. (1976). "²¹⁰Pb fluxes determined from ²¹⁰Pb and ²²⁶Ra soil profiles." *J. Geophys. Res.*, **81**: 1056-1058.

M4 Mauviel, A., H. V. Nguyen, R. Chasselet, M. Sibuet, Y. Yokohama, and G. Auffret. (1982). "Etude des variations des taux de bioturbations par la spectrométrie gamma non-destructive (GeHP), dans trois zones de l'Atlantique Nord, à 2000m et à plus de 4000m de profondeur." *Bull. Inst. Geol. Bassin Aquitaine (Bordeaux)*, **31**: 257-274.

M5 Matsumoto, E.. (1981). "Sedimentation rates in several lakes of Japan measured with ²¹⁰Pb method." *Verh. Internat. Verein. Limnol.*, **21**: 603-608.

M6 Monaghan, M. C.. (1989). "²¹⁰Pb in surface air and soils from California - Implications for the behavior of trace constituents in the planetary boundary layer." *J. Geophys. Res.*, **94**(D5): 6449-6456.

M7 Matsumoto, E., and C. S. Wong. (1977). "Heavy metal sedimentation in Saanish Inlet measured with ²¹⁰Pb technique." *J. Geophys. Res.*, **82**(34): 5477-5482.

M10 Murchie, S. L.. (1985). "²¹⁰Pb dating and the recent geology history of Crystal bay, lake Minnetonka, Minnesota." *Limnol. Oceanogr.*, **30**(6): 1154-1170.

M11 Moser, R. M., H. R. Von Gunten, and M. Sturm. (1991). Remobilisation of lead-210 : A possible exclamation for local activity anomalies in lake Zurich (Switzerland). Proc. Heavy Metals in the Environment, pp. 351-355, Edimburgh, United Kingdom.

M12 Mitchell, P. I., W. R. Schell, A. Mac Garry, T. P. Ryan, J. A. Sanchez-Cabeza, and A. Vidal-Quadras. (1992). "Studies of the vertical distribution of ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ²³⁸Pu, ^{239,240}Pu, ²⁴¹Pu, ²⁴¹Am, and ²¹⁰Pb in ombrogenous mires at mid-latitude." *J. Radioanalyt. Nucl. Chem.*, **156**(2): 361-387.

M13 Mac Caffrey, R. J., and J. Thomson. (1974). A record of trace metal fluxes to a Connecticut salt marsh as determined by ²¹⁰Pb dating. A.E.C. Tech. Rep. COO-3573-8, Yale University, New Haven, Conn., United States.

M16 Mac Call, P. M., J. A. Robbins, and G. Matisoff. (1984). "¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb transport and geochronologies in urbanized reservoirs with rapidly increasing sedimentation rates." *Chem. Geol.*, **44**: 33-65.

M17 Monaghan, M. C., S. Krishnaswami, and K. K. Turekian. (1986). "The

global-average production rate of ^{10}Be . *Earth Planet. Sci. Lett.*, **76**: 279-287.

M19 Monaghan, M. C., and G. Holdworth. (1990). "The origin of non-sea-salt sulphate in the Mount Logan ice core." *Nature*, **343**: 245-248.

M20 Matsunami, T., A. Mizohata, and T. Mamuro. (1974). "Some attempts to interpret the variations with time of monthly depositions of ^{210}Pb , ^7Be , ^{137}Cs and ^{144}Ce ." *Ann. Rep. Radiat. Cent. Osaka Prefect.*, **15**: 24-29.

M21 Magno, P. J., P. R. Groulx, and J. C. Apidianakis. (1970). "Lead-210 in air and total diets in the United States during 1966." *Health Physics*, **18**: 383-388.

M22 Mishra, U. O., O. Ransarajan, and C. D. Eapens. (1978). Natural radioactivity of the atmosphere over the Indian land mass, inside deep mines and over adjoining oceans. NRE III, US DOE Symposium series 51: 327-346.

M23 Mattson, R. (1970). "Seasonal variation of short-lived radon progeny, ^{210}Pb and ^{210}Po in ground level air in Finland." *J. Geophys. Res.*, **75**(9): 1741-1744.

M24 Marenco, A.. (1974). Utilisation des éléments radioactifs ^7Be , ^{32}P , ^{40}K , ^{210}Po et ^{210}Pb pour l'étude du comportement de la matière à l'état particulaire dans la troposphère. Thèse, Université Paul Sabatier, Toulouse, France.

M26 Maenhaut, W., and W. H. Zoller. (1979). "Radionuclides in the South Pole atmosphere." *J. Geophys. Res.*, **84**(C6): 3131-3138.

M27 Monna, F., J. Lancelot, M. Bernat, et H. Mercadier. (1996). "Etude des taux de sédimentation dans l'étang de Thau (Hérault, France) à partir des données géochronologiques, géochimiques et des repères stratigraphiques." *Oceanol. Act.*, in press.

N1 Nosaki, Y., D. J. De Master, D. M. Lewis, and K. K. Turekian. (1978).

"Atmospheric ^{210}Pb fluxes determined from soil profiles." *J. Geophys. Res.*, **83**(C8): 4047-4051.

N2 Nosaki, Y., J. K. Cochran, K. K. Turekian, and G. Keller. (1977). "Radiocarbon and ^{210}Pb distribution in submersible-taken deep sea cores from project Famous." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **34**: 167-173.

N3 Nevissi, A. E.. (1985). "Measurement of ^{210}Pb atmospheric flux in the Pacific Northwest." *Health Physics*, **48**: 169-175.

N4 Nezami, M., G. Lambert, C. Lorius, and S. Labeyrie. (1964). "Mesure du taux d'accumulation de la neige au bord du continent Antarctique par la méthode du plomb-210." *C.R. Acad. Sci. Paris*, **259**: 3319-3322.

N5 Nijampurkar, V. N., and H. B. Clausen. (1990). "A century old record of lead-210 fallout on the Greenland ice sheet." *Tellus*, **42B**: 29-38.

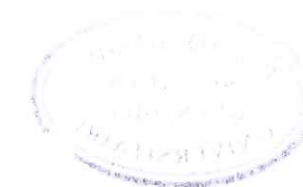
N7 Nevissi, A., and W. R. Schell. (1978). Use of lead-210 and polonium-210 as tracers of atmospheric processes. NRE III, pp. 405-414, US DOE Symp. series 51.

O1 Oldfield, F., P. G. Appleby, and R. W. Battarbee. (1978). "Alternative ^{210}Pb dating: results from the New Guinea highlands and Lough Erne." *Nature*, **271**: 339-342.

O2 Olsen, C. R., L. Larsen, P. D. Lowry, N. H. Cutshall, J. F. Todd, G. T. F. Wong, and W. H. Casey. (1985). "Atmospheric fluxes and marsh-soil inventories of ^7Be and ^{210}Pb ." *J. Geophys. Res.*, **90**(10): 10487-10495.

O3 Oldfield, F., and P. G. Appleby. (1984). Empirical testing of ^{210}Pb -dating models for lake sediments. In *Lake sediments and environmental history*, E.Y. Haworth and J.W. Lund (Eds), pp. 93-124, Leicester University Press.

O4 Oldfield, F., P. G. Appleby, and D. Petit. (1980). "A re-evaluation of lead-210



chronology and the history of total lead influx in a small South Belgian Pond." *Ambio*, **9**: 87-99.

P1 Paez-Osuna, F., and E. F. Mandelli. (1985). "²¹⁰Pb in a tropical coastal lagoon sediment core." *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **20**: 367-374.

P2 Pfeiffer Madsen, F., and J. Sorensen. (1979). "Validation of the lead-210 dating method." *J. Radioanalyt. Chem.*, **54**(1-2): 39-48.

P3 Pourchet, M., J. F. Pinglot, and M. A. Melieres. (1989). "Cesium 137 and lead 210 in alpine lake sediments : Measurements and modeling of mixing processes." *J. Geophys. Res.*, **94**(C9): 12761-12770.

P4 Picciotto, E., G. Crozaz, and N. De Breuck. (1964). "Rate of accumulation of snow at the South Pole as determined by radioactive measurements." *Nature*, **203**: 393-394.

P5 Petit, D. (1974). "²¹⁰Pb et isotopes stables du plomb dans des sédiments lacustres." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **23**: 199-205.

P6 Picciotto, E., R. Cameron, G. Crozaz, S. Deutsch, and S. Wilgain. (1968). "Determination of the rate of snow accumulation at the pole of relative inaccessibility, Eastern Antarctica : a comparaison of glaciological and isotopic method." *J. Glaciol.*, **7**: 273-287.

P7 Peirson, D. H., R. S. Cambray, and G. S. Spicer. (1966). "Lead-210 and polonium-210 in the atmosphere." *Tellus*, **18**: 427-433.

P9 Giresse, P., S. Ngos et M. Pourchet. (1994). "Processus sédimentaires séculaires et géochronologie au ²¹⁰Pb des principaux lacs de la dorsale camérounaise." *Bull. Soc. geol. France*, **165**(4): 363-380.



P10 Persson, B. H.. (1970). "²¹⁰Pb-atmospheric deposition in lichen-carpet in Northern Sweden during 1961-1969." *Tellus*, **22**(5): 564-571.

P11 Pourchet, M., P. Mourguiart, J. F. Pinglot, N. Preiss, J. Argollo, and D. Wirmann. (1994). "Sédimentation récente dans le lac Titicaca (Bolivie)." *C.R. Acad. Sci. Paris*, **319**(II): 535-541.

P12 Pourchet, M., P. Mourguiart, J. F. Pinglot, N. Preiss, J. Argollo, and D. Wirmann. "Evaluation des vitesses de sédimentation récente dans les hautes vallées des Andes boliviennes. Son intérêt dans l'estimation des paléo-pollutions atmosphériques." *C.R. Acad. Sci. Paris*, **320**(IIa): 477-482.

P13 Pourchet, M., L. Porcart, and J. F. Pinglot. (1994). "Personal Communication."

P14 Patterson, R. L., and L. B. Lockhart, Jr. (1963). Geographical distribution of lead-210 (RaD) in the ground level air. N.R.E. III, pp. 383-393, US DOE Symp. series 51.

P15 Picciotto, E., G. Crozaz, and W. De Breuck. (1971). "Accumulation on the South Pole - Queen Maud Land traverse, 1964-1968." *Antarctic Research Series*, **16**: 257-315.

P17 Pourchet, M., J. F. Pinglot, and N. Preiss. "Unpublished data".

P18 Pourchet, M., S. K. Bartarya, M. Maignan, J. Jouzel, J. F. Pinglot, A. J. Aristarain, G. Furdada, V. M. Kotlyakov, E. Mosley-Thomson, N. Preiss, and N.W. Young. (1996). "Radionuclides in Antarctica: Deposition and distribution." *J. Glaciol.*, in press.

P19 Preiss, N., M. Pourchet, and J.F. Pinglot. (1996). "Unpublished data."

P20 Paatero, J., R. Mattson, and J. Hatakka. (1994). Measurement of airborne

radioactivity in Finland, 1983-1990, and applications to air quality studies. Publications on Air Quality n° 17, Finnish Meteorological Institute, Helsinki, Finland.

P21 Pollard, D.. (1996). "Personnal Communication".

P22 Preiss, N., P. Wagnon, M. Pourchet, and J.F. Pinglot.(1996)."Unpublished data."

R1 Robbins, J. A., and D. N. Edgington. (1975). "Determination of recent sedimentation rates in lake Michigan using ^{210}Pb and ^{137}Cs ." *Geochem. Cosmochem. Acta*, **39**: 285-304.

R2 Robbins, J. A.. (1978). Geochemical and geophysical applications of radioactive lead. In Biogeochemistry of lead in the environment,pp. 285-393, J.O. NRIagu (Ed).

R3 Robbins, J. A., J. R. Krezoski, and S. C. Mosley. (1977). "Radioactivity in sediments of the Great Lakes : Post-depositional redistribution by deposit feeding organisms." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **36**: 325-333.

R4 Robbins, J. A., A. Mudroch, and B. G. Oliver. (1990). "Transport and storage of ^{137}Cs and ^{210}Pb in sediments of lake St-Clair." *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, **47**: 572-587.

R5 Robbins, J. A., D. N. Edgington, and A. L. W. Kemp. (1978). "Comparative ^{210}Pb , ^{137}Cs and pollen geochronologies of sediments from lake Ontario and Erie." *Quatern. Res.*, **10**: 256-278.

R7 Rangarajan, C., SMT S. Gopalakrishnan, S. Sadasivan, and P. V. Chitale. (1968). "Atmospheric and precipitation radioactivity in India." *Tellus*, **20** (2): 269-283.

R8 Rangarajan, C., S. Gopalakrishnan, V. R. Chandrasekaran, and C.D. Eapen. (1975). "The relative concentrations of radon daughter products in surface air and the significance of their ratios." *J. Geophys. Res.*, **80**(6) : 845-848.

R9 Roos, P., E. Holm, R. B. R. Persson, A. Aarkrog, and S. P. Nielsen. (1994). "Deposition of ^{210}Pb , ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , and ^{241}Am in the Antarctic Peninsula area." *J. Environ. Radioact.*, **24**: 235-251.

R10 Radakovitch, O.. (1995). Etude du transfert et du dépôt du matériel particulaire par le ^{210}Po et le ^{210}Pb . Application aux marges continentales du Golfe de Gascogne (NE Atlantique) et du Golfe du Lion (NW Méditerranée). Thèse de Doctorat, Université de Perpignan, France.

R11 Rulik, P., I. Malatova, D. Drabova, and K. Machacek. (1993). "Obsah ^{210}Pb v prazskem ovzduši" ("Content of ^{210}Pb in the air in Prague"). *Bezpecnost Jaderne Energie*, **1**(39): 181-183.

S1 Schuler, C., E. Wieland, P. H. Santschi, M. Sturm, A. Lueck, S. Bollhalder, J. Beer, G. Bonani, H. J. Hoffmann, M. Suter, and W. Wolfli. (1991). "A multitracer study of radionuclides in lake Zurich, Switzerland. 1. Comparaison of atmospheric and sedimentary fluxes of ^7Be , ^{10}Be , ^{210}Pb , ^{210}Po and ^{137}Cs ." *J. Geophys. Res.*, **96**(C9): 17,051-17,065.

S3 Stordal, M. C., J. W. Johnson, N. L. Guinasso, and D. R. Schink. (1985). "Quantitative evaluation of bioturbation rates in deep ocean sediments. II. Comparaison of rates determined by ^{210}Pb and $^{239,240}\text{Pu}$." *Mar. Chem.*, **17**: 99-114.

S4 Smith, J. N., and K. M. Ellis. (1982). "Transport mechanism for ^{210}Pb , ^{137}Cs and Pu fallout radionuclides through fluvial-marine systems." *Geochem. Cosmochem. Acta*, **46**: 941-954.

S5 Smith, J. N., and A. Walton. (1980). "Sediment accumulation rates and geochronologies measured in the Saguenay fjord using the ^{210}Pb dating method." *Geochem. Cosmochem. Acta*, **44**: 225-240.

S6 Schell, W. R.. (1977). "Concentration, physico-chemical states and mean

residence time of ^{210}Pb and ^{210}Po in marine and estuarine waters." *Geochem. Cosmochem. Acta*, **41**: 1019-1031.

S8 Sanchez, C. I., R. Garcia-Tenorio, M. Garcia-Leone, J. M. Abril, and F. El-Daoushy. (1992). "The use of ^{137}Cs in marine and lacustrine sediment dating." *Nucl. Geophys.*, **6**(33):395-403.

S9 Schell, W. R.. (1974). Sedimentation rates and mean residence times of stable Pb and Pb-210 in lake Washington, Puget Sound and a coastal region. Wash. Rep. RLO-2225-T18-18, University of Washington, Seattle, U.S.A..

S10 Sanak, J.. (1983). Contribution a l'étude du transport des aérosols d'origine continental vers l'Antarctique. Thesis, Université Pierre et Marie Curie, Paris, France.

S11 Sayles, F. L., and H. D. Livingstone. (1985). The distribution of $^{239,240}\text{Pu}$, ^{137}Cs and ^{55}Fe in continental margin sediments : relation to sedimentary redox environment. 4th Annual Int. Ocean Disposal Symp., Plymouth, United Kingdom.

S12 Santschi, P. H., Y. H. Li, J. Bell, R. Trier, and K. Kawtaluki. (1980). "Pu in coastal marine environments." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **51**: 248-265.

S14 Shleien, B., and A. G. Friend. (1966). "Local ground-level air concentrations of lead-210 at Winchester, Massachusetts." *Nature*, **210**: 579-580.

S15 Shinagawa, T.. (1980). Atmospheric transport of chemical substances of land origin to the ocean. Ph.D. Dissertation, pp. 67-76, Hokkaido University, Japan.

S16 Sanak, J., G. Lambert, and B. Ardouin. (1978). Lead-210 in the atmosphere. N.R.E. III, US DOE Symp. series 51: 445-457.

S17 Surbeck, H., and G. Ferreri. (1995). "Luft, Niederschlage, Flusswasser, Boden, Gras." in Environmental Radioactivity and Radiation Exposure in Switzerland, 1994,

Swiss Federal Office of Public Health, Fribourg, Switzerland.

T1 Turekian, K. K., and J. K. Cochran. (1981). " ^{210}Pb in surface air at Enewatak and the Asian dust flux to the Pacific." *Nature*, **292**: 522-524

T2 Turekian, K. K., Y. Nosaki, and L. K. Benninger.(1977). "Geochemistry of atmospheric radon and radon products." *Ann. Rev. Earth Planet. Sci.*, **5**: 227-255.

T3 Thomson, J., S. Colley, and P. P. E. Weaver. (1988). "Bioturbation into a recently emplaced deep-sea turbidite surface as revealed by ^{210}Pb -excess, ^{230}Th -excess and planktonic foraminifera distributions." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **90**: 157-173.

T4 Turekian, K. K., L. K. Benninger, and E. P. Dion. (1983). " ^7Be and ^{210}Pb total deposition fluxes at New Haven, Conn. and at Bermuda." *J. Geophys. Res.*, **88**(C9): 5411-5415.

T5 Todd, J. F., G. T. F. Wong, C. R. Olsen, and I. R. Larsen. (1989). "Atmospheric depositional characteristics of Beryllium 7 and Lead 210 along the Southeastern Virginia coast." *J. Geophys. Res.*, **94**(D8):11,106-11,116.

T7 Thomson, J., S. Colley, R. Anderson, G. T. Cook and A. B. Mackenzie. (1993). " ^{210}Pb in sediments and water column of the Northeast Atlantic from 47° to 59°N along 20°W ." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **115**:75-87.

T8 Thomas, A. J. (1988). Géochimie des radioéléments naturels et artificiels : application a l'étude de l'interface continent-océan. Thèse de Doctorat-es-Sciences, Université Paris VI, France.

T10 Tsunogai, S., T. Kurata, T. Suzuki and K. Yokota. (1988). "Seasonal variation of atmospheric ^{210}Pb and Al in the Western North Pacific region." *J. Atmos. Chem.*, **7**(4): 389-407.

T11 Thompson, L. G., E. Mosley-Thompson, P. M. Grootes, M. Pourchet, and S. Hastenrath. (1984). "Tropical glaciers: potential for ice core paleoclimatic reconstructions." *J. Geophys. Res.*, **89**(D3): 4638-4646.

T12 Talbot, R. W., and A. W. Andren. (1983). "Relationship between Pb and Pb 210 in aerosol and precipitation at a semiremote site in Northern Wisconsin." *J. Geophys. Res.*, **88**(C11): 6752-6760.

T13 Tsunogai, S., T. Shinagawa, and T. Kurata. (1985). "Deposition of anthropogenic sulfate and Pb-210 in the western North Pacific area." *Geochem. J.*, **19**:77-90.

T14 Turekian, K.K., W.C. Graustein, and J.K. Cochran. (1989). "Lead-210 in the SEAREX program: An aerosol tracer across the Pacific." in Chemical Oceanography, J.P. Riley and R. Chester (eds), vol. 10, pp. 51-81, Academic, 1989.

V1 Von Damm, K. L., L. K. Benninger, and K. K. Turekian. (1979). "²¹⁰Pb chronology of a core from Mirror lake, N.H." *Limnol. Oceanogr.*, **24**:434-439.

V2 Viel, M. (1983). "Etude sédimentologique et géochimique des dépôts récents du lac Majeur." Publications du Département de Géologie et de Paléontologie de l'Université de Genève, Vol. 2, pp. 99-101.

V3 Von Gunten, H. R., and R. N. Moser. (1993). "How reliable is the ²¹⁰Pb method? Old and new result from Switzerland." *J. Paleolimnol.*, **9**: 161-178.

V4 Von Gunten, H. R., M. Sturm, H. N. Erten, H. N. Rössler, and F. Wegmüller. (1987). "Sedimentation rates in the central lake Constance determined with ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs." *Schweiz. Z. Hydrol.*, **49**:275-283.

V5 Val Klump, J., R. Paddock, C. C. Remsen, S. Fitzgerald, M. Boraas, and P. Anderson. (1989). "Variations in sediment accumulation rates and the flux of labile organic matter in Eastern lake Superior basins." *J. Great Lakes Res.*, **15**(1): 104-122.

W1 Windom, H.. (1969). "Atmospheric dust records in permanent snowfield: implications to marine sedimentation." *Geol. Soc. Ann. Bull.*, **80**:761.

W4 Wan, G. J., P. H. Santschi, M. Sturm, K. Farrenkhoten, A. Luck, E. Werth, and C. H. Schuler. (1987). "Natural (²¹⁰Pb, ⁷Be) and fallout (¹³⁷Cs, ²⁴⁰Pu, ⁹⁰Sr) radionuclides as geochemical tracers of sedimentation in Greifensee, Switzerland." *Chem. Geol.*, **53**: 181-196.

W5 Wagenbach, D., U. Görlach, K. Moser, and K.O. Münnich. (1988). "Coastal Antarctic aerosol: the seasonal pattern of its chemical composition and radionuclide content." *Tellus*, **40B**: 426-436.

W6 Wilgain, J.. (1970). Contribution a l'étude de la radioactivité de l'air et des précipitations dans l'Antarctique. Thèse de l'Université libre de Bruxelles, Belgium.

X1 Xingfu, W., X. Zhengyu, and Q. Jiangchu. "The exchange and sedimentary process of Pb-210 in the Changjiang estuary and its adjacent shelf." in Biochemical studies of the Changjiang Estuarine.

Y1 Yokoyama, Y., H. V. Nguyen, C. E. Lambert and R. Chesselet. (1985). "Etude de la bioturbation dans les sédiments superficiels de la Méditerranée Occidentale par le traceur ²¹⁰Pb." *Oceanologica Acta*, **8**(3).

Z1 Zuo, Z., and D. Eisma. (1993). "²¹⁰Pb and ²¹⁰Po distributions and disequilibrium in the coastal and shelf waters of the Southern North Sea."

IV - Application du ^{210}Pb à l'étude de la circulation
atmosphérique et du climat

IV - Application du ^{210}Pb à l'étude de la circulation atmosphérique et du climat

Les aérosols jouent un rôle important dans le climat terrestre par leur influence sur le budget énergétique: forçage radiatif direct (albédo et effet de serre) et indirect (processus de nucléation). Du fait de l'activité anthropique, la quantité d'aérosols atmosphérique est susceptible d'augmenter rapidement dans un proche avenir, avec pour conséquence un impact sur le climat et la pollution de la planète. L'étude du cycle des aérosols apparaît ainsi, aujourd'hui, comme une composante importante de l'étude du climat. Un outil majeur pour cette étude est la modélisation, particulièrement l'utilisation de modèles de circulation générale 3D (GCM). Ces modèles traitent le transport et le dépôt des aérosols et sont testés et validés à partir des mesures existantes. Le ^{222}Rn et le ^{210}Pb sont des éléments fréquemment utilisés pour ces validations. Le ^{222}Rn , un gaz rare, est un des meilleurs traceurs du transport des masses d'air du fait de sa demi-vie bien adaptée (3.8 jours)(*Jacob et al.*, 1996; *Genthon and Armangaud*, 1995a). Le ^{210}Pb s'attache sans discrimination à la surface des aérosols dès qu'il est produit dans l'atmosphère. Avec sa longue période radioactive comparée aux temps de résidence des aérosols dans l'atmosphère, le ^{210}Pb est ainsi un bon traceur du transport et des processus de dépôt des aérosols et il est couramment utilisé pour la validation des simulations de modèles numériques (*Balkansky et al.*, 1993; *Genthon and Armangaud*, 1995b; *Lee and Feichter*, 1995; *WCRP Workshop*, 1995; *Rehfeld and Heimann*, 1995).

Le propos de ce chapitre est de faire un sommaire et une interprétation des informations disponibles dans la base de données. Dans la première partie, les données sont classifiées, analysées et interprétées en considérant principalement les valeurs moyennes annuelles. L'échelle de distribution globale des concentrations de surface de ^{210}Pb dans l'air et des flux air-surface est analysée en termes de mécanismes de transport et de dépôt. Dans la seconde partie, une base de données restreinte est considérée afin d'être directement adaptée à la validation d'un modèle d'aérosols. Il est ainsi montré comment cette base de données permet d'évaluer ce

modèle numérique.

1. Répartition globale du ^{210}Pb

Dans cette première partie, nous essayons d'étudier comment se répartit le ^{210}Pb à travers le globe à partir des informations fournies par la base de données. Pour cela, il nous faut tout d'abord comprendre les mécanismes de base qui affectent le ^{210}Pb et, plus généralement, les aérosols dans l'atmosphère. Ensuite, les données (concentrations de surface de ^{210}Pb dans l'air et flux de dépôt) sont analysées en termes de répartition spatiale et comparées les unes aux autres afin de comprendre les facteurs de variabilité de ces valeurs, particulièrement dans les régions où le nombre de données disponibles est important.

1.1 Mécanismes mis en jeu dans le cycle atmosphérique du ^{210}Pb

La concentration de ^{210}Pb dans l'air de surface dépend principalement de deux facteurs:

- les sources de ^{210}Pb ,
- le transport et les mécanismes de dépôt, qui sont conduits par la circulation atmosphérique et les précipitations.

1.1.1 Les sources

Dans l'atmosphère, la source de ^{210}Pb est le ^{222}Rn qui s'échappe de la surface terrestre. Le taux d'émission moyen de ^{222}Rn des surfaces continentales non-englacées est d'environ $1 \text{ atome cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ (Turekian et al., 1977; Lambert et al., 1982b). Ce taux est environ 100 fois plus faible à la surface des océans. Les régions englacées ne sont pas considérées comme des sources de ^{210}Pb parce que le ^{222}Rn ne peut s'échapper à travers la glace. Ainsi ne considérons-nous que les continents non-englacés comme des sources de ^{210}Pb . Le ^{222}Rn , issu directement du ^{226}Ra présent dans le sol, avec une

courte demi-vie (3.8 jours), s'échappe partiellement de la croûte terrestre par les pores, interstices et fractures existants près de la surface (Clements and Wilkening, 1974). Son taux d'émission dépend donc principalement de la structure géologique, du type, de l'humidité, etc... des sols concernés. Les volcans peuvent être des sources locales substantielles de ^{210}Pb atmosphérique: comme le montrent Lambert et al. (1982a), les panaches volcaniques sont souvent enrichis d'un ou de deux ordres de grandeurs en ^{210}Pb par rapport à l'atmosphère environnante. Cependant, la contribution des volcans reste très faible lorsque l'on considère le budget atmosphérique global (Lambert et al., 1982b).

1.1.2 Circulation atmosphérique et climat

Les caractéristiques suivantes ont une importance particulière pour la distribution globale et le dépôt de ^{210}Pb :

a- La circulation atmosphérique zonale

Les caractéristiques zonales de la circulation atmosphérique font partie des mécanismes impliqués dans la distribution du ^{210}Pb . La première conséquence est que, dans une bande de latitude, la proportion de zones continentales non-englacées (source de ^{222}Rn), comparée à la proportion de surfaces océaniques et englacées (absence de sources), interfère fortement sur l'enrichissement de l'air en ^{210}Pb . Une deuxième conséquence est la différence d'enrichissement entre les parties Est et Ouest des continents. La circulation zonale va de l'ouest vers l'est dans les bandes de latitude tempérée (30° - 60°) et d'est en ouest (alizés) dans les zones tropicales (10° - 30°). Sur les continents, l'origine de la masse d'air dominante est un facteur déterminant pour la concentration de ^{210}Pb dans l'air, et dépend de son origine continentale ou océanique (i.e. enrichie ou appauvrie en ^{210}Pb). Une dissymétrie des concentrations de ^{210}Pb dans l'air et les flux de dépôt est ainsi prévisible entre les parties Est et Ouest des continents. Cette dissymétrie s'inverse entre les zones tempérées et tropicales, du fait de l'inversion du sens des vents dominants.

b- Les échanges atmosphériques verticaux

Le transport vertical du ^{210}Pb est déterminé par l'échange atmosphérique vertical

entre la couche limite et la troposphère libre. Dans les régions continentales non-englacées, où l'air dans la couche limite est enrichi en ^{210}Pb , comparé à la troposphère libre, le transport vertical induit une diminution de la concentration de ^{210}Pb dans l'air de surface. Inversement, quand la masse d'air est stable, le ^{222}Rn et ses descendants s'accumulent dans la couche limite, entraînant de fortes concentrations de surface en ^{210}Pb . Une conséquence de ce phénomène est que, lorsque des anticyclones saisonniers s'installent au-dessus des continents, la masse d'air en surface s'enrichit en ^{210}Pb . Ainsi les régions continentales soumises à des conditions anticycloniques fréquentes enregistrent-elles des concentrations annuelles en ^{210}Pb plus fortes (vice versa pour les zones dépressionnaires). Dans les régions où les sources de ^{222}Rn sont négligeables (océans et zones polaires), l'échange atmosphérique vertical entraîne une augmentation de la concentration de ^{210}Pb dans l'air de surface. Cet enrichissement relatif résulte du fait que le ^{210}Pb , originaire des zones continentales, est apporté dans ces régions par le transport longue distance via la troposphère libre.

c- Processus de dépôt et rôle des précipitations

Le ^{210}Pb a une longue période radioactive (22.3 ans) comparée à son temps de résidence physico-chimique dans l'atmosphère. De ce fait, les processus de dépôt (sec et humide) sont les principaux mécanismes de puits du ^{210}Pb dans l'atmosphère. Le dépôt humide est dû au lessivage par les précipitations et il est, dans la plupart des cas, plus efficace que le dépôt sec. Comme les précipitations agissent telle une pompe de constituants atmosphériques, la concentration dans l'air ainsi que le flux de dépôt sont influencés par elles. Ainsi, dans une région donnée, peut-on considérer que la concentration de ^{210}Pb dans l'air diminue lorsque les précipitations s'intensifient. Toutefois, si l'on prend en compte le temps de renouvellement des masses d'air associé à la fréquence saisonnière des précipitations, il n'y a pas de relation systématique entre la concentration moyenne annuelle de ^{210}Pb dans l'air et la quantité de précipitations. Par contre, le flux de dépôt est généralement directement relié aux précipitations.

Une vitesse de dépôt apparente peut être définie comme étant le rapport entre le flux de dépôt et la concentration dans l'air de surface (Turekian et al., 1977, Graustein and Turekian, 1986). Cette quantité empirique peut, en partie, être considérée comme un indicateur des mécanismes de dépôt.

1.2 Commentaires sur les concentrations de ^{210}Pb dans l'air de surface

Nous distinguons les régions continentales, les régions océaniques et les régions polaires.

1.2.1 Régions continentales

a- 60°N-30°N

Aux moyennes latitudes Nord (30°-60°N), les valeurs de concentration de surface en ^{210}Pb dans l'air sont élevées sur les zones continentales avec une moyenne de 0.51 $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ (Table IV.1). Cette forte valeur est principalement due à l'importance relative des zones continentales (50% de la surface totale) à ces latitudes, comparée aux surfaces océaniques. Toutefois, des différences significatives apparaissent au sein même des continents situés sur cette bande de latitude. Elles concernent surtout les sites des régions centrales comparés aux sites côtiers où les influences océaniques sont importantes. De même, on peut distinguer les façades Est et Ouest des continents du fait de la circulation zonale. Ces effets sont soulignés lorsque l'on observe la répartition longitudinale des concentrations de surface aux Etats-Unis, où beaucoup de mesures existent, et en Europe.

Amérique du Nord

Au centre des Etats-Unis, les concentrations dans l'air de surface atteignent des valeurs élevées (environ 1 $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$) comparées à celles des sites côtiers (Figure IV.1a), du fait de la faible influence des masses d'air océaniques, pauvres en ^{210}Pb . Les concentrations de surface dans les zones côtières sont plus faibles, variant de 0.3 $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ (côte Ouest) à 0.5 $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ (côte Est). Cette différence reflète les effets de la circulation zonale avec des vents d'Ouest dominants. L'influence du climat local s'observe dans les régions sèches où le manque de lessivage de l'air par les pluies entraîne une hausse de la concentration. Les valeurs relativement fortes enregistrées à Los Angeles (0.54 $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$) et dans la partie déserte des Montagnes Rocheuses (Salt Lake City: 0.68 $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ en moyenne) sont une bonne illustration de ce processus.

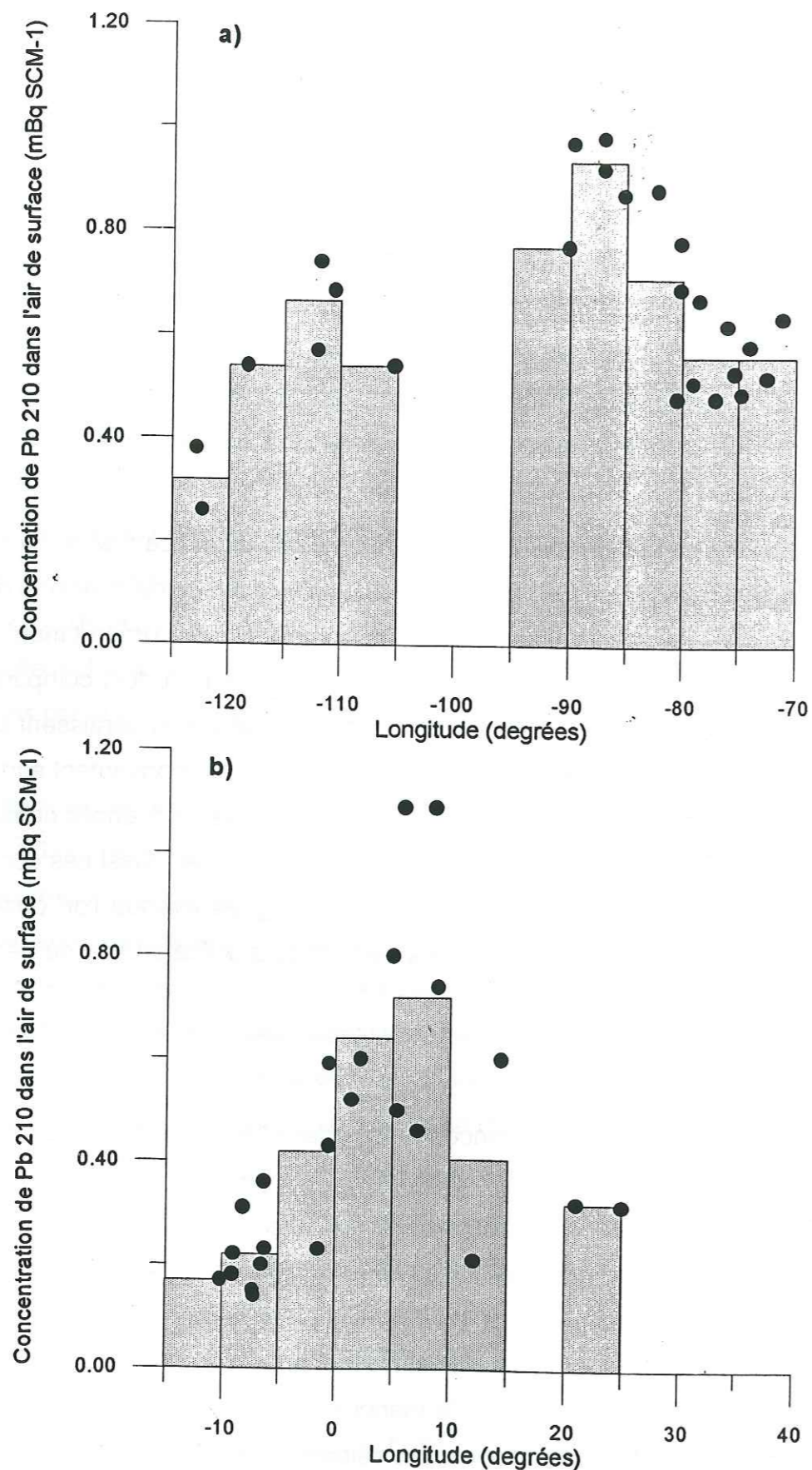


Figure IV.1: Distribution en longitude de la concentration de ²¹⁰Pb dans l'air de surface (en mBq SCM⁻¹) (a) en Amérique du Nord et (b) en Europe, entre 30°N et 60°N; Les barres grises représentent les moyennes de concentration par bande de 5° de longitude

Europe

En Europe, les valeurs de concentration sont plus dispersées qu'en Amérique du Nord (Figure IV.1b). Ce phénomène est le reflet d'une plus grande hétérogénéité du climat du fait de l'influence de mers intérieures comme la Méditerranée et la Baltique. On retrouve toutefois une croissance importante de la concentration en allant de l'ouest (façade Atlantique) vers l'est, mais une baisse sensible est observée au-delà de 10°E. Cette baisse de la concentration en Europe de l'Est ne semble pouvoir s'expliquer que par une mauvaise représentativité des sites de mesures dans cette région. En effet, si l'on excepte la donnée mesurée à Prague, en République Tchèque (0.60 mBq.m⁻³), les autres valeurs ont été enregistrées près de la mer Baltique (Danemark, Pologne) où l'influence des masses d'air maritimes reste importante.

Les plus fortes valeurs de concentration de surface (>1 mBq.m⁻³) relevées en Europe proviennent de zones proches du bassin méditerranéen (Toulon, Côte d'Azur, et Ispra, Italie du Nord). Il semble que les régions européennes méditerranéennes et sub-méditerranéennes soient soumises à une influence non-négligeable des masses d'air continentales originaires d'Afrique du Nord. En effet, tandis que la plupart des cycles saisonniers de ²¹⁰Pb montrent des valeurs élevées en hiver et plus faibles en été pour les sites continentaux des hautes et moyennes latitudes. Le cycle saisonnier est inversé à Toulon où l'on observe un pic de concentration pendant les mois de juillet-août. Ce pic est en bonne corrélation avec la fréquence mensuelle où on a pu détecter la présence de poussières sahariennes dans la basse troposphère méditerranéenne (Corse)(Figure IV.2), ce qui implique certainement une influence dominante des masses d'air continentales d'origine nord-africaines sur le bassin méditerranéen pendant l'été. A Ispra, ce pic est beaucoup plus atténué mais les valeurs hivernales de concentration sont bien supérieures du fait de l'influence continentale eurasiennne dominante.

b- 30°N-0°N

A l'exception des quelques valeurs concernant l'Afrique, l'Amérique Centrale et les Caraïbes, les seules données de concentration disponibles dans cette bande de latitude sont en Inde. Là, les concentrations décroissent du nord jusqu'au sud de la péninsule (Figure IV.3). Le Nord de l'Inde présente des fortes concentrations

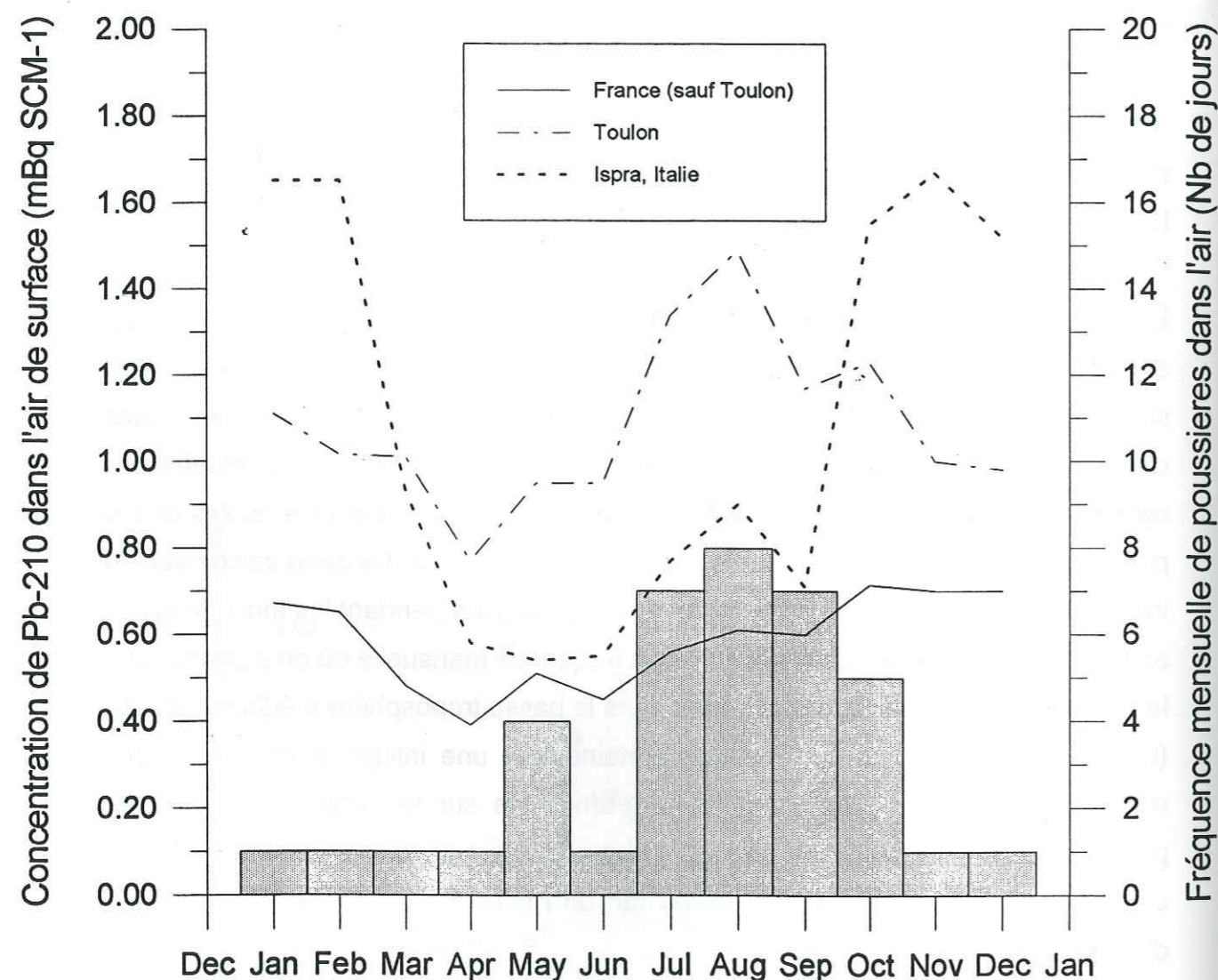


Figure IV.2: Distribution annuelle des concentrations de ^{210}Pb dans l'air de surface (en mBq SCM^{-1}) à Ispra, Italie (1991-1995)(F. D'Alberti, communication personnelle), en France (moyenne globale excepté Toulon) et à Toulon (1989-1995)(J. Calmet, 1996). Fréquence mensuelle de présence de poussières d'origine saharienne dans l'air de surface (en nombre de jours de présence) en Corse (1985-1987)(G. Bergametti, communication personnelle). Les concentrations de ^{210}Pb sont représentées par des lignes et les poussières par des barres.

homogènes en dépit du fait que cette région est soumise à deux types différents de climat. En effet, au Kashmir (Srinagar), la quantité annuelle de précipitations est modérée (environ 700 mm) mais régulièrement répartie tout au long de l'année. Par contraste, les régions centrales nord sont soumises au climat de mousson avec de fortes précipitations durant les trois mois d'été et à un climat sec pendant le reste de l'année. La décroissance jusqu'à 0.5 mBq.m^{-3} au bout de la péninsule est attribuée à l'influence croissante des masses d'air océaniques. Le cas de Bombay est intéressant à analyser car des données mensuelles sont disponibles sur 5 ans (Joshi et al., 1969). Un fort contraste saisonnier apparaît ici, avec de très fortes concentrations (jusqu'à 1.6 mBq.m^{-3}) pendant la saison sèche et de faibles concentrations (jusqu'à 0.2 mBq.m^{-3}) pendant la mousson. Ces différences illustrent deux phénomènes: (1) l'effet du lessivage par les précipitations sur la concentration: de fortes pluies, impliquant un fort flux de dépôt, entraînant des concentrations dans l'atmosphère plus faibles, et (2) l'influence de l'origine des masses d'air: masses d'air océaniques dominantes, pauvre en ^{210}Pb , pendant la mousson.

c- 0°S-30°S

La plupart des informations disponibles provient d'Amérique du Sud et d'Australie où les sites de mesure sont restreints aux zones côtières. En Australie, les concentrations dans l'air montrent des valeurs comparables sur l'ensemble du continent. Une légère hausse s'observe toutefois dans la partie Ouest (Perth, 0.30 mBq.m^{-3}) où l'influence des masses d'air continentales est plus importante. En Amérique du Sud, les mesures sont restreintes à la partie Ouest du continent, caractérisée par un climat très sec à ces latitudes. Ainsi retrouve-t-on ici des valeurs supérieures à celles observées en Australie du fait de la dominance des vents d'est continentaux et de la rareté des précipitations. Les deux continents ont des concentrations assez homogènes (entre 0.2 et 0.45 mBq.m^{-3}). Ces valeurs peu élevées peuvent être expliquées par le faible rapport continent/océan dans cette bande de latitude (23% de surface continentale) et par la situation côtière des sites de mesure (principalement en Australie). En Afrique, le ^{210}Pb a été mesuré sur un site continental (Pretoria, Afrique du Sud) où on observe une valeur (0.75 mBq.m^{-3}) deux fois supérieure aux valeurs mesurées en Amérique du Sud. La forte prédominance continentale explique certainement cette valeur.

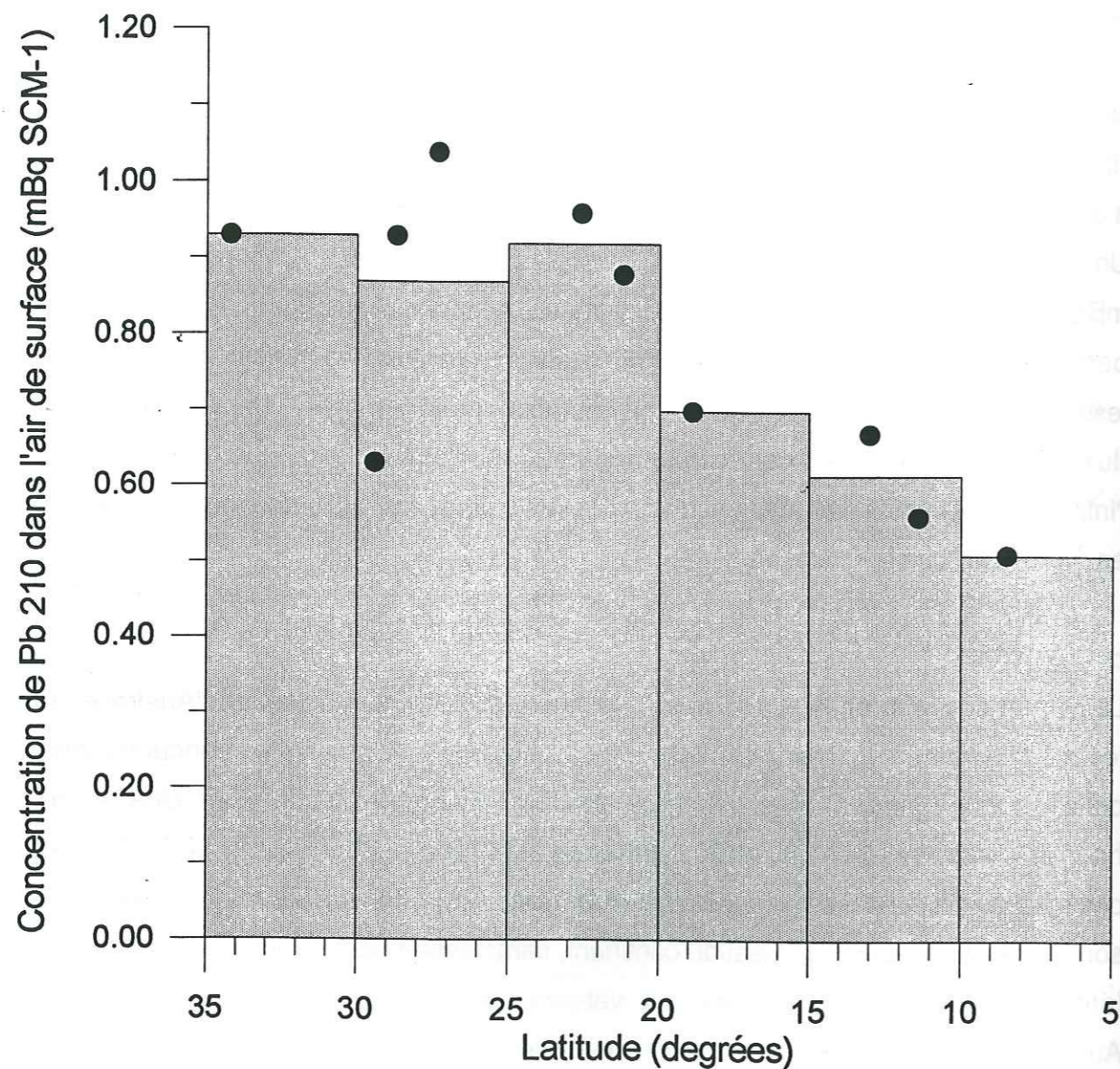


Figure IV.3: Distribution en latitude de la concentration de ^{210}Pb dans l'air de surface (en mBq SCM^{-1}) en Inde; Les barres grises représentent les moyennes de concentration par bande de 5° de latitude.

d- 30°S - 60°S

Les données de concentration dans l'air ont été obtenues en Australie du Sud, en Nouvelle-Zélande et sur la péninsule Sud Américaine. Dans cette bande de latitude, les concentrations chutent brutalement autour de 40°S , de 0.3 mBq.m^{-3} à 35°S jusqu'à moins de 0.1 mBq.m^{-3} à 45°S . Entre 45° et 60°S les valeurs restent très faibles, décroissant de 0.12 à 0.03 mBq.m^{-3} . Ces tendances, concernant la distribution latitudinale des concentrations, peuvent s'expliquer par la répartition des continents à ces latitudes. Les faibles valeurs obtenues entre 30° et 40°S sont reliées à la très faible proportion de surface continentale (6%), qui implique une forte décroissance des sources de ^{222}Rn . En Amérique du Sud (côte Ouest) ce phénomène est accentué par le changement de circulation zonale atmosphérique vers le 35° parallèle. Au nord de cette latitude, les vents d'est dominants apportent des masses d'air sèches sur la façade Ouest du continent. Ces masses d'air sont enrichies en ^{210}Pb après avoir traversé le continent. Au sud du 35° parallèle, les vents d'ouest deviennent prédominants et apportent des masses d'air océaniques humides et pauvres en ^{210}Pb . Il en résulte une très forte décroissance de la concentration entre Santiago (33.5°S , 0.33 mBq.m^{-3}), où le climat est sec (320 mm de pluie annuelle), et Puerto Montt (41.5°S , 0.054 mBq.m^{-3}) soumis à un climat humide (2570 mm de précipitations annuelles).

La mesure établie sur 9 mois à l'extrême sud du continent africain (Cap de Bonne Espérance, 0.13 mBq.m^{-3}) indique une concentration du même ordre qu'au sud de l'Australie (Melbourne, 0.19 mBq.m^{-3} ; Cape Grim, Tasmanie, 0.11 mBq.m^{-3}).

1.2.2 Régions océaniques

Dans les zones océaniques, les mesures sont dispersées et collectées sur des sites insulaires. Les faibles valeurs de concentration obtenues reflètent bien l'absence de sources de ^{210}Pb au-dessus des océans.

Dans l'hémisphère sud, les valeurs sont faibles (entre 0.012 et 0.11 mBq.m^{-3}), comparées aux valeurs continentales. Elles sont du même ordre de grandeur que les valeurs observées dans les zones continentales sous le 40° parallèle sud, zones principalement sujettes aux influences océaniques. Si on différencie les sites océaniques sous influence continentale des sites totalement isolés, on remarque

également une décroissance de la concentration de ^{210}Pb en fonction de la latitude sur les océans. Pour les sites soumis à une influence continentale non négligeable (île de La Réunion, île de Norfolk, île de Chatam et îles Falklands), la concentration décroît de 0.11 mBq.m^{-3} vers $20^\circ\text{-}30^\circ\text{S}$ (îles de La Réunion et de Norfolk) jusqu'à 0.05 mBq.m^{-3} vers 50°S (îles Falklands). Les sites isolés (îles Samoa, île de Pacques, île d'Amsterdam, île Marion et îles Kerguelen) montrent une décroissance allant de 0.06 mBq.m^{-3} vers 15°S (îles Samoa), jusqu'à 0.012 mBq.m^{-3} vers 50°S (îles Kerguelen).

Dans l'hémisphère nord, les valeurs océaniques de concentration de ^{210}Pb sont très dispersées et peu nombreuses, variant de 0.18 à 0.41 mBq.m^{-3} , et il n'est pas possible d'en extraire des tendances globales. Comparées aux valeurs océaniques de l'hémisphère sud, les concentrations océaniques boréales sont bien supérieures (sans prendre en compte la valeur extrêmement faible obtenue à Amchikta, îles Aléoutiennes (0.003 mBq.m^{-3}), qui n'est pas explicable). Comparativement à la plupart des valeurs océaniques enregistrées, des concentrations élevées de ^{210}Pb dans l'air sont observées dans l'Océan Pacifique nord-est (îles japonaises, 0.37 mBq.m^{-3} en moyenne), aux Bermudes (0.35 mBq.m^{-3}) et à Mauna Loa, Hawaii (0.32 mBq.m^{-3}). Ces fortes concentrations océaniques sont dues à différentes causes. Pour les îles du Pacifique Est et les Bermudes, l'influence significative de grands continents (Eurasie et Amérique du Nord, respectivement), situés à proximité et dans la direction des vents dominants, implique un approvisionnement important en ^{210}Pb . En revanche, ce n'est pas le cas pour le site de Mauna Loa (îles Hawaii) qui est localisé à près de 4000km des côtes américaines. Ici, les mesures sont effectuées à 3400m d'altitude, au-dessus de la couche d'inversion tropicale, dans la troposphère libre (Moore et al., 1974). Le transport atmosphérique à grande échelle s'effectue à haute altitude, ce qui implique que les masses d'air de la troposphère libre océanique sont enrichies en constituants d'origine continentale, par rapport aux masses d'air proches de la surface. Ce mécanisme explique bien le fait que la concentration de ^{210}Pb dans l'air à Mauna Loa soit près de deux fois supérieure à celle observée à Honolulu (0.18 mBq.m^{-3}), situé dans le même archipel (300 km au Nord-ouest), au niveau de la mer.

1.2.3 Régions polaires et subpolaires

En Antarctique, les mesures de concentration dans l'air de surface, effectuées

entre 64° et 90°S , présentent des valeurs très faibles comprises entre 0.01 et 0.03 mBq.m^{-3} . Ces valeurs n'indiquent aucune différence entre les zones côtières et l'intérieur du continent (Pôle Sud). Cette égalité des valeurs de concentration exprime le fait que la masse d'air est homogène sur l'Antarctique. Ces valeurs sont proches des concentrations océaniques de l'hémisphère sud lorsque celles-ci sont mesurées loin des influences continentales.

Ces très faibles valeurs résultent de trois facteurs:

- le continent Antarctique est totalement englacé et, comme les océans, ne constitue pas une source de ^{222}Rn ,
- l'Antarctique est loin des sources continentales, qui ne s'étendent pas au delà de 45°S ,
- la forte circulation circumpolaire atmosphérique prévient la pénétration des masses d'air continentales, riches en ^{210}Pb , vers l'Antarctique.

La situation est totalement différente de celle de l'Antarctique dans les régions polaires arctiques. Les concentrations de surface en ^{210}Pb (variant de 0.18 à 0.44 mBq.m^{-3}) sont supérieures d'un ordre de grandeur de celles de l'Antarctique. Le Groenland est, comme l'Antarctique, englacé toute l'année à l'exception d'une petite frange côtière. Il ne constitue donc pas une source de ^{222}Rn . Les principaux facteurs qui influencent la distribution du ^{210}Pb en Arctique sont:

- la proximité de grands continents non-englacés (Amérique du Nord et Eurasie),
- la circulation atmosphérique, qui est différente de celle de l'hémisphère sud, avec d'importants échanges de masses d'air entre les régions polaires et tempérées, ces dernières constituant une source de ^{210}Pb .

Ces échanges sont bien illustrés par les variations saisonnières des concentrations atmosphériques de ^{210}Pb dans l'air de surface (Figure IV.4). Durant l'hiver, le front polaire arctique s'étend jusqu'aux moyennes latitudes incluant de vastes zones de l'Amérique du Nord et de l'Eurasie. A cette époque de l'année, ces régions sont souvent soumises à de fortes conditions anticycloniques. La troposphère arctique constitue ainsi un vaste réservoir mélangé qui inclut des émissions provenant des zones continentales des moyennes latitudes (Heidam, 1984). Cet approvisionnement conduit à de fortes concentrations de ^{210}Pb pendant l'hiver (0.93 mBq.m^{-3} à Barrow, Alaska; 0.39 mBq.m^{-3} à Thule, Groenland). Au printemps, le front polaire se déplace

vers le nord et isole, de façon croissante, les régions arctiques de l'influence des moyennes latitudes. En conséquence, la troposphère arctique devient pauvre en ^{210}Pb durant l'été ($0.07 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ à Barrow, Alaska; $0.09 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-3}$ à Thule, Groenland). Sur la calotte centrale groenlandaise (Dye 3), le maximum d'hiver que l'on observe ailleurs semble être déplacé vers le printemps et est beaucoup moins prononcé; la modération et le déplacement temporel de ce maximum sont probablement dûs à l'existence d'un front de haute pression, situé en permanence au-dessus de la calotte groenlandaise pendant l'hiver, qui empêche la pénétration des masses d'air extérieures (Dibb et Jaffrezo, 1993). Pendant l'été, la cellule polaire couvre des régions avec de très faibles émissions de ^{222}Rn (océans, glaciers) mais aussi quelques zones continentales déglacées (zones sources); cette dernière contribution peut expliquer, en partie, que les concentrations estivales de ^{210}Pb en Arctique, qui sont faibles par rapport aux concentrations hivernales, restent plus fortes que les concentrations observées en Antarctique.

1.2.4 Distribution en latitude

La distribution en latitude des concentrations dans l'air de surface est présentée (Figure IV.5); elle inclut les mesures continentales et océaniques. Quand différentes mesures ont été effectuées sur un même site, les valeurs ont été moyennées selon leur période d'observation et sont représentées par une seule donnée. Les moyennes zonales par 10° de latitude sont aussi présentées. La Table IV.1 donne les valeurs des moyennes zonales des concentrations dans l'air de surface du ^{210}Pb par tranches de 30° de latitude. Il est important de noter que la Figure IV.6 et la Table IV.1 ne sont basées que sur les données disponibles dans la base de données et qu'elles n'incluent pas de vastes zones continentales telles que l'Afrique du Nord, l'Asie Centrale et l'Amérique du Sud Orientale. Les lacunes concernant les régions océaniques sont encore plus importantes.

La distribution en latitude exprime clairement la différence entre les hémisphères nord et sud. Les concentrations apparaissent plus fortes en hémisphère nord qu'en hémisphère sud, ce qui s'explique par la dissymétrie du rapport continent/océan, c'est-à-dire des sources de ^{210}Pb entre les deux hémisphères. L'effet des sources continentales sur la concentration est bien illustré par le changement brutal dans la

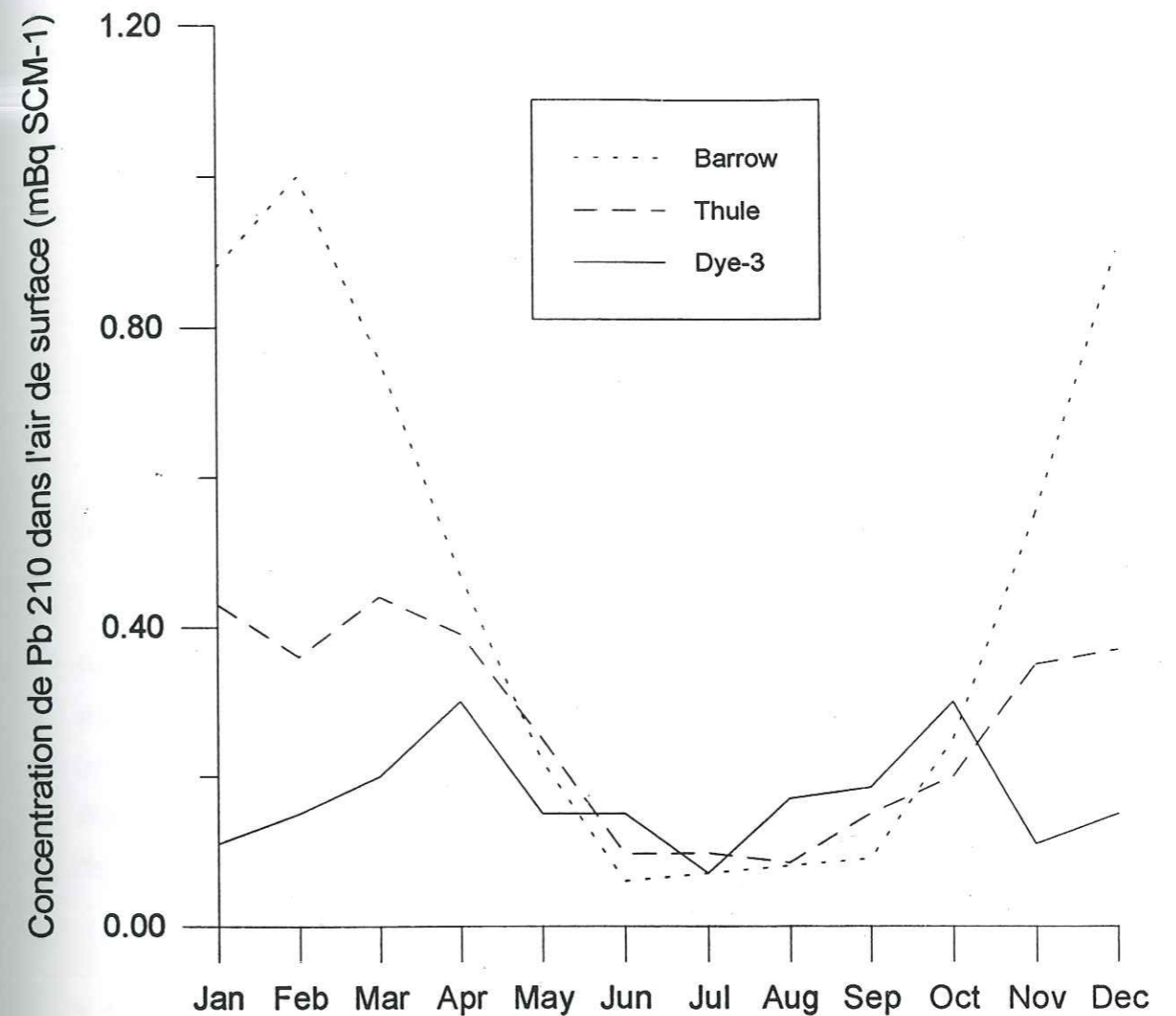


Figure IV.4: Distribution annuelle des concentrations de ^{210}Pb dans l'air de surface (en mBq SCM^{-1}) dans les régions polaires arctiques (Point Barrow, Thule et Dye-3).

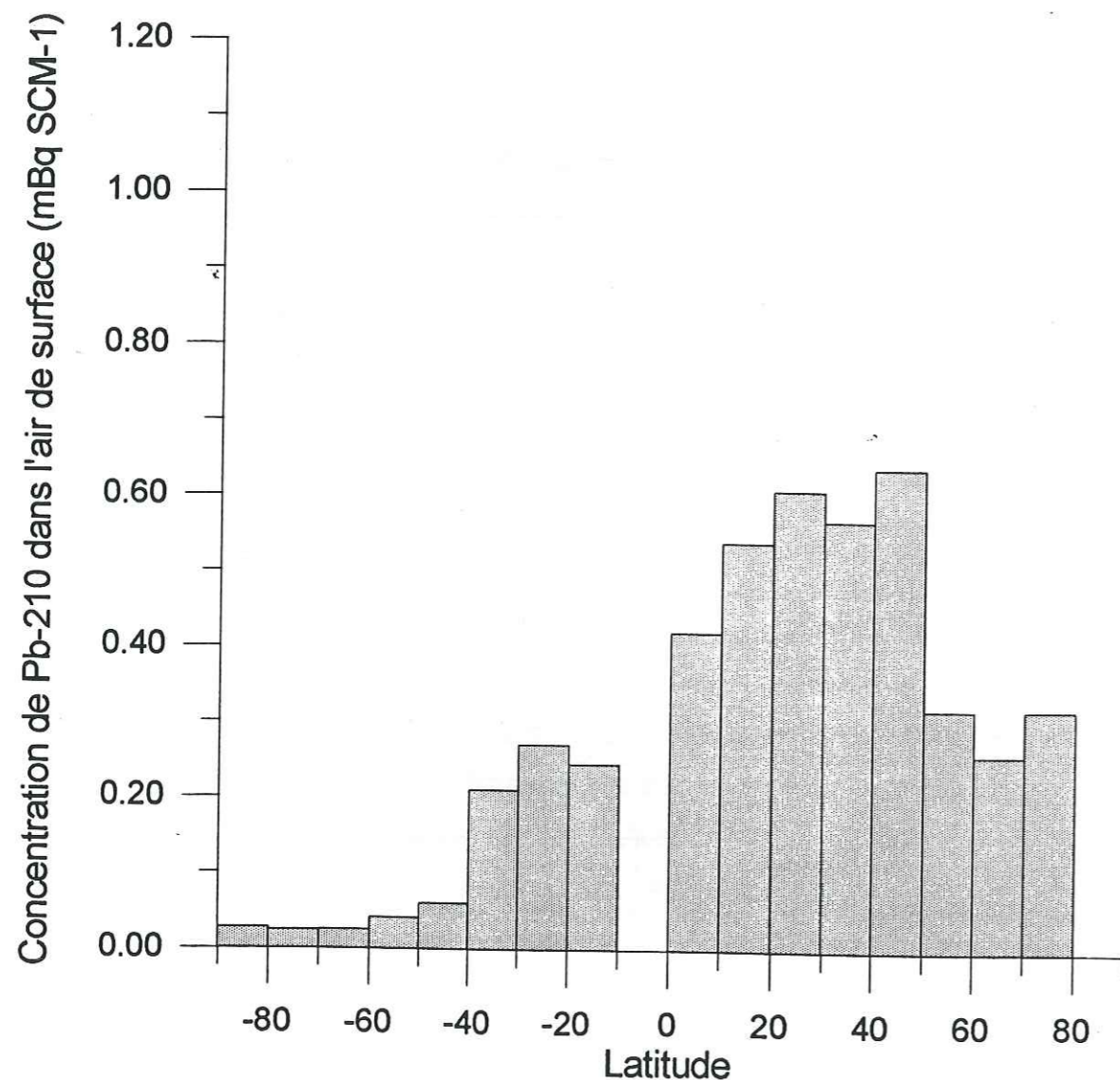


Figure IV.5: Distribution globale en latitude de la concentration de ²¹⁰Pb dans l'air de surface (en mBq SCM⁻¹) moyennée par bande de 10° de latitude.

distribution en latitude autour de 40°S, parallèle au-dessous duquel les sources continentales sont quasi-inexistantes.

Table IV.1: Concentrations moyennes zonales de ²¹⁰Pb dans l'air de surface

Bande de Latitude	Concentration de ²¹⁰ Pb (mBq m ⁻³)	Proportion Continentale (%)
60°-80°N	0.29	43.5
30°-60°N	0.51	50.0
0°-30°N	0.49	28.7
0°-30°S	0.28	22.9
30°-60°S	0.10	6.0
60°-90°S	0.025	0.0

Les valeurs sont issues de la Figure IV.5.

Une dissymétrie considérable des concentrations dans l'air est observée entre les zones polaires nord et sud. Comme nous l'avons vu précédemment, l'absence de sources continentales au sud du 45^{ème} parallèle austral, associée à la forte circulation circumpolaire atmosphérique, conduit à des valeurs de ²¹⁰Pb très faibles en Antarctique. Ces phénomènes illustrent bien la forte isolation du continent Antarctique de l'influence des autres continents.

1.3 Commentaires sur les flux de dépôt air-surface

La répartition géographique des flux de dépôt de ²¹⁰Pb suit des lois plus complexes que celle des concentrations dans l'air de surface. En plus de l'importance de l'origine des masses d'air, les précipitations jouent également un rôle prépondérant. Le flux de ²¹⁰Pb dépend non seulement de la concentration dans l'air de surface (dépôt sec principalement) mais surtout de la quantité de ²¹⁰Pb dans les couches supérieures de la troposphère où se condensent les gouttelettes d'eau (ou de glace) lors de la formation des nuages. C'est en effet par ce processus que le lessivage des aérosols atmosphériques est le plus efficace (WCRP, 1995).

Les trois types de collecteurs décrits dans le chapitre II (collecteurs artificiels, sols et neige) ont été utilisés pour obtenir les données de flux. En ce qui concerne les mesures de sol, trois sites (Camels Hump, White face Mt et Santa Fe, USA) ont été exclus, car les valeurs de flux de ^{210}Pb sont bien au-delà de la distribution moyenne locale. Comme pour les concentrations dans l'air de surface, nous soulignons ici les caractères globaux issus de la répartition spatiale des valeurs. Cependant, ici, notre étude ne s'effectue que dans les régions pour lesquelles un nombre suffisant de données existe.

1.3.1 Hémisphère Nord

a- Amérique du Nord

La Figure IV.6 présente la distribution en longitude du flux aux Etats-Unis, entre 30° et 60°N . La même tendance que celle constatée pour les concentrations est observée: une dissymétrie est/ouest avec de faibles valeurs dans les régions occidentales. Les causes expliquant ce phénomène sont les mêmes que celles relatives à la distribution des concentrations: les vents d'ouest dominants impliquent des masses d'air d'origine océanique pauvres en ^{210}Pb qui prévalent sur la partie ouest du continent. Toutefois le maximum de flux sur la partie orientale du continent est moins prononcé que pour les concentrations et se distribue sur une plus large bande de longitude. Cette dernière observation s'explique certainement par le fait que les concentrations de ^{210}Pb dans la haute troposphère sont plus homogènes qu'en surface du fait d'un plus grand brassage des masses d'air.

Le rôle des précipitations est bien illustré par les différences dans les valeurs de flux qui apparaissent sur la côte Ouest où celui-ci croît avec la quantité de pluies annuelles. Comme illustration, on peut observer la différence appréciable du flux entre le Nord (Seattle: $73 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$) et le Sud (Palo Alto: $25 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$), différence qui existe également dans les taux de précipitation annuelle (respectivement 1200 mm an^{-1} et 350 mm an^{-1}). Un autre exemple, illustrant cette fois-ci le rôle de l'orographie sur le flux, est donné en Sierra Nevada. Ici, une forte augmentation existe entre le flux sur la côte californienne (environ $40 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$), Central Valley ($70 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$) et les sites de la Sierra situés 200 km à l'intérieur des terres (environ $130 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$). Ce gradient peut s'expliquer par le fait que les vents d'ouest dominants, appauvris en ^{210}Pb après

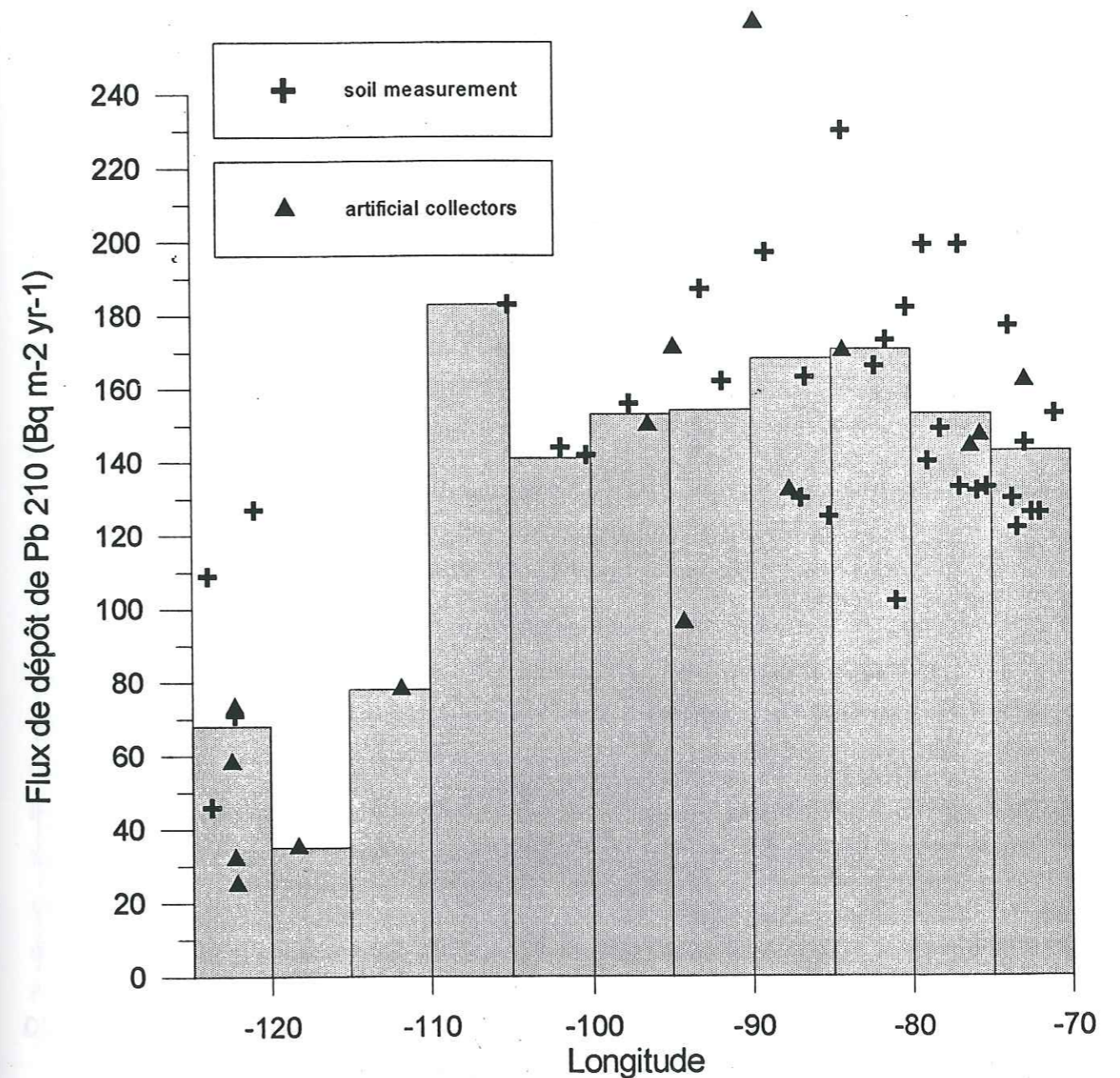


Figure IV.6: Distribution en longitude du flux de dépôt annuel de ^{210}Pb (en $\text{Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$) en Amérique du Nord, entre 30° et 60°N ; Les barres grises représentent les moyennes de flux par bande de 5° de longitude.

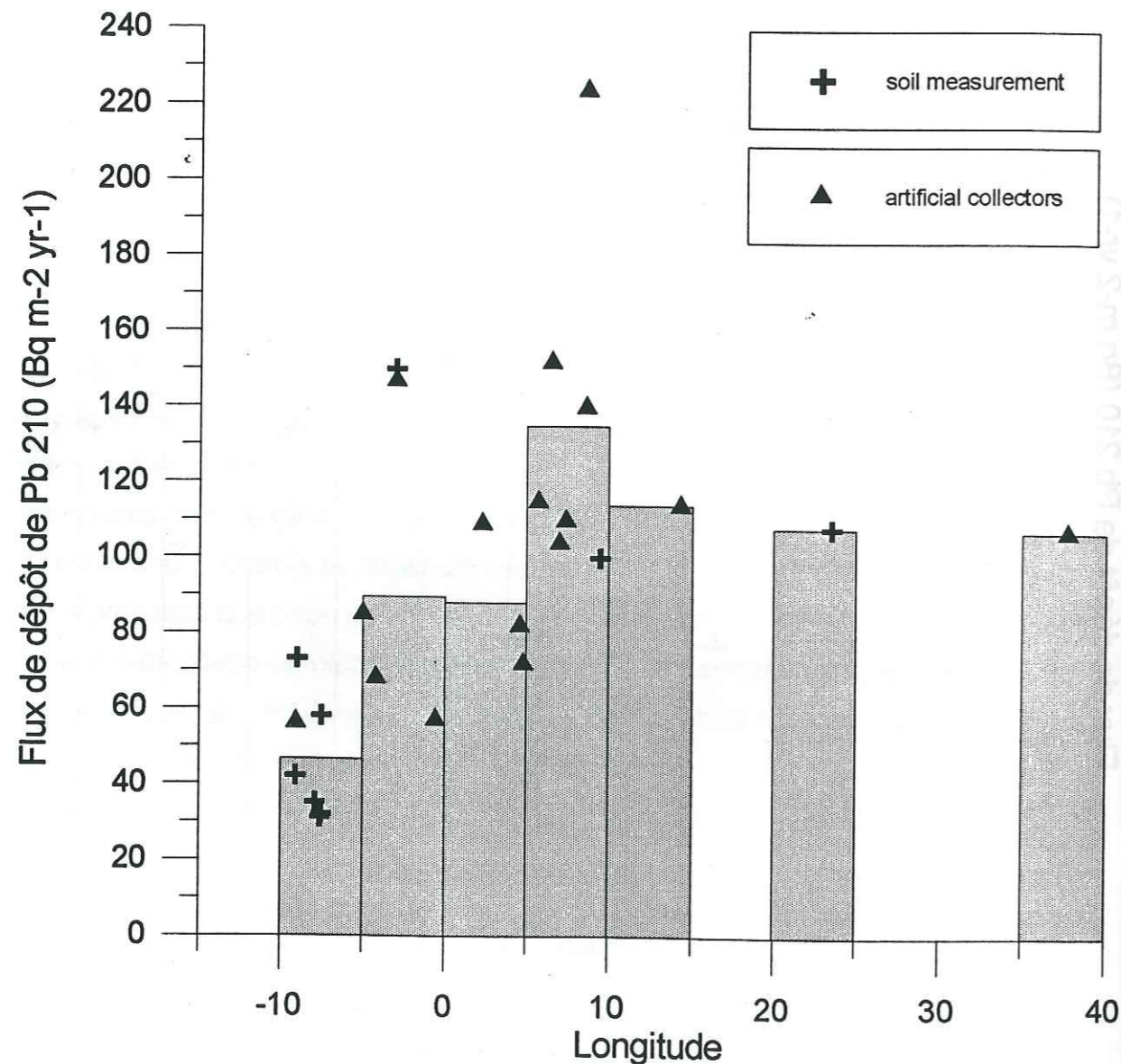


Figure IV.7: Distribution en longitude du flux de dépôt annuel de ^{210}Pb (en $\text{Bq m}^{-2} \text{an}^{-1}$) en Europe, entre 30° et 60°N ; Les barres grises représentent les moyennes de flux par bande de 5° de longitude.

avoir traversé l'Océan Pacifique, arrivent sur la côte, traversent une partie continentale et atteignent la Sierra. Ces masses d'air humides sont progressivement enrichies en ^{222}Rn et en ^{210}Pb dans l'air de surface lorsqu'elles traversent la bande continentale. Quand ces masses atteignent les premiers reliefs de la Sierra, le ^{210}Pb se dépose à la fois par les pluies et par les gouttes d'eau condensées des brouillards sur la végétation (Graustein et Turekian, 1986; Monaghan, 1989).

b- Europe

La distribution en longitude des flux (Figure IV.7) est assez similaire à celle de l'Amérique du Nord, même si il n'y a que peu de données en Europe Centrale. Cette similitude n'est pas surprenante du fait que ces deux régions sont situées dans la même bande de latitude et sont soumises aux mêmes conditions de circulation zonale atmosphérique.

c- Japon

Les plus forts flux mesurés actuellement sur Terre sont observés au Japon avec toutefois des variations spatiales considérables (de 170 et $465 \text{ Bq m}^{-2} \text{an}^{-1}$). Le Japon est situé aux moyennes latitudes à l'est du continent asiatique. Il est soumis aux vents d'ouest dominants. Sa situation géographique est comparable à la côte Est de l'Amérique du Nord. Ainsi, des flux du même ordre devraient-ils y être observés. En fait, seules les plus basses valeurs correspondent aux flux observés sur l'Est de l'Amérique du Nord. Deux hypothèses permettent d'interpréter ces différences. La première hypothèse réside dans la position insulaire du Japon qui est à l'origine d'un climat plus humide avec d'abondantes précipitations en été et en hiver. Certes, les précipitations estivales sont issues de masses d'air océaniques pauvres en ^{210}Pb n'apportant pas un dépôt conséquent. Il n'en est pas de même quant à l'origine des précipitations hivernales. Fukuda et Tsunogai (1975) expliquent que les flux élevés observés à Hokkaido sont dûs à la mousson sud-ouest d'hiver. A cette époque de l'année, des masses d'air continentales sèches originaires de Manchourie et de Mongolie sont humidifiées au-dessus de la mer du Japon et atteignent l'archipel. Durant leur long parcours au-dessus du continent asiatique, ces masses d'air s'enrichissent fortement en ^{210}Pb et lorsqu'elles arrivent, pleines d'humidité, sur les reliefs du Japon, les effets orographiques entraînent des précipitations riches en ^{210}Pb , donc un flux élevé. Le

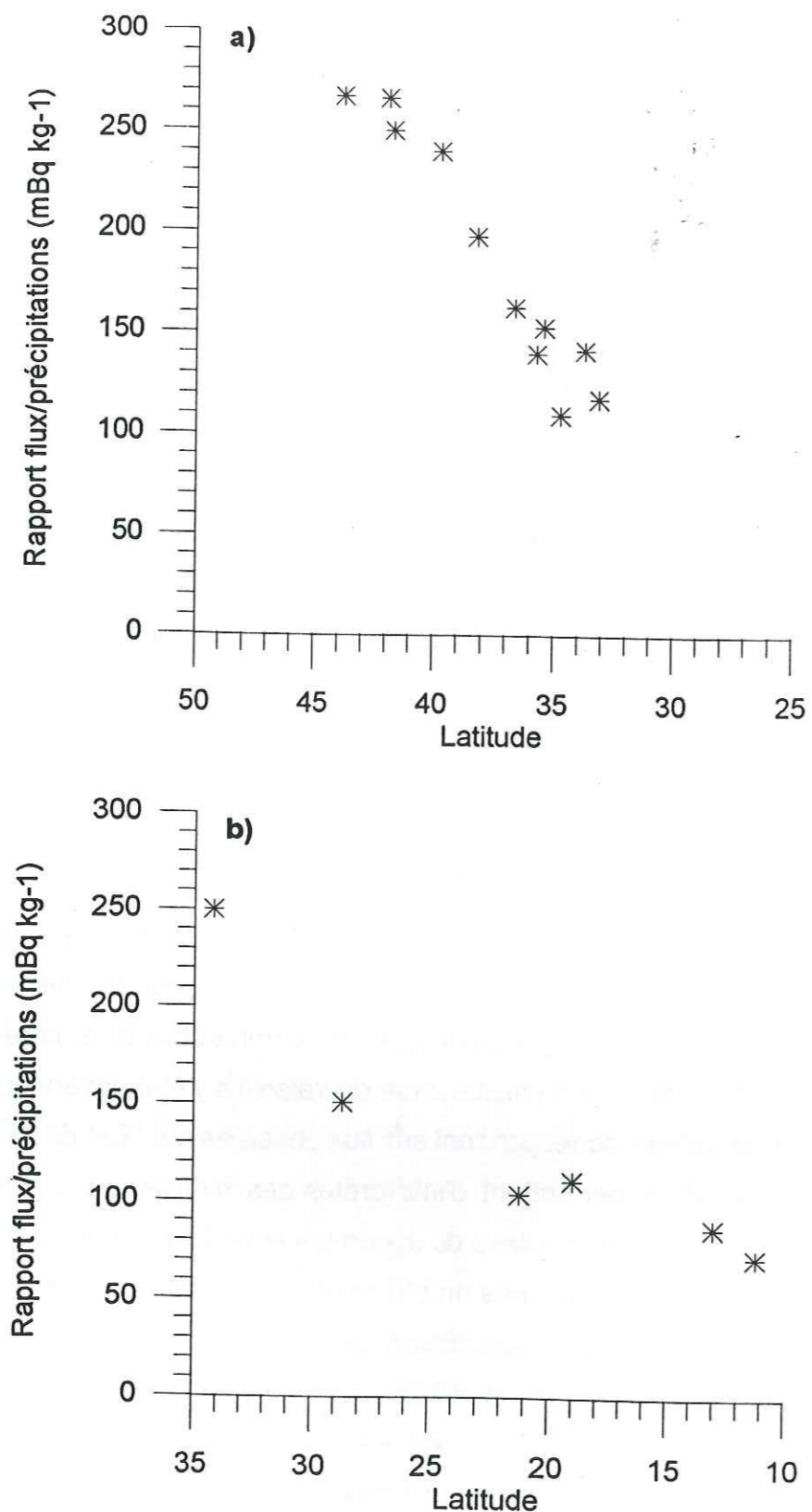


Figure IV.8: Distribution en latitude du rapport flux/précipitations (en Bq Kg⁻¹) (a) au Japon entre 130° et 140°E et (b) en Inde entre 70° et 80°E.

rapport flux/précipitation montre que la variabilité spatiale des valeurs de flux s'expliquent, d'une part par la variabilité des précipitations, d'autre part par le fait que la partie Nord du Japon est plus influencée par les moussons d'hiver (Figure IV.8a). La seconde hypothèse (moins bien établie) permettant d'expliquer les forts flux observés au Japon et en Chine (deux mesures effectuées dans les sols donnant des flux respectifs de 330 et 355 Bq m⁻² an⁻¹) suppose une émission de radon plus importante dans les régions de la Chine intérieure et de la Mongolie. Cependant, aucune mesure à notre disposition ne permet de justifier cette dernière hypothèse.

d- Inde

L'Inde est la seule région tropicale et sub-tropicale où l'ensemble des données est mesuré sur 5 ans ou plus. Comme c'est le cas pour la distribution des concentrations, un gradient décroissant du flux de ²¹⁰Pb est observé du nord (Srinagar, 182 Bq m⁻² an⁻¹) vers le sud (89 Bq m⁻² an⁻¹ en moyenne pour la péninsule). Comme pour les concentrations, cette décroissance nord-sud au niveau de la péninsule peut être attribuée à l'influence croissante des masses d'air maritimes. Mais contrairement aux concentrations dans l'air, les flux au nord montrent des variations considérables (de 106 Bq m⁻² an⁻¹ à Calcutta jusqu'à 240 Bq m⁻² an⁻¹ à Bombay). Cette variabilité peut être attribuée en grande partie aux quantités de précipitations annuelles: aux flux élevés correspondent les fortes précipitations. Cette hypothèse est appuyée par la décroissance plus régulière du rapport flux/précipitations du nord vers le sud du pays, entre 70°E et 80°E (Figure IV.8b). Les valeurs plus faibles de ce rapport à Calcutta et Gangtok (79 et 75 Bq kg⁻¹, respectivement) indiquent que la partie orientale de l'Inde semble moins approvisionnée en ²¹⁰Pb, au niveau de la haute et moyenne troposphère, que le reste du pays.

e- Océans

Comme pour les concentrations dans l'air de surface, les données relatives aux océans sont assez disparates. La plupart des données disponibles dans l'hémisphère nord ont été mesurées dans l'Océan Pacifique. On retrouve des valeurs du même ordre de grandeur que sur les continents pour les sites sous influence continentale (Chichijima, 166 Bq m⁻² an⁻¹; Bermudes, 115 Bq m⁻² an⁻¹). Sous les vents dominants, les influences continentales s'étendent sur de plus grandes distances pour les flux de

dépôt que pour les concentrations de surface, car le transport des aérosols s'effectue essentiellement par la haute et moyenne troposphère. Les deux valeurs précédentes sont donc aisément expliquables. Les sites isolés enregistrent des flux beaucoup plus modérés (entre 24 et 54 Bq m⁻² an⁻¹). Outre les différences de quantités de précipitations annuelles entre ces sites, les flux varient aussi selon la distance qui sépare les îles des continents dans la direction d'où proviennent les vents dominants (entre 4000 et 9000 km).

1.3.2 Hémisphère Sud

Les données concernent principalement l'Océanie. Trois régions sont abordées ici: l'Australie, la Nouvelle-Zélande et quelques sites tropicaux du Pacifique Sud. Les données concernant l'Antarctique sont commentées dans la section sur les régions polaires.

Les flux de dépôt de ²¹⁰Pb sont comparables en Australie et en Nouvelle-Zélande. Il y a toutefois quelques variations que nous allons spécifier.

En Australie, les flux ne varient pas significativement avec la longitude (Figure IV.9). Ceci peut s'expliquer par le fait que ce continent est situé sur deux franges climatiques (zone tropicale soumise aux alizées et zone tempérée avec vents d'ouest dominants). L'influence du climat apparaît toutefois dans les valeurs de flux lorsque l'on compare les sites tropicaux avec fortes précipitations (Darwin, 95 Bq m⁻² an⁻¹, 1500 mm an⁻¹) aux régions arides (Port Headland, 32 Bq m⁻² an⁻¹, 320 mm an⁻¹). On retrouve ici la forte influence des précipitations sur le dépôt atmosphérique. Cependant, cette tendance n'est pas systématique si on compare le flux observé sur la côte tropicale orientale où les pluies sont relativement abondantes (Townsville, 38 Bq m⁻² an⁻¹, 1100 mm an⁻¹) avec le flux mesuré dans le désert continental (Alice Spring, 57 Bq m⁻² an⁻¹, 250 mm an⁻¹). Sur la côte nord orientale, les alizées apportent de l'air océanique pauvre en ²¹⁰Pb tandis que, au centre du continent, l'atmosphère de surface est riche en cet élément, ce qui implique probablement un dépôt sec important. Dans cette illustration, on observe la prédominance de la richesse atmosphérique en ²¹⁰Pb par rapport à la quantité de précipitation.

En Nouvelle-Zélande, une nette différence existe entre les côtes Nord-Ouest et Sud-Est. Le flux de ²¹⁰Pb moyen sur la façade Nord-Ouest (70 Bq m⁻² an⁻¹) est plus de

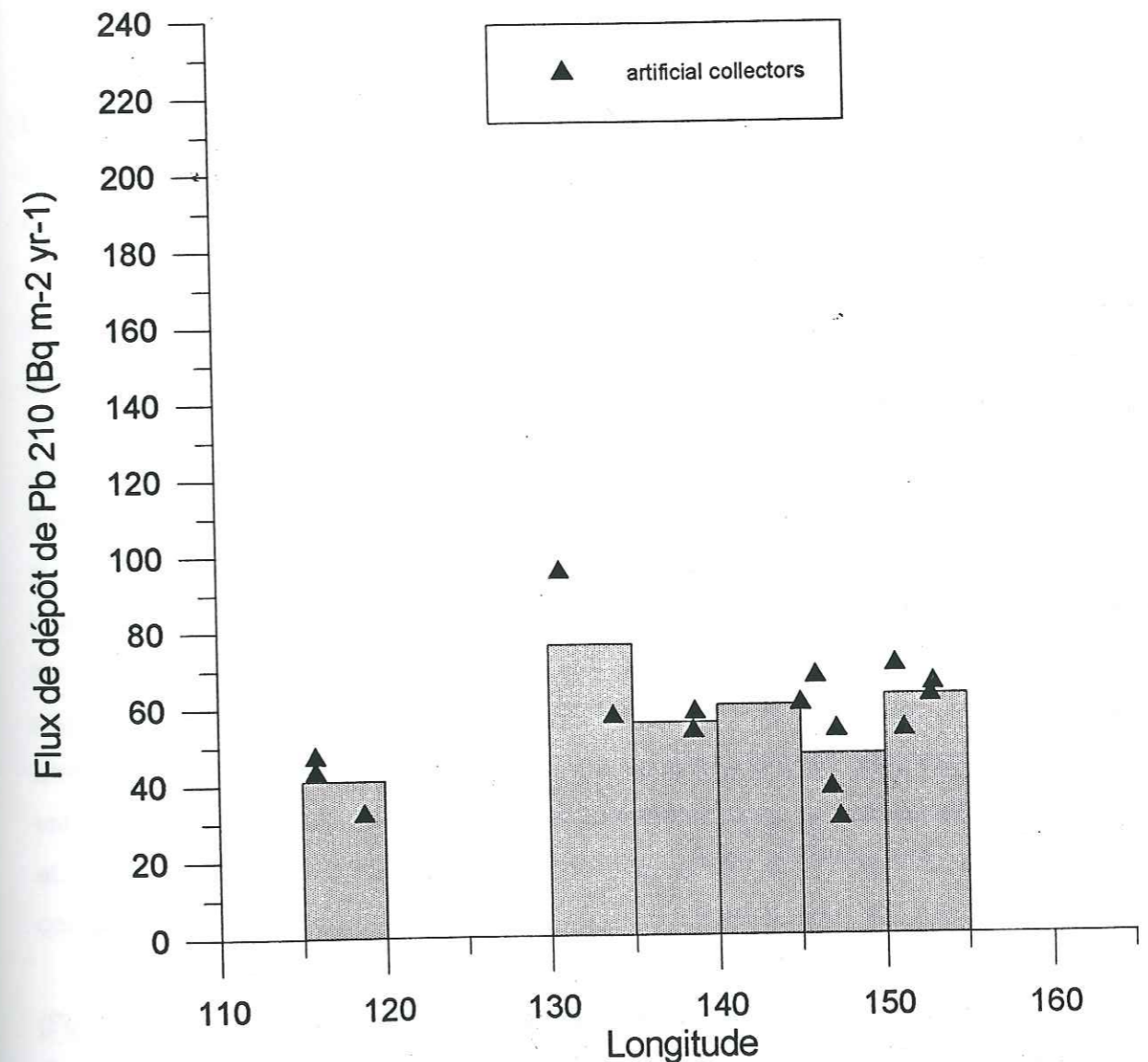


Figure IV.9: Distribution en longitude du flux de dépôt annuel de ²¹⁰Pb (en Bq m⁻² an⁻¹) en Australie; Les barres grises représentent les moyennes de flux par bande de 5° de longitude.

deux fois supérieur au flux de la côte Sud-Est ($30 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$). Nous pensons que cette différence est causée par des mécanismes similaires à ceux mentionnés pour le Japon. A ces latitudes, les vents d'ouest sont dominants. Les masses d'air continentales originaires d'Australie, alimentées en ^{210}Pb , s'humidifient au-dessus de l'océan. Lorsqu'elles atteignent la chaîne néo-zélandaise, elles produisent des précipitations sur la façade Nord-Ouest ($1500\text{-}2000 \text{ mm an}^{-1}$) et sont "asséchées" en passant de l'autre côté de la chaîne (côte Sud-Est: $700\text{-}1000 \text{ mm an}^{-1}$).

Sur l'Océan Pacifique, seuls deux sites ont été mesurés. Ils sont caractérisés par des flux relativement élevés pour l'hémisphère sud ($80 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ à Suva, îles Fiji et $52 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ à Rarotonga, îles Cook) et des précipitations très abondantes (3500 et 2100 mm an^{-1} respectivement).

On peut comparer ces trois zones (Australie, Nouvelle-Zélande et Pacifique tropical) en observant la distribution du rapport flux/précipitation (que nous appellerons α (exprimé en Bq.kg^{-1}) par commodité). Quand le dépôt sec est négligeable, comparé au dépôt humide, α représente la concentration de ^{210}Pb dans la pluie et doit être proportionnel à la concentration de ^{210}Pb dans la colonne d'air lessivée par la pluie.

En Australie, deux types de régions peuvent être distingués par le paramètre α . Les régions côtières, avec plus de 600 mm.an^{-1} de pluie, ont une valeur de α comprise entre 0.04 et 0.08 Bq.kg^{-1} , tandis que les régions désertiques ont une valeur de α plus forte (0.1 à Port Headland; 0.23 à Alice Spring) du fait de l'importance relative du dépôt sec. En Nouvelle-Zélande, α est compris entre 0.04 et 0.06 Bq.kg^{-1} . Sur les sites océaniques tropicaux, α est autour de $0.02\text{-}0.03 \text{ Bq.kg}^{-1}$. Nous limitons notre comparaison aux sites où le dépôt humide est supposé prédominant. La décroissance des valeurs de α de l'Australie vers les sites du Pacifique tropical, en passant par la Nouvelle-Zélande, est consistante avec la décroissance attendue de la concentration du ^{210}Pb dans l'air pour ces sites. L'Australie est une source continentale de ^{210}Pb avec des concentrations dans l'air relativement élevées (α élevé); la Nouvelle-Zélande est sous l'influence dominante des vents d'ouest, située à 2000 km à l'Est de l'Australie, alimentée donc en ^{210}Pb , en grande partie, par ce continent (α moins élevé mais pas faible); les deux sites océaniques tropicaux (Suva et Rarotonga) sont isolés des influences continentales ce qui a pour conséquence un appauvrissement de la concentration de ^{210}Pb dans l'atmosphère (α faible).

1.3.3 Régions polaires

Les flux de ^{210}Pb ont été mesurés dans la neige en Antarctique et dans la partie centrale du Groenland. Les deux calottes glaciaires présentent des valeurs de flux très faibles comparées à celles des latitudes plus basses. Néanmoins, les flux en Antarctique sont, en moyenne, inférieurs à ceux du Groenland. En Antarctique, les flux de dépôt s'accroissent de $1\text{-}2 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ vers le centre jusqu'à $3\text{-}8 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ sur les côtes (Figure IV.10a). Au Groenland, les mesures de flux n'ont été effectuées que sur la calotte centrale (pas de mesures sur les côtes) et les valeurs s'étendent de 5 à $20 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$. Le fait que les valeurs au Groenland soient plus élevées qu'en Antarctique s'explique aisément si l'on compare la distance et l'étendue des sources continentales de ^{210}Pb entre ces deux régions.

Au Groenland, les flux associés à des mesures effectuées sur de grandes profondeurs, correspondantes à de longues périodes d'observation (environ un siècle), semblent systématiquement plus forts que les flux mesurés dans les couches de neige récentes. Cette tendance est bien illustrée au site de Dye 3 où les flux varient de 6 à $20 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ selon la période d'observation (2 à 90 ans). Les auteurs de ces mesures interprètent ce phénomène comme une décroissance du flux de ^{210}Pb depuis le début du siècle (*Nijampurkar and Clausen, 1990; Dibb, 1992*). Cependant, une autre interprétation possible est que, dans les vieilles couches du manteau neigeux, la part de ^{210}Pb supporté, issue des poussières incorporées dans le milieu, n'est pas négligeable comparée à la part de ^{210}Pb non-supportée, issue des retombées atmosphériques, qui a fortement diminué par décroissance radioactive. Ainsi les valeurs plus élevées de dépôt de ^{210}Pb atmosphérique, attribuées au début du siècle et résultant, en fait, de la contribution non négligeable de ^{210}Pb supportée dans les couches de neige plus profondes, seraient-elles surestimées.

En Antarctique, le flux décroît des régions côtières vers le centre du continent (Figure IV.10a). Cette décroissance n'est pas observée pour la concentration dans l'air de surface qui reste similaire sur tout le continent, exprimant un réservoir d'air bien homogène en surface. La même décroissance que celle du flux est observée pour les précipitations (Figure IV.10b). Cette concordance indique que la distribution du flux de ^{210}Pb en Antarctique est principalement déterminée par les taux de précipitation. Les processus de lessivage de l'atmosphère sont plus efficaces sur les côtes, où les

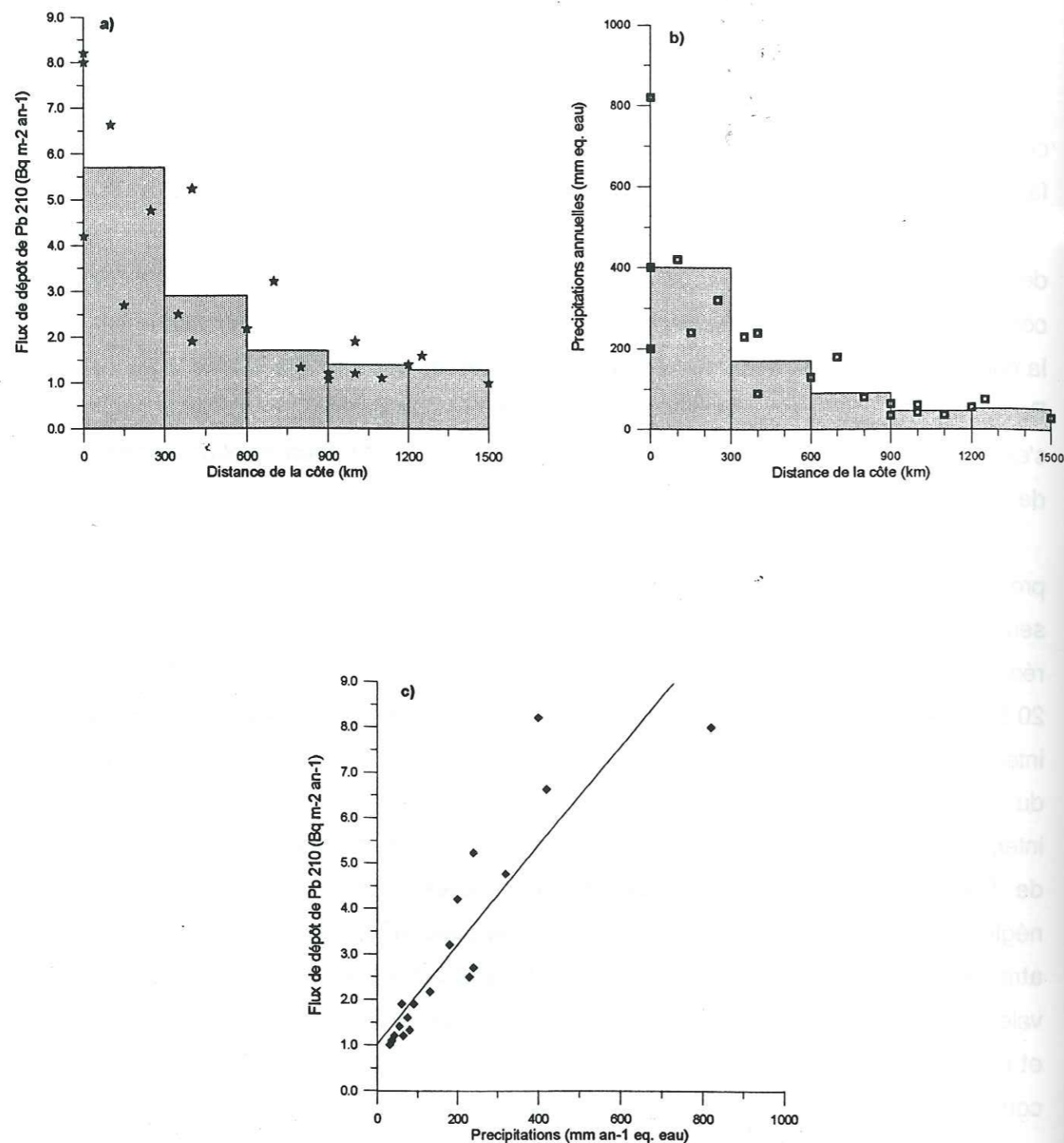


Figure IV.10: Distribution en Antarctique (a) du flux de dépôt annuel de ^{210}Pb (en $\text{Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$) en fonction de la distance à la côte, (b) des précipitations annuelles (en mm équivalent eau) en fonction de la distance à la côte et (c) du flux de dépôt annuel de ^{210}Pb en fonction des précipitations annuelles; Les barres grises représentent les moyennes par bande de 300 km.

précipitations sont plus fortes ($140\text{--}400 \text{ mm an}^{-1}$), qu'à l'intérieur où le climat est très aride ($30\text{--}90 \text{ mm an}^{-1}$). La Figure IV.10c donne le flux en fonction des précipitations. La relation quasi-linéaire observée résulte du fait que la concentration de ^{210}Pb dans la masse d'air est homogène sur l'Antarctique, conduisant à une activité spécifique de ^{210}Pb relativement constante (0.011 Bq kg^{-1}) dans les retombées de neige. Cette relation permet d'estimer le dépôt sec moyen sur l'Antarctique ($1.0 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$), après l'élimination du site de Mac Murdo, influencé par les émissions locales de ^{210}Pb d'origine volcanique du Mt Erebus (Crozas et al., 1964). Ces résultats sont similaires à ceux obtenus par Lambert et al. (1983). Ces derniers sont basés sur un plus faible nombre de mesures et donnent une activité spécifique de ^{210}Pb dans les précipitations égale à 0.015 Bq kg^{-1} . Au pôle Sud, les auteurs estiment que le dépôt sec correspond à 54% du dépôt total, une valeur proche de la présente estimation (65%).

Les flux mesurés dans les mousses et lichens aux Shetland du Sud, au bout de la péninsule Antarctique, avec une valeur moyenne de $8.3 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$, sont proches des flux mesurés dans la neige sur les régions côtières. Sur le même site (Livingston Island) les mesures dans la neige donnent une valeur de flux de 6.7 Bq m^{-2} pour les 10 mois d'hiver. Une valeur identique est observée à la base Roi Baudouin ($8.2 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$). Ces similarités montrent que les mesures dans les mousses et les lichens sont en bon accord avec les mesures dans la neige, concernant le ^{210}Pb .

1.3.4 Sites de haute montagne

Le peu de mesures effectué en haute altitude ($4000\text{--}7500\text{m}$) ne permet pas une étude précise. Toutefois, certaines caractéristiques communes à ces sites apparaissent dans les valeurs. Les flux de ^{210}Pb sont très faibles, s'étendant de 1 à $30 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ (si on ne considère pas la mesure effectuée au Dôme du Goûter, Massif du Mont Blanc). Quand ces flux peuvent être comparés à ceux mesurés à des altitudes plus basses, dans la même région, une nette décroissance est observée des faibles vers les hautes altitudes. Au Yukon, Canada, le flux mesuré au Mont Logan (5340 m , $14 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$) est deux fois plus faible que le flux régional mesuré à 1000 m (Kuane sites, $37 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ en moyenne). En Suisse, le flux décroît d'un facteur 7 entre Porte du Scex (400 m , $152 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$) et le col Gniffetti (4450 m , $22 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$). En Inde, il y a un facteur 9 entre les flux à Gangtok (2000 m , $230 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$) et le Changme Khampu glacier

(5150 m, 27 Bq m⁻² an⁻¹). Différents faits peuvent expliquer ces tendances: une plus faible concentration de ²¹⁰Pb dans l'air de la troposphère libre continentale, une décroissance des précipitations à ces altitudes, et une colonne, dans laquelle le ²¹⁰Pb est lessivé par les pluies, plus courte du fait des hautes altitudes. Cette dernière contribution est certainement négligeable comparée aux deux premières. La seule exception concernant ces valeurs provient du flux très important (260 Bq m⁻² an⁻¹) mesuré au Dôme du goûtier (4300m) dans le Massif du Mont-Blanc. Comme nous l'avons signalé dans le chapitre II, le flux élevé peut, en partie, s'expliquer par la redistribution de la neige par le vent, mais aussi par la présence de précipitations annuelles abondantes.

1.3.5 Distribution en latitude

Le flux de ²¹⁰Pb est exprimé en fonction de la latitude dans la Figure IV.11 et dans la Table IV.2. Il est important de rappeler que cette distribution en latitude résulte des données existantes dans la base et que d'importantes régions continentales telles que l'Amérique du Sud, l'Afrique et l'Asie Centrale, ne sont pas ou peu représentées du fait du manque de mesures. Les océans sont faiblement représentés. Les sites de haute montagne sont exclus ici à cause de leur faible représentativité spatiale.

Table IV.2: Moyennes zonales des flux de dépôt de ²¹⁰Pb

Bande de Latitude	Flux de Pb 210, (Bq m ² yr ⁻¹)
60°-80°N	42
30°-60°N	133
10°-30°N	153
10°-30°S	68
30°-50°S	49
60°-90°S	3.4

Les valeurs sont issues de la Figure IV.11.

La distribution en latitude du flux de ²¹⁰Pb est assez similaire à celle des concentrations dans l'air de surface. La différence entre les deux hémisphères

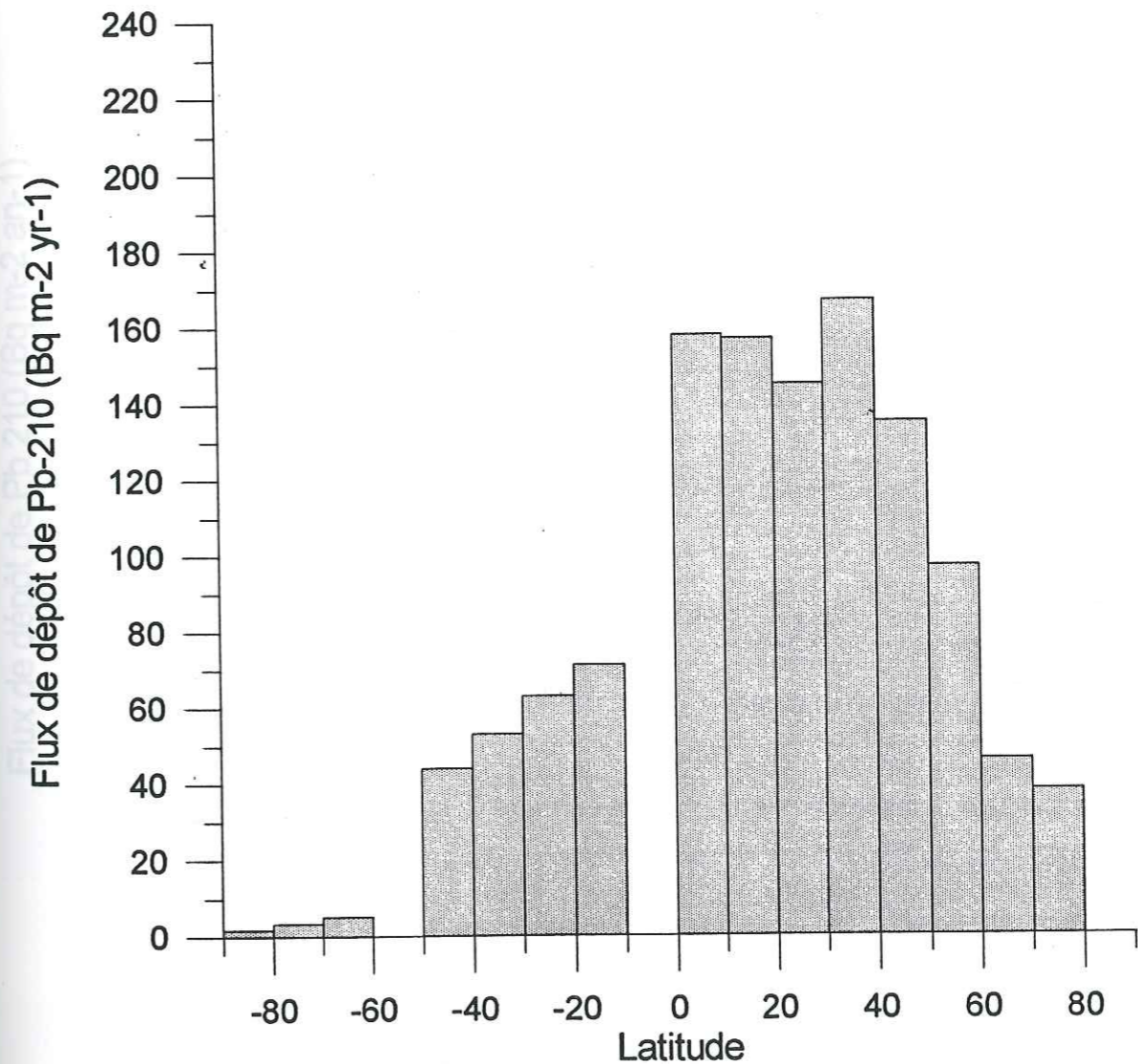


Figure IV.11: Distribution globale en latitude du flux de dépôt annuel de ²¹⁰Pb (en Bq m⁻² an⁻¹) moyenné par bande de 10° de latitude.

apparaît nettement pour les mêmes causes que celles relatives aux concentrations (fortes dissymétrie des rapports de surface continents/océans). Toutefois, des différences peuvent être soulignées:

- une plus grande dispersion des valeurs, particulièrement dans les moyennes latitudes nord,
- les zones polaires nord et sud (Groenland et Antarctique) présentent des valeurs du même ordre de grandeur, tandis que les concentrations dans l'air de surface sont bien supérieures dans les régions arctiques qu'en Antarctique.

1.3.6 Vitesse de dépôt superficielle

La vitesse de dépôt superficielle, définie comme étant le rapport entre le flux de dépôt et la concentration dans l'air de surface,

$$v = \frac{\Phi}{\rho}$$

est l'un des paramètres qui caractérise l'efficacité du dépôt total (sec et humide) (Turekian et al., 1977; Graustein and Turekian, 1986). Il faut cependant noter que v est seulement un outil mathématique qui peut servir à caractériser différentes régions; il ne représente pas une valeur physique du fait que le flux est influencé par la concentration de ^{210}Pb dans toute la colonne d'air tandis que ρ ne réfère qu'à l'air de surface. La Figure IV.12 présente les flux en fonction de la concentration dans l'air de surface pour les sites où les deux types de mesure sont disponibles. Les résultats sont groupés par grandes régions (Amérique du Nord, Europe, Inde, Australie, Antarctique et les régions océaniques incluant la Nouvelle-Zélande). Pour chaque région, la vitesse de dépôt moyenne a été calculée (Table IV.3). Ces vitesses de dépôt moyennes sont représentées (Figure IV.14) par la pente des droites. Les vitesses de dépôt restent dans un domaine comparable, s'étendant de 6 à 11 mm/s, pour les diverses régions continentales. Elles apparaissent nettement inférieures aux vitesses de dépôt des sites océaniques (de 10 à 28 mm/s). Les hautes valeurs océaniques s'expliquent par le fait que, dans le calcul de v , seule la concentration dans l'air de surface, qui est très faible, intervient tandis que la totalité de la colonne d'air, incluant la troposphère libre enrichie en ^{210}Pb , contribue au flux de dépôt.

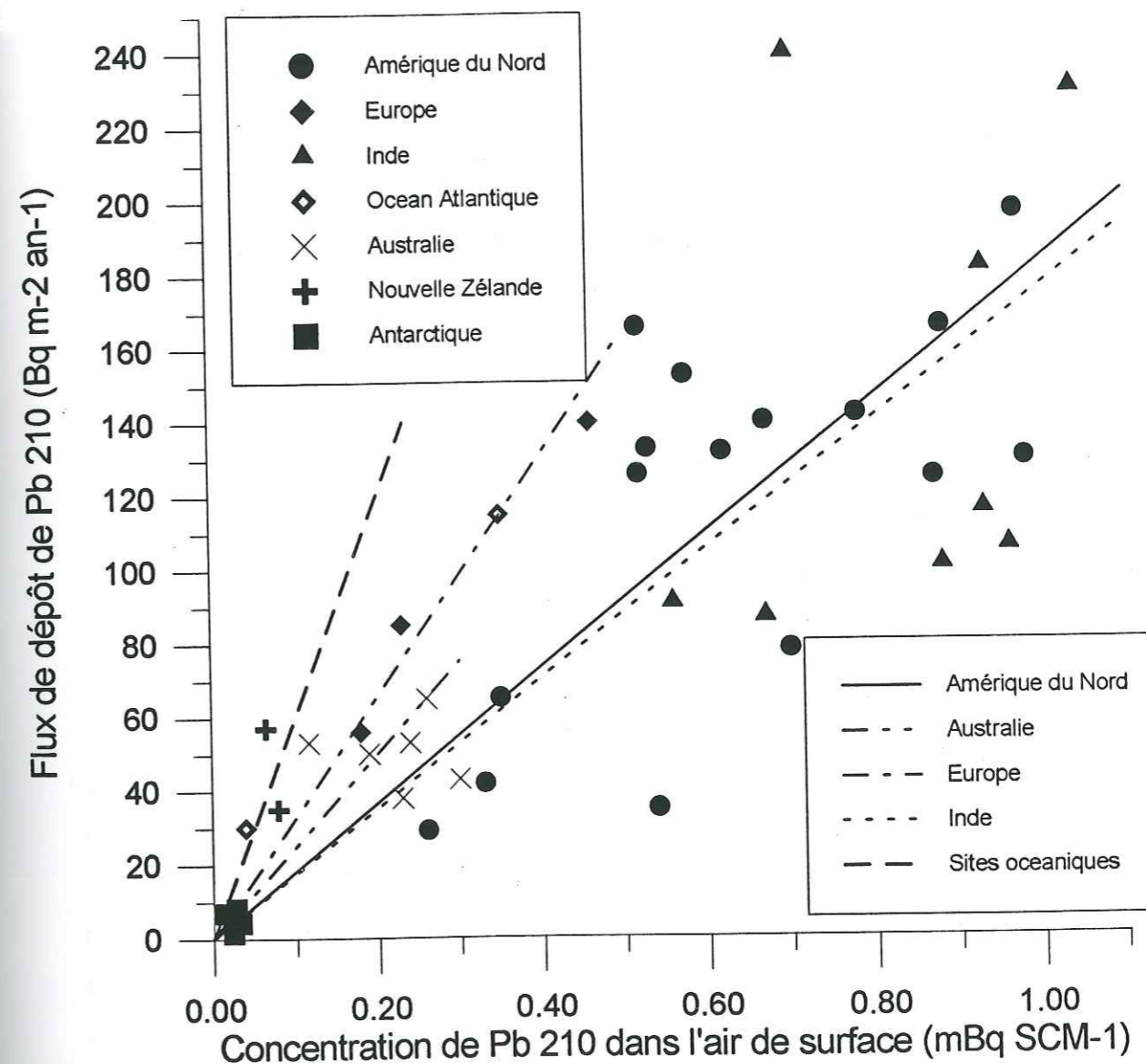


Figure IV.12: Vitesse de dépôt superficiel: flux de dépôt annuel de ^{210}Pb (en $\text{Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$) en fonction de la concentration de ^{210}Pb dans l'air de surface (en mBq SCM^{-1}) dans différentes régions; la pente des droite représente la vitesse de dépôt moyenne pour chaque région.

Table IV.3: Vitesses de dépôt superficielles moyennes de ^{210}Pb dans quelques régions du globe

Regions	$V_d(^{210}\text{Pb})(\text{mm s}^{-1})$
Amérique du Nord	5.8
Europe	10.4
Inde	5.5
Australie	7.9
Régions Océaniques	19.0
Antarctique	7.9

Ce paramètre, bien qu'il ne représente pas une valeur physique concrète, permet d'évaluer les rapports de concentration de ^{210}Pb entre la haute et la basse troposphère. Il pourrait ainsi être utile pour la validation des modèles de circulation générale.

1.4 Conclusion

Cette étude est focalisée sur l'interprétation de la distribution spatiale des concentrations de ^{210}Pb dans l'air de surface et des flux de dépôt issus de la base de données. La couverture spatiale des mesures est très incomplète mais suffisante pour permettre une analyse en termes de sources, transports et mécanismes de dépôt sur une large partie du globe.

L'influence des sources est clairement visible lorsque l'on compare les écarts des valeurs de concentration dans l'air de surface sur les continents ($0.2-1.1 \text{ mBq m}^{-3}$), où les sources de ^{222}Rn sont effectives, avec celles au-dessus des océans ($0.01-0.4 \text{ mBq m}^{-3}$) et des régions englacées ($0.02-0.2 \text{ mBq m}^{-3}$), où les sources de ^{222}Rn sont négligeables. En première approximation, la distribution spatiale dépend principalement du caractère zonal de la circulation atmosphérique, associé à la répartition des sources. La distribution en latitude (concentration et flux) reflète, en grande partie, l'importance relative des zones émergées. La distribution en longitude résulte surtout de l'origine des masses d'air (air continental enrichi; air océanique appauvri), dépendant elle-même du sens de la circulation zonale (vents d'ouest, alizés, ..). Les précipitations (neige et pluie) représentent le principal mode de dépôt du ^{210}Pb , excepté dans les zones désertiques où le dépôt sec reste vraisemblablement prépondérant. Le rôle des précipitations est bien illustré en Antarctique, où les

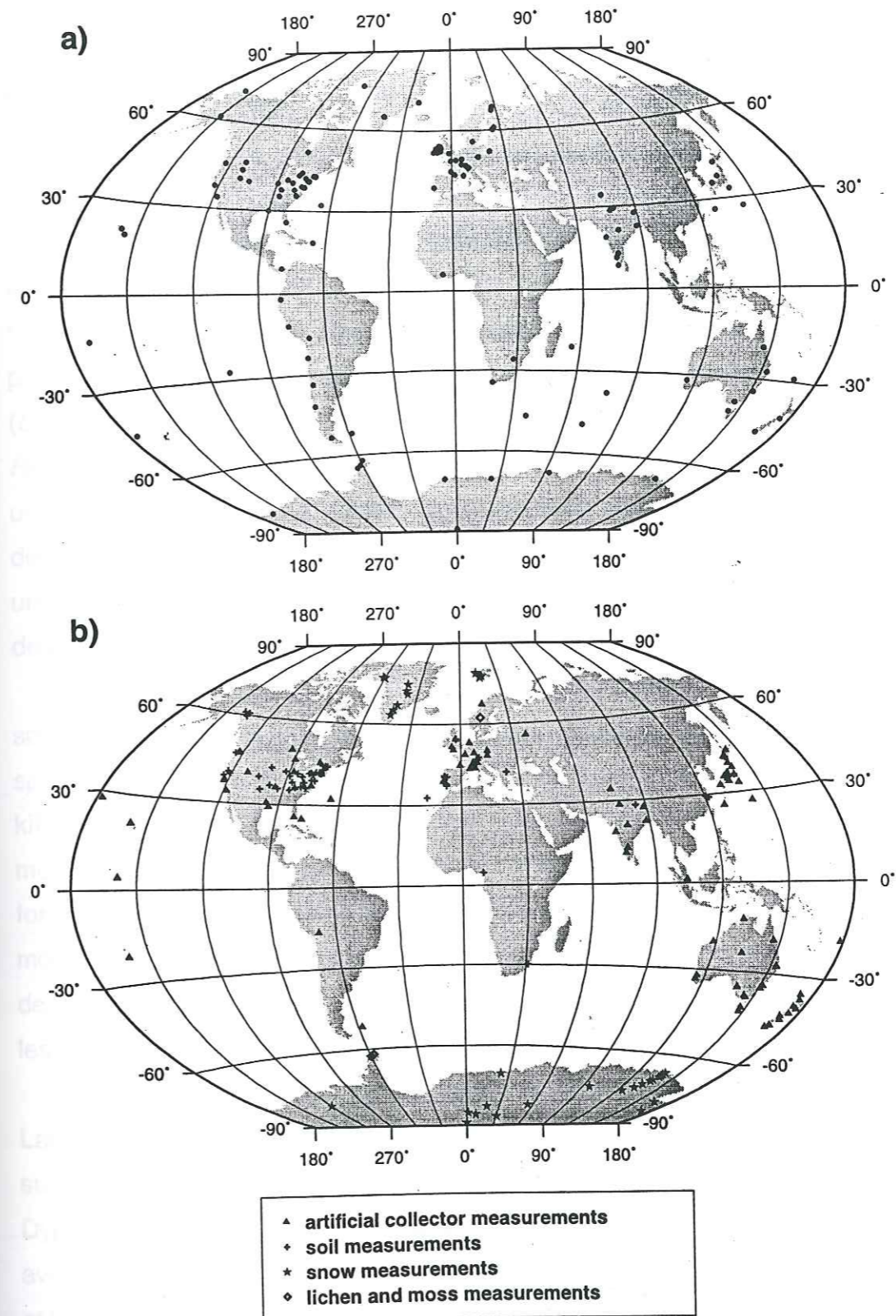


Figure IV.13: Localisation (a) des données de concentration de ^{210}Pb dans l'air de surface et (b) des données de flux de dépôt atmosphérique de ^{210}Pb .

concentrations dans l'air de surface sont homogènes et où un fort gradient d'accumulation de neige existe entre la côte et l'intérieur du continent. Là, le flux de dépôt est linéairement dépendant des précipitations. Une conséquence de ces mécanismes est la différence entre les hémisphères nord et sud dans la distribution en latitude de ^{210}Pb (concentration et flux), qui résulte de la forte dissymétrie dans la répartition des continents non-englacés. Cette dissymétrie est particulièrement visible dans les régions polaires où les concentrations observées en Antarctique sont dix fois inférieures à celles du Groenland.

En conclusion, il faut signaler que la couverture spatiale de la base de données n'est que partielle. Il existe des lacunes dans d'importantes régions qui sont parfois totalement absentes de la présente base de données (Figure IV.13). Ainsi les moyennes zonales sont-elles pauvrement documentées dans les régions équatoriales et tropicales. Un manque important d'informations concernant les concentrations dans l'air de surface existe pour la majeure partie du continent africain, au Moyen Orient, en Asie Centrale (de l'Europe de l'Est à la Mer du Japon), en Asie du Sud-Est et en Amérique du Sud orientale. En ce qui concerne les flux de dépôt, les mêmes lacunes existent, mais cette fois-ci elles concernent la majeure partie de l'Amérique du Sud. Les données océaniques restent, quant à elles, rares, tant pour les concentrations que pour les flux.

2. Utilisation de la base de données de ^{210}Pb pour la validation d'un modèle couplé climat/aérosols

Le ^{210}Pb atmosphérique est un traceur du transport et du mixage atmosphériques et des processus de dépôt (sec et humide) qui affectent la distribution et le temps de résidence des aérosols. Il est ainsi utilisé comme outil de validation pour la paramétrisation des processus d'aérosols dans des modèles de circulation générale (*Balkanski et al.*, 1993; *Genthon and Armengaud*, 1995b; *Lee and Feichter*, 1995; *Rehfeld and Heimann*, 1995; *WCRP workshop*, 1995). La validation des modèles est une utilisation implicite de la base de données de ^{210}Pb et a été, en partie, à l'origine de sa conception. Ce chapitre présente une comparaison des données simulées par un modèle couplé aérosol/circulation générale avec une version synthétique de la base de données.

Comme nous l'avons vu précédemment, les données disponibles dans la base sont assez dispersées dans l'espace et dans le temps. La résolution de la distribution spatiale des modèles globaux de traceurs est généralement de plusieurs centaines de kilomètres. Ainsi, pour améliorer la signification d'une comparaison modèle/observations, la base de données a-t-elle été réduite et compressée sous la forme d'une grille régulière $5^\circ \times 5^\circ$ (latitude/longitude). Parallèlement, les résultats du modèle ont été interpolés sur une grille identique (à partir d'une grille initiale irrégulière de résolution moyenne $5.6^\circ \times 3.6^\circ$). L'analyse du modèle a été effectuée en comparant les points de grille où les observations de la base de données réduite sont disponibles.

Le modèle couplé a été élaboré par l'équipe de Christophe Genthon, au Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement. Ce modèle est basé sur le modèle de circulation générale (GCM) du LMD (Laboratoire de Météorologie Dynamique). Les processus climatiques qui affectent les aérosols sont simulés "in line" avec le climat lui-même (diffusion, turbulence, convection, transport à grande échelle et lessivage par les précipitations). Ces différents processus ont été formulés afin de prendre en compte, autant que possible, les informations disponibles dans le modèle climatique initial. Les formules utilisées pour certains de ces processus (transport,

turbulence et convection) ont déjà été développées pour l'utilisation du ^{222}Rn comme traceur gazeux (Genthon et Armengaud, 1995a). Ici, l'étude est complétée par l'utilisation du ^{210}Pb comme traceur d'aérosols. Contrairement au ^{222}Rn , qui est un gaz rare, le ^{210}Pb est très sensible au lessivage par les précipitations. De plus l'épuisement par décroissance radioactive dans l'atmosphère, qui est le processus unique pour les pertes de ^{222}Rn , est négligeable pour le ^{210}Pb . Le modèle couplé climat/aérosols et la simulation sont décrits en Annexe 4.

2.1 La base de données de ^{210}Pb synthétisée

Afin d'établir une comparaison la plus fiable possible entre les observations et les résultats simulés, la base de données a été triée afin d'éliminer les données qui ne présentent pas d'intérêt pour la validation de ce type de modèle.

Tout d'abord, l'interprétation des données de flux de dépôt à l'interface eau-sédiment en termes de flux atmosphérique étant complexe, nous avons exclu ce type de donnée pour la comparaison. Le reste de la base de données a été réduit à partir des critères suivants:

- seules les données dont la période d'observation dépasse les trois quarts d'une année sont retenues. Si la période d'observation n'est pas représentative de l'année entière (par exemple, si la période de mousson est exclue dans une région soumise à des moussons tropicales), alors la donnée est rejetée,

- certaines valeurs sont très différentes des autres données mesurées dans des régions voisines, soit parce que les mesures ont été effectuées sur des sites particuliers (sites de haute montagne, reliefs isolés, phénomènes climatiques locaux, etc.), soit parce que des perturbations ont pu affecter la mesure elle-même. Ces données ne sont, au mieux, représentatives que très localement. Elles ne peuvent être considérées pour la validation de modèles globaux et sont exclues de ce chapitre. Il faut toutefois noter que certains sites de haute altitude, localisés sur des hauts plateaux (par exemple, Chacaltaya, 5200m, et Huayna Potosi, 4750m, situés sur l'Altiplano bolivien) ou situés dans la couche limite atmosphérique locale, sont pris en compte dans la base de données réduite, car ces données sont représentatives de vastes étendues.

Pour élaborer une comparaison consistante du point de vue de la résolution spatiale, la base de données réduite a été synthétisée sur une grille $5^\circ \times 5^\circ$ (latitude/longitude). La taille de point de grille a été principalement choisie pour être du même ordre de grandeur que la résolution de la plupart des modèles globaux existants. En Antarctique, les données localisées entre 85°S et 90°S ont été moyennées et extrapolées sur la totalité de la bande de latitude (-87.5°) du fait de l'uniformité de la région (calotte polaire) et de la convergence des méridiens.

La base de données synthétisée est représentée pour les concentrations de ^{210}Pb dans l'air de surface (Figure IV.14a) et pour les flux de dépôt (Figure IV.14b)

2.2 Résultats du modèle et comparaison avec les observations

La simulation s'étend sur 36 mois, incluant 12 mois d'initialisation. Les résultats présentés correspondent ainsi aux deux dernières années de simulation. Pour comparer directement les résultats du modèle avec les observations issues de la base de données synthétisée, la grille initiale du modèle est interpolée sur une grille régulière $5^\circ \times 5^\circ$. Chaque point de grille pour lequel une valeur est disponible dans la base de données est comparé avec le point de grille du modèle correspondant. Les résultats de la simulation sont analysés pour les concentrations de ^{210}Pb dans l'air de surface et les flux totaux de dépôt (sec + humide). Afin de quantifier les écarts entre le modèle et les observations, nous utilisons un critère appelé *pourcentage d'écart du modèle* (p.e.m.) défini par Balkanski et al. (1993):

$$p.e.m. = 100 \frac{(V_s - V_o)}{\max(V_s, V_o)}$$

Ces pourcentages sont donnés pour tous les points de grille disponibles dans les Figures IV.15a et IV.15b.

La Table IV.4 donnent les écarts moyens pour les continents, les océans et les régions polaires. Le modèle sous-estime systématiquement les concentrations de surface de ^{210}Pb . Ces erreurs sont assez faibles sur les continents, c'est-à-dire au-dessus des régions sources. Elles sont plus importantes ailleurs, particulièrement dans les régions polaires arctiques. Si on intègre ces valeurs de manière globale, en tenant

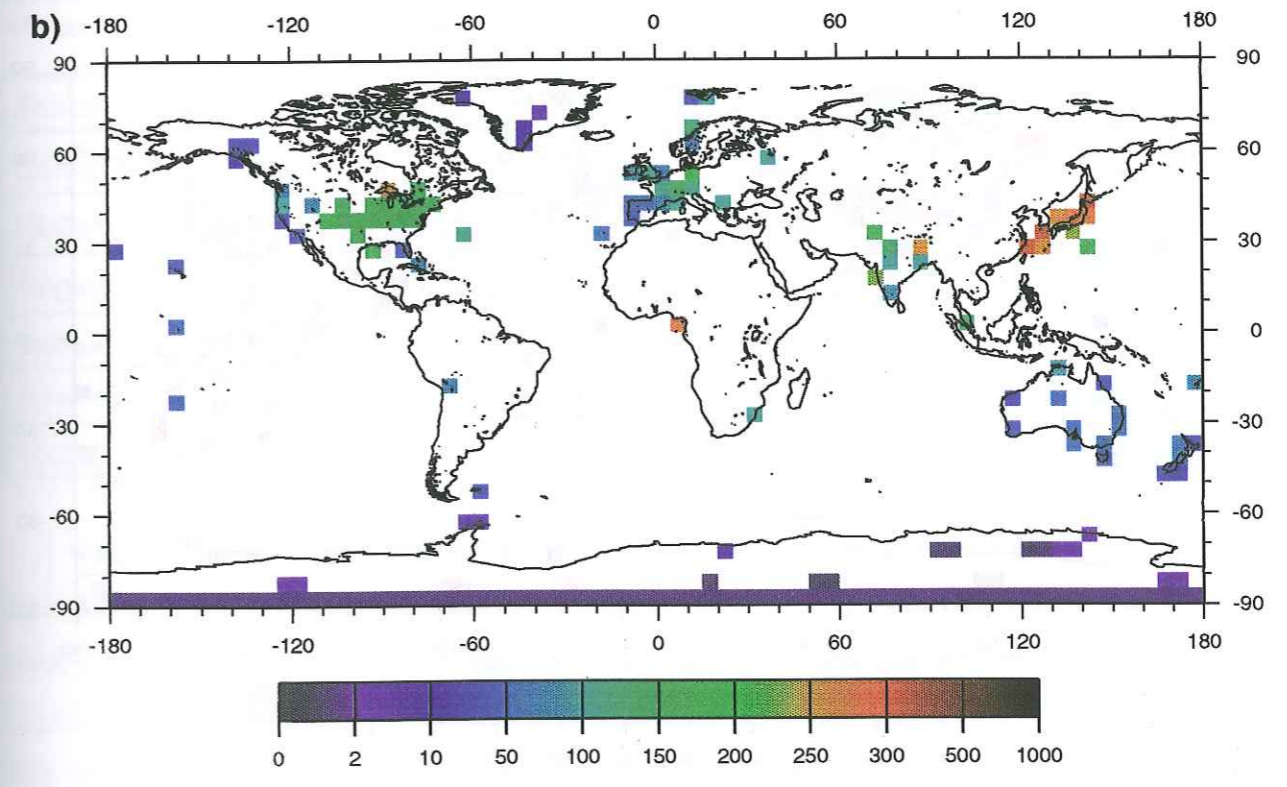
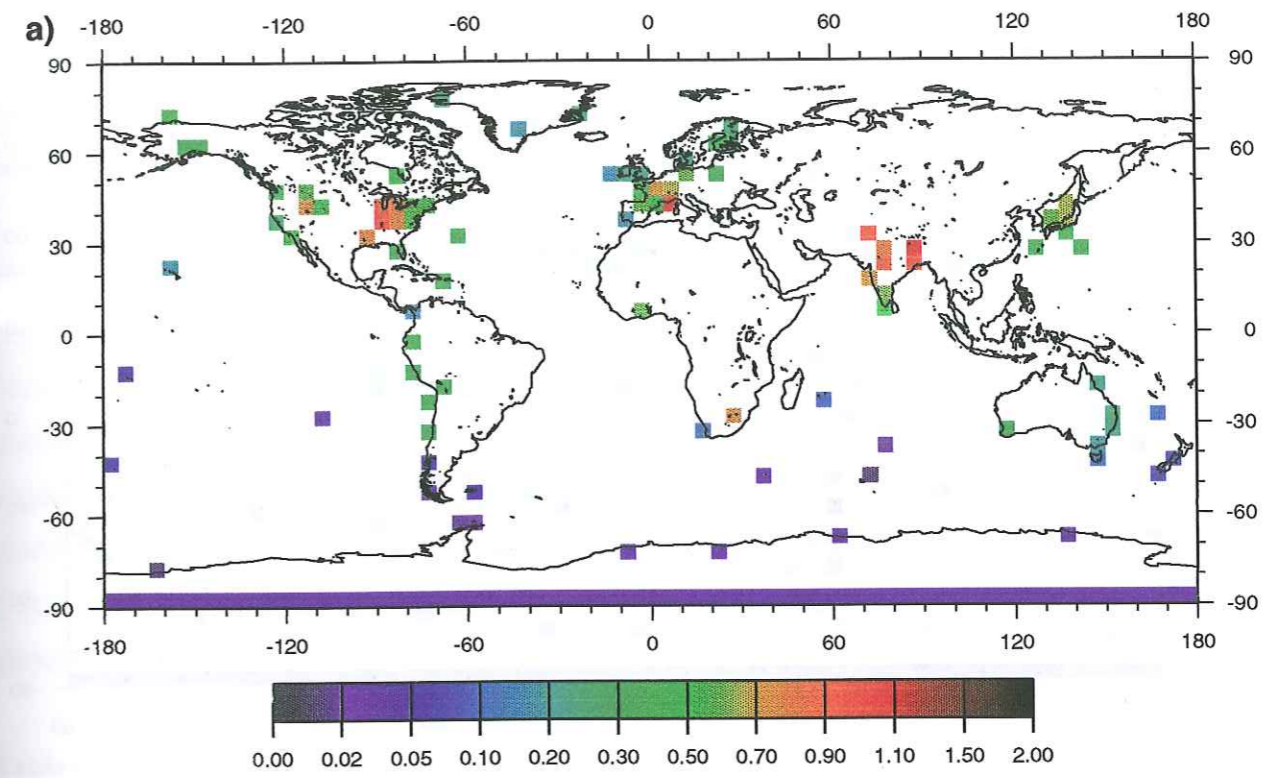


Figure IV.14: La base de données synthétisée; (a) concentration de plomb 210 dans l'air de surface (en mBq SCM-1); (b) flux de dépôt de plomb 210 (en Bq m⁻² an⁻¹).

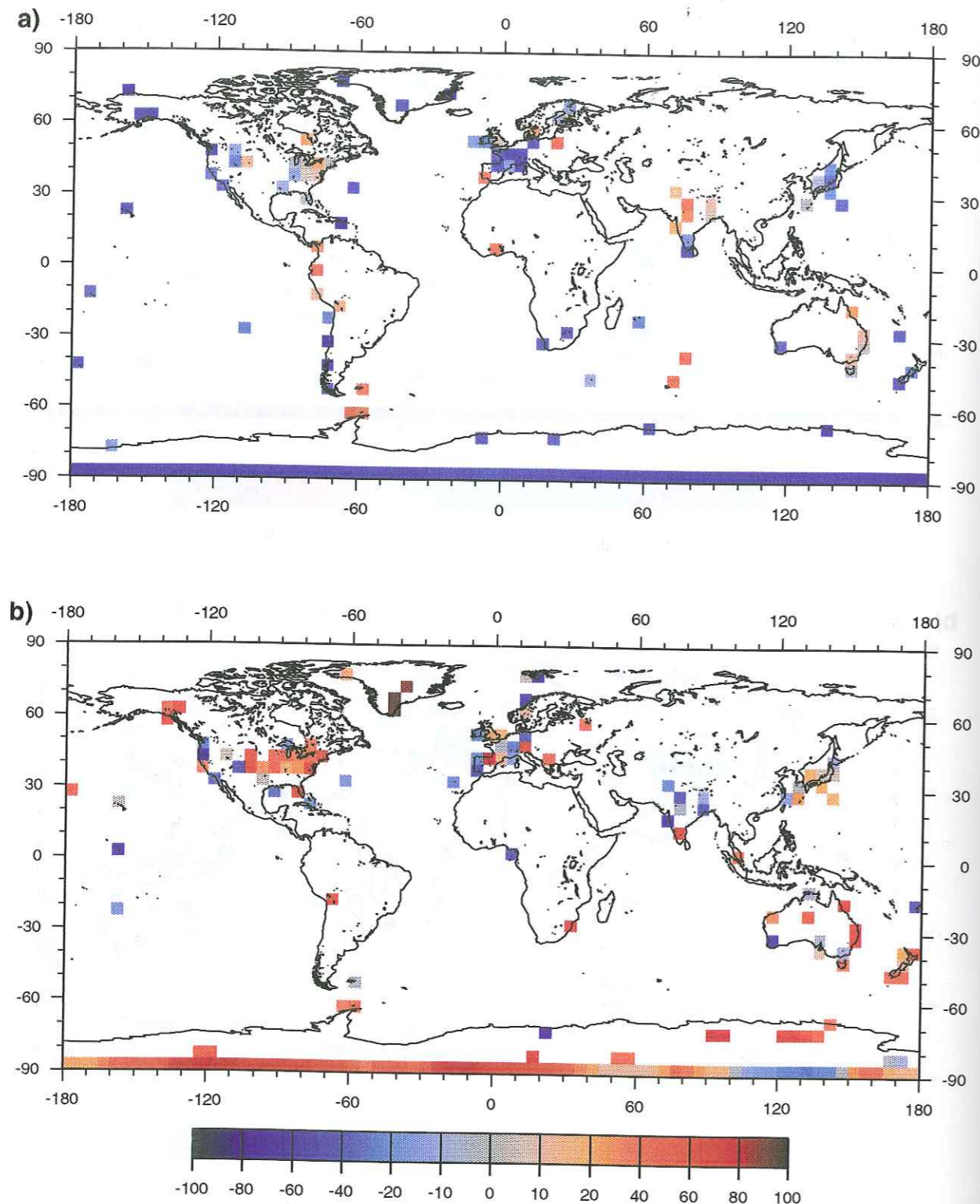


Figure IV.15: Les pourcentages d'écart du modèle (%); (a) concentration de plomb 210 dans l'air de surface; (b) flux de dépôt de plomb 210

compte de la surface respective des différentes zones, l'écart moyen de concentration est de -19.2%. En d'autres termes, le modèle sous-estime globalement les concentrations de surface de ^{210}Pb d'environ 20%.

Les écarts de flux sont positifs dans les régions sources ainsi que dans les régions polaires. Ils sont négatifs au-dessus des océans. En intégrant ces flux, tenant compte de la surface respective des continents et des océans, on obtient un écart moyen de flux presque nul. Même en considérant que la comparaison modèle-observations s'effectue seulement sur une faible fraction du globe, le fait d'obtenir une valeur proche de 0 indique que les sources choisies, c'est-à-dire le taux moyen d'émission du ^{222}Rn sur les continents non-englacés ($1 \text{ atome cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$), sont correctes. Cependant, la répartition spatiale des flux simulés n'est pas en accord parfait avec les observations.

Table IV.4: Pourcentages d'écart moyens du modèle (p.e.m.) régionaux (continents, océans et régions polaires) et globaux des concentrations de ^{210}Pb dans l'air de surface et des flux de dépôt. n représente le nombre de données de la base synthétisée, dans chaque zone, utilisé pour le calcul des moyennes. Les valeurs globales sont moyennées en fonction de la surface relative de chaque zone.

Zones	p.e.m. concentration	n	p.e.m. flux de dépôt	n	surface
Continents	-9.8%	62	13.4%	74	24.2%
Océans	-19.2%	13	-12.7%	10	63.1%
Régions polaires	-34.3%	13	40.4%	21	12.7%
Arctique	-54.1%	5	42.2%	8	5.9%
Antarctique	-22.%	8	39.3%	13	6.8%
Globe	-18.8%		0.4%		100%

Afin de mieux comprendre les déviations du modèle par rapport aux observations, les résultats sont discutés sur une base régionale. En ce qui concerne les concentrations de surface, des caractéristiques différentes apparaissent entre les flancs Est et Ouest des continents. Aux moyennes latitudes, du fait de la domination des vents d'ouest, les façades Ouest des continents sont affectées par des masses d'air océaniques humides et pauvres en ^{210}Pb . Sur les parties Est, l'atmosphère est plus sèche, les précipitations généralement moins abondantes et l'approvisionnement en ^{210}Pb plus important. La Figure IV.17a montre que les concentrations de surface

sont assez bien reproduites par le modèle sur la région orientale du continent nord-américain (p.e.m. = +2.9%) et en Australie du Sud-Est (p.e.m. = +5.3%). Les concentrations sont, par contre, sous-estimées au Japon (p.e.m. = -18.3%), mais cette zone ne peut être que partiellement considérée comme continentale, du fait que les masses d'air asiatiques qui apportent le ^{210}Pb doivent traverser la Mer du Japon avant d'atteindre l'Archipel. Tandis que le transport des masses d'air s'accroît, les concentrations sont de plus en plus sous-estimées (e.g. Nouvelle-Zélande, p.e.m. = -33.9%). A l'Ouest des continents des moyennes latitudes, où les vents dominants impliquent un transport de ^{210}Pb à très longue distance au-dessus des océans, les concentrations de surface simulées sont très nettement inférieures aux observations. C'est le cas en Amérique du Sud occidentale (Chili, p.e.m. = -55.1%), en Australie occidentale (Perth, p.e.m. = -34.8%), en Europe de l'Ouest (p.e.m. = -25.0%) et dans l'ouest des Etats-Unis (p.e.m. = -24.1%). Il faut toutefois noter que les zones citées précédemment sont tout de même fortement influencées par les apports de ^{210}Pb local. Les écarts de concentrations sont négatifs sur les océans tropicaux (p.e.m. = -40.3%) ainsi que dans les régions polaires (p.e.m. = -34.3%).

A partir des tendances observées, il semble que l'efficacité du transport des aérosols soit systématiquement trop faible dans le modèle. Toutefois, le peu de mesures disponible en profil vertical de ^{210}Pb dans l'atmosphère, indique que la concentration en ^{210}Pb dans les hautes et moyennes couches de la troposphère est surestimée dans le modèle (Figure IV.16). De plus, des études antérieures du ^{222}Rn dans ce modèle (*Genthon and Armengaud, 1995a; Jacob et al., 1996*) suggèrent que le transport horizontal, le mixage vertical, ainsi que la distribution du traceur qui en résulte, sont en accord avec les observations. Le ^{222}Rn n'étant pas affecté par les processus de lessivage, on peut suspecter que les formulations concernant les processus de dépôt humide sont inadéquates dans le modèle et sont ainsi responsables des déviations observées pour les concentrations de ^{210}Pb .

Bien que les concentrations de surface soient correctement estimées par le modèle sur les façades Est des continents tempérés, les flux de dépôt sont, eux, surestimés sur ces zones (e.g. Amérique du Nord orientale, p.e.m. = +31.6%; Australie du Sud-Est, p.e.m. = +27.3%). Globalement, les flux de dépôt sont excessifs sur les

continents non-englacés (régions sources) et deviennent sous-estimés au fur et à mesure que l'on s'éloigne des sources. Il est possible que les paramètres qui caractérisent le dépôt dans le modèle soient systématiquement trop efficaces, mais cette hypothèse est incompatible avec le fait que la quantité totale de ^{210}Pb dans l'atmosphère soit en accord avec les observations (voir Annexe 4).

Lors d'un atelier de travail international (*WCRP, 1995*), réunissant la plupart des modélisateurs utilisant le ^{210}Pb comme traceur, une évaluation et une comparaison des lessivages par précipitation dans les différents modèles d'aérosols ont été effectuées. Un premier diagnostic suggère que le modèle du LMD a tendance à lessiver les aérosols trop efficacement dans les basses couches de la troposphère par rapport aux autres modèles. Inversement, le lessivage est insuffisant dans les hautes et moyennes couches. Les mesures de l'efficacité du lessivage sont trop rares pour affirmer quels modèles fonctionnent correctement, mais l'hypothèse que le modèle du LMD soit erroné dans ce domaine reste fort probable. Le fait que les paramètres de lessivage utilisés dans cette étude soient légèrement différents de ceux utilisés pour l'atelier de travail ne résout pas le problème. D'ailleurs, le profil vertical simulé de concentration de ^{210}Pb au-dessus de l'Océan Pacifique oriental est inversé par rapport aux mesures (Figure IV.16a). Cette comparaison indique bien une insuffisance du lessivage dans la haute et moyenne troposphère à cet endroit.

En fait, cette hypothèse est cohérente avec les tendances générales qui ressortent de la comparaison entre la base de données et le modèle. Les concentrations de surface sont globalement trop faibles. Elles restent cependant compatibles avec les observations dans les régions où les sources sont locales, mais elles deviennent rapidement sous-estimées dès que l'on s'éloigne de celles-ci (océans, régions polaires). De même, le flux est surestimé au-dessus des continents où le ^{210}Pb est plus abondant dans la basse troposphère que dans la haute troposphère. Lorsque l'on s'éloigne des sources et que le trajet des aérosols devient long, le transport s'effectue par les hautes et moyennes couches de la troposphère. Ainsi ces couches sont-elles plus riches en ^{210}Pb que celles des niveaux inférieurs où le lessivage est prépondérant dans le modèle. On obtient donc des flux de dépôt simulés plus faibles sur les océans que ceux mesurés. Cependant, des contradictions apparaissent entre cette hypothèse et certains résultats de la comparaison, particulièrement en ce qui concerne les flux dans les régions polaires.

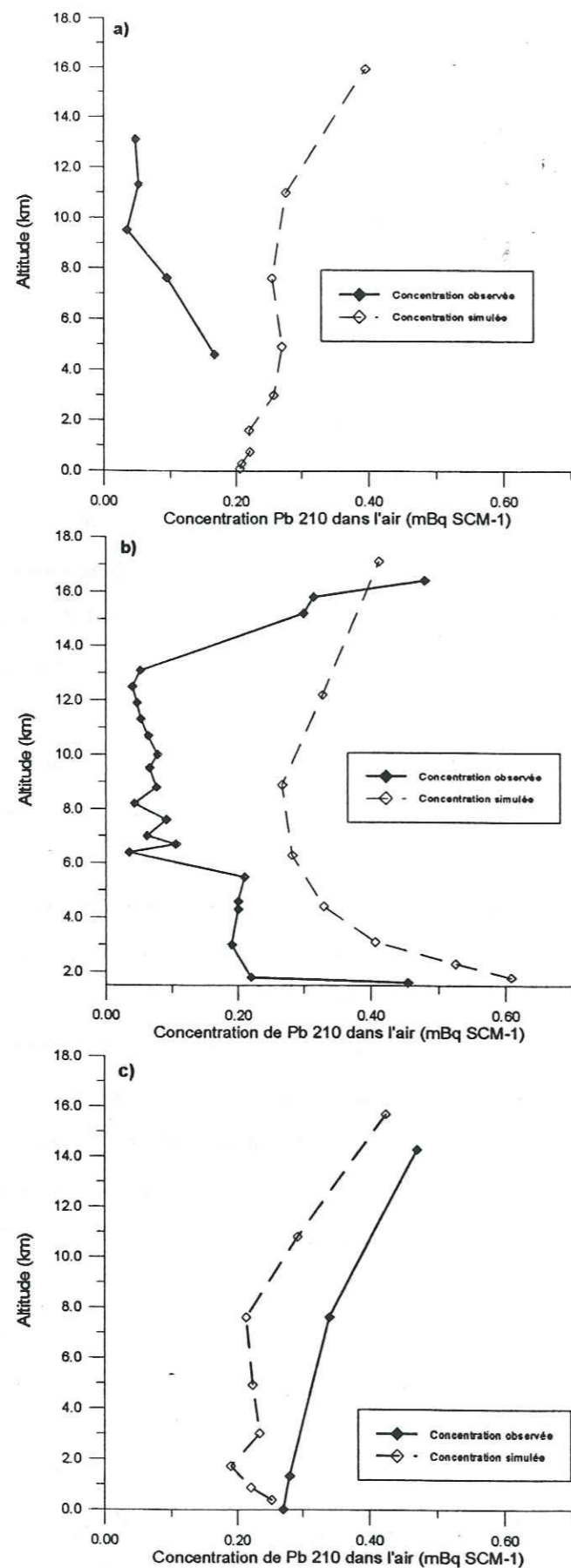


Figure IV.16: Profils verticaux simulés et observés de la concentration de ^{210}Pb dans l'air (en mBq SCM^{-1}) (a) sur l'Océan Pacifique oriental, (b) sur l'Ouest des Etats-Unis et (c) au Royaume-Unis.

Les précipitations, principal moteur du dépôt des aérosols, jouent un rôle prépondérant dans les valeurs de flux de ^{210}Pb . Or, dans les modèles de circulation générale, les précipitations ne sont pas toujours bien reproduites. Ainsi les erreurs de simulation des précipitations vont-elles fortement influencer les flux de dépôt simulés. C'est certainement le cas en Antarctique et en Inde où les précipitations sont respectivement surestimées et sousestimées par rapport aux observations. Pour limiter l'influence des erreurs de précipitation sur le flux de dépôt, nous avons introduit un flux simulé "corrigé", F_c , qui est défini par :

$$F_c = \frac{(F_s \cdot P_o)}{P_s}$$

où F_s et P_s sont le flux et les précipitations simulés, respectivement, et P_o , les précipitations observées.

Le flux corrigé sur l'Antarctique est inférieur aux observations (p.e.m. = -38.2%). L'excès du flux simulé sur l'Antarctique est certainement la conséquence de la surestimation des précipitations. Le flux corrigé obtenu en Antarctique est bien en accord avec l'hypothèse générale, selon laquelle la distribution verticale du lessivage des aérosols est inadéquate. De même, en Inde, le flux corrigé est nettement supérieur au flux observé (p.e.m. = +54.0%), ce qui est compatible avec l'excès global du flux de dépôt sur les continents. En revanche, l'écart du flux corrigé dans les régions arctiques (Groenland, Svalbard) reste fortement positif. La seule différence avec le flux simulé net est représentée par une déviation positive homogène sur toute la zone polaire, tandis que le flux simulé est sous-estimé au Svalbard et très en excès sur la calotte groenlandaise. Un problème d'origine certainement différente doit exister au niveau de la simulation dans les régions polaires arctiques.

2.3 Conclusion

Le ^{210}Pb est de plus en plus utilisé pour l'étude et la calibration des modèles de circulation générale. La base de données permet l'accès à un grand nombre d'observations, mais celles-ci ne couvrent qu'une partie limitée de la surface terrestre et sont plus accessibles sur les continents que sur les océans. De plus, la signification

spatiale de chacune de ces observations est assez limitée à cause des gradients importants pouvant exister, particulièrement pour les flux.

Ici, pour faciliter l'analyse d'un modèle d'aérosols couplé avec le modèle GCM du LMD, la base de données initiale de ^{210}Pb a été triée et mise sous la forme d'une grille $5^\circ \times 5^\circ$ (latitude/longitude). Moins de 4% de la grille est remplie par les données, ce qui implique une comparaison globale du modèle sur seulement une faible fraction du globe. La vérification de l'équilibre de la balance des sources (émission de ^{222}Rn) et des puits (retombées atmosphériques) de ^{210}Pb dans le modèle indique cependant que les observations de cette base de données permettent d'élaborer une première évaluation du modèle.

A l'issue de la comparaison modèle/observations, il apparaît clairement que les concentrations de surface de ^{210}Pb sont globalement sous-estimées, particulièrement lorsque l'on s'éloigne des régions sources (continents). Les flux de dépôt sont surestimés au-dessus des continents et en déficit sur les océans. Ces tendances générales, appuyées par la comparaison de profils verticaux de concentration atmosphérique de ^{210}Pb , sont compatibles avec l'hypothèse suivante: dans le modèle, la distribution verticale du lessivage des aérosols par les précipitations est incorrecte. Le lessivage est trop efficace dans les basses couches de l'atmosphère et trop faible dans la haute et moyenne troposphère. Le fait que la paramétrisation du lessivage par précipitation soit incorrecte n'est pas surprenant si on considère sa simplicité dans le modèle (équation 1 de l'Annexe 4) comparée à la complexité des processus réels. Cependant, l'analyse et le perfectionnement des formulations du modèle ne sont pas l'objet de cette étude. Ici, il est seulement illustré comment une base de données, synthétisée sous une forme adéquate, permet l'évaluation d'un modèle de circulation générale. Bien qu'incomplète, cette base de données démontre qu'elle est bien adaptée à la validation de ce type de modèles.

V - Application du ^{210}Pb à l'étude des transferts atmosphère-sédiment

V - Application du ^{210}Pb à l'étude des transferts atmosphère-sédiment

Le ^{210}Pb a été et reste toujours très couramment utilisé pour la mesure des taux de sédimentation récente (Goldberg, 1963; Krishnaswami et al., 1971; Bruland et al., 1974; Benninger et al., 1975; Robbins, 1978; Dominik et al., 1981; Durham et Joshi, 1984; Oldfield et Appleby, 1984; Olsen et al., 1985; El-Daoushy, 1987; Melieres et al., 1988; Pourchet et al., 1989; Edgington et al., 1991; Appleby et Oldfield, 1992; Joshi et al., 1992; Mitchell et al., 1992; Thomson et al., 1993,...). Sa période radioactive permet au ^{210}Pb d'être un outil complémentaire au ^{14}C (période radioactive: 5600 ans) pour ce genre d'étude. En effet, si ce dernier permet de faire des mesures de sédimentation sur plusieurs dizaines de millénaires, il devient un outil imprécis pour les périodes inférieures à 500 ans. En revanche, le ^{210}Pb est bien adapté pour connaître les taux de sédimentation sur les 150 dernières années. Cette période, qui correspond à l'avènement de l'ère industrielle, a vu d'importants bouleversements des écosystèmes. Un grand nombre de polluants provenant de l'atmosphère et des bassins versants s'est déposé dans les sédiments. De plus, la déforestation et l'extension des habitations et de l'industrie hydroélectrique ont fortement modifié les taux de sédimentation de certains systèmes aquatiques. Pour toutes ces raisons, les études sur les sédiments accumulés pendant ce siècle ont été utiles et nombreuses. Dans cette optique, le ^{210}Pb a majoritairement été utilisé comme outil de mesure, mais les données de flux dans les sédiments qui en résultent peuvent apporter d'autres informations intéressantes. Le ^{210}Pb dans les sédiments a, comme un certain nombre de polluants, une forte contribution d'origine atmosphérique. Le flux à l'interface eau-sédiment diffère, dans certains cas, du flux atmosphérique, du fait des différents processus inhérents aux systèmes aquatiques. Ces deux flux de dépôt sont cependant en relation plus ou moins étroite, selon le type de réservoir. Le nombre important de données de ^{210}Pb disponible dans les sédiments permet une étude globale de cette relation par une comparaison avec les données de flux atmosphérique. Le but de ce chapitre est de faire une comparaison statistique entre les flux à l'interface eau-sédiment et les flux

atmosphériques mesurés directement en collecteurs artificiels. Cette étude s'effectue en dissociant quatre grandes classes de réservoirs aquatiques (grands lacs, zones côtières, océans profonds, petits réservoirs) soumis à des processus de sédimentation très différents. La comparaison ne s'effectue que pour les données de l'hémisphère nord, car il n'y a que peu de valeurs de flux eau-sédiment disponibles dans l'hémisphère sud.

Les articles en annexes 5 illustrent l'utilisation du ^{210}Pb dans l'étude de la sédimentation récente. Ils sont relatifs à l'étude de la sédimentation du lac Titicaca et de petits lacs glaciaires de la Cordillère Orientale (Bolivie).

1. Le ^{210}Pb dans les sédiments

Le sédiment est le collecteur, mais la présence d'eau entre l'atmosphère et la surface du sédiment peut grandement affecter la contribution du flux de ^{210}Pb atmosphérique au niveau du sédiment. Comme pour les sols, le ^{210}Pb a deux origines dans les sédiments: le ^{210}Pb d'origine atmosphérique (dit "non supporté") et le ^{210}Pb supporté par le ^{226}Ra contenu dans la matrice du sédiment. Comme nous l'avons vu dans le chapitre II (Méthodologie expérimentale), les techniques de mesure et de calcul du dépôt de ^{210}Pb dans les sédiments sont identiques à celles utilisées pour les sols. Le flux de ^{210}Pb non-supporté à l'interface eau-sédiment est déduit de l'activité totale non-supportée intégrée sur toute la carotte. L'intérêt que présente cette technique est que le flux estimé représente bien le flux à l'interface eau-sédiment, même lorsque le sédiment a été perturbé par des mixages verticaux après dépôt.

Des processus complexes relient le flux eau-sédiment au flux atmosphérique. Le flux de ^{210}Pb à l'interface eau-sédiment a différentes origines:

- le ^{210}Pb non-supporté issu de l'atmosphère, directement déposé à la surface de l'eau et qui migre jusqu'au fond, associé aux particules,
- le ^{210}Pb non-supporté issu du dépôt atmosphérique sur la surface du bassin versant et qui se déverse dans l'eau par les processus d'érosion,
- le ^{210}Pb supporté provenant des sédiments allochtones (érosion, apports par le vent),
- le ^{210}Pb généré par le ^{226}Ra dissous dans la colonne d'eau.

Ces apports sont en grande partie transférés vers les sédiments, bien qu'une partie puisse être perdue par l'exutoire du réservoir. Après dépôt, le ^{210}Pb peut être redistribué par les différentes perturbations affectant le sédiment.

Tous ces mécanismes affectent la transmission du flux atmosphérique vers le sédiment d'une manière qui dépend, en grande partie, des caractéristiques propres au réservoir d'eau. Pour cette raison, nous différencions quatre classes de réservoirs aquatiques: l'océan profond (bassins, fosses,...), les zones côtières (baies, estuaires, fjords, marges continentales, ...), les grands lacs, et une quatrième catégorie de petits réservoirs rassemblant les petits lacs, les étangs, les marais et les tourbières. Les sédiments présentent les mêmes avantages que les sols: un accès à une donnée de flux annuel (moyennée sur plus d'un siècle) à partir d'un petit nombre de mesures. De plus, un grand nombre de sites sont accessibles dans le monde.

2. Commentaires sur les flux à l'interface eau-sédiment: un aperçu des transferts atmosphère-sédiment

Les flux ont été mesurés à l'interface eau-sédiment sur beaucoup de sites (Figure V.1). Ils montrent des variations considérables s'étendant de moins de $50 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ à plus de $1000 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$. Ce large spectre est la conséquence des nombreux processus qui sont impliqués dans le transfert et le dépôt du ^{210}Pb à l'interface eau-sédiment. La question qui nous intéresse ici est celle de savoir si, en dépit de ce large spectre observé, il est possible d'extraire des informations concernant le flux de dépôt atmosphérique. Pour cela, nous n'analysons pas la distribution géographique des valeurs, mais nous commentons les histogrammes de distribution des données relatives aux différents types de réservoirs et nous les comparons à l'histogramme des flux atmosphériques obtenus à partir des collecteurs artificiels. Cette approche permet de faire ressortir les différences de comportement entre ces réservoirs. On pourra montrer, par ce biais, quelles sortes de réservoirs sont les plus adéquates pour la reconstruction du flux de dépôt atmosphérique.

Les quatre classes de réservoirs étudiées ici sont, plus précisément:

- l'Océan Atlantique profond (bassins et fosses),

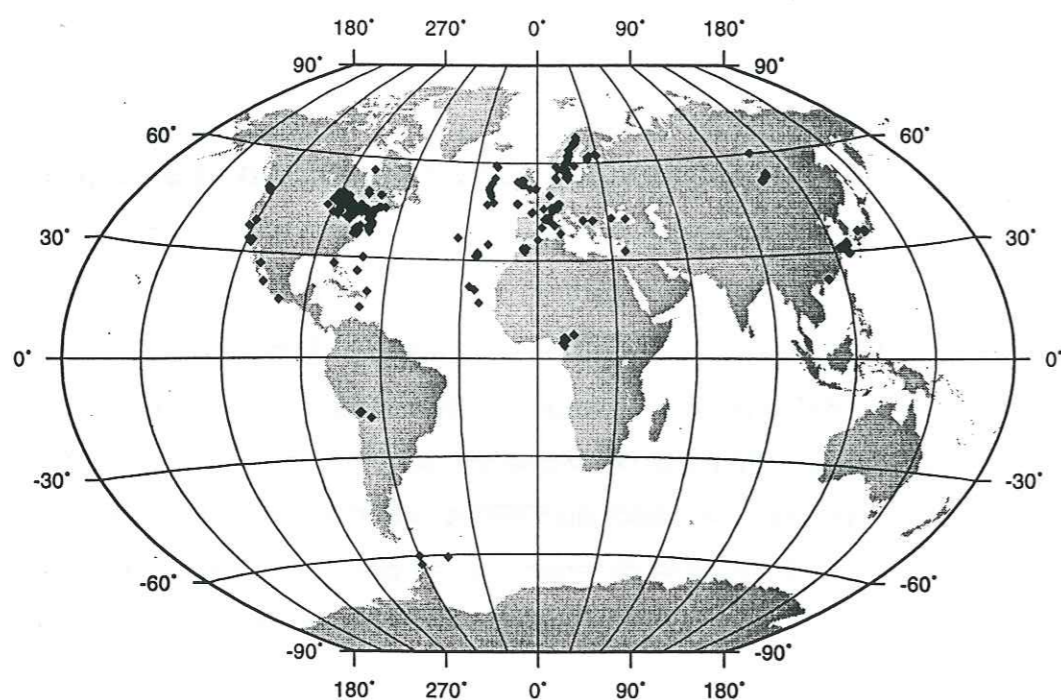


Figure V.1: Localisation des données de flux de dépôt de ^{210}Pb non supporté à l'interface eau-sédiment.

- les zones côtières (estuariers, fjords, baies et marges continentales),
- les grands lacs laurentiens,
- les "petits" réservoirs incluant les lacs dont la surface n'excède pas 700 km^2 . Dans cette classe, nous incluons des lacs de taille relativement importante, tels que le lac Léman (Suisse), le lac Biwa (Japon) et le lac de Constance (Allemagne), mais aussi les petits lacs, étangs, tourbières et marais.

La comparaison entre ces quatre types de réservoirs est restreinte à l'hémisphère nord à cause du manque d'informations disponibles dans l'hémisphère sud.

La Figure V.2 représente les histogrammes des mesures de flux relatives aux collecteurs artificiels dans l'hémisphère nord (Figure V.2a) et à la totalité des mesures dans les sédiments pour le même hémisphère (Figure V.2b). L'échelle est différente dans les deux histogrammes, car il existe un nombre de mesures bien supérieur dans les sédiments, ce qui conduit à une meilleure distribution statistique. La majorité des données est localisée autour de valeurs similaires pour les deux diagrammes, entre 50 et $250 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$. Toutefois, la distribution pour les sédiments atteint des valeurs bien supérieures ($>1000 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$) aux flux reportés à partir des collecteurs artificiels, qui ne dépassent pas $500 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$. L'histogramme de la Figure 15b a été divisé en quatre histogrammes correspondant à chaque classe de réservoir (Figure V.3).

2.1 Les Grands Lacs

Deux caractéristiques apparaissent dans la figure V.3a: la composante atmosphérique du ^{210}Pb est clairement visible (distribution maximum entre 50 et $250 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$), néanmoins de forts flux sont enregistrés en grand nombre (s'étendant de 250 à plus de $1000 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$). Cette large distribution des valeurs résulte de la grande variété dans les mécanismes de dépôt sédimentaire. Dans ces grandes étendues d'eau, de fortes énergies sont mises en jeu au niveau de ces mécanismes (courants d'eau profonds, etc.). La valeur moyenne du flux mesuré dans les sédiments ($298 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$) est nettement supérieure à celle du flux atmosphérique moyen mesuré dans la partie nord-est des Etats-Unis ($155 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$), ce qui indique une forte part d'importations de sédiments allochtones.

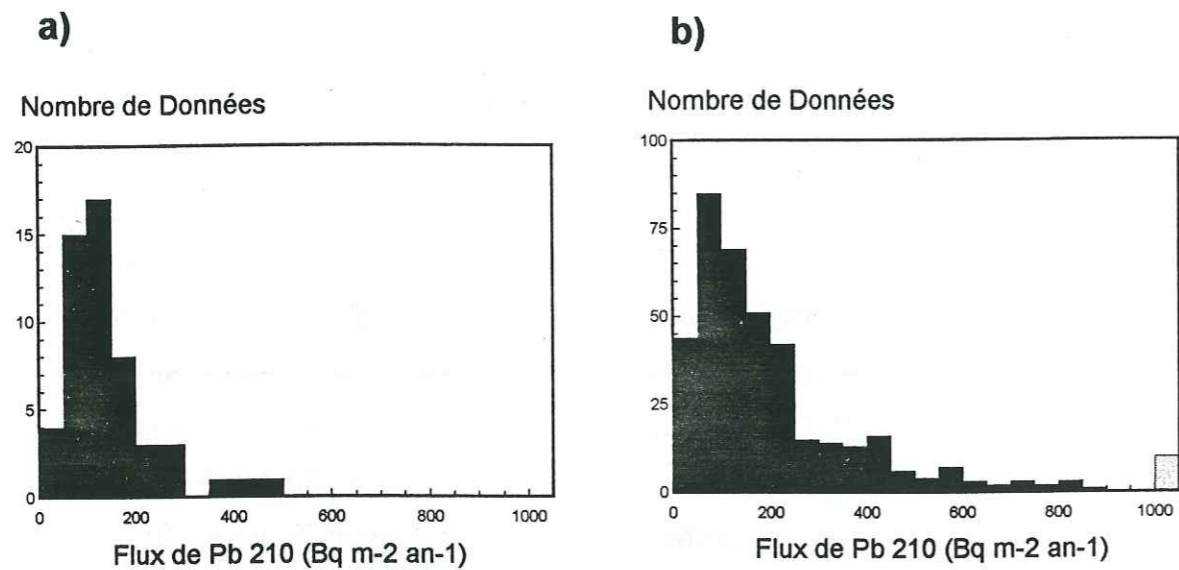


Figure V.2: Histogrammes des flux de dépôt de ^{210}Pb dans l'hémisphère nord (a) mesurés en collecteurs artificiels à l'interface atmosphère-sédiment et (b) mesurés à l'interface eau-sédiment (tous types de réservoirs confondus); les flux supérieurs à $1000 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ (compris entre 1000 et $4000 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$) sont rassemblés sur une seule barre.

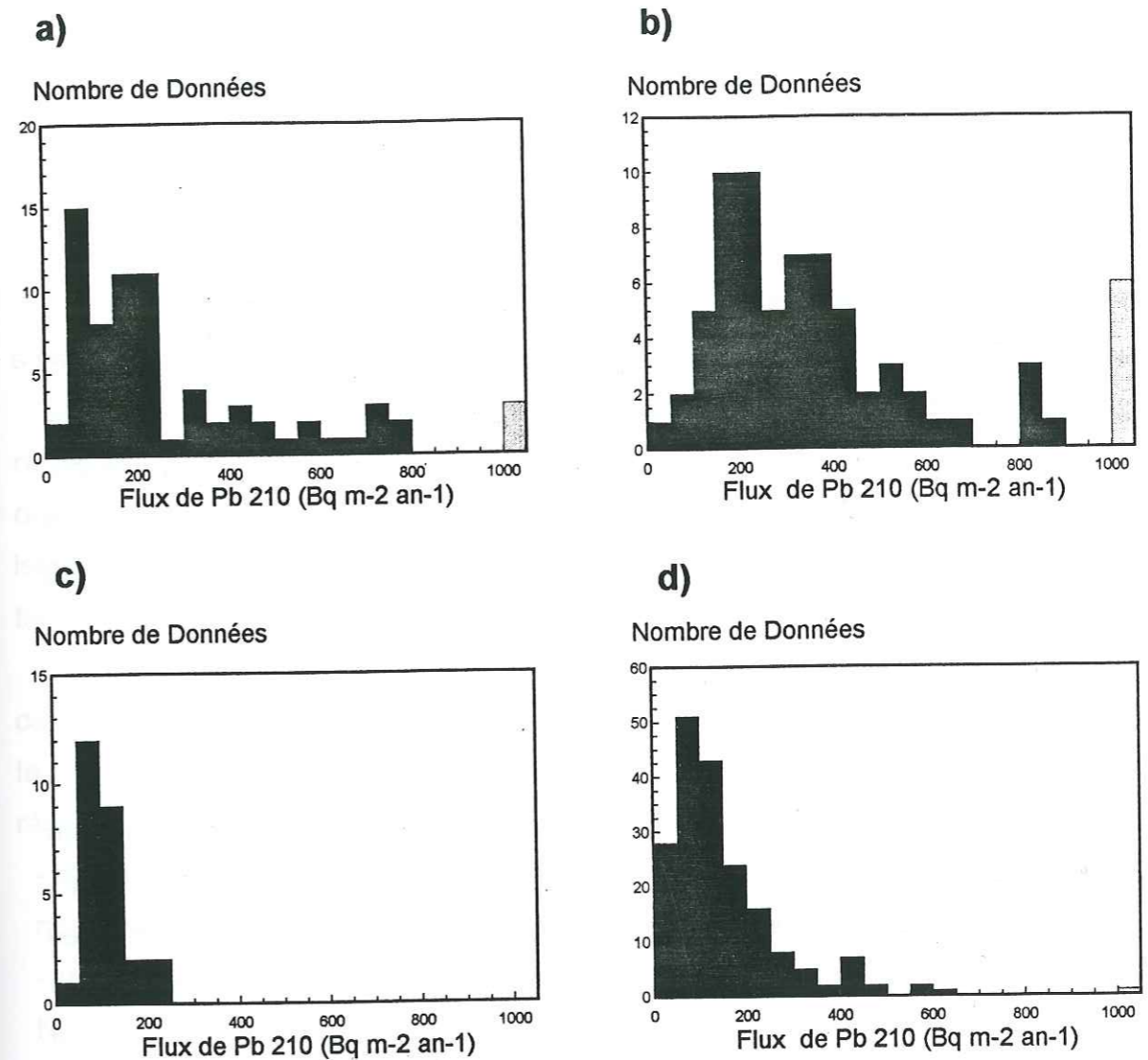


Figure V.3: Histogrammes des flux de dépôt de ^{210}Pb à l'interface eau-sédiment dans l'hémisphère nord (a) dans les grands lacs laurentiens, (b) dans les zones côtières, (c) dans l'Océan Atlantique profond et (d) dans les petits réservoirs; les flux supérieurs à $1000 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ (compris entre 1000 et $4000 \text{ Bq m}^{-2} \text{ an}^{-1}$) sont rassemblés sur une seule barre.

2.2 Les zones côtières

Les flux observés ici (Figure V.3b) sont supérieurs à ceux des trois autres types de réservoirs, avec une majorité de valeurs comprises entre 100 et 450 Bq m⁻² an⁻¹. La composante du flux atmosphérique apparaît largement distordue du fait des forts taux de sédimentation en vigueur sur les zones côtières. Cette sédimentation est la conséquence de la forte contribution de l'érosion, principalement par les apports des cours d'eau: les sédiments allochtones sont collectés sur les larges superficies des bassins versants où le ²¹⁰Pb non-supporté (i.e. atmosphérique) est déposé. Les valeurs moyennes des flux mesurés montrent une différence entre les marges continentales (qui incluent les plateaux, les pentes et les canyons) et le reste des sites côtiers (baies, estuaires et fjords). La valeur moyenne des flux obtenus sur les marges continentales (370 Bq m⁻² an⁻¹) est intermédiaire entre celle des autres sites côtiers (550 Bq m⁻² an⁻¹) et celle obtenue dans les océans profonds (111 Bq m⁻² an⁻¹).

2.3 Les océans profonds

L'histogramme du flux (Figure V.3c) présente une distribution symétrique et un faible écart des valeurs. La plus forte contribution se situe entre 50 et 150 Bq m⁻² an⁻¹. Elle exprime une caractéristique, commune à tout l'océan, au niveau des mécanismes gouvernant le flux de dépôt (sources, transport et dépôt). Le flux moyen calculé (111 Bq m⁻² an⁻¹) apparaît plus fort que le flux atmosphérique moyen observé ou estimé sur l'Océan Atlantique Nord (50 Bq m⁻² an⁻¹ estimé par *Cochran et al.* (1993); 60 Bq m⁻² an⁻¹ mesuré à Madeire par *Carvalho* (1990)). Cette valeur moyenne est certes proche du flux mesuré aux Bermudes (115 Bq m⁻² an⁻¹), qui sont sous l'influence du continent nord-américain, mais l'essentiel des données dans les sédiments a été mesuré dans la partie orientale de l'Océan Atlantique Nord. Ces faits supportent donc bien l'existence d'une source additionnelle de ²¹⁰Pb. Comme le souligne un certain nombre d'auteurs (*Robbins, 1978; Cochran et al., 1990*), la contribution majeure dans le flux de dépôt de ²¹⁰Pb au fond des océans provient du ²²⁶Ra dissout dans la colonne d'eau et distribué de manière relativement homogène.

2.4 Lacs, étangs, tourbières et marais

Ces réservoirs représentent la majeure partie des sites de mesures dans les sédiments. Les flux sont distribués assez régulièrement (Figure V.3d) avec un maximum de valeurs autour de 100 Bq m⁻² an⁻¹. Comparée aux trois autres classes de réservoirs, la distribution du flux eau-sédiment apparaît plus proche de la distribution du flux atmosphérique:

- le flux moyen calculé (162 Bq m⁻² an⁻¹) est proche du flux atmosphérique moyen calculé (142 Bq m⁻² an⁻¹) pour tout l'hémisphère nord,

- comme c'est le cas pour les mesures du flux en surface, la plupart des données sont situées entre 0 et 250 Bq m⁻² an⁻¹, avec un maximum entre 50 et 150 Bq m⁻² an⁻¹.

Toutefois de très fortes valeurs (>500 Bq m⁻² an⁻¹) existent, mais leur représentativité statistique est très faible. Notons aussi que l'importante contribution des faibles valeurs (<50 Bq m⁻² an⁻¹) peut résulter de la grande quantité de valeurs issues des mesures effectuées en Scandinavie où le flux atmosphérique est assez faible comparé aux moyennes latitudes nord.

Des caractéristiques, souvent communes aux différents réservoirs compris dans cette classe, peuvent expliquer, en partie, pourquoi la distribution du flux se rapproche le plus de celle des flux de dépôt à la surface, comparée aux trois autres classes de réservoirs:

- des plus petites quantités d'eau impliquent moins d'énergie dans le transport et ainsi moins de perturbations dans les processus de dépôt (à l'opposé des grands lacs),
- la production de ²¹⁰Pb généré par le ²²⁶Ra dissout dans l'eau est négligeable (à l'opposé des océans),
- les taux de sédimentation sont généralement plus faibles que pour les autres classes de réservoirs (à l'exception de l'océan profond), particulièrement quand les mesures sont effectuées au centre du lac, dans les tourbières ou les marais, où la contribution des sédiments originaires du bassin versant est moins importante.

Néanmoins, il faut rappeler que des différences notables existent souvent entre les données individuelles de flux eau-sédiment et le flux atmosphérique local, même dans cette dernière catégorie de réservoirs.

2.5 Comparaison entre les quatre classes de réservoirs

Les résultats montrent clairement que, dans trois des quatre types de réservoirs,

le flux de ^{210}Pb à l'interface eau-sédiment diffère significativement du flux atmosphérique.

Dans l'océan profond, la contribution principale dans le flux de dépôt ne provient pas du flux atmosphérique à la surface de l'océan, mais résulte de la désintégration du ^{226}Ra dissout présent dans l'eau de mer. Dans les sites côtiers, la grande quantité d'apports de sédiments issus du bassin versant explique, en grande partie, pourquoi les valeurs de flux sont bien plus fortes que les apports atmosphériques. Les grands lacs présentent une grande variété de processus sédimentaires ayant pour conséquence une forte dispersion des valeurs de flux.

A la différence des trois classes précédentes, la dernière classe de réservoirs (lacs, étangs, tourbières et marais) montre une distribution du flux plus comparable à celle du dépôt atmosphérique. Une caractéristique commune à ces réservoirs d'eau est leur petite taille et leur faible budget énergétique. Les marais et les tourbières apparaissent comme étant les meilleurs types de sites, pour estimer le flux atmosphérique, à cause de leur faible épaisseur d'eau, de l'absence d'érosion et de leur très faible budget énergétique (absence de courants). Néanmoins, un choix attentionné du type de lac (petite taille) et du lieu d'échantillonnage (centre du lac avec faible taux de sédimentation), peut donner une estimation correcte du flux atmosphérique.

VI - Conclusion générale

VI - Conclusion générale

Ce travail montre l'utilité des données de ^{210}Pb d'origine atmosphérique dans l'environnement pour l'étude du climat et du cycle des aérosols.

Les mesures de flux de dépôt de ^{210}Pb effectuées au laboratoire dans différents milieux (collecteurs artificiels, sols et neige) ont permis d'enrichir le nombre important mais insuffisant des données existantes. Elles donnent aussi accès à une analyse de phénomènes climatiques locaux. Les trois principales méthodes utilisées ici ont des caractéristiques différentes mais complémentaires pour la mesure du flux de dépôt de ^{210}Pb à la surface terrestre. La méthode directe (pluviomètre artificielle) est, à l'évidence, la plus fiable, et permet d'accéder au cycle saisonnier mais elle nécessite des mesures en continu pendant toute la période d'observation (un an minimum en ce qui nous concerne). Les deux autres méthodes (sols et neige) offrent l'avantage d'un échantillonnage rapide, donnant accès à de longues périodes d'observation (supérieures à un siècle) si le collecteur naturel n'est pas perturbé par des processus externes (érosion, accumulation, fonte de la neige,...). Un choix judicieux du site de prélèvement est donc nécessaire pour minimiser ces perturbations. La mesure du ^{210}Pb dans les couches d'hiver de neige donne seulement accès à une estimation du flux annuel, mais elle permet d'élargir ce type d'étude aux glaciers tempérés, soumis à une fusion estivale. Certains types de sédiments (petits lacs, étangs, tourbières et marais) peuvent aussi permettre une bonne estimation du flux atmosphérique si un choix attentionné du site de prélèvement est effectué, ainsi qu'un nombre suffisant de prélèvements. La comparaison entre les différentes méthodes de mesure indique que, lorsque une bonne couverture spatiale du flux atmosphérique annuel associée à un échantillonnage rapide sont nécessaires, un bon compromis entre vitesse et efficacité correspond aux mesures dans les sols et la neige.

Ce travail se focalise sur l'interprétation de la distribution spatiale des concentrations de ^{210}Pb dans l'air de surface et des flux de dépôt. Ces données ont été rassemblées dans une base regroupant les mesures effectuées au cours de ces quatre dernières décennies. La couverture spatiale des mesures disponibles se révèle largement incomplète, mais permet toutefois une analyse en terme de sources,

transports et mécanismes de dépôt sur une large partie du globe.

L'influence des sources est clairement visible lorsque l'on compare les écarts des valeurs de concentration dans l'air de surface sur les continents (variant de 0.2 à 1.1 mBq SCM⁻¹) où les sources de ²²²Rn sont effectives, avec celles au-dessus des océans (variant de 0.01 à 0.3 mBq SCM⁻¹) et des régions englacées (variant de 0.02 à 0.2 mBq SCM⁻¹), où les sources de ²²²Rn sont négligeables. En première approximation, la distribution spatiale du ²¹⁰Pb dépend principalement du caractère zonal de la circulation atmosphérique associé avec la répartition des sources. La distribution en latitude (concentration et flux) reflète, en grande partie, la proportion des sources sur la bande de latitude. La distribution en longitude résulte surtout de l'origine des masses d'air (air continental enrichi; air océanique appauvri), dépendant elle-même du sens de la circulation zonale (vents d'ouest, alizés, ..). La dissymétrie observée entre les hémisphères nord et sud concernant la quantité de ²¹⁰Pb (concentration et flux) résulte de la répartition inégale des continents non-englacés entre ces deux hémisphères. Les précipitations (neige et pluie) représentent le principal mode de dépôt du ²¹⁰Pb, excepté dans les zones désertiques où le dépôt sec est prépondérant. Le rôle des précipitations est bien illustré en Antarctique, où les concentrations dans l'air de surface sont homogènes et où un fort gradient d'accumulation de neige existe entre la côte et l'intérieur du continent. Là, le flux de dépôt est linéairement dépendant des précipitations.

La base de donnée de ²¹⁰Pb a été synthétisée afin d'être le mieux adaptée à la validation de modèles de circulation générale (GCM). Elle a permis la calibration du modèle couplé climat/aérosols développé au Laboratoire de Glaciologie. A l'issue de la comparaison modèle/observations, il apparaît clairement que, dans le modèle, les concentrations de surface de ²¹⁰Pb sont globalement sous-estimées, particulièrement lorsque l'on s'éloigne des régions sources (continents). Les flux de dépôt sont surestimés au-dessus des continents et en déficit sur les océans. Ces tendances générales, appuyées par la comparaison de profils verticaux de concentration atmosphérique de ²¹⁰Pb, sont compatibles avec l'hypothèse suivante: dans le modèle, la distribution verticale du lessivage des aérosols par les précipitations est incorrecte. Le lessivage est trop efficace dans les basses couches de l'atmosphère et trop faible dans la haute et moyenne troposphère.

Le classement des données de flux eau-sédiment de ²¹⁰Pb selon quatre différents

types de réservoir d'eau a permis d'identifier des fonctionnements distincts de transferts de ²¹⁰Pb entre l'atmosphère et les sédiments. Cette étape a été réalisée en comparant la distribution des flux eau-sédiments dans chaque réservoir avec celle des flux de dépôt air-surface. Dans trois types de ces réservoirs (océan profond, grands lacs et zones côtières) la distribution du flux diffère significativement de celle du flux atmosphérique. Ceci est la conséquence de processus internes (²²⁶Ra dissout dans l'océan, mécanismes de redistribution dans les grands lacs, forts taux de sédimentation dans les zones côtières). La dernière classe de réservoir (lacs, étangs, tourbières et marais) présente une distribution des données relativement comparable à celle du flux atmosphérique mesuré dans les collecteurs artificiels.

En dernière conclusion, il apparaît que la couverture spatiale de la base de donnée n'est que très partielle. En effet, de vastes régions du globe restent très peu documentées. Les moyennes zonales sont particulièrement pauvres en données dans les régions équatoriales et tropicales. Un manque important de données concernant les concentrations dans l'air de surface existe au Moyen Orient, en Asie Centrale (de l'Europe de l'Est à la Mer du Japon), en Afrique, en Asie du Sud-est (excepté au Japon) et en Amérique du Sud (excepté la côte Ouest). En ce qui concerne les flux de dépôt, les mêmes lacunes existent, mais celles-ci sont effectives dans l'ensemble de l'Amérique du Sud. Les données océaniques sont rares aussi bien en ce qui concerne les concentrations que les flux.

Annexe 1

Radioactivité en Antarctique: Dépôt et Distribution

RADIONUCLIDES IN ANTARCTICA: DEPOSITION AND DISTRIBUTION

M. Pourchet¹, S.K. Bartarya², M. Maignan³, J. Jouzel¹⁻⁹, J.F. Pinglot¹,
A.J. Aristarain⁴, G. Furdada⁵, V.M. Kotlyakov⁶, E. Mosley-Thompson⁷,
N. Preiss¹ and N.W. Young⁸.

¹*CNRS, Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement, B.P. 96,
38402 Saint Martin d'Hères Cedex, France.*

²*Wadia Institute of Himalayan Geology, Dehradun 248001 (U.P.), India.*

³*Université de Lausanne, Instituts de minéralogie et de mathématiques, CH-1015,
Lausanne, Switzerland.*

⁴*Instituto Antartico Argentino and CONICET, Casilla de Correo 131, 5500 Mendoza,
Argentina.*

⁵*Dpt. Geologia Dinàmica, Geofísica i Paleontologia; Universitat de Barcelona, Zona
Universitària Pedralbes; 08028 Barcelona, Spain.*

⁶*Academy of Sciences, Institute of Geography, Staromonetny per, 29; Moscow 109017,
C.E.I.*

⁷*Byrd Polar Research Center, Ohio State University, 1090 Carmack Road;
Columbus, OH 43210 (USA).*

⁸*Antarctic CRC, University of Tasmania; GPO Box 252C, Hobart; Tasmania 7001.*

⁹*Laboratoire de Modélisation du Climat et de l'Environnement, CEA/DSM CEN Gif-sur-
Yvette, France.*

ABSTRACT: Statistical analysis of the deposition of radionuclides in Antarctica reveals a structured distribution. Local drift redistribution and the snow surface roughness disturb the representativeness of samples and produce a nugget effect. Nevertheless, Principal Component Analysis of ^{137}Cs versus temperature and accumulation account for 66% of the total variance on the first inertia axis and 94% on the plane 1-2. The correlation between ^{137}Cs and accumulation shows two sub-populations: the first concerning the stations with a mean annual temperature above -21°C , for which a strong correlation is found, and the second for locations with temperatures below -21°C which give a lower correlation. The transition area is located at the change of slope of the polar plateau.

The flux of ^{210}Pb varies from 0.9 to 8.2 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{y}^{-1}$. The values are strongly correlated with the accumulation, and the spatial structure is surprisingly well-structured on the omnidirectional variogram.

The same mechanism governs the deposition of artificial and natural tritium, but clearly differs from that of other radionuclides associated with particulate material.

The "dry fallout" accounts for between 60 and 80% of the total fallout for the artificial radionuclides and around 40% for ^{210}Pb . This difference is likely related to a tropospheric fraction for ^{210}Pb .

The deposition of ^{137}Cs over Antarctica is 885 TBq, and represents 0.09% of the total deposition of this radionuclide in the world.

Despite the isolated location and the regulations governing this protected area, over the last forty years, the radioactive contamination of Antarctica by artificial long-lived radionuclides has been ten times greater than for natural radionuclides.

RESUME: *Distribution des retombées de ^{137}Cs et des autres radionucléides en Antarctique.* L'analyse statistique des retombées de radioisotopes en Antarctique montre une distribution structurée. La redistribution par le chasse-neige et les irrégularités de la surface de la neige perturbe la représentativité des échantillonnages et induit un bruit de fond. Néanmoins, l'analyse en composantes principales du ^{137}Cs en fonction de la température et de l'accumulation extrait 66% de la variance totale sur le premier axe d'inertie et 95% sur le plan 1-2. La corrélation entre le ^{137}Cs et l'accumulation révèle deux sous-populations: une première pour les stations dont la température moyenne annuelle est supérieure à -21°C , et pour laquelle une forte corrélation existe, une seconde, pour les températures inférieures à -21°C , beaucoup moins liées. La zone de transition correspond à la rupture de pente du plateau Antarctique.

Le flux de ^{210}Pb varie de 0.9 à 8.2 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$. Il est très fortement lié à l'accumulation, et sa répartition spatiale est révélée par un variogramme omnidirectionnel très structuré.

Le même mécanisme gouverne la déposition du tritium naturel et artificiel, mais il diffère clairement des autres radionucléides supportés par des matériaux particuliers.

Les "retombées sèches" sont particulièrement importantes en Antarctique puisqu'elles représentent entre 60 et 80% du dépôt total pour les radionucléides artificiels, et environ 40% pour le ^{210}Pb . Cette différence peut être associée à l'existence d'une

fraction troposphérique pour ce dernier radioélément.

Le dépôt de ^{137}Cs en Antarctique est de 885 TBq et représente 0.09% du dépôt mondial.

Malgré son isolement géographique, et son statut de continent protégé, on peut observer que, pour les 40 dernières années, la contamination par les radionucléides artificiels à vie longue est environ 10 fois plus forte que celle induite par les radioéléments naturels.

INTRODUCTION :

A number of atmospheric thermonuclear tests conducted between 1953 and 1980, mostly in the northern hemisphere, have injected large quantities of artificial radionuclides into the upper atmosphere and stratosphere. These radionuclides are transported from their sources to Antarctica. During transport they are subject to the usual removal processes. Because of the well known arrival dates, they serve as characteristic reference levels in snow and are currently used in glaciological studies to determine the average rate of snow accumulation over the last 40 years. The artificial and natural radionuclides present in the ice sheets of the polar regions have been also widely used as atmospheric tracers to understand the transport and circulation of continental, tropospheric and stratospheric air masses (Wilgain et al, 1965 and Feely et al, 1966 etc.).

The behaviour of fission products depends upon the latitude, the altitude, and the season in which they were released. Fission products introduced into the equatorial stratosphere spread rapidly in the latitudinal band of injection but migrate slowly towards the pole (Picciotto and Wilgain, 1963). The concentration of these artificially produced radionuclides in Antarctic and sub-Antarctic areas is controlled by their long range transport from mid-latitudes. For tropospheric transport, a 30 day transit time of the air masses from distant continental regions to the South Pole has been suggested by Maenhaut et al (1979).

Thus, the use of airborne radionuclides as atmospheric tracers has been demonstrated (Junge, 1963; Rama, 1963; Lambert et al, 1966 and 1983; Kolb, 1970; Luyanas et al, 1970; Telegadas, 1972; Poet et al, 1972; Moore et al, 1973; Reiter, 1978; Maenhaut et al, 1979; etc.) but after reaching Antarctica, the process of deposition or fallout of these radionuclides is not uniform and the factors controlling their deposition or spatial distribution and the role of accumulation, wind and local topographic conditions are not completely understood.

The insufficient data in regards to particular radionuclides have restricted the studies to determine detailed spatial variations, and factors responsible for these variations and the processes of deposition, i.e. dry or wet deposition. Initial elements related to the structure of the spatial correlation and indicative maps have been proposed. The present paper aims to show the distribution pattern for natural and artificial radionuclides over Antarctica. An attempt has also been made to compute the total budget of ^{137}Cs fallout, from 1955 to 1980.

EQUIPMENT AND METHOD:

After melting and filtration (Delmas and Pourchet, 1977), the snow samples from different stations in Antarctica (Fig. 1) were analysed for total beta activity (Pinglot and Pourchet, 1979) over several years. These filters, taken together, were analysed by gamma spectrometry using a specially designed low background germanium detector (Pinglot and Pourchet, 1994) in order to identify the total content of cesium and other radio-isotopes from nuclear bomb tests, among the natural radioactivity. The available data of the total fallout of ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^3H and other radionuclides and fluxes of ^{210}Pb , compiled from Lambert et al, 1983; Sanak, 1983; Bendezu, 1978; Koide et al, 1979 and 1981; Jouzel et al, 1979; Raisbeck et al, 1981, 1987, 1990 and various others sources, or generated by us, are given in Table 1a and 1b. The specific activities were corrected for decay back to the deposition time. The accuracy of our measurement is about 20 % for ^{137}Cs , ^{210}Pb and about 100 % for ^{241}Am , ^{226}Ra , and ^{234}Th .

In Antarctica, the physical variables, like accumulation, temperature, altitude or distance to the coast, are strongly linked (Young et al, 1982 and Pettre et al, 1986). For this reason, in a first step, we correlated the radionuclide distribution mainly with the accumulation. Single linear regression analyses were performed between radionuclides and this parameter. As a complement to this classical statistical studies, EDA (Exploratory Data Analysis) and spatial geostatistical investigations have been performed on the set of radionuclide data. These experimental variograms computed from the observations are fitted (least squares method) by a set of theoretically acceptable functions, referred to as models: exponential, Gaussian, spherical, power. During such fitting, it is important to pay attention to:

- the value of variogram for zero lag, i.e. the so-called nugget effect: this is the residual variability between neighboring samples, variability which cannot be removed even by sampling at smaller distances.
- existence of a sill for the variograms. If any, this sill should be the statistical variance.
- lag a for which the sill is reached, so called "range" or "influence zone"
- anisotropies, for variogram behaviour depending on the direction.

As a verification process, the variographic analysis of altitudes shows no nugget effect (meaning accurate measurements, without variability over very small distances), and easy to fit experimental variograms.

RESULTS :

Distribution of radionuclides:

The fluxes of radionuclides, at a given location in Antarctica, depend on the concentration in the atmosphere, the source region, stratosphere-troposphere exchange, transport and deposition processes, i.e., either wet or dry deposition, and post depositional changes. Recent snow cover (less than 50 years) is currently dated by total beta radioactivity. The first significant increase of radionuclide content is observed in January 1955 (Picciotto and Wilgain, 1963) and corresponds to the arrival of the Ivy and Castle series tests conducted in 1953. This increase in total beta activity due to artificial radionuclides, mainly ^{137}Cs and ^{90}Sr , is about 20 times higher than the natural activity

level, mainly due to ^{210}Pb . The highest recorded activity was in 1965 and must have resulted from the stratospheric transfer of debris from the Dominic and USSR test series. The short term temporal variations in the fallout of radionuclides have been discussed by many workers (Wilgain et al, 1965; Lambert et al, 1977 and 1990; Merlivat et al, 1977; Jouzel et al, 1978; Koide et al, 1979; Maenhaut et al, 1979) and therefore we will discuss here the spatial distribution of the total fallout of artificial radionuclides covering the total duration of atmospheric nuclear tests, and fluxes of natural radionuclides.

Table 1 shows significant variations in the rates of accumulation, temperature, altitude and fallout of radionuclides. While the rate of accumulation varies by a factor of 30, the fallout of ^{137}Cs (between 1955 and 1980) varies by a factor of no more than 17, and the ^{210}Pb fluxes by a factor of 6.

Cesium 137:

Over all of Antarctica, the total contamination by ^{137}Cs for the deposition time (corrected for radioactive decay) varies from 17 Bq.m^{-2} (Ross Ice Shelf, station F9) to 174 Bq.m^{-2} (DB) and could fit a lognormal distribution, with a tail for high values over 120 Bq.m^{-2} . The median of 54 Bq.m^{-2} lies 10% below the mean value of 60.2 Bq.m^{-2} , revealing the asymmetry (B1 Pearson of 2.45). 75% of the sample values are below 74 Bq.m^{-2} , and 90% are below 95 Bq.m^{-2} . The three highest values which greatly exceed the other samples, are located at D53, K105 and DB. The data fit table 1 well on a half-normal probability plot.

Along the Dumont D'Urville - Dome C (DDu-DC) axis, which possesses the highest number of values, total contamination is linked to the accumulation by relation 1:

$$Y (\text{cesium}) = 0.12 X (\text{accu}) + 35.5 \quad \rho = 0.65 \quad (1)$$

Assuming the conservation of the linear relation, the extrapolation for null accumulation gives an estimate of ^{137}Cs "dry deposition" of 35.5 Bq.m^{-2} . In this local study, this dry deposition represents 56 % of the total deposition of ^{137}Cs .

The linear regression of ^{137}Cs versus accumulation for yields all samples a constant value (interpreted as dry deposition) of 49 Bq.m^{-2} and a regression coefficient of 0.0649 ^{137}Cs per unit of accumulation ($\rho = 0.34$). The mean value of dry deposition represents, for all samples, 82% of the total deposition. The relative low correlation coefficient may be due to :

- 1- The dispersion of the data. The dispersion of these values is caused by the fact that the meteorological regimes differ from place to place.
- 2- The accuracy of accumulation and deposition measurements. The uncertainty in the accumulation measurement can generally be neglected compared to the uncertainty in ^{137}Cs measurements.
- 3- The representativeness of the samples: samples from ice cores or pits have small cross-sections and their representativeness strongly depends on local relief (sastrugi, dunes) and drift redistribution. At two stations: South Pole (SP) and Dome C (DC), the order of magnitude of effects (2) and (3) has been estimated. For these two stations,

with 13 and 6 measurement sites respectively, a standard deviation of about 30% has been obtained (34 % and 23 %). The standard deviation is divided equally between the two effects.

The global scatter plot of ^{137}Cs versus altitude or temperature depicts no linear correlation at all, with a large spread and no clustering of values, even for the two locations with repeated measurements, but the scatter plots of ^{137}Cs versus accumulation, conditioned by temperature, reveal the correlation coefficients and the regressions for the different subpopulations. The conditioning increases the correlation coefficients for ^{137}Cs versus accumulation with three level of filtering for temperature (Fig. 2): 0.48 for temperatures below -38.3°C , 0.58 for temperatures between -38.3 and -21°C , 0.98 for temperature above -21°C . The abrupt change of correlation coefficient around -21°C generate two sub-populations with a transition area located at the change of slope of the polar plateau.

A trivariate graphical representation of ^{137}Cs versus temperature and accumulation shows in 3-D (Fig. 3) the piecewise linear behaviour found in the categorized analysis.

A principal component analysis performed considering the temperature, accumulation and ^{137}Cs (Fig. 4), indicates that 66 % of the total variance is accounted for by the first inertia axis, and 95 % by the plane 1-2. The variables are just on the circumference of the circle with radius 1, confirming the projection in 2-D space. The 3 variables are on the same side of the first axis, correlated 91 % with the accumulation and 66 % with the temperature, ^{137}Cs is correlated 57 % with the second axis and contributes to 66 % of its inertia.

The observations are split clearly into two groups: a compact group with low temperature and low accumulation, and a scattered group correlated positively (except samples D55, F9, GC38, GC6 and PS59) to temperature and accumulation. These groups are not separated with projection on the ^{137}Cs vector.

The hierarchical ascending classification performed on the same variables (Fig. 5) confirms and provides more details on the splitting obtained by the factorial analyses. Two groups are obtained. These groups A and B are specifically related to the location and the snow accumulation. A map of group A shows the sampling points in the vicinity of Dumont d'Urville, and from there on a parallel to the eastern coast, with other points at the cliff edge of Ross Ice shelf and on the Peninsula. A map of group B shows the sampling points on the polar plateau.

Over very small spatial scales, repetitive measures at the same location were treated with a slight translation in their coordinates, thus allowing a determination of a nugget effect of $20^2 (\text{Bq.m}^{-2})^2$, interpreted as the most accurate of measures.

The omnidirectional variogram (Fig.6) is consistent with a spherical model with a 450 km range, but the nugget effect already happens to be half of the sill. In other words, 50% of the variance can be related to spatial correlation and 50% remains as "noise". Even after fitting, interpretation should be made cautiously, since the spatial autocorrelation shows values very close to zero.

Based on the variograms, the maps have been established using the geostatistical method of Kriging, i.e. B.L.U.E. Best Linear Unbiased Estimator.

Interpolation on a regular grid is fitted as the solution of a linear system, which minimizes the estimation variance.

The isoline maps of radionuclides show large-scale structures, which must not be interpreted to be as smooth as they appear due to the limited number of samples available.

The maps have been established on the basis of square kriged blocks of $250\text{km} \times 250\text{km}$, and reported on a mask of such squares representing the antarctic continent and its ice shelves.

The ^{137}Cs map (Fig.7) shows the significant increase on the eastern border, reaching 100 Bq.m^{-2} , and several peaks for DC. On this quadrant, the ^{137}Cs map is rather similar to a rough map of the elevation gradient. The values around the pole are rather low.

The kriged ^{137}Cs is above 90 Bq.m^{-2} for 14 squares, or $875\,000 \text{ km}^2$. Fourteen squares on the plateau ($875\,000 \text{ km}^2$) have a kriged value less than 50 Bq.m^{-2} . Forty four blocks, i.e. $2\,750\,000 \text{ km}^2$ have estimated values of ^{137}Cs between 60 and 80 Bq.m^{-2} .

An average of 885 TBq of ^{137}Cs deposited in the Antarctica has been estimated by the block kriging. This value is of course different from the average value of samples multiplied by the area, since the samples were highly clustered. Taking the total world ^{137}Cs fallout at the time of deposition, between 1954 to 1980, as $95 \times 10^{16} \text{ Bq}$ (Cambray et al, 1981), the total flux of ^{137}Cs in the world is 1860 MBq.km^{-2} . This suggests that the total ^{137}Cs flux over Antarctica is 3.5% of the mean total flux of the world, and the deposition of ^{137}Cs in Antarctica represents 0.09% of the total deposition in the world.

Strontium 90:

The zero correlation coefficient of ^{90}Sr versus temperature masks the lack of a relationship in the case of 3 samples J9, D50, D72, with low ^{90}Sr ($< 110 \text{ Bq.m}^{-2}$), and the linear relation with a correlation coefficient around 0.90 for the 6 samples which have ^{90}Sr above 140 Bq.m^{-2} .

At two stations (J 9 and D 80), where we have measurements of both ^{90}Sr and ^{137}Cs , the ratio is respectively 1.1 and 2.1 (mean values :1.6). These ratio are not different from the global atmospheric ratio of 1.6 (Volchok et al, 1971; Eisenbud, 1987), and it is not possible to deduce a possible partitioning between these two radionuclides.

Eight stations analyzed both for ^{210}Pb and ^{90}Sr show a correlation of 0.89. Considering the set of these bivariate scatterplots, the analyses of stations D50, D72 and J9 requires scrutinization.

In previous attempts, Lambert et al (1971), Volchok (1965) and Wilgain (1970) computed the budget of ^{90}Sr over Antarctica. Volchok (1965), by extrapolating HASL data, found 666 TBq of ^{90}Sr up to Jan. 1965, and Wilgain (1970), assuming that ^{90}Sr deposition varies linearly with water accumulation, computed 1184 TBq of ^{90}Sr up to the beginning of Jan. 1964. Lambert et al (1971), taking a constant value of ^{90}Sr

deposition obtained 925 TBq as of Jan.1964 for the Antarctica continent excluding the Antarctic Peninsula.

Lead 210:

The atmospheric concentration of ^{210}Pb , a long-lived daughter radionuclide (half life 22.3 years) of radon, depends on its generation through radon decay and its removal by atmospheric scavenging processes. The lack of radon sources in Antarctica and the time required for air to move from continental areas to this region results in low radon (and its daughter nuclides) concentrations in Antarctica.

The origin of ^{210}Pb over Antarctica has been widely discussed. Lambert et al (1966) initially suggested an essentially stratospheric origin for ^{210}Pb at South Pole, based on a good correlation between ^{210}Pb and fission products over South Pacific and Antarctica, but in 1983 they (op cit.) stated a tropospheric origin for ^{210}Pb . Based on the correlation between ^{210}Pb and the stratospheric radionuclides ^7Be and ^{137}Cs (and the high level of ^{210}Pb at South Pole compared to Punta Arenas), Maenhaut et al (1979) suggested transport of ^{210}Pb to the Antarctic interior through the lower stratosphere and (or) upper troposphere during the austral summer. The almost equal residence time (5.5 days) of ^{210}Pb and ^{222}Rn over the subantarctic ocean, for the whole troposphere, suggests rapid transport of these radionuclides from their remote continental sources and this transport of nuclides from mid-latitudes towards Antarctica is not through the lower troposphere (Lambert et al, 1990).

In firm, the total amount of ^{210}Pb (A) is the result of an equilibrium between the atmospheric flux (\emptyset) and radioactive decay after deposition. With a constant atmospheric flux, we have the relation (2):

$$\emptyset = \lambda * A \quad (2)$$

where λ is the radioactive constant of ^{210}Pb .

The fluxes are calculated from the continuous vertical profiles of ^{210}Pb concentration. The quantities measured in each sample along the profile are summed and relation (2) is used to convert the deposition into a flux.

Another method to determine fluxes consists of extrapolating the different values measured in the profile to the surface. This makes it possible to deduce a mean concentration (C) at the snow surface linked to the flux by the relation (3):

$$\emptyset = C * P \quad (3)$$

where P represents the mean net annual accumulation on the site.

The observed fluxes vary from 0.9 to 8.2 $\text{Bq.m}^{-2}.\text{y}^{-1}$, and are strongly correlated to the accumulation ($\rho = 0.80$). The regression equation is given by relation (4) below:

$$Y (^{210}\text{Pb}) = 0.01164 X (\text{accu}) + 1.2785 \quad (4)$$

Mount Erebus, an active volcano, has been considered as a source of the elevated levels of ^{210}Pb in McMurdo sound (Croaz et al, 1964). The apparent high level in snow at Roi Baudoin Station is due to the high snow accumulation rate there.

The correlation coefficient of -0.74 between elevation and ^{210}Pb flux is in fact even higher if we use only the 17 measurements above 1000 m, where the linear negative behaviour is obvious.

The dry fallout levels are lower than the ^{137}Cs levels and for all the stations, the "dry fallout" represents about 40 % of the flux. The dispersion of the values is significantly lower than for the artificial radionuclides. Artificial radionuclide fluxes are discontinuous while the natural flux from ^{210}Pb is continuous, and the concentrations in neighbouring samples are very similar. The measurements are not consistently affected by drift redistribution. In the case of occasional or discontinuous phenomena (nuclear tests, industrial accidents, volcanic events, etc.) it would be necessary to ensure the representativeness of the sampling.

From lichens, mosses, grass, soil and lake sediments collected on South Shetland Island, Roos et al. (1994) obtained very similar values: in the range of 3.8-17.5 $\text{Bq.m}^{-2}.\text{y}^{-1}$, with a mean of 8.6 $\text{Bq.m}^{-2}.\text{y}^{-1}$.

The spatial investigations of ^{210}Pb are based on observations at 23 stations. The spatial structure appears to be surprisingly well-structured on the omnidirectional variogram (Fig. 8), with a nugget effect of 0.8^2 and a clearly modelled growth up to the sill reached for a distance of 1100 km.

One hundred and sixty-two blocks of 250 km* 250 km were estimated for ^{210}Pb (Fig. 9). However the map is purely indicative, due the limited number of stations (24) available. Seventy-five blocks with ^{210}Pb less than 2 $\text{Bq.m}^{-2}.\text{y}^{-1}$ represent the interpolation with very high estimation variance, i.e. low confidence, on the central plateau. The second population of blocks above 2.5 $\text{Bq.m}^{-2}.\text{y}^{-1}$ is clearly related to the scarp edges at the circumference of the continent, which is consistent with both the correlation coefficient of ^{210}Pb with altitude, and the 0.57 correlation coefficient with latitude. The smooth decrease of ^{210}Pb within the polar plateau will be completed by cokriging if relevant, thus taking into consideration the 0.80 correlation of ^{210}Pb and accumulation.

Tritium:

The tritium fallout data are given as total amount of tritium deposited between 1955 and 1980 along the DDU-DC axis, at South Pole and on the Ross ice shelf (Table 1). The tritium is found in the water molecule as HTO, i.e., a gas, and most of the tritium present in Antarctica between 1955 and 1980 is due to the atmospheric testing of fusion bombs which injected tritium into the stratosphere. The tritium deposition in Antarctica is strongly influenced by seasonal cycles and the smoothing of the seasonal variations is produced by diffusion in the vapour phase during firmification (Merlivat et al, 1978 and Jouzel et al, 1978). The tritium fallout over Antarctica varies from 211 to 840 TU.m of water equivalent (1 TU= 118 Bq.l^{-1}) and the average is 529 TU. m of

water equivalent.

Although, we do not have enough data, a plot of total tritium content vs. rate of accumulation for 7 stations along DDU-DC shows a high positive correlation of 0.84, suggesting a regular increase in tritium deposition with the increase in the rate of accumulation. When we include the other data, the correlation decreases to 0.63, but increases to over 0.85 for accumulations over $100 \text{ kg.m}^{-2}.\text{y}^{-1}$ (but this reduces the number of stations to only 7).

The station on the Ross Ice Shelf, which is 450 km from the coast but at 50 m elevation, is depleted in tritium compared to other stations. This suggests that moist air might have picked up the tritium from the surface and redistributed it elsewhere by eddy diffusion. The substantially higher tritium content, by a factor of two, at South Pole indicates preferential injection directly from the stratosphere (or opening of the stratosphere) by the direct molecular vapour exchange of atmospheric air masses with stratospheric masses. However, for the preferential tritium fallout at the South Pole, Jouzel et al (1979) suggested that, because of the direct growth of stratospheric clouds and their precipitation in the higher troposphere (Stanford, 1973), a significant percentage of tritium-rich stratospheric fallout could be removed from the stratosphere, accounting for large tritium injections during the antarctic winter at the South Pole. This stratospheric cloud formation mechanism could have played a particularly strong role during 1973, which is the coldest year (Jouzel et al. op. cit.). However a link with nuclear testing cannot be discarded (the fact that the 1973 French explosions produced a relatively large amount of debris has been recently disclosed).

The deposition of tritium over Antarctica is strongly related to mixing with the stratosphere and the processes of precipitation from the troposphere. The tritium formed at upper levels is brought down from higher stratospheric altitudes within the circumpolar vortex and is then passed into the troposphere by vertical exchange processes over the polar regions during the Antarctic winter when no temperature inversion exists at the south polar tropopause. When these special conditions exist, a continuous rapid exchange of air between the lower polar stratosphere and the troposphere possibly occurs (Martell, 1970). Tritium concentration in the Antarctic precipitation is much higher than in precipitation at temperate southern latitudes. Koide et al. (1979) attributed this to the diluting influence of the ocean at most moderate latitude stations and suggested that continental effects were very important in understanding tritium deposition.

Finally we note two interesting features of the tritium fallout. First, the latitudinal and seasonal dependence of this fallout shows similarities between natural (analysed on snow fallen before the first nuclear testings) and artificial tritium; these similarities show that the same mechanisms govern the deposition of artificial and natural tritium (Jouzel et al., 1981). Second, the seasonal patterns of tritium and β fallout clearly differs with maxima occurring respectively during the antarctic winter and antarctic summer. According to Taylor (1968), this is due to the different transfer mechanisms involved. β products are transported with particulate material in the lower stratosphere and enter the stratosphere at mid-latitudes (seasonal fallout variation characterized by a summer maximum) whereas tritium, formed at higher levels, is

brought down from higher stratospheric altitudes within the circumpolar vortex and is then passed into the troposphere over the polar regions during the Antarctic winter.

Other Radionuclides:

The inventories of ^{241}Pu , and $^{239-240}\text{Pu}$ are roughly similar for DC and station J9 on the Ross ice shelf (table 1b). The $^{238}\text{Pu} / ^{239-240}\text{Pu}$ ratio is in good agreement with the values obtained from lichens, mosses, grass and soil collected on South Shetland island (Roos et al, 1994), or in the McMurdo Sound area and around Syowa station (Hashimoto et al, 1989). An ^{241}Am inventory at South Pole and DC also agrees with the South Shetland inventory, but disagrees with ^{241}Pu at DC and Ross Ice Shelf: at DC, ^{241}Am , a daughter product of ^{241}Pu , represents, at the date of measurement (1992), less than 3% of ^{241}Pu . Koide et al (1979) suggested, for ^{238}Pu , a major contribution by the SNAP-9A event in 1964 and, for ^{241}Pu , caused related to the Mike, Yvy and early American thermonuclear tests, characterised by their very high $^{241}\text{Pu} / ^{239-240}\text{Pu}$ ratio, i.e. 27 in 1953 compared to a global world ratio of 13 (Roos et al, 1994).

The fluxes of cosmogenic-produced ^{10}Be are higher by a factor of about 2 at South Pole (2.7) compared to DC (1.6). The ratio of ^{10}Be and the ratio of accumulation at South Pole and DC are not the same. This difference in ratio may be due to dry fallout. If we assume the same concentration of ^{10}Be in snowfall at these two stations, dry fallouts are respectively 30% and 50% at South Pole and DC.

^{234}Th ($0.012 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{y}^{-1}$) and ^{226}Ra ($0.082 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{y}^{-1}$) flux (decay products of the ^{238}U family) are reported for the first time at DC. ^{234}Th is a short-lived radionuclide (24 days), in secular equilibrium with ^{238}U . The ^{226}Ra flux (the long-lived radionuclide before Radon) is about 7% of the total ^{210}Pb flux. After deposition, by radioactive decay, this ^{226}Ra produces supported ^{210}Pb in snow. In 60 year old snow, the activity of this supported ^{210}Pb is the same as the remaining activity of unsupported ^{210}Pb (6%). For the last century, snow dating by ^{210}Pb is easy to use but supported ^{210}Pb should not be neglected.

A comparison between the artificial (^{137}Cs , ^{90}Sr , ^3H), terrigenous (^{210}Pb , ^{234}Th , ^{226}Ra) and cosmogenic (^{10}Be) radionuclides indicates that artificial radionuclides constitute more than 90% of the total long-lived radionuclides deposited in Antarctica during the 1955-1980 period.

DISCUSSION:

Most thermonuclear tests increased the radionuclide debris of the northern hemisphere's troposphere and stratosphere. While tropospheric radionuclide debris was quickly deposited on the earth's surface, the stratospheric debris began to mix, and the deposition over Antarctica was primarily from stratospheric input. First point out that the southern polar troposphere received much less material from thermonuclear tests. Most of the radionuclides it received came from the stratosphere. This was substantiated by radioisotope measurements performed in Antarctica (Piccioto and Wilgain, 1963; Crozaz, 1969; Taylor, 1968) and the 1.5 year residence time suggested

by Pourchet et al. (1983). The arrival of artificial radionuclides is in December and January, when the tropopause breaks down allowing stratospheric air to intrude into the troposphere. A pronounced maximum in deposition in antarctica summer has been illustrated for ^3H (Jouzel et al, 1978) and ^{137}Cs (Lockhart et al, 1966) suggesting that the Southern Hemisphere does undergo seasonal variations in stratospheric-tropospheric interchange such as those observed in the northern hemisphere.

Jouzel et al. (1979) suggested a two-year delay for the arrival of tritium at the South Pole after its production in the northern hemisphere, and an important part of the isotopic signal in the precipitation is retained in the snow at South Pole.

The estimates dry fallout are 82%, 60% and 40% for ^{137}Cs , ^{90}Sr and ^{210}Pb respectively. These dispersed values may be explained by the geographical heterogeneity of the sampling and by the low number of common measurements. The similar origin for ^{137}Cs and ^{90}Sr should result in the same percentage of dry fallout for these two radionuclides. We attribute the observed differences to the accuracy of the determinations therefore. For ^{210}Pb , the smaller value may reflect the arrival, from the surrounding continents, of a tropospheric fraction directly incorporated in the clouds. The tritium case is also different, and the explanation for the 70% of apparent dry fallout may be the effect of the direct molecular vapor exchange of atmospheric air masses with stratospheric masses. The observed difference between radionuclides should be applied for a classification of transport processes concerning stable species.

In the case of omnidirectional variograms for ^{137}Cs , the nugget effect reaches half of the statistical (non-spatially correlated) variance. This will result in an inaccurate estimation and mapping, principally due to the low representativeness of the small area covered by a snow core. The ^{210}Pb deposition flux fluctuates little or none, and the nugget effect associated with this radionuclide is smaller than for ^{137}Cs .

A local variation in transport, accumulation and dry fallout at high altitude inland stations, such as DC, DB and Vostok, or preferential injection directly from the stratosphere at South Pole (for tritium) are the most probable causes for variation in the distribution of radionuclides (^{137}Cs and ^{90}Sr) at these stations.

REFERENCES

- Bendezu, A.M., 1978. Application des mesures de plomb 210 et Sr-90 à l'étude des échanges entre l'atmosphère et la calotte Antarctique, Ph.D Thesis, Université de Paris, 108p.
- Crozaz, G., Picciotto, E. and De Breuck, W., 1964. Antarctic snow chronology with ^{210}Pb . *Journal of Geophysical Research*, 69, 2597-2604.
- Crozaz, G., 1967. Mise au point d'une méthode de datation des glaciers basée sur la radioactivité du Pb-210, Thesis, Université Libre de Bruxelles, Belgique.
- Crozaz, G., 1969. Fission products in Antarctic snow, an additional reference level in Jan. 1965, *Ear. Plan. Sci. Lett.*, 6: 6.
- Cutter, G.A., Bruland, K.W. and Risebrough, R.W., 1979. Deposition and accumulation of plutonium isotopes in Antarctica, *Nature*, 279: 628-629.
- Davidson, C.I., 1989. Mechanism of wet and dry deposition of atmospheric contaminants to snow surfaces, in: *The Environmental Records in Glaciers and Ice Sheets*, (eds. H. Oeschger and C.C. Langway Jr.), John Wiley and Sons Ltd., 29-51.
- Delmas, R. and Pourchet, M., 1977. Utilisation de filtres échangeurs d'ions pour l'étude de l'activité Beta globale d'un carottage glaciologique, *IASH-AISH Publ.*, 118: 158-163.
- Deutsch, C., Journel, A., 1992. *Geostatistical software library and user's guide*, Oxford University press.
- Eisenbud, M., 1987. *Environmental Radioactivity from Natural, Industrial and Military Sources*, Academic Press Ins., 475p.
- Feely, H.W., Seitz, H., Lagomarsino, R.J. and Biscaye, P.E., 1966. Transport and fallout of stratospheric radioactive debris, *Tellus*, 18(2): 316-328.
- Graf, W., Moser, H., Reinwarth, O., Kipfstuhl, J., Oerter, H., Minikin, A., Wagenbach, D., 1994. Snow accumulation rates and isotopic content (^2H , ^3H) of near surface firm from the Filchner- Ronne Ice Shelf, Antarctica. *Annals of Glaciology* 20: 121-128.
- Hashimoto, T., Morimoto, T., Ikeuchi, Y., Yoshimizu, K., Torii, T., Komura, K., 1989. A survey of artificial radionuclides in the Antarctic. *Radioisotopes*, 38: 209-218.
- Jambu, M., 1991. *Exploratory and multivariate data analysis*, Academic press.
- Jouzel, J., Pourchet, M., Lorius, C. and Merlivat, L., 1978. Artificial tritium fallout at the South Pole, in *Behaviour of Tritium in the Environment*, IAEA, Vienna, SM 232/38:31-46.
- Jouzel, J., Merlivat, L., Pourchet, M. and Lorius, C., 1979. A continuous record of artificial tritium fallout at the South Pôle (1954-1978), *Ear. Plan. Sci. Lett.*, 45: 188-200.
- Junge, C.C., 1963. *Air chemistry and Radioactivity*, Academic, New York.
- Koide, M., Michel, R., Goldberg, E.D, Heron, M., and Langway, C.C.(Jr.), 1979. Depositional history of artificial radionuclides in the Ross iceshelf, Antarctica, *Ear. Plan. Sci. Lett.*, 44: 205-223.
- Koide, M. and Goldberg, E.D., 1981. $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ ratios in polar glaciers, *Ear. Plan. Sc. Lett.*, 54: 239-247.
- Kolb, W., 1970. Jahreszeitliche Schwankungen der ^7Be , ^{54}Mn and Spalt product - Konzentrationen der bodennahen Luft, *Tellus*, 22: 443-450.
- Lambert, G., Ardouin, B., Nezami, M. and Pollian, G., 1966. Possibilities of using ^{210}Pb as an atmospheric tracer, *Tellus*, 18: 421
- Lambert, G., Ardouin, B., Bricchet, E., 1971. Balance of ^{90}Sr over Antarctica: existence of a protected area. *Ear. plan. Sci. Lett.*, 11: 317-323.
- Lambert, G., Ardouin, B., Sanak, J., Lorius, C. and Pourchet, M., 1977. Accumulation of snow and radioactive debris in Antarctica: a possible refined radiochronology beyond reference levels, in *Isotopes and Impurities in Snow and Ice*, IAHS-Publ., 118: 146-158.
- Lambert, G., Ardouin, B. and Mesbah-Bendezu, A., 1983. Atmosphere to snow transfer in Antarctica, in *Precipitation, Scavenging, Dry deposition and Resuspension* (eds. Pruppacher et al), Elsevier Science Pub., 1289-1300.
- Lambert, G., Ardouin, B. and Sanak, J., 1990. Atmospheric transport of trace elements towards Antarctica, *Tellus*, 42B: 76-82.

Lockhart, L.B., Patterson, R.L., and Saunders, A.W., 1966. Atmospheric radioactivity in Antarctica 1959-1963. U.S. Naval Research Laboratory Report 6341.

Luyanas, V. Yu., Yasyulyonis, R. Yu., Shopauskiene, D.A. and Styra, B.I., 1970. Cosmogenic ^{22}Na , ^7Be , ^{32}P and ^{33}P in atmospheric dynamics research, *J. Geoph. Res.*, 75: 3665-3667.

Maenhaut, W., Zoller, W.H. and Coles, D.G., 1979. Radionuclides in the South Pole Atmosphere, *J. Geoph. Res.*, 84(C6): 3131-3138.

Martell, E.A., 1970, Transport patterns and residence times for atmospheric trace constituents versus altitude, in: *Radionuclides in the Environment, Atmospheric Trace Constituents*, 9: 138-157.

Merlivat, L., Jouzel, J., Robert, J. and Lorius, C., 1978. Distribution of artificial tritium in firm samples from East Antarctica, AISH Symp. Grenoble, Aug-Sept.1975, IAHS-AISH, Pub. 118: 138-145.

Moore, H.E., Poet, S.E. and Martell, E.A., 1973. ^{222}Rn , ^{210}Pb , ^{210}Bi and ^{210}Po profiles and aerosol residence times versus altitude, *J. Geoph. Res.* 78: 7065-7075.

Pannatier, Y., 1995. Variowin, MS-Windows programs for spatial data analysis in 2D. Ph.D thesis to be published, Lausanne.

Picciotto, E. and Wilgain, S., 1963. Fission products in Antarctic Snow; a reference level for measuring accumulation, *J. Geoph. Res.*, 68: 5965-5972.

Pinglot, J.F. and Pourchet, M., 1979. Low level beta counting with an automatic sample changer. *Nucl. Instrum. Meth.*, 166: 483-490.

Pinglot, J.F. and Pourchet, M., 1994. Spectrométrie gamma à très bas niveau avec anti-Compton NaI (TI), pour l'étude des glaciers et des sédiments. Note CEA-N-2756. ISSN 0429-3460.

Poet, S.E., Moore, N.E. and Martell, E.A., 1972. Lead 210, bismuth 210, and polonium 210 in the atmosphere: Accurate ratio measurement and application to aerosol residence time determination, *J. Geoph. Res.*, 77: 6515-6527.

Pourchet, M., Pinglot, J.F. and Lorius, C., 1983. Some meteorological applications of radioactive fallout measurements in Antarctic snows, *J. Geoph. Res.*, 88(C10): 6015-6020.

Rama, K., 1963. Atmospheric circulation from observations of natural radioactivity, *J. Geoph. Res.*, 77: 6515.

Raisbeck, G., Yiou, F., Fruneau, M., Loiseaux, J.M., Lieuvain, M., Ravel, J.C. and Lorius, C., 1981. Cosmogenic ^{10}Be concentrations in Antarctic ice during the past 30,000 years, *Nature*, 292: 825-826.

Raisbeck, G.M., Yiou, F., Bourles, D., Lorius, C., Jouzel, J. and Barkov, N.I., 1987. Evidence for two intervals of enhanced ^{10}Be deposition in Antarctic ice during the last glacial period, *Nature*, 326: 273-277.

Raisbeck, G.M., Yiou, F., Jouzel, J. and Petit, J.R., 1990. ^{10}Be and ^3H in polar ice cores as a probe of the solar variability's influence on climate, *Phil. Trans. R. Soc. Lond.*, A330: 463-470.

Reiter, E.R., 1978. Atmospheric Transport Processes (Pt-4): Radioactive tracers, D.O.E. Critical Review Series, Tech. Inf. Center, U.S. Dept. of Energy, 605p.

Roos, P., Holm, E., Persson, R.B.R., Aarkrog, A. and Nielsen, S.P., 1994. Deposition

of ^{210}Pb , ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$, and ^{241}Am in the Antarctic Peninsula Area. *J. Environ. Radioactivity*, 24: 235-251.

Sanak, J., 1983. Contribution à l'étude du transport des aérosols d'origine continentale vers l'Antarctique, Thèse, Université Pierre et Marie Curie, Paris, 249p.

Stanford, J.L., 1973. Possible sink for stratospheric water at the winter Antarctic Pole, *J. Atm. Sci.*, 30: 1431-1436.

STATLAB, 1994. Program manual by SLP.

Taylor, C.B., 1968. A comparison of tritium and strontium-90 fallout in the southern hemisphere, *Tellus*, 20: 569-576.

Telegadas, K., 1972. Atmospheric radioactivity along the HASL ground level sampling network, 1968 to mid 1970, as an indicator of tropospheric and stratospheric sources, *J. Geoph. Res.*, 77: 1004-1011.

Volchok, H.L., Bowen, V.T., Folsom, T.R., Broecker, W.S., Schwart, E.A. and Bien, G.S., 1971. Oceanic distribution of radionuclides from nuclear explosions, In: *Radioactivity in the Marine Environment (U.S. National Academy of Sciences)*: 42-89.

Wilgain, S., Picciotto, E. and De Breuck, W., 1965. Strontium-90 fallout in Antarctica, *J. Geoph. Res.*, 70: 6023-6032.

Wilgain, S., 1970. Contribution à l'étude de la radioactivité de l'air et des précipitations dans l'Antarctique. Thesis, Université Libre de Bruxelles. 309p.

Yarus, J., Chambers, R., 1995. AAPG Computers Applications in geology.

FIGURE CAPTIONS:

Figure 1: Map of Antarctica showing locations of ice coring stations.

Figure 2: Bivariate graphs of ^{137}Cs versus accumulation, conditioned (filtered) by temperature.

The first scatterplot is N_rep (i.e. not-represented) for observations where no temperature data is available.

The other graphs, either 3-fold show the behaviour of ^{137}Cs (vertical) versus accumulation (horizontal). The correlation coefficient is indicated in the bottom-right corner. These graphs were obtained for iso-amplitude and for iso-frequency conditioning.

Figure 3: Quadratic surface for temperature versus accumulation, versus ^{137}Cs .

Figure 4: Principal component analysis (P.C.A.) was performed on the 3 variables temperature, accumulation and ^{137}Cs .

Figure 5: Hierarchical Ascending Classifications were performed, first on 3 variables: accumulation, temperature and ^{137}Cs . The classification of observations and their relevant clustering is shown in subgroups. The height of the dendrogram is the measure of the "classification distance" among elements. IXX designates I for Individual, with XX being the row numbers, as shown in the appendix with the raw data.

Figures 6: Omnidirectional variograms for ^{137}Cs (a) and ^{210}Pb (b). The variogram depicts the correlation as a function of distance.

On a variogram, one can read the global fit of a model (curve) to the experimental

values for given distances (the straight lines).

The horizontal line is the statistical variance, i.e. the variance without spatial correlation. It is reached for a distance called the "range", which is a measure of the zone of influence. Beyond this range, data measurements are spatially independent. The intersection of the model curve with the vertical axis represents the residual variance between measurements for a very small distance. It is called the "nugget effect" and represents the residual variability of the data which cannot be removed even with sampling on a very dense grid.

Figures 7 and 8: Antarctic maps of distributions for ¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb respectively.

LIST OF TABLES:

Table 1a: Major radionuclides fallout or flux, geographical and meteorological parameters for coring stations. /

Table 1b: Minor radionuclides fallout or flux.

Source of data: Present study for data without brackets, other wise 1. Koide et al, 1979; 2. Jouzel et al, 1979; 3. Lambert et al, 1983; 4. Crozaz, 1967; 1969; 5. Sanak, 1983; 6. Bendezu, 1978; 7. Raisbeck et al, 1987; 9. Raisbeck et al, 1990; 10. Koide et al, 1981; 11. Cutter et al, 1979; 12. Graf et al, 1994.

St.	Lat.S (d°)	Long.E (d°)	Alt. (m)	Temp (°C)	Accu kg.m ⁻² .y ⁻¹	¹³⁷ Cs Bq.m ⁻²	⁹⁰ Sr Bq.m ⁻²	²¹⁰ Pb Bq.m ⁻² .y ⁻¹	T T.U.m.w.	n°
M.M	77.83	167	20		160			6.9 (4)		30
J 9	82.37	191.33	50	-29.4	90	89	96	1.9 (1)	211 (1)	31
F 9	84.4	189	50	-30.4	84	17				32
K 105	67.58	93.70	1351		313	132				33
VK631	72.22	96.62	3421		68	52				34
Komso	74.10	97.50	3498	-53.9	64	52		1.16 (5)		35
VK747	73.25	97.07	3270		84	40				36
VK 17	78.45	106.84	3470	-55.4	19	35				37
DB	76.92	95.17	3400		32	174				38
Vost.	78.45	106.84	3471	-55.4	23	58				39
BHD	66.73	112.83	1315		631	59				40
BHD B	66.73	112.83	1315		631	81				41
GC 38	70.44	11.74	2524	-38.9	121	50				42
GC 40	71.17	111.36	2695	-43.6	126	55				43
GC 47	73.70	110.20	3046	-52.1	45	36				44
GD 03	69.00	115.48	1832	-29.4	476	78				45
GD 12	68.98	126.93	2170	-32.6	350	95				46
GD 15	69.00	130.81	2150	-33.3	356	100				47
GF 01	68.50	110.85	1800	-28.7	367	63				48
GF 04	68.53	107.24	2120	-32.7	293	46				49
GM 13	73.17	110.45	2960	-52.9	65	59				50
JR F	64.25	302.25	1690	-13.4	163	32				51
JR G	64.25	302.25	1350	-11.3	236	40				52
PS 9	90.00	90.00	2800	-50.7	80	52				53
PS 10			80		80	46				54
PS 15			79		79	40		1.64		55
PS 16			86		86	45				56
PS 18			80		80	74				57
PS 19			73		73	67				58
PS 20			81		81	97				59
PS 21			79		79	28				60
PS 22			79		79	36				61
PS 74			84		84	41				62
PS 77			80		80	59				63
PS 78			79		79	51				64
PS			80		80	144		1.89 (3)	720 (2)	65
New Bird	80.0	240.0	1500		180			5.5 (4)		66
R.Baudouin	70.43	24.32	20		400			8.2 (4)		67
2-11-279	82.9	18.2	2610	-49.2	36			1.1 (4)		68

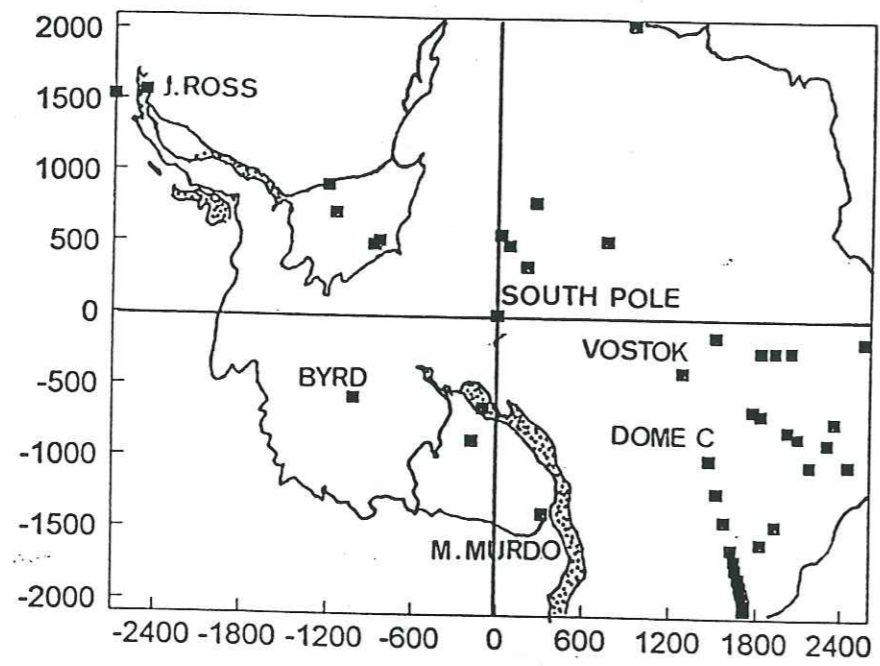


Fig. 1

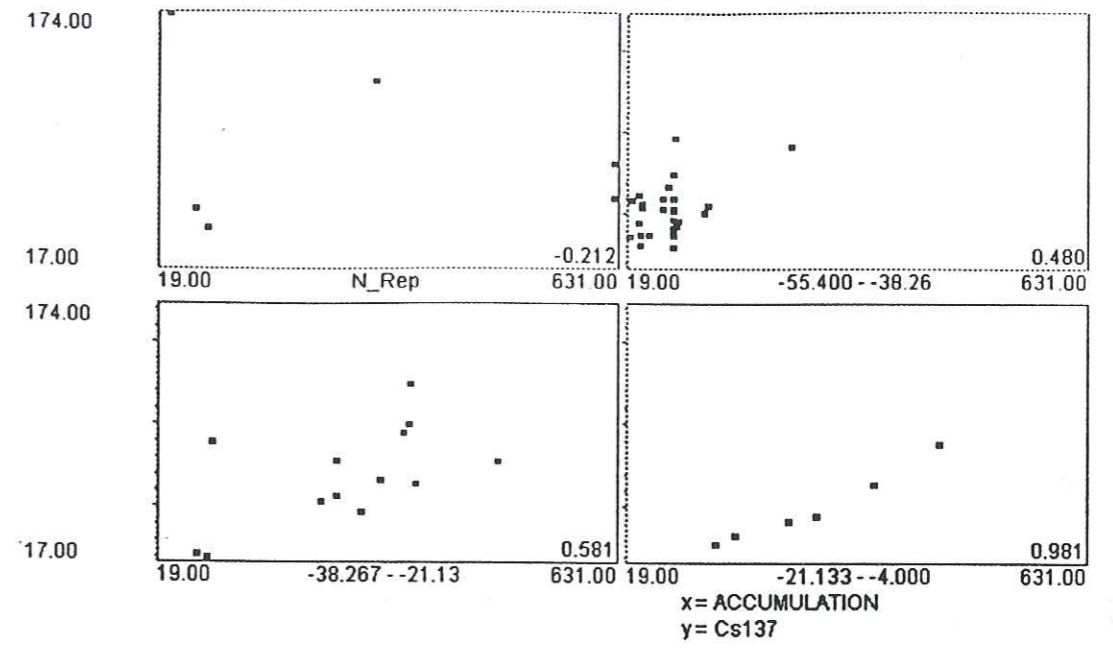


Fig. 2

Quadratic Surface
 TEMPERAT vs. ACCUMULA vs. CS137
 (Casewise deletion of missing data)

- 6.805
- 13.610
- 20.416
- 27.221
- 34.026
- 40.831
- 47.637
- 54.442
- 61.247
- 68.052
- 74.858
- 81.663
- 88.468
- 95.273
- 102.078
- 108.884

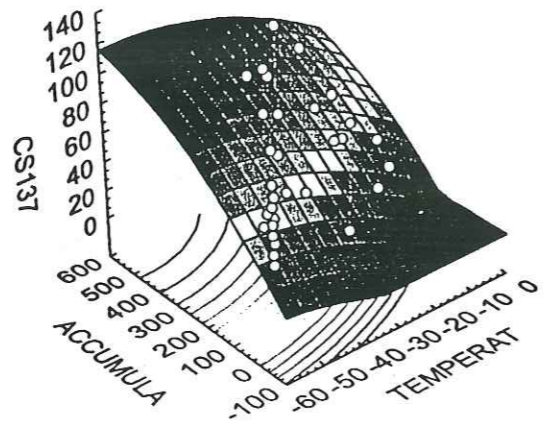


Fig. 3

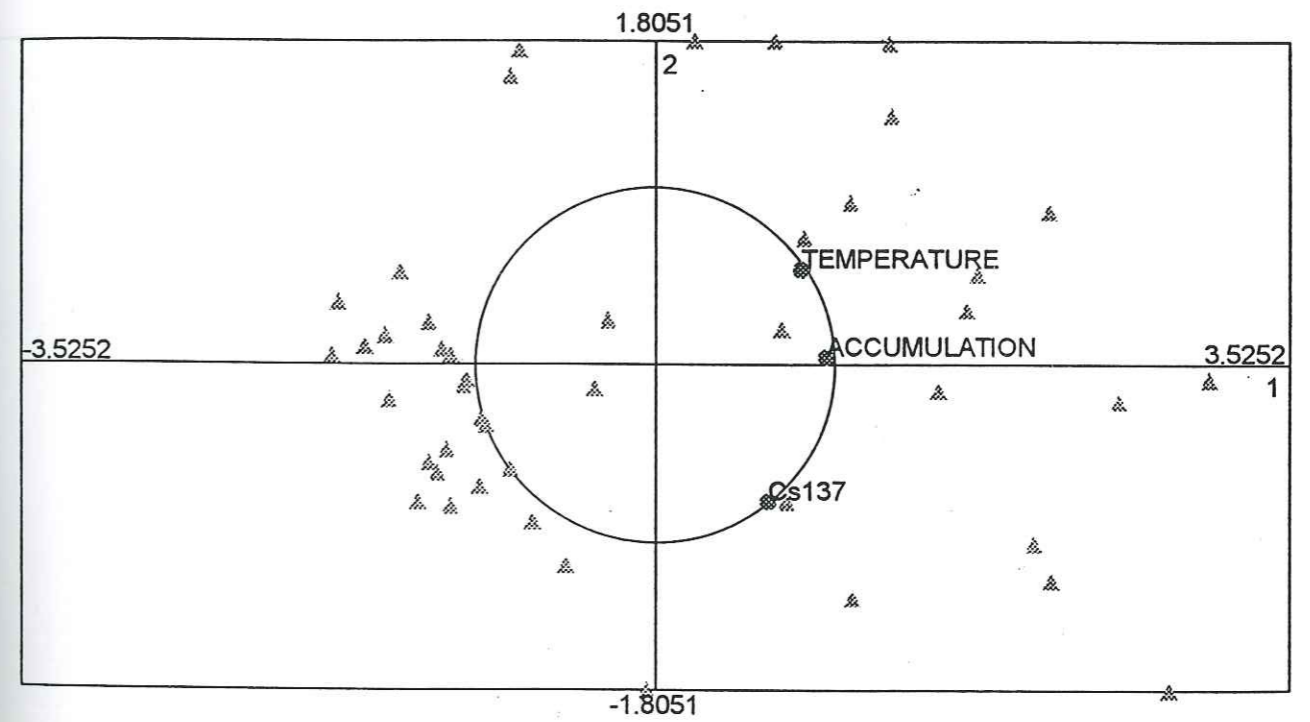


Fig.4

145
 118
 112
 144
 13
 17
 12
 147
 110
 148
 115
 18
 14
 151
 150
 15
 131
 113
 126
 125
 134
 138
 124
 162
 149
 155
 153
 163
 152
 142
 141
 161
 154
 160
 159
 143
 122
 136
 123
 127
 157
 156
 158
 130

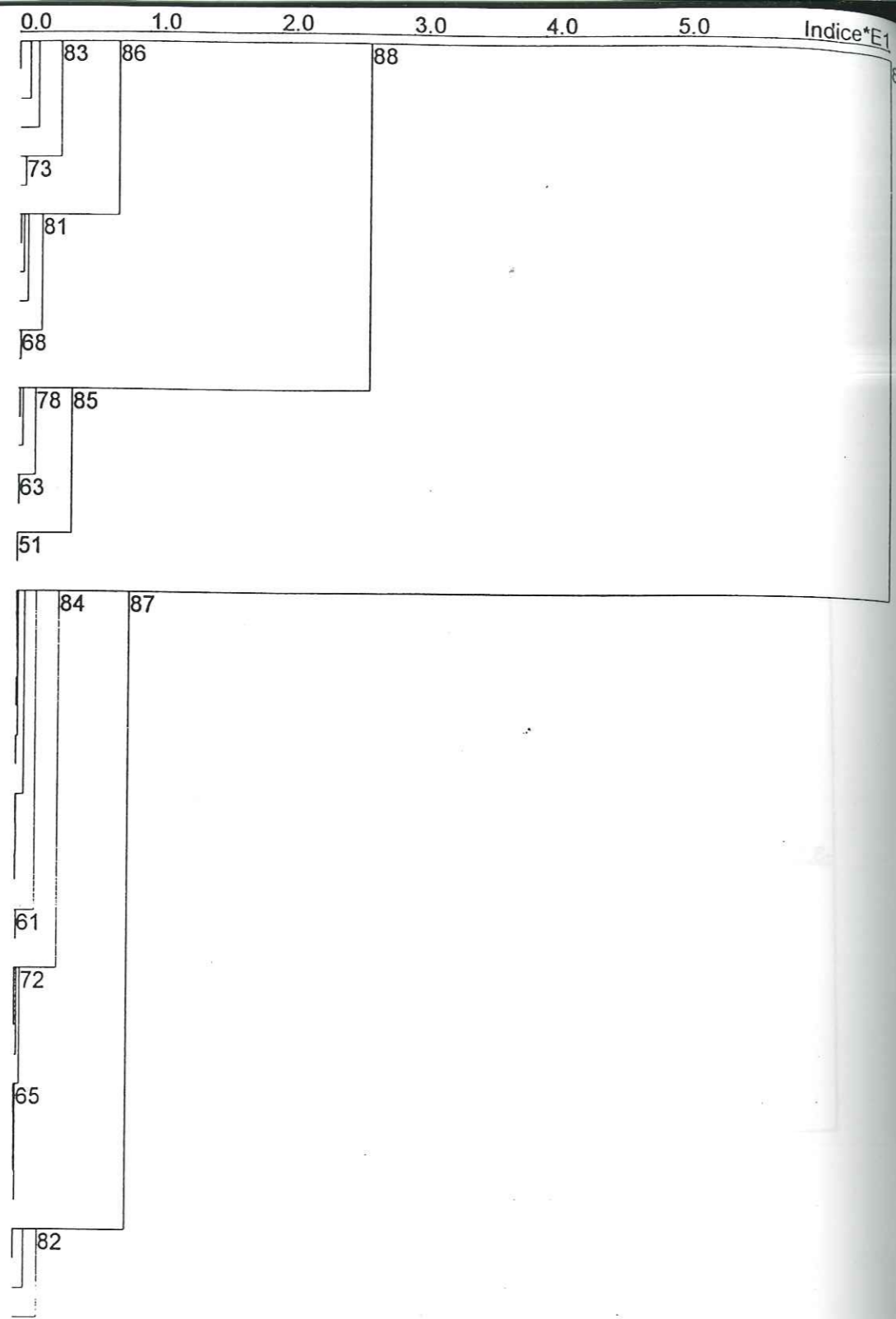


Fig. 5

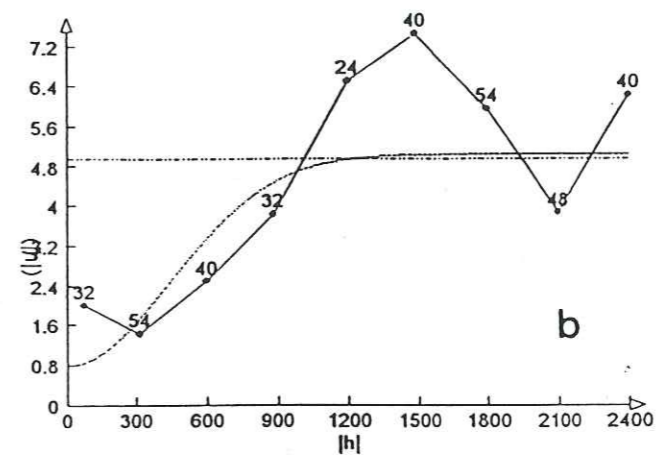
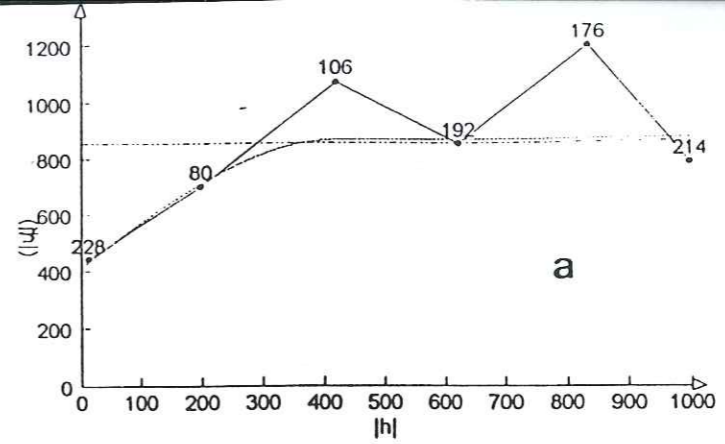


Fig. 6

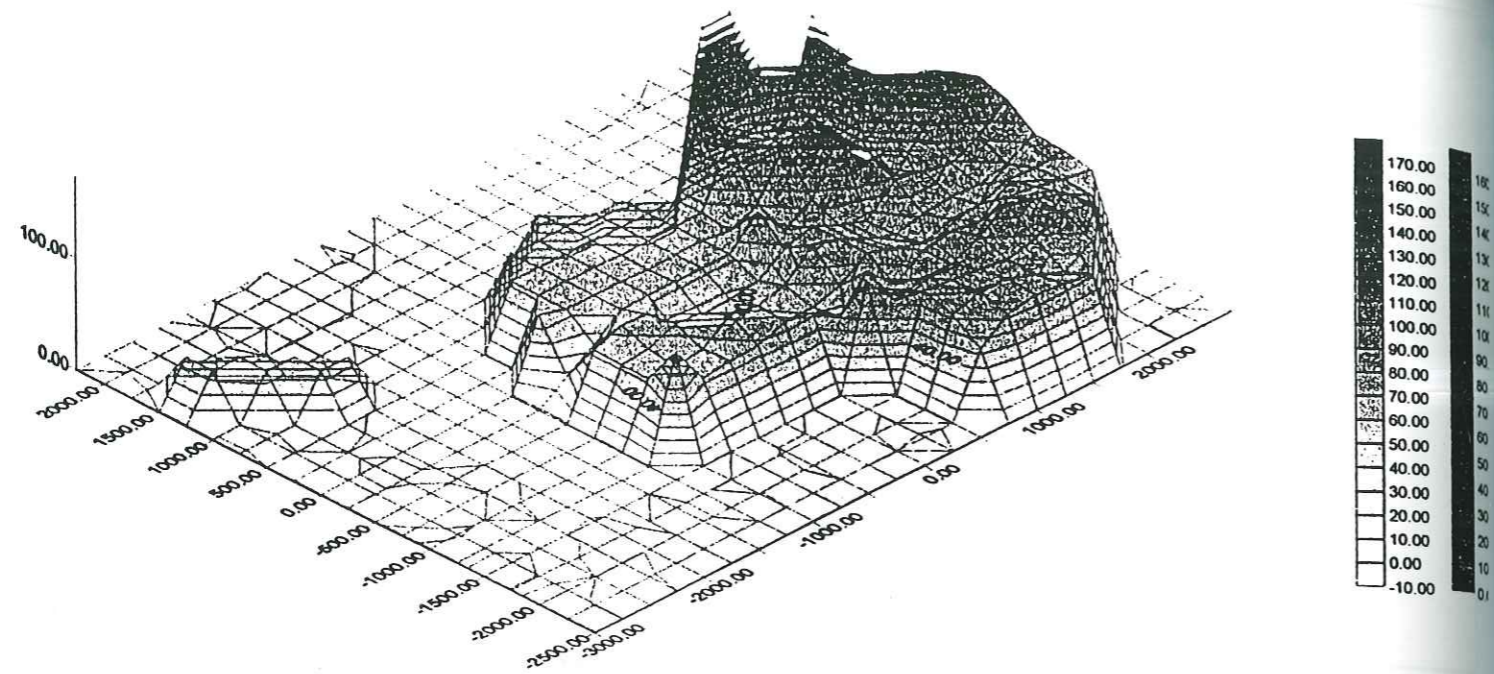


Fig. 7

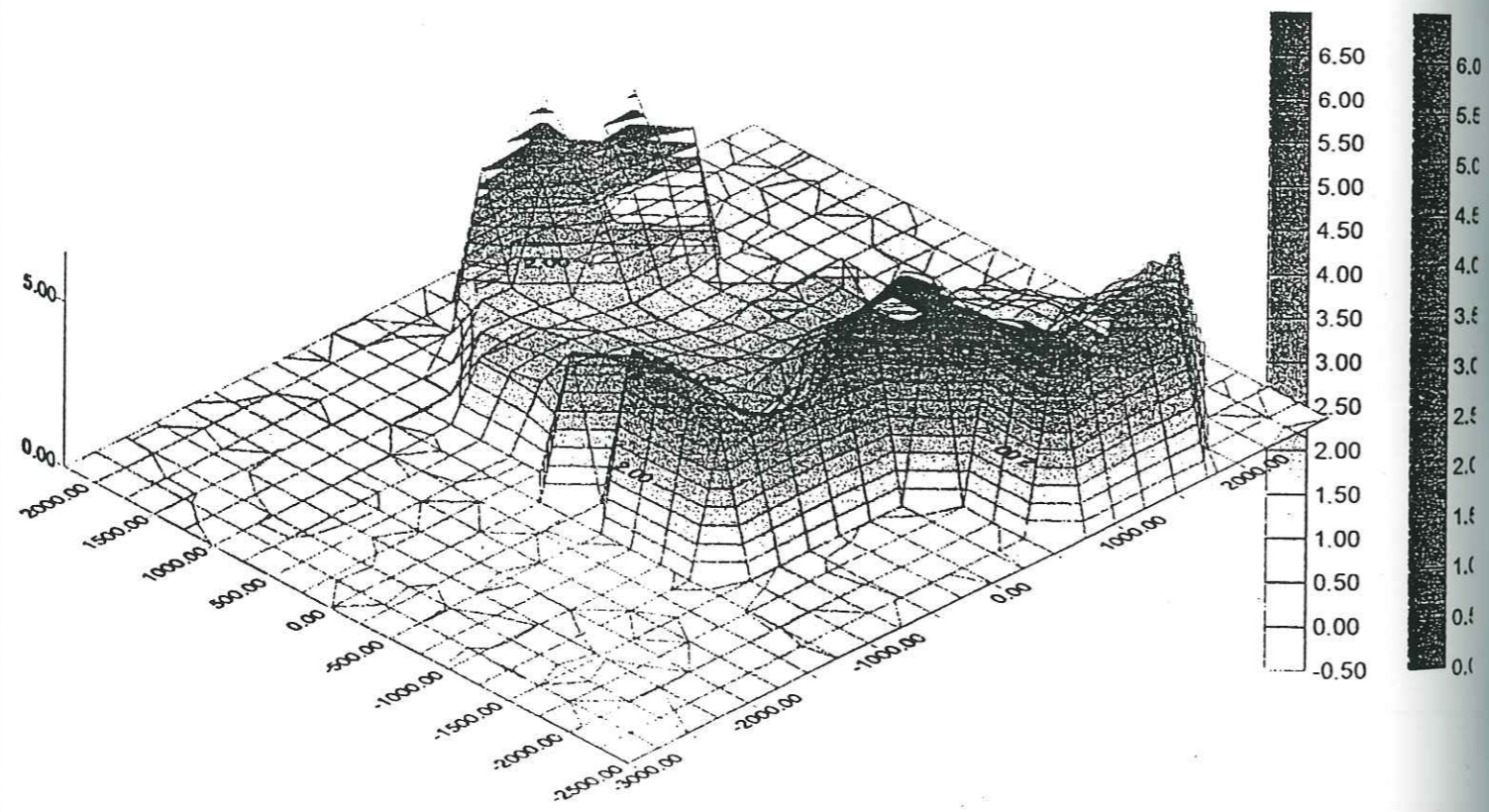


Fig. 8

Annexe 2
Analyses Radio-isotopiques de Sols et de Sédiments
Lacustres

Publié sous la direction de: Jean-Pierre Carbonnel et Jordan Nikolov Stamenov

Nationalité: française, bulgare

ISBN 954-90025-4-3

Rédacteur en chef: Boyko Vatchev

Composition sur ordinaeur et présentation: PolyTech, Ltd.

Dessin: Kalin Kantchev

ANALYSES RADIO-ISOTOPIQUES
DE SEDIMENTS LACUSTRES
DU PARC NATIONAL DE RILA

Michel Pourchet¹, Lidia Kinova², Nicolas Preiss¹,
Kroum Veltchev³, Elisabeth Pourchet⁴

¹ Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement
54 rue Molière B.P.96 38402 St Martin d'Hères Cedex, France

Tél:(33)76824259 Fax:(33)76824201 E.mail pourchet@glaciog.grenet.fr
² Institute for Nuclear Research and Nuclear Energy, Bulgarian Academy
of Sciences, Tsarigradsko shaussee, 72, Sofia, Bulgaria.

Tel.: (003592)74311 Fax:(3592)755019 E.mail: ramlab@bgearn.hitnet
³ National Institute of Meteorology and Hydrology, Bulgarian Academy of
Sciences, Tsarigradsko chaussee, 66, 1784, Sofia, Bulgaria
tél.:(3592) 722272 Fax: 359 2 88 44 94

⁴ Centre Régional de Documentation Pédagogique
11 Avenue Gal Champon 38000 Grenoble, France
Tél.: (33) 76 74 74 57

RESUME

Notre étude porte sur la mesure du ²¹⁰Pb et du Cs (134 et 137) dans les sédiments lacustres et dans les sols de la montagne du Moussala. La datation des carottes lacustre par le ²¹⁰Pb a permis une estimation de l'érosion de bassins versants. Le flux moyen de ²¹⁰Pb à l'interface eau-sédiment et dans les sols autour des lacs étudiés sont respectivement de 310 et de 108 Bq.m⁻².an⁻¹. Le bilan en ¹³⁷Cs montre l'importance relative de la contamination liée à l'accident de Chernobyl, qui représente plus de 70% du dépôt total de ce radionucléide dans les sédiments.

Mots clés: ²¹⁰Pb; ¹³⁴Cs; ¹³⁷Cs; Sédiments lacustre; sols; Chernobyl; Tests nucléaires.

INTRODUCTION

Notre mission s'est déroulée durant les deux dernières semaines de juillet.

Nous avons échantillonné quatre lacs, étagés entre 2400 et 2700m d'altitude (tableau 1). Pour chaque site, nous avons prélevé deux carottes de sédiment et une de sol. Les carottes de sédiments ont été collectées par plongée, leur longueur est de l'ordre de 30cm. Pour les sols les 15 premiers cm ont été prélevés. Chaque carotte a été découpée sur place, cm par cm, et les tranches obtenues conditionnées séparément dans les flacons plastique étanches.

Les trois lacs supérieurs présentent un fond très irrégulier, parsemé de gros blocs rocheux, parmi lesquels apparaissent de petites surfaces (quelques m²) planes, de sédiments fins. C'est dans ces zones que nous avons prélevé nos carottes, en essayant de nous situer vers le centre des lacs. Le lac n°4 présente un fond uni de sédiment fin. Vers le centre, un cratère de plusieurs mètres de diamètre et d'environ 2m de profondeur pourrait avoir été causé par une explosion.

Au laboratoire, les échantillons ont été séchés à 60°C. Cette température,

suffisamment basse pour ne pas altérer les pollens, laisse ouverte une éventuelle étude pollinique des carottes datées, ou la mesure de polluants thermiquement fragiles.

Ces prélèvements sont destinés à la mesure des vitesses de sédimentation, à l'estimation des flux de ^{210}Pb , et à la mesure du bilan de pollution par le ^{137}Cs .

Les vitesses de sédimentation, qui quantifient l'érosion du bassin versant, sont estimées à partir de la datation des carottes par la méthode du ^{210}Pb , qui permet une étude fine de ce paramètre sur le dernier siècle.

Le ^{210}Pb , radioélément naturel de la famille de l'Uranium 238, est un bon traceur de la circulation atmosphérique. A ce titre il est utilisé pour la validation des modèles de circulation atmosphérique. Sa mesure sur des sites à fortes teneurs, comme le massif du Moussala, se prête bien à l'étude de l'influence des émissions locales intenses dans la circulation générale.

Le ^{137}Cs est un radioélément artificiel, principalement émis dans l'atmosphère par les essais thermonucléaires atmosphériques et par l'accident de Chernobyl. Sa mesure permet une estimation de la pollution radioactive locale, et une étude de la dispersion générale des polluants émis sporadiquement dans l'atmosphère. La part relative de la contamination par Chernobyl pourra être estimée par la mesure simultanée du ^{134}Cs .

DATATION AU ^{210}Pb , ESTIMATION DES VITESSES D'ÉROSION

Principe et méthode de la datation au ^{210}Pb

Du radon 222 est émis en continu dans l'atmosphère à partir de la désintégration de l'uranium 238 contenu dans les sols et donne, par filiation radioactive, du plomb 210. Ce ^{210}Pb dit «non supporté» ($^{210}\text{Pb}_i$) se dépose et se retrouve partiellement entraîné et isolé dans les sédiments, où il décroît avec une période radioactive de 22.3 ans. Une contribution secondaire de ^{210}Pb se retrouve également dans les sédiments; il s'agit du ^{210}Pb formé in situ dans la matrice sédimentaire par filiation radioactive des parents à vie longue de l'uranium 238 qu'elle contient. A l'échelle du siècle, l'activité de ce ^{210}Pb dit «supporté» ($^{210}\text{Pb}_s$) peut être considérée comme constante (Robbins, 1978). Pour les datations, elle est déduite de l'activité totale mesurée ($^{210}\text{Pb}_t$):

$$^{210}\text{Pb}_i = ^{210}\text{Pb}_t - ^{210}\text{Pb}_s$$

Elle est généralement estimée à partir des échantillons «assez vieux» pour que $^{210}\text{Pb}_i$ puisse être considéré comme négligeable par rapport à $^{210}\text{Pb}_s$ (environ 1 siècle); dans ce cas:

$$^{210}\text{Pb}_i \approx ^{210}\text{Pb}_t$$

Dans la présente étude, les taux de sédimentation ont été mesurés par la méthode du ^{210}Pb en utilisant le modèle *Constant Rate of Supply* (Goldberg, 1963; Robbins, 1978; Oldfield et Appleby, 1984). Les teneurs en ^{210}Pb ont été mesurées en spectrométrie alpha, par l'intermédiaire du ^{210}Po . L'extraction du ^{210}Po a été faite en utilisant la méthode décrite par Hasanen (1977).

Pour éviter la distorsion des courbes de ^{210}Pb par les phénomènes de tassement qui affectent les carottes, les profondeurs réelles mesurées ont été converties en profondeurs massiques, qui représentent la masse, par unité de surface, de la colonne de sédiments secs. L'analyse des courbes (Fig. 1), montre un tassement régulier des sédiments, avec pour chaque lac, une bonne reproductibilité entre les deux sites d'échantillonnage. Vers 25 cm de profondeur, une anomalie de tassement s'observe sur les deux carottes du lac n°4.

Résultats

Nos résultats portent sur 4 carottes, l'analyse des courbes de $^{210}\text{Pb}_i$ (Fig. 2), montre en partant de la surface et en allant vers des profondeurs croissantes, l'existence d'un premier palier, plus ou moins important suivant la carotte, suivi d'une décroissance, puis d'une stabilisation autour d'une valeur moyenne, qui correspond au $^{210}\text{Pb}_s$. Le premier palier peut avoir deux causes principales: soit un mixage des sédiments, associé à une action mécanique (chute de pierres ou de neige, retournement des eaux du lac par action thermique, etc...), soit une diffusion du ^{210}Pb , dans les sédiments, associée à des phénomènes d'oxydoréduction. La mesure d'un autre radionucléide ayant un comportement géochimique différent, comme le ^{137}Cs , pourra nous donner des précisions sur le mécanisme le plus actif. C'est ainsi que pour le lac Alekovo, la similitude des paliers en ^{137}Cs et en ^{210}Pb sur les dix premiers cm de la carotte renforce l'hypothèse d'un mixage par rapport à une diffusion.

Vitesse de sédimentation et érosion des bassins versants

Les vitesses de sédimentation sont estimées à partir de la décroissance du $^{210}\text{Pb}_i$ en fonction de la profondeur (Fig. 3).

A partir de la datation des carottes, l'estimation des vitesses de sédimentation est immédiate (tableau 2). Si nous faisons l'hypothèse d'une sédimentation homogène sur l'ensemble de chaque lac, nous pouvons en déduire une quantité annuellement déposée dans le lac et dont l'origine provient de l'érosion du bassin versant. Les érosions calculées varient de 7 à 41 $\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{an}^{-1}$ (tableau 2). Ces estimations correspondent aux valeurs minimales d'érosion des bassins versants, dans la mesure où les prélèvements ont été faits vers le centre des lacs, où la sédimentation est moins forte que sur les bords, mais aussi parce qu'une fraction des sols érodés ne se retrouvent pas dans les sédiments lacustre.

FLUX DE ^{210}Pb

Principe

Les sols non perturbés constituent un bon support pour l'étude des flux atmosphériques de ^{210}Pb (Preiss et al, 1996). Comme pour les sédiments, les profils de ^{210}Pb montrent une décroissance, et une partie de ^{210}Pb supportée (Fig. 4) à partir desquels il est possible de remonter au flux (F): Si A est l'activité résiduelle en ^{210}Pb non supporté et k la constante radioactive du ^{210}Pb ($k = 0.03114 \text{ an}^{-1}$), on a la relation:

$$F = kA$$

Résultats

Pour les 4 sols mesurés (tableau 3), le flux moyen estimé est de 108 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{an}^{-1}$. Cette valeur est très comparable à celle des autres sites d'Europe, et semblerait indiquer que les fortes émissions locales de Radon 222 perturbent peu les flux atmosphériques de ^{210}Pb , associés à la circulation générale.

Les mêmes calculs effectués sur les sédiments lacustres (tableau 2) donnent un flux moyen de 310 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{an}^{-1}$. Ces valeurs sont environ trois fois plus élevées que celles des sols et traduisent l'influence du bassin versant. Elles mettent en évidence l'effet de concentration de ce milieu pour une pollution d'origine atmosphérique.

La période radioactive du ^{134}Cs étant courte (# 2 ans), la part de ce radionucléide provenant de essais nucléaires atmosphériques peut être considérée comme négligeable par rapport à celle provenant de l'accident de Chernobyl survenu plus récemment. En tenant compte du rapport de production $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ # 0.5 et en corrigeant de la décroissance radioactive du ^{134}Cs , entre la date d'émission (04-86) et celle de la mesure, il est possible d'estimer le ^{137}Cs provenant de Chernobyl.

Le ^{137}Cs total que nous avons mesuré simultanément au ^{134}Cs (tableaux 4 à 7) est la somme du ^{137}Cs issu de Chernobyl et des essais nucléaires atmosphériques. Nous avons estimé la part relative de ces dépôts (tableau 8 et Fig. 5). Pour les sédiments, le dépôt de ^{137}Cs , ramené au moment de la déposition, varie de 54 à 84 kBq/m² pour Chernobyl, et de 12 à 29 kBq/m² pour les essais nucléaires. Pour le sol mesuré, la part relative de la contamination est sensiblement égale pour les deux origines (18 kBq/m²).

DISCUSSION

Sur le dernier siècle, les trois lacs supérieurs montrent une sédimentation régulière avec un mixage des sédiments qui décroît avec l'altitude. Pour le lac Glacé, ce mixage n'excède pas les deux premiers centimètres, ce qui représente moins de 10 ans de dépôt. Dans ces conditions, les sédiments de ce lac constituent un bon support pour l'étude des paléo-environnements atmosphériques récents.

Par rapport au flux atmosphérique direct, estimé pour le ^{210}Pb et le ^{137}Cs à partir des sols, le flux à l'interface eau-sédiment est environ 3 fois plus élevé (respectivement 2.9 et 2.8 pour le ^{210}Pb , et pour le ^{137}Cs total). Il est associé au relargage des contaminants naturels et artificiels déposés dans le bassin versant.

Dans le massif de Moussala, la contamination en ^{137}Cs par l'accident de Chernobyl est importante: nos estimations à partir des sédiments de 3 lacs indiquent qu'elle représente entre 70 et 90% du ^{137}Cs total déposé. Pour le sol mesuré, ce pourcentage est de 50%, mais il ne correspond qu'à un seul échantillonnage et des mesures complémentaires sont nécessaires pour affiner cette valeur.

REFERENCES

- HASANEN, 1977. Dating of sédiments based on ^{210}Pb measurements. *Radiochemical Radioanalytical Letters*, 31, 4-5.
 GOLDBERG, 1963. Radioactive dating. *Geochronology with lead 210*, IAEA.
 OLDFIELD et APPLEBY, 1984. *Lake sédiments and environmental history*.
 PREISS, MELIERE et POURCHET, à paraître. A compilation of data on ^{210}Pb concentration in surface air and flux at the air-surface and water-sediment interfaces. *J.G.R.*
 ROBBINS, 1978. Geochemical and geophysical applications of radioactive lead. In NRIAGU édit., *The Biogeochemistry of Lead in the Environment*.

Tableau 1. Caractéristiques des lacs étudiés
(D'après Valkanov A.: les lacs de Rila et de Pirine. 1937)

Lac	Altitude (m)	P. max. (m)	P. moy. (m)	Volume (m ³)	S. lac (m ²)	S. bassin (km ²)
Glacé	2709	16.4	5.4	97000	18000	0.20
Ferd. II	2577	5.8	2.2	27500	12400	0.54
Alekovo	2545	14.5	5.7	135500	23900	0.068
n° 4	2391	6.6	3.1	80500	26200	1.10

Tableau 2. Vitesses de sédimentation et flux de ^{210}Pb de lacs

Carotte	Prof. (m)	Séd. mg.cm ⁻² .a ⁻¹	Flux de ^{210}Pb Bq.m ⁻² .an ⁻¹	Vitesse d'érosion g.m ⁻² .an ⁻¹
A (glacé)	12.5	17.9	286	16
B «	14.5	15.5	283	14
C (Ferd.)	5.0			
D «	5.6	31.4	370	7
E (Alek.)	8.2			
F «	8.6	11.6	301	41
G (n°4)	5.6			
H «	6.0			

Tableau 3. Caractéristiques des sols étudiés

Sol	Altitude (m)	Situation	Profondeur (cm)	Flux Bq.m ⁻² .an ⁻¹
AB	2710	bord Ouest du Lac Glacé	15	132
CD	2585	50m amont du lac Ferd. II	24 (18*)	75
EF	2560	50m amont du lac Alekovo	15	104
GH	2393	bord Ouest du lac n°4	18.5	122

* Après compaction lors du carottage

Tableau 4. Lac glacé (carotte B)

Profondeur (cm)	Profondeur massique (g/cm ²)	¹³⁴ Cs (au 09/95) (Bq/g)	¹³⁷ Cs (au 09/95) (Bq/g)
1	0.058	0.262	11.9
2	0.138	0.227	10.4
3	0.268	0.237	10.8
4	0.456	0.206	9.59
5	0.67	0.046	2.3
6	0.904	0.009	0.48
7	1.152	0	0.16
8	1.396	0	0.147
9	1.672	0	0.047
10	1.932	0	0.051

Tableau 5. Lac Alekovo (carotte F)

Profondeur (cm)	Profondeur massique (g/cm ²)	¹³⁴ Cs (au 02/96) (Bq/g)	¹³⁷ Cs (au 02/96) (Bq/g)
1	0.066	0.164	8.563
3	0.268	0.17	8.867
4	0.416	0.205	10.259
5	0.564	0.165	8.421
6	0.708	0.072	5.375
7	0.838	(0.065)	3.372
8	0.994	(0.037)	1.949
9	1.172	(0.026)	1.33
10	1.356	(0.000)	0.023
11	1.542	0.008	0.526
12	1.642	0	0.257

Tableau 6: Lac glacé (carotte A)

Profondeur (cm)	Profondeur massique (g/cm ²)	¹³⁴ Cs (au 01/96) (Bq/g)	¹³⁷ Cs (au 01/96) (Bq/g)
1	0.052	0.232	14.92
2	0.232	0.301	12.719
3	0.43	0.259	11.403
4	0.636	0.117	5.56
5	0.892	0.03	1.7
6	1.114	0.025	1.018
7	1.412	0.009	0.267
8	1.904	<0.01	0.135
9	2.2	<0.01	0.165
10	2.47	<0.01	0.137

Tableau 7. Sol lac Glacé (carotte AB)

Profondeur (cm)	Profondeur massique (g/cm ²)	¹³⁴ Cs (au 02/96) (Bq/g)	¹³⁷ Cs (au 02/96) (Bq/g)
1	0.26	0.116	6.74
2	0.696	0.007	1.09
3	1.276	0	0.06

Tableau 8. ¹³⁷Cs déposé (activités ramenées au moment de la déposition)

Site	¹³⁷ Cs Chernobyl (kBq/m ²)	¹³⁷ Cs tests atm. (kBq/m ²)	laboratoire de mesure
Lac Glacé car. A	84	12	Sofia
Lac Glacé car. B	54.3	13.4	Grenoble
Lac Alekovo car. F	70	29	Grenoble
Sol Lac Glacé car. AB	18.4	18.3	Grenoble

Мишел Пурше, Лидия Кинова, Никола Преис,
Крум Велчев, Елизабет Пурше

Резюме

Нашите изследвания касаят измерването на ^{210}Pb , ^{137}Cs и ^{134}Cs в езерни седименти и почви от връх Мусала.

Датирането на седиментите по ^{210}Pb дава оценка на ерозията на водосборния басейн.

Средният поток ^{210}Pb на границата вода-седимент и в почвите около изследваните езера е съответно 310 и 108 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{g}^{-1}$.

Съдържанието на ^{137}Cs оценява приноса на замърсяването от Чернобил. Дължацият се на Чернобил ^{137}Cs е над 70% от цялото съдържание на ^{137}Cs в седиментите.

RADIONUCLIDES ANALYSIS OF LACUSTRINE SEDIMENTS
FROM RILA NATIONAL PARK

Michel Pourchet, Lidia Kinova, Nicolas Preiss,
Kroum Veltchev, Elisabeth Pourchet

Summary

Our studies concern the measurements of ^{210}Pb and Cs (134 and 137) in the lacustrine sediments and soils of the Moussala mountain.

The ^{210}Pb dating of sediments give values of the catchment erosion.

The mean ^{210}Pb flux at the water-sediment interface and in the soils around the studied lakes are respectively 310 and 108 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{y}^{-1}$.

The ^{137}Cs content show the relative importance of the contamination associated with the Chernobyl accident, which is greater than 70% of the total ^{137}Cs in sediments.

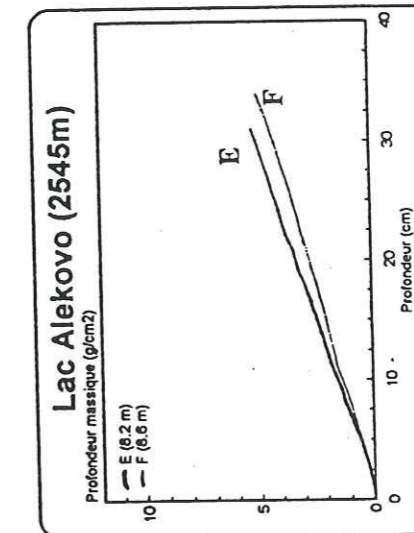
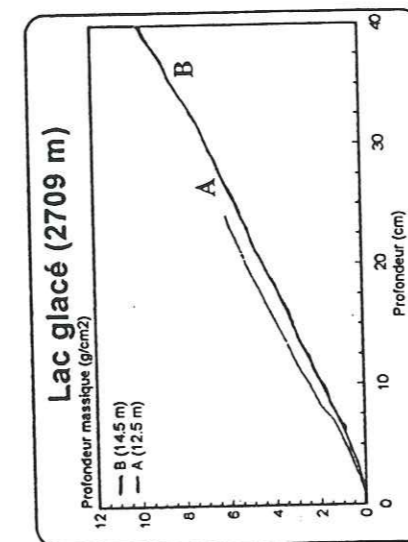
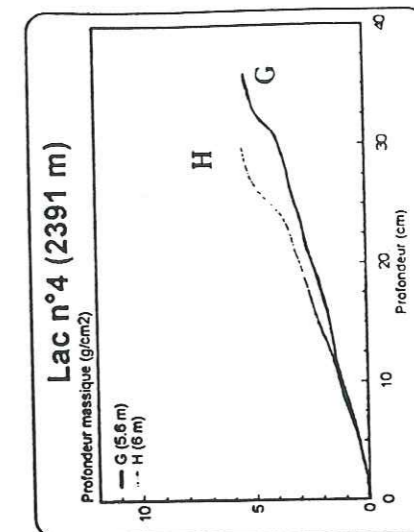
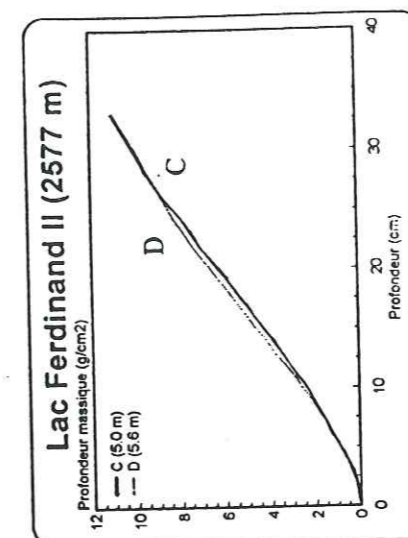


Figure 1. Corrélation profondeur massique de sédiments

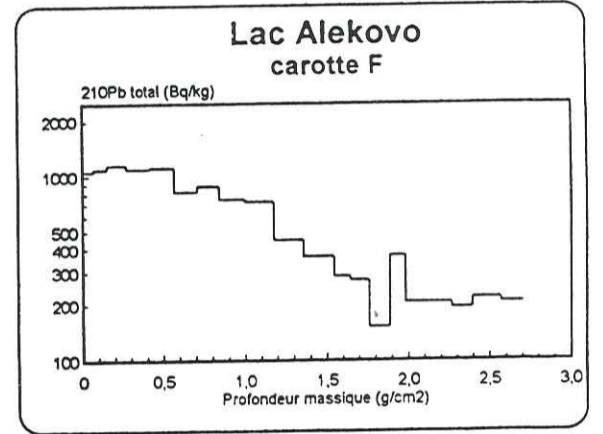
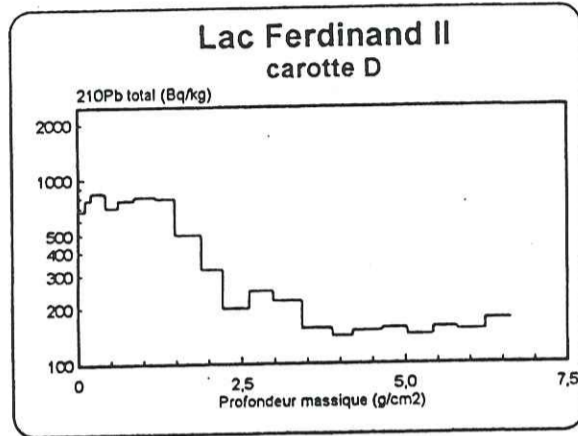
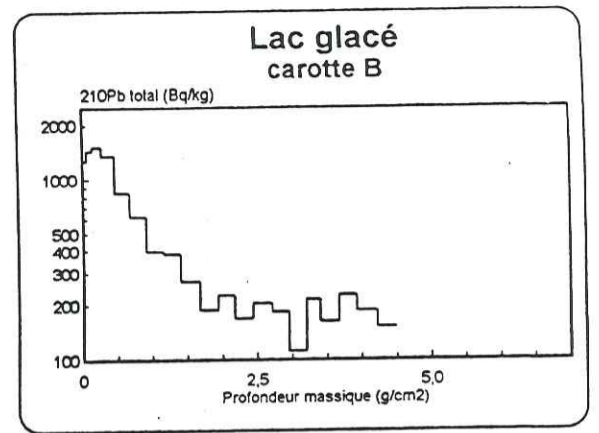
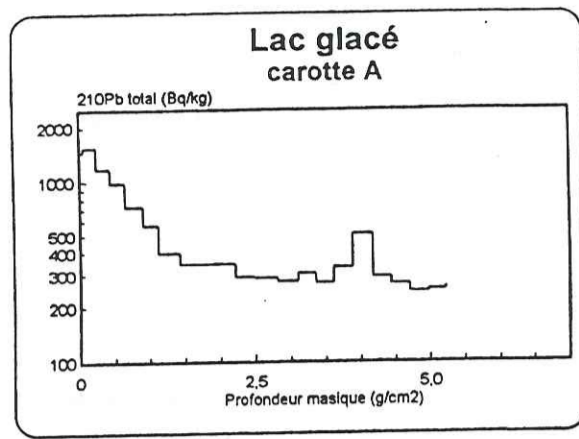


Figure 2. Profil de ^{210}Pb total dans les sédiments

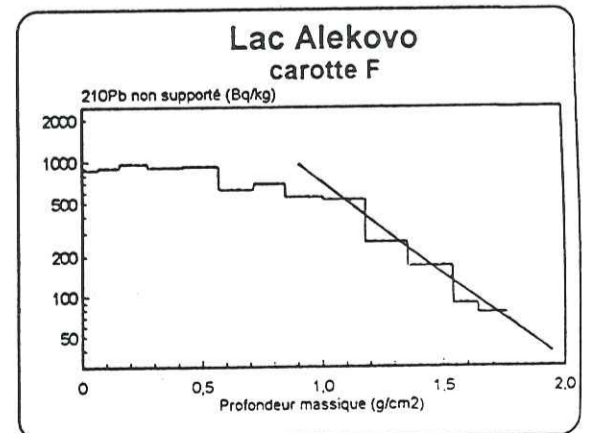
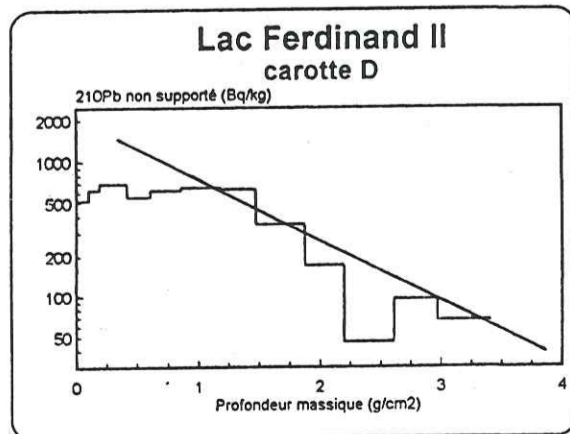
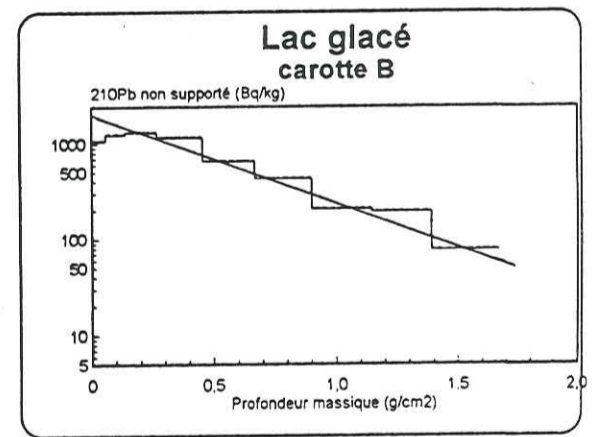
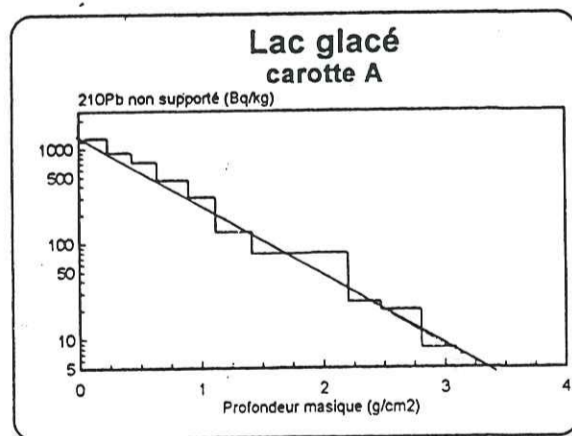


Figure 3. Profil de ^{210}Pb non supporté dans les sédiments

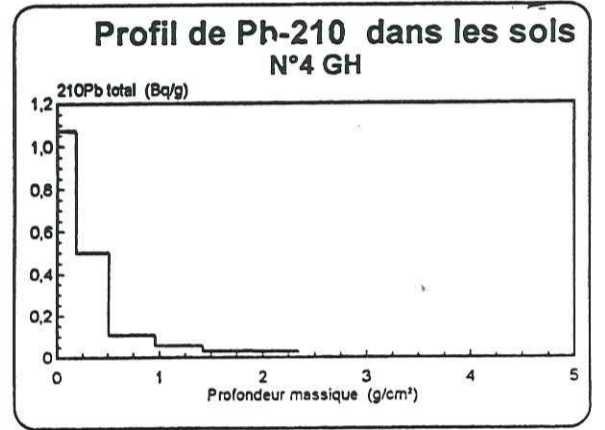
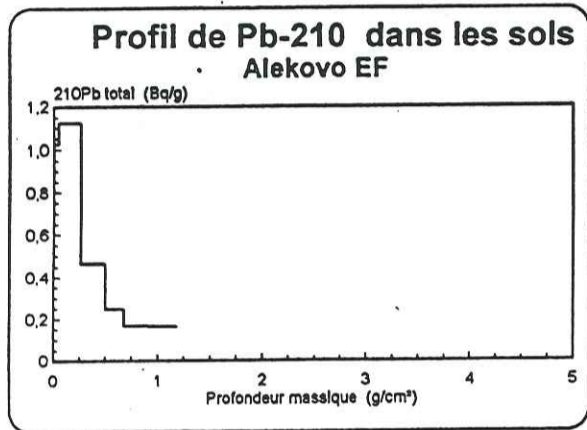
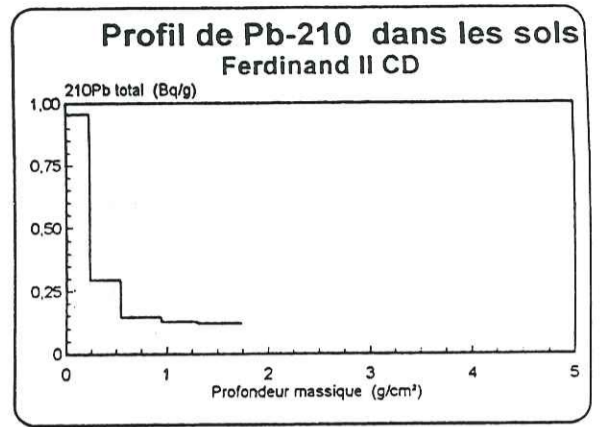
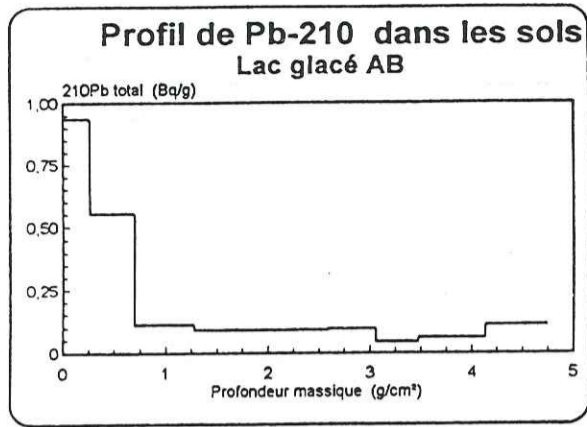


Figure 4.

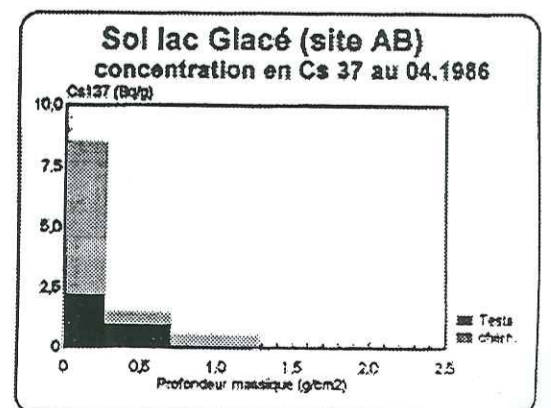
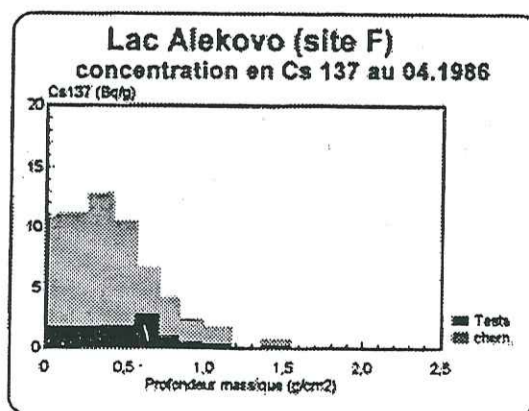
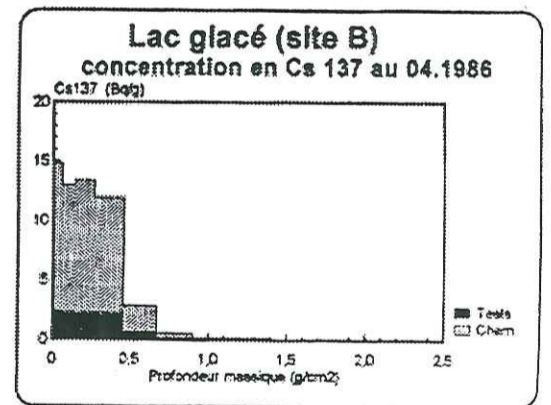
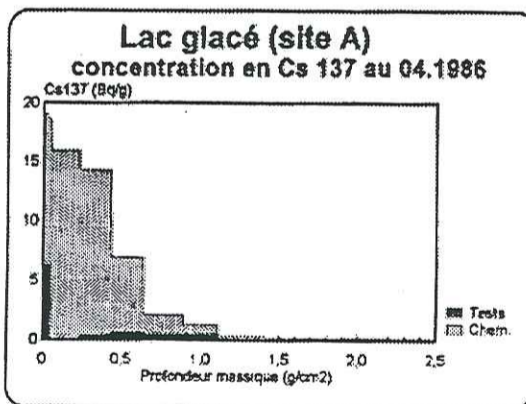


Figure 5.

Annexe 3

**Compilation de Données de Concentrations de ^{210}Pb dans
l'Air de Surface et de Flux de Dépôt aux Interfaces
Atmosphère-surface et Eau-sédiment**

A COMPILATION OF DATA ON LEAD-210 CONCENTRATION IN SURFACE
AIR AND FLUXES AT THE AIR-SURFACE AND WATER-SEDIMENT
INTERFACES

N. Preiss, M.-A. Mélières, M. Pourchet

Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement, CNRS
BP 96, 38 402 St Martin d'Hères Cedex France

Abstract

A ^{210}Pb data base has recently been constructed and is now available. This base includes about 800 ^{210}Pb measurements of concentration in air at the earth's surface, together with deposition flux both at the atmosphere-earth and water-sediment interfaces. Here the data are analyzed and summarised. The atmospheric data [concentration and deposition flux) are presented for the different geographical areas when sufficient measurements are available. The trends are discussed in terms of mechanisms (sources, atmospheric circulation and climate). Water-sediment data are classified into four types of water-reservoirs which differ in their sedimentation mechanisms or in their *in situ* ^{210}Pb production. The corresponding histograms are compared with the air-surface flux histogram. This data base points out the complete lack of information in some large areas of the planet.

Introduction

Lead-210 (^{210}Pb , half-life: 22.3 yr) is a natural radionuclide present in the atmosphere. It belongs to the uranium (^{238}U) decay series and, radon (^{222}Rn , half-life: 3.8 d), a radioactive water-insoluble inert gas. The ^{222}Rn atoms, which enter the atmosphere by escaping from the Earth's continental crust, decay in the atmosphere through short-lived daughters to metal atoms, ^{210}Pb , which in turn fix very rapidly on submicronic aerosols. Lead-210 is distributed all over the planet by general atmospheric circulation and is redeposited on the Earth's surface by precipitation scavenging and dry fallout. The different types of environment such as soils, snow, and water reservoirs, collect this ^{210}Pb fallout. Transfers between these different collectors may occur, redistributing the fallout, particularly in aquatic systems (figure 1).

Because of their suitable half-lives, ^{210}Pb and ^{222}Rn provide interesting meteorological information especially on the origin of air masses and residence time of aerosols. Aerosols play an important role in the Earth's climate on account of their influence on the energy budget: direct radiative forcing [albedo

and greenhouse effect] and indirect forcing through nucleation processes. Because of anthropogenic activity, atmospheric aerosol loading is expected to increase rapidly in the near future, the consequence being an impact on climate and global pollution. The study of the aerosol cycle therefore appears to be an important task now. A major tool in this study is modeling. Radon-222 and lead-210 are some of the main tools for validation of transport and deposition in aerosol models. ^{222}Rn , a rare gas, is an excellent marker of continental air due to its short well defined half-life [Jacob and al., 1996; Genthon and Armangaud, 1995a]. The ^{210}Pb attaches indiscriminately to the surface of the aerosol as soon as it is produced in the air. With its long half-life compared to the aerosol residence time, the ^{210}Pb is therefore a good tracer for aerosol transport and removal processes and is currently used to validate model simulations [Balkansky and al., 1993; Genthon and Armangaud, 1995b;; Lee and Feichter, 1995; WCRP Workshop, 1995; Rehfeld and Heimann, 1995].

A preliminary step for that comparison is the construction of a data base of reliable measurements with a representative spatial distribution over the world. A data base has been recently constructed concerning ^{210}Pb measurements on the Earth, and is now available [Preiss and al., 1996]. This data base is partly an extension of the previous work of Lambert and al. [1982b] and concerns mainly annually-averaged data. In Lambert's work a data base of ^{222}Rn and ^{210}Pb concentrations in surface air was built in order to construct a box-model of troposphere-stratosphere exchange. Our recent data base, first, completes Lambert's work by including new data on the concentration of ^{210}Pb in surface air; in addition it includes ^{210}Pb fluxes measurements between the two main interfaces: atmosphere-earth surface, in the one hand and water-sediment, on the other hand.

The purpose of this article is to summarize and interpret the information available in the data base. In part I, we introduce the data base and briefly describe the different methods used to obtain the measurements in the base. In part II, we classify, analyse and interpret the data, considering only the annually-averaged values. The global distribution scale for the surface concentration of ^{210}Pb in air and air-surface flux is analyzed in terms of the transport and deposition mechanisms. The global distribution scale of ^{210}Pb water-sediment flux is analyzed and compared to the atmospheric flux.

The data base

A base, bringing together data on the concentration of ^{210}Pb in surface air and ^{210}Pb deposition flux at different interfaces, has been constructed and is now available [Preiss and al., 1996]. In this data base, sites are grouped by regions and latitudes. For each site, location, altitude and annual precipitation are given. When available, sampling periods or periods of observation are indicated. It contains a good summary of concentration in surface air and air-surface flux, but

it is only a partial compilation of water-sediment fluxes. This base includes measurements performed with the different types of collectors mainly used in ^{210}Pb studies during the last four decades. Most of the data reported in the base are annually-averaged. It includes the ^{210}Pb concentration in surface air [Table I, including 150 data for 107 sites], the atmospheric deposition flux at the Earth surface collected by different means (artificial collectors, soil and snow) (Table II, including 278 data for 190 sites) and finally the deposition flux at the water-sediment interface (Table III, including 413 data for 178 sites, *lato sensu*).

In the present article, we consider only annually-averaged data in the base. Although it represents incomplete information (seasonal information is lost) it is nevertheless an important tool for studying the aerosol cycle. Moreover, when averaged over a long period, data are more representative because interannual fluctuations are eliminated or reduced. The maps in figure 2 show locations of stations concerning concentrations in surface air (figure 2a), air-surface flux data (figure 2b) and water-sediment flux data (figure 2c) used in the present article.

Measurements Methods

Measurements presented here concern concentration in the atmosphere, always measured in air at ground-level, and deposition flux, which is measured at the different interfaces (air-surface and water-sediment interface).

Concentration of lead-210 in surface air

Measurements are performed by pumping and filtering the air at an elevation of a few meters above the ground [Burton and Stewart, 1960; Lockhart and al., 1964; Joshi and al., 1969; Bonnymann and al., 1971; Poet and al., 1972; Monaghan, 1989; Larsen and Sanderson, 1991]. They are performed over various observation times.

Air-surface deposition flux

Different kinds of collectors are used: artificial ones which record direct atmospheric flux, and natural ones like soil and snow.

a - Direct atmospheric flux measurements

This method consists in trapping ^{210}Pb fallout directly in artificial collectors placed a few meters above the ground (generally on the roof of a building) to limit dust contamination. The total atmospheric flux is measured by collecting ^{210}Pb fallout continuously (dry and wet) [Joshi and al., 1969; Fukuda and Tsunogai, 1975; Turekian and al., 1983; Baskaran and al., 1993,...]. Sometimes atmospheric ^{210}Pb is collected only during precipitation and concentration is measured in the rain [Gavini and al., 1974]. In that case the annual wet ^{210}Pb flux can be obtained when measurements are performed all year round. When only the mean concentration in rain is available [Peirson and al., 1966], the

atmospheric flux is often approximated by using the amount of precipitation.

The use of artificial collectors appears to be the most reliable technique to get an annual ^{210}Pb deposition flux. In that case, disturbances are reduced (only winds and local climatic effects can disturb the flux measurement). Moreover this technique is the only one that is able to measure seasonal variations, which are very useful for understanding transfer and deposition mechanisms.

b - Soil flux measurements

Two types of collectors are used: the soil and the moss and lichen carpet. Here we only present the soil samples method which is the most frequently used.

The soil is the collector. Atmospheric ^{210}Pb is deposited on the surface of the soil continuously and slowly penetrates downward due to diffusion, rain effects or mechanical mixing (bioturbation, etc....) to a maximum depth of 20-30 cm. In order to obtain the atmospheric deposition flux, the soil is sampled to a depth of 20-30 cm and the ^{210}Pb profile is measured [Moore and Poet, 1976; Nosaki and al., 1978; Olsen and al., 1985; Graustein and Turekian, 1986; Monaghan, 1989,...].

Lead-210 in soil has two different origins. On the one hand it comes from atmospheric deposition (unsupported ^{210}Pb) and on the other hand it is generated continuously in the earth from the natural ^{226}Ra content (supported ^{210}Pb). The aim is to estimate the total unsupported ^{210}Pb , coming from the atmosphere. Therefore it is necessary to measure the total ^{210}Pb and to estimate the supported part; the unsupported ^{210}Pb is given by the difference. Supported ^{210}Pb activity can be estimated in two different ways:

- by measuring the ^{226}Ra activity in each sample; the supported ^{210}Pb activity is then equal to the ^{226}Ra activity by assuming that they are in secular equilibrium;
- by assuming that soil composition does not change with depth, and measuring the total ^{210}Pb at a depth where unsupported ^{210}Pb is negligible (> 20 cm); this activity will therefore represent supported ^{210}Pb activity.

The flux, Φ , can be deduced from the total (i. e. integrated over the whole soil depth) ^{210}Pb unsupported activity, A (Bq m^{-2}), using the relation [c.f. Oldfield and Appleby, 1984]:

$$\Phi = \lambda A$$

where λ is the ^{210}Pb radioactive decay constant equal to 0.03114 y^{-1} . When no mixing occurs, the profile of ^{210}Pb in the soil decreases exponentially with depth. The use of the integrated activity, A , is a powerful tool, because the fact that soil would have undergone vertical mixing does not change this integrated value. Therefore this method can be used even in vertically disturbed soil. Soil measurement gives access to the annual deposition flux averaged over a century (5 half lives of ^{210}Pb , after which time unsupported ^{210}Pb activity is negligible) with a relatively small number of measurements. This estimate is restricted to areas where erosion or accumulation is negligible and therefore requires a careful choice of the sampling sites.

c - Snow flux measurements

Snow is the collector. Measurements are performed mainly in regions permanently covered by snow and ice. The ^{210}Pb deposit can be either wet [in snow deposition] or dry. When the snow mantle is undisturbed, as the snow accumulates, the ^{210}Pb activity in the older snow layers decreases due to radioactive decay resulting in a decreasing profile of the activity with depth. When the snow accumulation rate (i.e. the mean annual precipitation in water equivalent), r , is known, the ^{210}Pb deposit flux can be obtained from the measurement of ^{210}Pb concentration in surface snow, C_s :

$$\Phi = r C_s$$

Seasonal variations are ruled out by measuring a snow column corresponding to 1 year or more of accumulation. When the snow accumulation is very low, as is the case in central Antarctica, the deposition flux is obtained by measuring the integrated activity as with soil [Crozzaz, 1967; Picciotto and al., 1971; Sanak, 1983; Lambert and al. 1983; Nijampurkar and Clausen; 1990; Dibb, 1992; Dibb and Jaffrezo, 1993,...].

In these measurements the main difficulty comes from the very low ^{210}Pb concentration in snow, particularly in Antarctica (an activity of the order of 0.02 Bq kg^{-1}). This necessitates handling a large quantity of snow. Among the different possible perturbations, two must be noted: the action of the wind, which erodes or accumulates the snow, and the possibility of snow melting and percolation in the temperate glaciers. In that case, the ^{210}Pb distribution with depth can be greatly modified, due to the fact that ^{210}Pb is soluble and percolates with the liquid water through the snow mantle [Pinglot and al., 1994]. This last effect however never occurs in cold glaciers as in Antarctica and central Greenland.

Unlike soil measurements, supported ^{210}Pb , which originates from the dust matrix, is very low. It may nevertheless influence the ^{210}Pb depth profile in snow.

Water-sediment deposition flux

Sediment is the collector, but the presence of a water body between the atmosphere and the surface sediment can greatly affect the transmission of the atmospheric flux to the sediments. As in soil collectors, the supported ^{210}Pb activity can be estimated in two different ways. Most of the time, the flux of the unsupported ^{210}Pb at the water-sediment interface is deduced from the total (i. e. integrated over the whole sediment depth) unsupported ^{210}Pb activity. As in soil, this technique has the advantage that the flux estimate is still valid even when sediment has been disturbed by mixing after deposition [Goldberg, 1963; Krishnaswami and al., 1971; Bruland and al., 1974; Benninger and al., 1975; Robbins, 1978; Dominik and al., 1981; Durham and Joshi, 1984; Oldfield and

Appleby, 1984; Olsen and al., 1985; El-Daoushy, 1987; Melieres and al., 1988; Pourchet and al., 1989; Edgington and al., 1991; Appleby and Oldfield, 1992; Joshi and al., 1992; Mitchell and al., 1992; Thomson and al., 1993, ...].

Complex intermediate processes relate ^{210}Pb water-sediment fluxes to atmospheric fluxes. The flux at the water-sediment interface has different origins:

- unsupported ^{210}Pb from the atmosphere directly deposited on the surface of the water, which migrates to the bottom of the water;
- unsupported ^{210}Pb from the atmosphere deposited on the soil of the catchment area which is released through erosion processes into the water;
- supported ^{210}Pb from allochthonous sediment;
- ^{210}Pb generated by the dissolved ^{226}Ra present in the water column.

These inputs are mainly transferred to the sediment although a part may be lost through the outlets. After deposition, it may be partially redistributed by sediment reworking.

All these mechanisms affect the transmission of the atmospheric flux to the sediment in a manner that depends to a considerable extent on the characteristics of the water reservoir. For this reason we differentiate four different environments: deep ocean; coastal ranges; great lakes; and a fourth category that includes small lakes, ponds, peat bogs and salt marshes. The sediment collectors present the same advantages as the soil collectors: an access to an annual deposit (averaged over a century) with a relatively small numbers of measurements. As is the case with soil, a large numbers of water sediment sites are accessible all over the world.

Mechanisms at work in atmospheric ^{210}Pb cycle

Lead-210 concentration in surface air results mainly from two factors:

- the ^{210}Pb sources,
- the transport and deposition mechanisms, which are driven by atmospheric circulation and precipitation.

The sources

In the atmosphere, the ^{210}Pb source is ^{222}Rn which escapes from the Earth's surface. The mean emission rate is about $1 \text{ atom cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ [Turekian and al., 1977; Lambert and al., 1982b] from ice-free continental areas. This rate is about 100 times smaller from oceanic areas. Ice covered areas are not considered as ^{210}Pb sources because ^{222}Rn does not escape through the ice. Therefore, we will only consider the ice-free continents as ^{210}Pb sources. Radon-222, a daughter product of ^{226}Ra present in the ground, with a short half-life (3.8 d), escapes from the soil only by pores, interstices and fractures existing near the surface [Clements and Wilkening, 1974]. Thus, the ^{222}Rn emission rate depends, to some extent, on the geological structure, the soil type, the soil humidity, etc. Volcanoes can be

substantial sources of ^{210}Pb local atmospheric enrichment: as shown by Lambert and al., 1982a, the volcanic plumes usually appear to be greatly enriched by one or two orders of magnitude in this compound. Though negligible when considering the global atmospheric budget [Lambert and al., 1982b], this contribution may nevertheless represent an important local source.

Atmospheric circulation and climate

The following characteristics are of particular importance:

a - Zonal atmospheric circulation

When annual averages are considered, the zonal characteristic of the atmospheric circulation is one of the driving mechanisms that explains ^{210}Pb distribution. The first consequence is that, in a latitudinal band, the proportion of ice-free continental areas (source of ^{222}Rn) compared with the oceanic or ice covered areas (absence of source) will govern air enrichment in ^{210}Pb . A second consequence is the resulting difference between the West and the East side of continents. The zonal circulation is from West to East (Westerlies) in the temperate latitude bands (30° - 60°), and from East to West (Trade winds) in the tropical zones (10° - 30°). Over continents, the origin of the dominant air mass is a determining factor for the annual concentration of ^{210}Pb in air, depending on its continental or oceanic origin (i. e. enriched or depleted in ^{210}Pb). Asymmetry is therefore to be expected in the ^{210}Pb concentration in surface air between Eastern and Western parts of the continents. This asymmetry is reversed between temperate and tropical latitudes.

b - Vertical atmospheric exchanges

The vertical transport of ^{210}Pb is determined by vertical atmospheric exchange between the boundary layer and the free troposphere. In ice-free continental areas, where the air in the boundary layer is enriched in ^{210}Pb , compared to the free troposphere, the vertical transport results in lowering in the surface concentration of ^{210}Pb in air. On the other hand, when the air mass is stable, ^{222}Rn and its daughters accumulate in the boundary layer leading to high surface concentration of ^{210}Pb . A consequence is that, when seasonal anticyclones occur over a continental area, air masses become enriched in ^{210}Pb . Thus, continental regions with frequent anticyclonic conditions can experience higher annual ^{210}Pb concentrations (and *vice versa* for the low pressure zones). In regions with negligible ^{222}Rn sources (oceanic and polar areas), atmospheric vertical exchange induces an increase in the ^{210}Pb concentration in surface air. This relative enrichment results from ^{210}Pb originating in continental source and brought, through the free troposphere, by long range transport.

c - Deposition processes and the role of precipitation

Lead-210 has a long half-life (22.3 yr) compared to its atmospheric residence time due to deposition processes (dry and wet deposition). Therefore these processes

are the main mechanisms in removal processes from the atmosphere. Wet deposition is caused by precipitation scavenging and, in most cases, is more efficient than dry deposition. As precipitation acts as a pump for atmospheric constituents, both concentration in air and deposition flux are influenced by precipitation. In regions with comparable concentrations of ^{210}Pb in the air, it is expected that concentration decreases when rainfall increases. However, considering air masses transport time together with different seasonal distributions of precipitation, no systematic relationship exists between the mean annual ^{210}Pb concentration in air and the mean annual amount of precipitation. The atmospheric deposition flux is usually related directly to the amount of precipitation, increasing with it. When concentration in surface air and deposition flux are both measured in a same area an apparent deposition velocity, defined as the ratio between the atmospheric deposition flux and the concentration in surface air, can be obtained [Turekian and al., 1977, Graustein and Turekian, 1986]; this quantity can be considered as an indicator of the deposition mechanism.

Comments on ^{210}Pb concentration in surface air

We distinguish between continental, oceanic and polar-subpolar regions.

continental areas

a: 60°N - 30°N

At northern mid-latitudes (60°N - 30°N), surface concentration values of ^{210}Pb in air are high over continental areas with an average of 0.53 mBq m^{-3} (Table I). This high value results from the large proportion of continental areas (50% of the total area) at these latitudes, compared with oceanic areas, in relation to the rest of the world. However, significant differences appear inside the continental areas of this latitudinal band. They concern the central versus coastal sites where oceanic influence prevails, and the Western versus Eastern coasts distinguished by zonal circulation. These effects are outlined when the concentration in surface air is plotted versus the longitude for the USA where many measurements exist (figure 3) and for Europe (figure 4).

North America

In the central USA, concentration in surface air reaches high values (close to 1 mBq m^{-3}) compared to the coastal sites resulting from the low influence of the oceanic air masses, depleted in ^{210}Pb . The surface concentrations in coastal areas are lower, varying from 0.3 mBq m^{-3} (Western part) to 0.5 mBq m^{-3} (Eastern part). This difference reflects the zonal circulation effect with dominant Westerlies. The influence of local climate can be seen in dry areas where the lack of rain washout results in increasing the concentration. The relatively high values at Los Angeles (0.54 mBq m^{-3}) [Magno and al., 1970] and in the desert part

of the Rocky Mountains (Salt Lake city: 0.7 mBq m^{-3}) [Lockhart and al., 1964; Magno and al., 1970; Feely and al., 1980] provide a good illustration of this process.

Europe

Measurements are scarce and range from 0.2 mBq m^{-3} to 0.5 mBq m^{-3} . Low values (0.18 mBq m^{-3} at Lisbon) [Carvalho, 1990] are associated with the western oceanic coast under the influence of oceanic air masses. The relatively low concentration in the centre of the continent, around 0.3 mBq m^{-3} in Poland, [Kownacka and al., 1990] is difficult to explain, but the absence of other measurement sites rules out any attempt to identify a trend.

b: 30°N - 0°

Except for a few values concerning Central America and the Caribbean, the only concentration data available for this latitude band are from India. There, concentrations decrease regularly from the North to the South of the peninsula (figure 5) (from 1 to 0.5 mBq m^{-3}). The North of India presents high homogenous concentrations despite the fact that this region experiences two different types of climate. In Kashmir, at Srinagar, the amount of precipitation is moderate (around 700 mm y^{-1}) but regularly distributed throughout the year. In contrast, north central regions experience the monsoon with high rainfalls during the three summer months (for example 2000 mm y^{-1} at Gangtok). The decrease to 0.5 mBq m^{-3} in the peninsula is attributed to the increasing influence of the marine surroundings. The case of Bombay is interesting to analyse due to the fact that monthly concentrations are available for a 5 year period [Joshi and al., 1969]. A strong seasonal change appears, with a high concentration (up to 1.6 mBq m^{-3}) during the dry season and a low concentration (down to 0.2 mBq m^{-3}) during the monsoon. This illustrates the effect of precipitation scavenging efficiency on concentration: heavy rainfall, implying high deposition flux, results in a lower concentration.

c: 0° - 30°S

Most of available informations come from South America and Australia where measurements are restricted to coastal areas. In Australia air concentrations show comparable values everywhere. A small increase in the western part [Perth; Larsen and Sanderson, 1991] can be observed. It can be related to the Eastern zonal circulation inducing a dominant continental air mass on this part of the country. In South America measurements are restricted to the western part where regions are characterised by a very dry climate (80 mm y^{-1} at Lima, and 6 mm y^{-1} at Antofagasta). Both continents show quite homogeneous concentrations (around 0.2 - 0.3 mBq m^{-3}). These low values can be explained by the zonal circulation combined with the low continent/ocean ratio (23%) in this latitude band.

d: 30°S - 60°S

Data on concentrations in air were obtained in South Australia (Tasmania), New

Zealand and the South American Peninsula. In this band, concentrations drop abruptly around 40°S, from 0.3 mBq m⁻³ at 35°S, to less than 0.1 mBq m⁻³ at 45°S. Between 45°S and 60°S values stay low decreasing from 0.12 to 0.03 mBq m⁻³. These latitudinal distribution features can be explained by the continental distribution at these latitudes. The low values between 30°S and 60°S are related to the very low proportion of continental area (6%), which implies a sharp decrease in the ²²²Rn sources. In South America (Western coast) this phenomenon is accentuated by the change of the atmospheric zonal circulation where the influence of the Westerlies becomes predominant south of 35°S. It results in a very sharp decrease of the concentration between Santiago (33.5°S, 0.32 mBq m⁻³, Easterlies and dry) and Puerto Montt (41.5°S, 0.048 mBq m⁻³, Westerlies and wet). The difference in the origin of the air masses at these two sites is well illustrated by the annual precipitation amount (320 mm y⁻¹ at Santiago, and 2570 mm y⁻¹ at Puerto Montt).

Ocean

Measurements are scarce in the oceanic zones and are taken on island sites. The low concentration values reflect the absence of ²¹⁰Pb sources in the oceanic areas.

In the Southern hemisphere, values are low compared to continental ones (extending from 0.012 to 0.12 mBq m⁻³). This is of the same order of magnitude as the values observed on the continental areas below 40°S, which are mainly subjected to oceanic influence. The highest concentrations (around 0.1 mBq m⁻³ at Norfolk and Chatam islands) [Larsen and Sanderson, 1991] are observed at sites relatively close (1,000 km) to continents (Australia), whereas very low values (between 0.01 and 0.03 mBq m⁻³) [Sanak and al., 1978; Feely and al., 1980] are obtained in sites very far from any continents (Samoa, Eastern Island, Amsterdam and Kergelen Islands).

In the Northern Hemisphere oceanic values are very scarce, varying from 0.003 to 0.35 mBq m⁻³, and it is not possible to extract global trends. Only particular cases can be commented upon. Compared to the other oceanic values, important concentrations are observed at Bermuda (0.35 mBq m⁻³) [Turekian and al., 1983] and Mauna Loa, Hawaii (0.29 mBq m⁻³) [Patterson and Lockhart, 1963; Lockhart and al., 1964; Feely and al., 1980; Larsen and Sanderson, 1991]. Bermuda is under the influence of the North American continent because of its relative proximity (1200 km) and the influence of the Westerlies. This is not the case for Mauna Loa. Here measurements are performed at the Mauna Loa Observatory situated at 3,400 m a.s.l, above the trade wind inversion, in the free troposphere. At this altitude the air masses are more enriched in the constituents of continental origin, compared to the concentration closer to the sea level [Moore and al., 1974]. This hypothesis is supported by the low ²¹⁰Pb concentration value at Honolulu ([0.18 mBq m⁻³) [Magno and al., 1970] which is situated in the same archipelago

(300 km North-West), close to the sea level. The extremely low value observed at Amchitka in the Aleutian Islands (0.003 mBq m⁻³) [Nevissi and Schell, 1978] is beyond understanding.

Polar and subpolar zones

In Antarctica, measurements of concentration in surface air performed between 64°S to 90°S present very low values extending from 0.01 to 0.03 mBq m⁻³ (figure 6). These values do not indicate a clear difference between the coast and the inland continent (South Pole). They are close to the oceanic concentrations in the Southern hemisphere (0.02 mBq m⁻³), when measurements are performed far from continental influence.

These very low values result from three factors:

- the ice-covered Antarctic continent, like the ocean, is not a radon source,
- Antarctica is far from continental sources which do not extend south of 45°S,
- the strong circumpolar circulation prevents the penetration of continental air masses enriched in ²¹⁰Pb.

The situation is totally different in the northern polar regions. There, ²¹⁰Pb surface concentrations (0.44 mBq m⁻³ at Barrow in Alaska, 0.25 mBq m⁻³ in Greenland) [Patterson and Lockhart, 1963; Lockhart and al., 1964; Feely and al., 1980; Larsen and Sanderson, 1991] are one order of magnitude higher than in Antarctica. Greenland, like Antarctica, is ice-covered throughout the year except on a small coastal area; it is therefore not a radon source. The main factors that will influence ²¹⁰Pb distribution are:

- the proximity of large ice free continents (North America and Eurasia),
- atmospheric circulation, different from southern circulation, with some exchanges between polar and temperate continental air masses, contributing to a higher ²¹⁰Pb supply in the northern polar regions.

These exchanges are well illustrated by the seasonal variations of the Arctic aerosol. During the winter, the polar front extends down to mid-latitudes including large areas of the North American and Eurasian continents. At this time of the year, these regions are often subjected to large anticyclones. The Arctic troposphere constitutes a mixed reservoir which includes emissions from mid latitude continental areas [Heidam, 1984]. This leads to high ²¹⁰Pb concentrations during winter (0.7 mBq m⁻³ at Point Barrow, 0.3 mBq m⁻³ at Thule) [Larsen and Sanderson, 1991]. In spring time, the polar front moves north, leaving the major source areas, and it isolates, with increasing efficiency, the Arctic from the mid-latitude influences. As a consequence, the Arctic troposphere is depleted in ²¹⁰Pb during the summer (around 0.1 mBq m⁻³ at Thule, and Point Barrow) [Larsen and Sanderson, 1991]. In the central Greenland ice sheet (Dye 3), the less pronounced winter maximum seems to have shifted towards the spring season [Dibb and Jaffrezo, 1993]; the weakening and shift of this winter maximum is probably due to the existence of a permanent high pressure ridge in winter over Greenland, which prevents air penetration. In summer time, the polar cell

covers areas with very low radon emissions (ocean, ice cap) but also some continental snow free areas (radon source): this last contribution partly explains the fact that the summer ^{210}Pb concentrations, which are low compared to winter values, are higher than in Antarctica.

Latitudinal distribution

In figure 6, the latitudinal distribution of concentration in surface air is shown; it includes both the measurements over continents and oceans. In this figure, when various measurements have been made at the same site, the values have been averaged and are represented by a single value. Figure 7 gives the 10° zonal average for continents only, as oceanic measurements were not included because of the scarcity of data. Table I presents the zonal mean values of continental surface concentrations of ^{210}Pb in air.

It is important to remember that Figure 7 and Table I are only based on published measurements and do not include some large continental areas such as Africa, Asia (except India), and the Eastern part of South America.

The latitudinal distribution clearly expresses the difference between the Northern and Southern Hemispheres. Concentrations are in general higher in the Northern than in Southern Hemisphere as a consequence of the high asymmetry in the continent/ocean ratio and therefore in the ^{210}Pb sources. The effect of the continental source is well illustrated by the dramatic change in the latitudinal distribution of concentration at 40°S , a latitude south of which no continental source exists.

A considerable asymmetry can be noted between northern and southern polar regions. As already discussed, the lack of continental sources South of 45°S , together with the strong circumpolar circulation, leads to an extremely low ^{210}Pb content in Antarctica. This is a good illustration of the extent to which the Antarctic continent is isolated from the influence of the other continents.

This inventory (Table I) can be compared with the one provided by G. Lambert [Lambert and al., 1982b]. Although the present work includes some more measurements, we obtain similar values. Nevertheless some differences can be noted:

- the present concentration value between 0° - 30°N is slightly smaller (20%);
- for the 0° - 30°S band, the present value of 0.28 mBq m^{-3} (even if it is only based on coastal sites) is much smaller than in Lambert's estimation (0.69 mBq m^{-3}), a value obtained by duplicating the 0° - 30°N band;
- for the 30° - 60°S the present estimation (0.13 mBq m^{-3}) is smaller than the one published by Lambert (0.20 mBq m^{-3}).

Comments on ^{210}Pb air-surface deposition fluxes

The main three types of collectors previously described (artificial collectors, soil and snow) have been used to obtain these data. Concerning soil measurements, three sites (Camels Hump, White face Mt. and Santa Fe, USA) have been excluded because the ^{210}Pb flux values are well outside the local mean distribution. We outline here the global features of the measurements concerning regions where enough data exist.

Northern Hemisphere

a - North America

Figure 8 presents the longitudinal distribution over the U.S.A. between 30°N and 60°N . The same overall trend as for concentrations is observed: an East/West asymmetry with low values on western areas. The causes explaining this pattern are the same than for concentration distribution: the Westerlies and the oceanic origin of the air masses depleted in ^{210}Pb prevailing on the western part of the continent. Nevertheless maxima are less pronounced and distributed over a larger longitudinal extent.

The role of precipitation is well illustrated by the differences in flux values that appear on the West coast: the flux increases with rainfall. As an example, the appreciable difference between the North (Seattle: $73 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$) [Nevissi, 1985] and the South (Palo Alto : $25 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$) [Fuller and Hammond, 1983], also exists in the precipitation amount (respectively 1200 mm y^{-1} and 350 mm y^{-1}). Another example illustrating the role of orography on fluxes is given by the Sierra Nevada. There, a sharp increase exists between the flux at the Californian coast ([around $40 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$), at the Central Valley ($70 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$) and at the Sierra sites situated 200 km inland (around $130 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$) [Monaghan, 1986]. The Westerlies arrive at the coast, cross a continental region and reach the Sierra. This humid oceanic air mass is progressively enriched in ^{222}Rn and ^{210}Pb when crossing the continental band. When reaching the first high relief of the Sierra, ^{210}Pb is deposited both by direct precipitation and by orographic-cloud droplets impacting on vegetation [Graustein and Turekian, 1986; Monaghan, 1989].

b - Europe

The longitudinal distribution of the fluxes (figure 9) is very similar to that of the U.S.A., even if there is a paucity of data for central Europe. Such a similarity is not surprising, in view of the fact that the two regions are situated in the same latitudinal band and experience similar atmospheric circulation (Westerlies).

c - Japan

The highest measured fluxes on Earth are observed over Japan with a considerable spatial variation (from $170 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ at Osaka to $360 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ at Hokkaido) [Matsunami and al., 1974; Fukuda and Tsunogai, 1975]. Japan is situated at mid latitude on the eastern part of the Asiatic continent. It is subjected to the Westerlies. Its geographical situation is comparable to the Eastern coast of

North America and, therefore, fluxes *a priori* comparable to the east of North America are expected. This is the case for the South of Japan (Osaka). But clearly, the northern part of Japan experiences a different situation resulting in much higher fluxes. Fukuda and Tsunogai [1975] explain that the high ^{210}Pb fluxes at Hokkaido (North of Japan) are due to the winter south-west monsoon. At this time of the year, dry continental air masses originating in Northern China and Mongolia, cross the Sea of Japan where they are humidified, and reach North-East Japan. During their long trajectory above the Asiatic continent these air masses became highly enriched in ^{210}Pb . When they arrive over the islands of Japan, the orographic effect induces precipitation and strong ^{210}Pb fluxes. In summer, even though precipitation are important, the oceanic origin of the air masses does not induce high deposition fluxes [Fukuda and Tsunogai, 1975].

d - India

India is the only northern tropical and sub-tropical region where the data set extends over 5 years [Joshi and al., 1969]. As is the case for the concentration distribution, a strongly decreasing flux gradient is observed from the North (182 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$ at Srinagar) to the South (around 85 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$). In the same way as for the concentration, these North-South decreasing values in the peninsula may be attributed to the increasing influence of the marine surroundings. Unlike the concentrations, Northern fluxes show a considerable variability (from 100 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$ at Calcutta to 250 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$ at Bombay). This variability could be attributed to variations in precipitation: higher fluxes correspond to higher precipitation.

Southern Hemisphere

The data mainly concern Oceania. Three regions are concerned here: Australia, New-Zealand and tropical oceanic sites. The data relative to Antarctica are commented in the section on the polar regions.

Deposition fluxes and concentrations are comparable both over Australia and New Zealand. Some variations around this value can nevertheless be pointed out.

In Australia, fluxes do not significantly change with the longitude (figure 10). The influence of the climate appears when the tropical sites with high rainfall rates (Darwin, 95 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$ with 1500 mm y^{-1}) are compared with dry coastal site (Port Hedland, 32 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$ with 320 mm y^{-1}) [Bonnymann and Molina-Ramos, 1971].

In New Zealand, a distinct difference exists between the North-Western and South-Eastern coasts. The averaged flux on the North-Western coast (70 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$) is twice as high as on the South-Eastern coast (30 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$) [Turekian and al., 1977]. We suggest that this difference may be caused by a mechanism similar to that mentioned for Japan. At these latitudes, the Westerlies are dominant. Continental air masses originating over Australia and enriched in ^{210}Pb are

humidified over the ocean. When they reach the New Zealand mountain chains, they give rise to rainfall on the North-Western coast (1500-2000 mm y^{-1}) and are depleted when they reach the South-Eastern coast (700-1000 mm y^{-1}).

On the ocean, only two sites are available, which are characterised by relatively high fluxes (Rarotonga, 52 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$; Suva, 80 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$) [Turekian and al., 1977] and high rainfalls.

We can compare these three areas (Australia, New Zealand and tropical oceanic sites) by introducing the α parameter (expressed in Bq kg^{-1}), which is defined by the ratio between the annual flux, Φ ($\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$), and the annual amount of precipitation, P (mm y^{-1}). When dry deposition is negligible compared to wet deposition, α represents the ^{210}Pb concentration in rain and should be proportional to the ^{210}Pb concentration in the air column washed out by the rain.

In Australia, two different types of region can be distinguished using the α values. The coastal areas, with more than 600 mm y^{-1} , have an α value ranging from 0.04 to 0.08 Bq kg^{-1} . The α value is higher in the desert areas (0.1 Bq kg^{-1} at Port Hedland, and 0.23 Bq kg^{-1} at Alice Spring). In New Zealand α ranges from 0.03 to 0.06 Bq kg^{-1} . In oceanic sites, α ranges from 0.02 to 0.03 Bq kg^{-1} . We limit our comparison to sites where wet deposition is predominant. The decrease in values from Australia to oceanic sites with intermediate values in New Zealand is consistent with the expected decrease in the concentration in air. Australia is a continental source of ^{210}Pb with high concentration in air; New Zealand is under the influence of the Westerlies, situated 2,000 km of Australia and the main ^{210}Pb supply comes from this continent; the two oceanic sites (Suva and Rarotonga) are more isolated from continental sources, resulting in a lower ^{210}Pb concentration.

Polar regions

Fluxes have been measured in snow in Antarctica and in the central part of Greenland. Both ice sheets present very low flux values compared to the lower latitudes. Nevertheless, fluxes in Antarctica are on the average lower than in Greenland. In Antarctica, fluxes increase from 1-2 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$ at the centre, to 3-8 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$ on the coast (figure 11a). In Greenland, flux measurements are only taken on the ice sheet (no coastal sites) ranging from 5 to 20 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$. The fact that Greenland values are higher than those in Antarctica is partly explained by the higher surface concentration of ^{210}Pb in air in Greenland.

When comparing concentration with flux in central Greenland, a striking feature appears. Whereas concentrations are lower than those in the Northern mid-latitudes by a factor of 3, fluxes are 10 times smaller. Furthermore, if we compare with the centre of Antarctica we have the same order of magnitude of the ratio

between flux and concentration (apparent deposition velocity). Nevertheless the precipitation values are very different (one order of magnitude higher in central Greenland compared to central Antarctica). All these features indicate less active deposition in central Greenland. We have no explanation for that.

In Greenland, fluxes associated with long periods of observation (i. e. about a century) seem systematically higher than measured fluxes corresponding to recent years. This is well illustrated at the Dye 3 site where the flux varies from 6 to 20 Bq m⁻² y⁻¹, depending on the periods of observation (2 or 90 years). The original authors interpret this feature as a decrease of the ²¹⁰Pb flux since the beginning of the century [Nijampurkar and Clausen, 1990; Dibb, 1992]. Another potential interpretation is that this apparent flux decrease results from *in situ* ²²²Rn production, which originates in the dust incorporated in the snow. Thus, in the deep part of the core, the supported ²¹⁰Pb is no longer negligible compared to the unsupported part. The unsupported part is consequently overestimated [Pourchet and al., 1996].

In Antarctica, flux decreases from the coastal regions toward the centre of the continent (fig. 11a). This decrease is not observed for the concentration values, which stay similar throughout the Antarctic continent expressing a well mixed air reservoir (fig. 6 and 7). The same decrease is observed for precipitation (figure 11b). This indicates that the ²¹⁰Pb flux distribution in Antarctica is mainly determined by precipitation. The scavenging process is more efficient on the coast where precipitation is higher (140 - 400 mm y⁻¹) than inland (30 - 90 mm y⁻¹). Figure 11c gives the flux as a function of precipitation. The closely linear relationship results from the fact that the ²¹⁰Pb concentration is homogeneous in the air masses over Antarctica, leading to a fairly constant specific activity of ²¹⁰Pb in the snow during the wet deposit (0.011 Bq kg⁻¹). This relation can be used to estimate dry deposition (1.0 Bq m⁻² y⁻¹), after the elimination of the Mac Murdo site, which is influenced by the ²¹⁰Pb volcanic activity of the Mt. Erebus [Croaz et al., 1964]. These results are similar to those obtained by Lambert et al. 1983, which were based on a smaller number of sites with a specific activity of ²¹⁰Pb in precipitation equal to 0.015 Bq kg⁻¹. At the South Pole they estimated a dry deposition corresponding to 54% of the total deposition, a value closed to the present one estimation (65%).

The fluxes measured in moss and lichen on the South Shetland Islands with a mean value of 8.3 Bq m⁻² y⁻¹ [Roos and al., 1994] are close to those in snow in the coastal range. At the same location (Livingston Island) [Pourchet and al., 1996] snow measurements give a value of 6.7 Bq m⁻² for the 10 winter months. A similar value (8.2 Bq m⁻² y⁻¹) is observed at Roi Baudoin. This shows that the moss and lichen used as collector give results in good agreement with snow measurements.

High mountains sites

The paucity of the measurements in the high altitude sites (4,000-7,500 m) does not allow careful comparison. However, some common features appear in the flux measurements. Fluxes are very low, extending from 1 Bq m⁻² y⁻¹ to 30 Bq m⁻² y⁻¹. When fluxes can be compared at different altitudes, on the same area, a clear decrease always appears from low to high altitude. In the Yukon, on Mount Logan (5,340 m, 14 Bq m⁻² y⁻¹) the flux is half of the regional flux at 1000 m (37 Bq m⁻² y⁻¹) [Monaghan and Holdworth, 1990]. In Switzerland, flux decreases by a factor of 7 between Porte du Scex (400 m, 152 Bq m⁻² y⁻¹) [Dominik and al., 1987] and Colle Gnifetti (4,450 m, 22 Bq m⁻² y⁻¹) [Gäggeler and al., 1983]. In India, there is a factor of 9 between the fluxes of Gangtok (2,000 m, 230 Bq m⁻² y⁻¹) [Joshi and al., 1969] and Changme Khangpu glacier (5,150 m 27 Bq m⁻² y⁻¹) [Bhandari and Nijampurkar, 1981]. Different facts can explain these trends: a lower concentration of ²¹⁰Pb in air in the continental free troposphere, a decrease in the precipitation at these high altitudes, and a shortening of the scavenging column due to the high altitude of the sites.

Latitudinal distribution

The ²¹⁰Pb flux data are expressed as a function of latitude in Figures 12 and 13 and Table II. It is important to remember that this latitudinal distribution results from the existing data and that large parts of continents such as South America, Africa and Central Asia, are not represented because of the lack of measurements. Figure 13 and Table II present zonal averages based on continental data only. Oceanic measurements are not included here because of the scarcity of data. High mountain sites are also excluded because of their poor spatial representativity. Data relative to temperate glaciers [Svalbard Islands, mid and tropical latitude glaciers] are not included because the annual values are usually underestimated due to the snow-melt during summer.

Distribution is similar to the latitudinal distribution of ²¹⁰Pb concentration in air. The difference between Northern and Southern Hemispheres appear clearly, resulting from the same causes (high asymmetry in the ratio of continent/ocean surfaces). Nevertheless some differences can be pointed out:

- a much greater dispersion, particularly for the northern mid latitudes,
- the polar zones in both hemispheres (Greenland and Antarctica) present values of the same order of magnitude whereas the concentration in air is much higher in the Arctic regions than in Antarctica.

Empirical deposition velocity

The empirical deposition velocity, defined as the ratio of the ²¹⁰Pb deposition rate to concentration in surface air,

$$v = \phi/\rho$$

is one of the parameters that characterise the total (dry + wet) deposition efficiency [Turekian and al. 1977; Graustein and Turekian, 1986]. It should be

clear that v is generally a pure mathematical concept, since the flux is, in fact, influenced by the ^{210}Pb concentration in the whole air column and not only in the ground level air. Figure 14 presents the fluxes as a function of concentration for the locations where both measurements are available. Results are grouped according to the various regions (North America, Europe, India, Australia, Antarctica and oceanic regions including New Zealand). For each region the mean deposition velocity has been calculated (Table III). These mean deposition velocities are represented (figure 14) by the slope of straight lines. The deposition velocities are quite similar for the various continental regions extending from 6 to 11 mm s^{-1} . They are much lower than the deposition velocities on oceanic sites (from 10 to 28 mm s^{-1}). The high oceanic values can be explained by the fact that, in the calculation of v , only the very low concentration in surface air is included, whereas the entire air column, including the free troposphere and enriched in ^{210}Pb , contributes to the deposition flux.

Comments on ^{210}Pb water-sediment fluxes

The fluxes are measured at the water-sediment interface in many sites (figure 2c). They show considerable variations extending from less than 50 to more than 1000 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$. This wide range is a consequence of the numerous different processes which are involved in the transfer and deposition of ^{210}Pb at the water-sediment interface. Our concern here is to know whether, despite this large range, it is possible to extract information concerning the atmospheric deposition flux. For this reason, we adopt a different approach from that used for the air-surface transfer data. We do not analyse flux distribution geographically. Instead, we comment on the histogram of the data distribution relative to different types of reservoir and compare it to the histogram of the atmospheric flux obtained with artificial collectors. This approach makes it possible to outline the differences in behaviour of the various reservoirs. It will also show which kind of reservoir could be the most useful for reconstructing the atmospheric deposition flux.

We distinguish here mainly four classes of reservoirs:

- deep Atlantic ocean,
- coastal range, (estuaries, fjords, bays and continental margins),
- Laurentian Great Lakes,
- reservoirs which include lakes with surface areas less than 700 km^2 . In this part we include measurements of large lakes such as the lakes of Geneva (Switzerland), Biwa (Japan) and Constance (Germany), and those concerning small lakes, ponds, peat bogs and salt marshes.

The comparison between these four types of reservoir will be restricted to the Northern Hemisphere due to the lack of information for the Southern Hemisphere.

Figure 15 represents the histogram of the flux measurements relative to the

artificial collectors in the Northern Hemisphere (figure 15a) and to the total sediment cores (figure 15b). The scale is different in the two figures: a much larger number of measurements exists for sediment cores resulting in better statistical distribution. The majority of data are located around similar values on both diagrams ranging from less than 50 to 250 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$. However the distribution for sediment cores reaches much higher values ($>1000 \text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$) whereas no fluxes above 500 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$ have been reported with artificial collectors. The histogram in figure 15b has been split between the four above mentioned reservoir classes (figure 16).

Great Lakes

Two features appear in figure 16a: the atmospheric component is clearly visible (maximum of distribution between 50 and 250 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$), nevertheless high fluxes also occur in many cases, (ranging from 250 to over 1000 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$). This wide range of values results from the large variety of sediment deposition mechanisms. In these large water bodies a large quantity of energy can be involved in those mechanisms (deep water streams...). The calculated mean value of the measured flux (298 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$) is clearly above the atmospheric flux in North East America (calculated mean value: 155 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$) indicating the importance of the allochthonous input.

Coastal ranges

The fluxes observed here (figure 16b) are stronger than these of the three other types of reservoirs, with most of the values extending from 100 to 450 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$. The atmospheric flux component appears largely distorted resulting from the very high sedimentation rates that occur in the coastal areas. This is a consequence of the high contribution of erosion mainly through river inputs: allochthonous sediments are collected from large catchment areas where unsupported (atmospheric) ^{210}Pb is deposited. Mean values of the measured fluxes show a difference between the continental margins (which includes shelf slopes and canyons) and the rest of the coastal range (estuaries, bays and fjords). The continental margin mean flux value (370 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$) is intermediate between the coastal range (550 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$) and deep ocean (111 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$) mean flux values.-

Deep ocean

The histogram of the flux (figure 16c) presents a symmetrical distribution with a low scatter, with a high contribution between 50 and 150 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$. It expresses that a feature, common to the whole ocean, exists in the mechanisms governing the fluxes, (sources, transport and deposition). The calculated mean flux (111 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$) appears to be higher than the estimated atmospheric flux on the North Atlantic ocean (50 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$ estimated in the Northeast Atlantic) [Cochran and al., 1990; Thompson and al., 1993], (60 $\text{Bq m}^{-2} \text{y}^{-1}$ measured at Madeira)

[Carvalho, 1990]. This may confirm the existence of an additional source of ^{210}Pb . As pointed out by several authors [Robbins, 1978; Cochran and al., 1990], the major contribution to the ^{210}Pb deposition flux at the deep ocean bottom comes from the well mixed dissolved ^{226}Ra present in the water column.

Lakes, ponds, peat bog and salt marshes

These reservoirs account for the major part of sediment measurements. Fluxes are regularly distributed (figure 16d) with a maximum distribution around $100 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$. When compared with the four classes of reservoir, this flux distribution appears to be the most similar to the atmospheric flux distribution:

- the calculated mean flux ($162 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$) is close to the calculated mean atmospheric flux ($142 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$);
- as is the case with air flux measurements, most data range from 0 to $250 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$, with maxima from 50 to $150 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$.

However very high flux values exist ($>500 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$), but with a very low statistical weight.

Note that the important contribution of low values ($<50 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$) may result from the large quantity of data measured in Scandinavia where the atmospheric flux is low.

Some features, which are often common to this type of reservoir, can explain why the water-sediment flux distribution is more similar to the air-surface deposition flux distribution than in the three other types of reservoirs:

- smaller water reservoir size implying less energy in transport and therefore less perturbation of the sediment deposit (the opposite of the Great Lakes),
- negligible production of ^{210}Pb generated by in situ dissolved ^{226}Ra (the opposite of the oceans),
- lower sedimentation rate (the opposite of coastal ranges), especially when coring is performed in the lake centre, originating in a smaller contribution of the catchment origin.

However it must be remembered that noticeable differences can exist between local atmospheric flux data and individual water-sediment flux data even in this last type of reservoir.

Comparison between the four classes of reservoir

These results clearly indicate that, in three of the four types of reservoir, the flux at the water-sediment interface differs significantly from the atmospheric flux.

In the deep Atlantic ocean, the main contribution to the deposit flux does not originate in the atmospheric flux at the surface of the ocean, but results from the disintegration of the dissolved ^{226}Ra present in the bulk water. In the coastal range the large amount of sediment supply explains, to a large extent, why flux values are much higher than the mean atmospheric input. The Great Lakes present a wide variety of sedimentation processes leading to greatly dispersed sediment flux values.

Unlike the three preceding reservoirs, the last type of reservoir (lakes, ponds, peat bogs and salt marshes) shows a flux distribution much more comparable to atmospheric deposition. A common feature of this type of water reservoir is its small size and relatively low energy budget. Salt marshes and peat bogs appear to be the best places for a good estimation of the atmospheric flux because of the shallowness of the water, the absence of erosion and the very low energy budget (absence of streams). The lakes present more dispersed values. Nevertheless a careful choice of the type of lake (small size) and of the coring locations (centre of the lake with low sedimentation), might give a correct estimation of the atmospheric flux.

Conclusion

This article focused on the interpretation of the spatial distribution of concentration in surface air and flux deposition issued from the data base. The spatial coverage is largely incomplete, but is broad enough to allow a first attempt at an analysis in terms of source, transport and deposition mechanism over a large part of the globe.

The influence of the sources is clearly visible when comparing the range of the concentration in surface air over continents ($0.2\text{-}1.0 \text{ mBq m}^{-3}$) where ^{222}Rn sources are effective, with that over oceans ($0.02\text{-}0.3 \text{ mBq m}^{-3}$) and ice-covered lands ($0.02\text{-}0.2 \text{ mBq m}^{-3}$), where the ^{222}Rn source is negligible. As a first approximation, the spatial distribution mainly results from the zonal feature of the atmospheric circulation together with the source distribution. The latitudinal distribution (concentration and flux) reflects to a large extent the source proportion on the zonal band. The longitudinal distribution results mainly from the air mass origin (enriched continental, or depleted oceanic), resulting in turn from the direction of the zonal circulation (Westerlies, Trade winds...). The precipitation (rainfall or snowfall) is the main deposition mechanism of ^{210}Pb , except in the desert regions. The role of the precipitation is well illustrated in Antarctica, where the concentration in surface air is homogeneous and where a strong gradient of precipitation exists from the coast toward the centre. There, the flux deposition is linearly dependent on precipitation. A consequence of those mechanisms is the difference between Northern and Southern Hemisphere latitudinal distributions in terms of ^{210}Pb concentration as well as in terms of flux deposition. This results from the asymmetry in the distribution in ice free continents. This is particularly visible in the polar zones where concentration in Antarctica is a factor of ten lower than in Arctic regions. However, although the concentration distribution seems to be fairly well understood, flux deposition in northern polar zone, which undergoes large changes, involves a less straightforward interpretation notably when compared with Antarctica.

The ^{210}Pb water-sediment flux data are classified considering four different types of water reservoirs in order to compare them with air-surface deposition flux. In

three types of reservoir (deep ocean, Great Lakes and coastal sites) the flux distribution differs significantly from that in the atmosphere. This is the consequence of internal processes (dissolved ^{226}Ra source in oceans, mechanical redistribution in great lakes, high sedimentation rate in coastal ranges). The last type of reservoirs (small lakes, ponds, peat-bogs and salt marshes) displays a data distribution that is quite comparable to the atmospheric flux.

This data base provides a useful tool to compare the measurements obtained by the main three different methods (artificial collector, soil, snow) used for the flux measurements at the Earth's surface. The direct method (artificial collector) is obviously the most reliable, but necessitates continuous collection during the period of observation (one year minimum). The two other methods (soil and snow collectors) offer the advantage of rapid sample collection, giving access to long periods of observation (over a century) if the collector is not disturbed by external processes (erosion, accumulation or snow melt). A judicious choice of sampling sites minimises these perturbations. Some water-sediment types (small lakes, ponds, peat-bogs and salt marshes) may also provide a good estimation of the atmospheric flux provided that a careful analysis is performed. This comparison between the different methods indicate that when a rapid spatial coverage of atmospheric flux (yearly average) is needed, a good compromise between accuracy and efficiency would be soil and snow (or, in some cases, sediment) measurements, as long as the site is chosen with care.

In conclusion, it has to be emphasized that the spatial coverage of the data base is only very partial. There is a lack of information concerning some large regions which are totally absent from the present data base (figure 2). The zonal averages are very poorly documented in the equatorial and tropical zones. A dramatic lack of information on concentration in surface air exists for the entire African continent, the Middle East, Central Eurasia (from Eastern Europe to the Pacific coast), South-East Asia and South America (except for the West coast). Concerning deposition flux, the same lack of information exists, but for South America as a whole. Oceanic measurements are rare for concentration and almost non-existent for flux.

Acknowledgements. We thank P. Appleby for carefully reviewing of this manuscript and significantly improving its clarity. We also thank the anonymous reviewers which help us with their comments. We thank C. Genthon and F. Pinglot for discussion and review. The maps were produced using the GMT graphic software [Wessel and Smith, 1995].

References

- Appleby, P. G., and F. Oldfield, Application of lead-210 to sedimentation studies, in *Uranium series disequilibrium*, edited by M. Ivanovitch and R. S. Harman, pp. 732-778, Oxford, U.K., 1992.
- Balkanski, Y. J., D. J. Jacob, G. M. Gardner, W. C. Graustein, and K. K. Turekian, Transport and residence times of tropospheric aerosols inferred from a global three-dimensional simulation of ^{210}Pb , *J. Geophys. Res.*, 98, D11, 20,573-20,586, 1993.
- Baskaran, M., C. H. Coleman, and P. H. Santschi, Atmospheric deposition fluxes of ^7Be and ^{210}Pb at Gavelston and College Station, Texas *J. Geophys. Res.*, 98, D11, 20,555-20,571, 1993.
- Benninger, L. K., D. M. Lewis, and K. K. Turekian, The use of natural ^{210}Pb as a heavy metal tracer in river-estuarine systems, in *Marine chemistry in the coastal environment, Symp. Ser. 18*, edited by T. M. Church, American Chemical Society, pp. 201-210, Washington, D.C., 1975.
- Bhandari, N., and V. N. Nijampurkar, Radiometric chronology of some himalayan glaciers, in *Symposium on variations in global water budget*, Oxford, 1981.
- Bonnymann, J., J.C. Duggleby, and J. Molina-Ramos, The concentrations of radioactive isotopes in Australian surface air during the period may 1965-may 1970, *Technical Report CKRL/5*, Commonwealth X-ray and radium laboratory, Melbourne, Australia, 1971.
- Bonnymann, J., and J. Molina-Ramos, Concentrations of Lead 210 in rain-water in Australia during the years 1964-1971, *Tech. Rep. CXRL/7*, Commonw. X-Ray Radium Lab., Melbourne, Australia, 1971.
- Bruland, K. W., M. Koide, and E. D. Goldberg, The comparative marine geochemistries of Lead 210 and Radium 226, *J. Geophys. Res.*, 79, 21, 3083-3086, 1974.
- Burton, W. M., and N. G. Stewart, Use of long-lived natural radioactivity as an atmospheric tracer, *Nature*, 186, 584-589, 1960.
- Carvalho, F. P., Contribution à l'étude du cycle du Polonium-210 et du Plomb-210 dans l'environnement. Thèse de l'Université Sophia-Antipolis, Nice, France, 1990.
- Clements, W. E., and M. H. Wilkening, Atmospheric pressure effects on ^{222}Rn transport across the earth-air interface, *J. Geophys. Res.*, 79, 33, 5025-5029, 1974.
- Cochran, J. K., T. Mc Kibbin-Vaughan, M. M. Dornblaser, D. Hirshberg, H. D.

Livingston, and K. O. Buesseler, ^{210}Pb scavenging in the North Atlantic and North Pacific oceans, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 97, 332-352, 1990.

Crozaz, G., E. Piccioto, and W. De Breuck, Antarctic snow chronology with Pb-210, *J. Geophys. Res.*, 69, 2594-2604, 1964.

Crozaz, G., Mise au point d'une méthode de datation des glaciers basée sur la radioactivité du Plomb-210, Thesis, Université Libre de Bruxelles, Belgium, 1967.

Dibb, J. E., The accumulation of ^{210}Pb at Summit, Greenland, since 1855, *Tellus*, 44B, 72-79, 1992.

Dibb, J. E., and J. L. Jaffrezo, Beryllium-7 and Lead-210 in aerosol and snow in the Dye-3 gas aerosol and snow sampling program, *Atmosph. Env.*, 27A, 17/18, 2751-2760, 1993.

Dominik, J., A. Mangini, and G. Müller, Determination of recent deposition rates in lake Constance with radioisotopic methods, *Sedimentology*, 28, 653-677, 1981.

Dominik, J., D. Burrus, and J. P. Vernet, Transport of the environmental radionuclides in an alpine watershed, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 84, 165-180, 1987.

Durham, R. W., and S. R. Joshi, Lead-210 dating of sediments from some Northern Ontario lakes, in *Quaternary dating method*, edited by W. C. Mahaney, pp. 75-85, Elsevier Sci. Pub., Amsterdam, Netherland, 1984.

Edgington, D. N., J. Val Klump, J. A. Robbins, Y. S. Kusner, V. D. Pampura, and I. V. Sandimirov, Sedimentation rates, residence times and radionuclides inventories in lake Baikal from ^{137}Cs and ^{210}Pb in sediment cores, *Nature*, 350, 601-604, 1991.

El-Daoushy, F., The Pb210 global cycle: dating and tracing applications, in *First International Summer School on "Low-level measurements and their applications to environmental radioactivity"*, La Rabida, Andalucia, Spain, Sept. 27 to Oct. 10, 1987.

Feely, H. W., L. Toonkel, and J. R. Larsen, Radionuclides and trace metals in surface air, *Environ. Rep.*, EML-380, January 1, C-1, C-12, C-135, C-137, Environmental Measurement Laboratory, U.S. Dept of Energy, New York, U.S.A., 1980.

Fukuda, K., and S. Tsunogai, Pb-210 in precipitation in Japan and implication for the transport of continental aerosols across the ocean, *Tellus*, 27, 514-521, 1975.

Fuller, C., and D. E. Hammond, The fallout rate of Pb-210 on the Western coast of the United States, *Geophys. Res. Lett.*, 10, 12, 1164-1167, 1983.

Gäggeler, H., H. R. Von Gunten, E. Rössler, H. Oeschger, and U. Schotterer, ^{210}Pb

dating of cold alpine firn/ice cores from Colle Gniffetti, Switzerland, *J. Glaciol.*, 29, 101, 165-177, 1983.

Gavini, M. B., J. N. Neck, and P. K. Kuroda, Mean residence times of the long-lived Radon daughters in the atmosphere, *J. Geophys. Res.*, 79, 30, 4447-4452, 1974.

Genthon, C., and A. Armengaud, Radon 222 as a comparative tracer of transport and mixing in two general circulation models of the atmosphere, *J. Geophys. Res.*, 100, D2, 2849-2866, 1995a.

Genthon, C., and A. Armengaud, GCM simulations of atmospheric tracers in the polar latitudes: South Pole (Antarctica) and Summit (Greenland) cases, *The Sci. Tot. Environ.*, 160/161, 101-116, 1995b.

Goldberg, E. D., Geochronology with Lead-210, in *Radioactive Dating*, pp. 121-131, IAEA, Vienna, Austria, 1963.

Graustein, W. C., and K. K. Turekian, ^{210}Pb and ^{137}Cs in air and soils measure the rate and vertical profile of aerosol scavenging, *J. Geophys. Res.*, 91, D13, 14,355-14,366, 1986.

Heidam, N.Z., The components of the Arctic aerosol, *Atmos. Environ.*, 18, 2, 329-343, 1984.

Jacob, D. J., M. J. Prather, P. J. Rasch, J. Feichter, I. Köhler, P. S. Kasibhatla, G. Verver, P. J. M. Van Velthoven, J. E. Dignon, J. E. Penner, D. J. Bergmann, C. Genthon, Y. J. Balkansky, M. Ramonet, P. Zimmermann, S. R. Beagley, J. de Grandpré, W. T. Blackshear, W. L. Grose, D. A. Rotman, M. Chiba, M. Chipperfield, Z. Stockwell, R.-L. Shia, K. Law, O. Wild, C. E. Reeves, M. Brown, H. Yang, and M. A. Kritz, Intercomparaison of global atmospheric transport models using ^{222}Rn and other short-lived tracers, submitted to *J. Geophys. Res.*, 1996.

Joshi, L. U., C. Rangarajan, and S. Gopalakrishnan, Measurement of Lead-210 in surface air and precipitation, *Tellus*, 21, 107-112, 1969.

Joshi, S. R., B. S. Shukla, and A. G. Bobba, Lead-210 sedimentation in lake Ontario, *Environ. Geol. Water Sci.*, 19, 2, 121-126, 1992.

Kownacka, L., Z. Jaworowski, and M. Suplinska, Vertical distribution and flows of lead and natural radionuclides in the atmosphere, *The Sci. Tot. Env.*, 91, 199-221, 1990.

Krishnaswami, S., D. Lal, J. Martin, and M. Meybeck, Geochronology of lake sediments, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 11, 407, 1971.

Lambert, G., B. Ardouin, and G. Polian, Volcanic output of long-lived radon daughters, *J. Geophys. Res.*, 87, C13, 11,103-11,108, 1982.

Lambert, G., G. Polian, J. Sanak, B. Ardouin, A. Buisson, A. Jegou, and J. C. Le Roulley, Cycle du radon et de ses descendants: application à l'étude des échanges troposphère-stratosphère, *Ann. Geophys.*, 48, 497-531, 1982.

Lambert, G., B. Ardouin, and A. Mesbah-Bendezu, Atmosphere to snow transfer in Antarctica, in *Precipitation, scavenging, dry deposition and resuspension*, edited by Pruppacher et Al., pp. 1289-1300, Elsevier Science Pub., 1983.

Larsen, R. J., and C. G. Sanderson, EML Surface Air Sampling Program, 1989 Data, *Environ. Rep.*, EML-541, Environmental Measurement Laboratory, U.S. Department of Energy, New York, U.S.A., 1991.

Lee, H. N., and J. Feichter, An intercomparison of wet deposition scavenging schemes and the emission rates of ^{222}Rn for the simulation of global transport and deposition of ^{210}Pb , *J. Geophys. Res.*, 100, D11, 23,253-23,270, 1995.

Lockhart, Jr., L. B., R. L. Patterson, Jr., A. W. Saunders, Jr., and R. W. Black, Summary report on fission product radioactivity in the air along the 80th meridian (West) 1957-1962, *NRL Report 6104*, U.S. Naval Research Laboratory, Washington D.C., U.S.A., 1964.

Magno, P. J., P. R. Groulx, and J. C. Apidianakis, Lead-210 in air and total diets in the United States during 1966, *Health Phys.*, 18, 383-388, 1970.

Matsunami, T., A. Mizohata, and T. Mamuro, Some attempts to interpret the variations with time of monthly depositions of ^{210}Pb , ^7Be , ^{137}Cs and ^{144}Ce , *Ann. Rep. Radiat. Cent. Osaka Prefect.*, 15, 24-29, 1974.

Mélières, M. A., M. Pourchet, J. F. Pinglot, R. Bouchez, and M. Piboule, Chernobyl ^{134}Cs , ^{137}Cs , and ^{210}Pb in high mountain lake sediment: measurements and modeling of mixing process, *J. Geophys. Res.*, 93, D6, 7055-7061, 1988.

Mitchell, P. I., W. R. Schell, A. Mac Garry, T. P. Ryan, J. A. Sanchez-Cabeza, and A. Vidal-Quadras, Studies of the vertical distribution of ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Pu , ^{241}Am and ^{210}Pb in ombrogenous mires at mid-latitude, *J. Radioanalyt. Nucl. Chem.*, 156, 2, 361-387, 1992.

Monaghan, M. C., ^{210}Pb in surface air and soils from California - Implications for the behavior of trace constituents in the planetary boundary layer, *J. Geophys. Res.*, 94, D5, 6449-6456, 1989.

Monaghan, M. C., and G. Holdworth, The origin of non-sea-salt sulphate in the Mount Logan ice core, *Nature*, 343, 245-248, 1990.

Moore, H. E., J. E. Poet, E. A. Martell, and M. H. Wilkening, Origin of ^{222}Rn and its

long-lived daughters in air over Hawaii, *J. Geophys. Res.*, 79, 33, 5019-5024, 1974.

Moore, H. E., and S. E. Poet, ^{210}Pb fluxes determined from ^{210}Pb and ^{226}Ra soil profiles, *J. Geophys. Res.*, 81, 1056-1058, 1976.

Nevissi, A., and W. R. Schell, Use of lead-210 and polonium-210 as tracers of atmospheric processes, in *The Natural Radiation Environment III*, U.S. Dept of Energy Symp. series 51, 405-414, 1978.

Nevissi, A. E., Measurement of ^{210}Pb atmospheric flux in the Pacific Northwest, *Health Phys.*, 48, 169-175, 1985.

Nijampurkar, V. N., and H. B. Clausen, A century old record of Lead-210 fallout on the Greenland ice sheet, *Tellus*, 42B, 29-38, 1990.

Nozaki, Y., D. J. DeMaster, D. M. Lewis, and K. K. Turekian, Atmospheric ^{210}Pb fluxes determined from soil profiles, *J. Geophys. Res.*, 83, C8, 1978.

Oldfield, F., and P. G. Appleby, Empirical testing of ^{210}Pb -dating models for lake sediments, in *Lake sediments and environmental history*, edited by E. Y. Haworth, and J.W.Lund, pp. 93-124, 1984.

Olsen, C. R., L. Larsen, P. D. Lowry, N. H. Cutshall, J. F. Todd, G. T. F. Wong, and W. H. Casey, Atmospheric fluxes and marsh-soil inventories of ^7Be and ^{210}Pb , *J. Geophys. Res.*, 90, 10, 10,487-10,495, 1985.

Patterson, R. L., and L. B. Lockhart, Jr., Geographical distribution of lead-210 (RaD) in the ground level air, in *The Natural Radiation Environment III*, U.S. Dept of Energy Symp. series 51, 383-393, 1963.

Peirson, D. H., R. S. Cambray, and G. S. Spicer, Lead-210 and Polonium-210 in the atmosphere, *Tellus*, 18, 427-433, 1966.

Picciotto, E., G. Crozaz, and W. De Breuck, Accumulation on the South Pole-Queen Maud Land traverse, 1964-1968, *Antarctic Research Series*, 16, 257-315, 1971.

Pinglot, J. F., M. Pourchet, B. Lefauconnier, J. O. Hagen, R. Vaikmäe, J. M. Punning, O. Watanabe, S. Takahashi, and T. Kameda, Natural and artificial radioactivity in the Svalbard glaciers, *J. Environ. Radioact.*, 25, 161-176, 1994.

Poet, S. E., H. E. Moore, and E. A. Martell, Lead-210, Bismuth-210, and Polonium-210 in the atmosphere: accurate ratio measurement and application to aerosol residence time determination, *J. Geophys. Res.*, 77, 33, 6515-6527, 1972.

Pourchet, M., J. F. Pinglot, and M. A. Mélières, Cesium-137 and lead-210 in alpine

lake sediments: measurements and modeling of mixing process, *J. Geophys. Res.*, 94, C9, 12,761-12,770, 1989.

Pourchet, M., S. K. Bartarya, M. Maignan, J. Jouzel, J. F. Pinglot, A. J. Aristarain, G. Furdada, V. M. Kotlyakov, E. Mosley-Thompson, N. Preiss, and N. W. Young, Radionuclides in Antarctica: deposition and distribution, *J. Glaciol.*, In press.

Preiss, N., M. A. Mélières, and M. Pourchet, Data base on lead-210 concentration in surface air, lead-210 atmospheric deposition and water-sediment flux. Available on *Webserver*, <http://glaciog.grenet.fr/equipes/glacier>, Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement, Saint-Martin-d'Heres, France, 1996.

Rehfeld, S., and M. Heimann, Three dimensionnal atmospheric transport simulation of the radioactive tracers ^{210}Pb , ^7Be , ^{10}Be , and ^{90}Sr , *J. Geophys. Res.*, 100, D12, 26,141-26,161, 1995.

Robbins, J. A., Geochemical and geophysical applications of radioactive Lead, in *Biogeochemistry of lead in the environment*, edited by J. O. Nriagu, pp. 285-393, Elsevier, 1978.

Roos, P., E. Holm, R. B. R. Person, A. Aarkrog, and S. P. Nielsen, Deposition of ^{210}Pb , ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , and ^{241}Am in the Antarctic Peninsula Area, *J. Environ. Radioact.*, 24, 235-251, 1994.

Sanak, J., G. Lambert, and B. Ardouin, Lead-210 in the atmosphere. in *The Natural Radiation Environment III*, U.S. Dept of Energy Symp. series 51, 445-457, 1978.

Sanak, J., Contribution à l'étude du transport des aérosols d'origine continental vers l'Antarctique, Thesis, Université Pierre et Marie Curie, Paris, France, 1983.

Thomson, J., S. Colley, R. Anderson, G. T. Cook, and A. B. Mackenzie, ^{210}Pb in sediments and water column of the Northeast Atlantic from 47° to 59°N along 20°W, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 115, 75-87, 1993.

Turekian, K. K., Y. Nosaki, and L. K. Benninger, Geochemistry of atmospheric Radon and Radon products, *Ann. Rev. Earth Planet. Sci.*, 5, 227-255, 1977.

Turekian, K. K., L. K. Benninger, and E. P. Dion, ^7Be and ^{210}Pb total deposition fluxes at New Haven, Conn. and at Bermuda, *J. Geophys. Res.*, 88, C9, 5411-5415, 1983.

Wessel, P., and W. H. F. Smith, New version of the Generic Mapping Tools (GMT) released, *EOS Trans.*, AGU, 76, p.329, 1995.

W.R.C.P. Workshop, Modelling the Transport and Scavenging of Trace Constituents

by Clouds in Global Atmospheric Models, Cambridge, U.K., 1-4 August, 1995.

Figure captions

figure 1: The ^{210}Pb global cycle: source, transport, deposition and post-depositional redistribution

figure 2: Location of ^{210}Pb measurements

figure 3: Longitudinal distribution of the mean annual ^{210}Pb concentration in surface air over North America (30° - 60°N). Grey bars represent 5° longitudinal averages

figure 4: Longitudinal distribution of the mean annual ^{210}Pb concentration in surface air over Europe (30° - 60°N). Grey bars represent 5° longitudinal averages

figure 5: Latitudinal distribution of the mean annual ^{210}Pb concentration in surface air over India. Grey bars represent 5° latitudinal averages

figure 6: Mean annual ^{210}Pb concentration in surface air as a function of latitude

figure 7: Mean annual ^{210}Pb concentration in surface air as a function of latitude (10° zonal average) on continents only

figure 8: Longitudinal distribution of annual ^{210}Pb atmospheric flux over North America (30° - 60°N). Grey bars represent 5° longitudinal averages

figure 9: Longitudinal distribution of annual ^{210}Pb atmospheric flux over Europe (30° - 60°N). Grey bars represent 5° longitudinal averages

figure 10: Longitudinal distribution of annual ^{210}Pb atmospheric flux over Australia. Grey bars represent 5° longitudinal averages

figure 11: annual ^{210}Pb atmospheric flux (a) and annual precipitation (b) over Antarctica as a function of the distance from the coast; annual ^{210}Pb atmospheric deposition flux versus annual precipitation in Antarctica (c). Average values are indicated by grey bars

figure 12: Annual ^{210}Pb atmospheric flux, from artificial collector, snow and soil measurements, as a function of latitude

figure 13: Annual ^{210}Pb atmospheric flux on continents only, from artificial collector, snow and soil measurements, as a function of latitude (10° zonal average). The latitudinal bands, with only one single available data, are not included.

figure 14: Apparent deposition velocity: annual ^{210}Pb atmospheric deposition flux versus the mean annual ^{210}Pb concentration in surface air for different regions. The slope of the straight line represents the mean

deposition velocity for each region. It is obtained by averaging the different deposition velocities corresponding to each point on the graph.

figure 15: Histogram of ^{210}Pb deposition flux data in Northern Hemisphere only: a) at the atmosphere-earth surface interface (artificial collectors only); b) at the water-sediment interface (all sediment types). Fluxes greater than $1000 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ (ranging from 1000 to $4000 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$) are grouped in one single class.

figure 16: Histogram of ^{210}Pb water-sediment deposition flux data, in Northern Hemisphere only: a) in Laurentian Great Lakes, b) in coastal ranges, c) in deep Atlantic Ocean, d) in lakes, marshes and peat bogs. Fluxes greater than $1000 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ (ranging from 1000 to $4000 \text{ Bq m}^{-2} \text{ y}^{-1}$) are grouped in one single class.

Table I: Zonal mean annual ^{210}Pb concentration in surface air over continents compared to the relative contribution of the ice-free continental areas. Values are from Figure 7.

Table II: Zonal mean annual ^{210}Pb atmospheric flux over continents. Values are from Figure 13.

Table III: Mean ^{210}Pb apparent deposition velocity in some major regions.

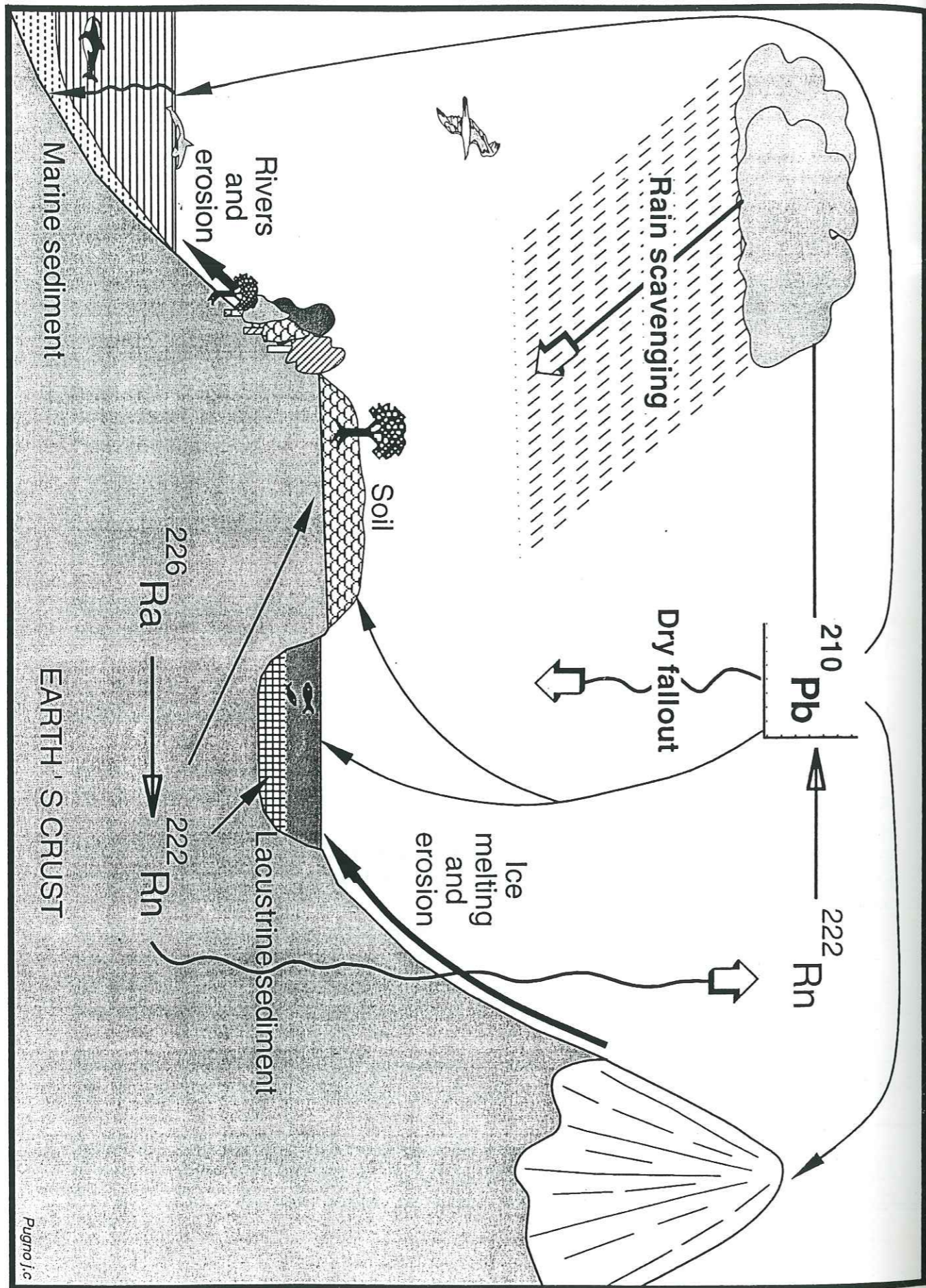
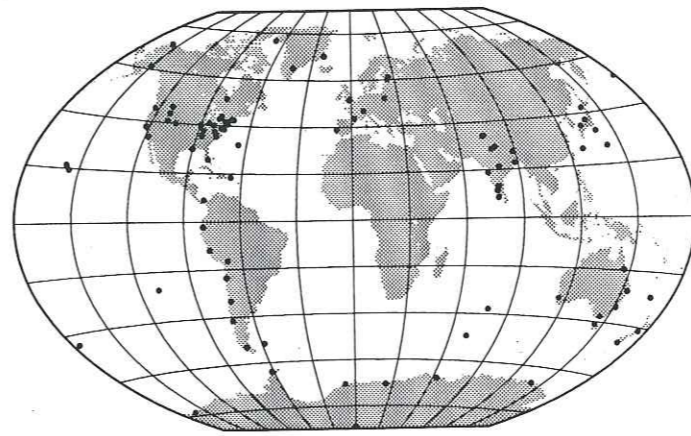


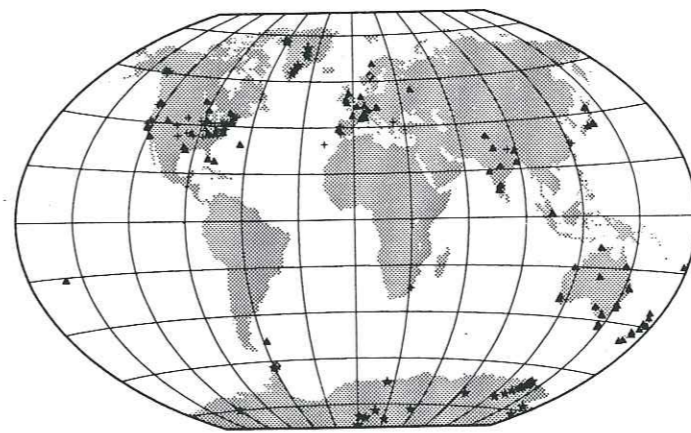
Fig. 1

Fig. 2

a) Lead-210 concentration in surface air



b) Lead-210 atmospheric flux



- ▲ artificial collector measurements
- + soil measurements
- * snow measurements
- ◊ lichen and moss measurements

c) Lead-210 water-sediment flux

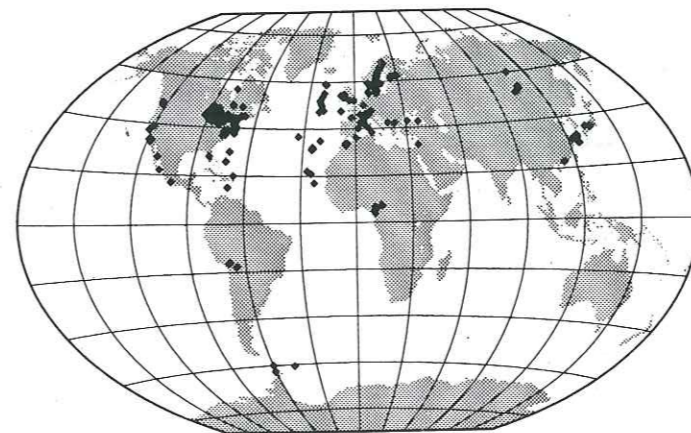


Fig. 3

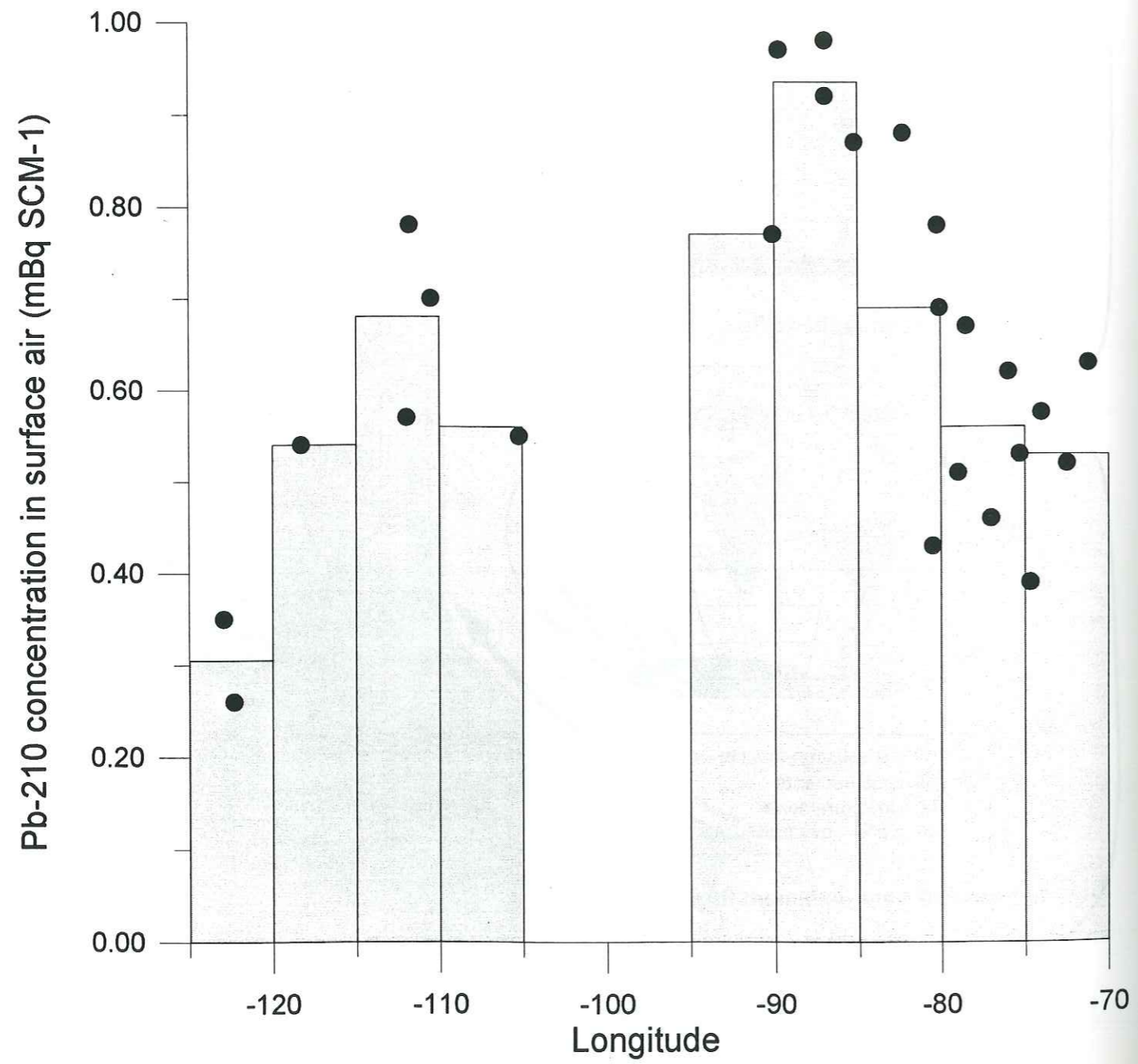


Fig. 4

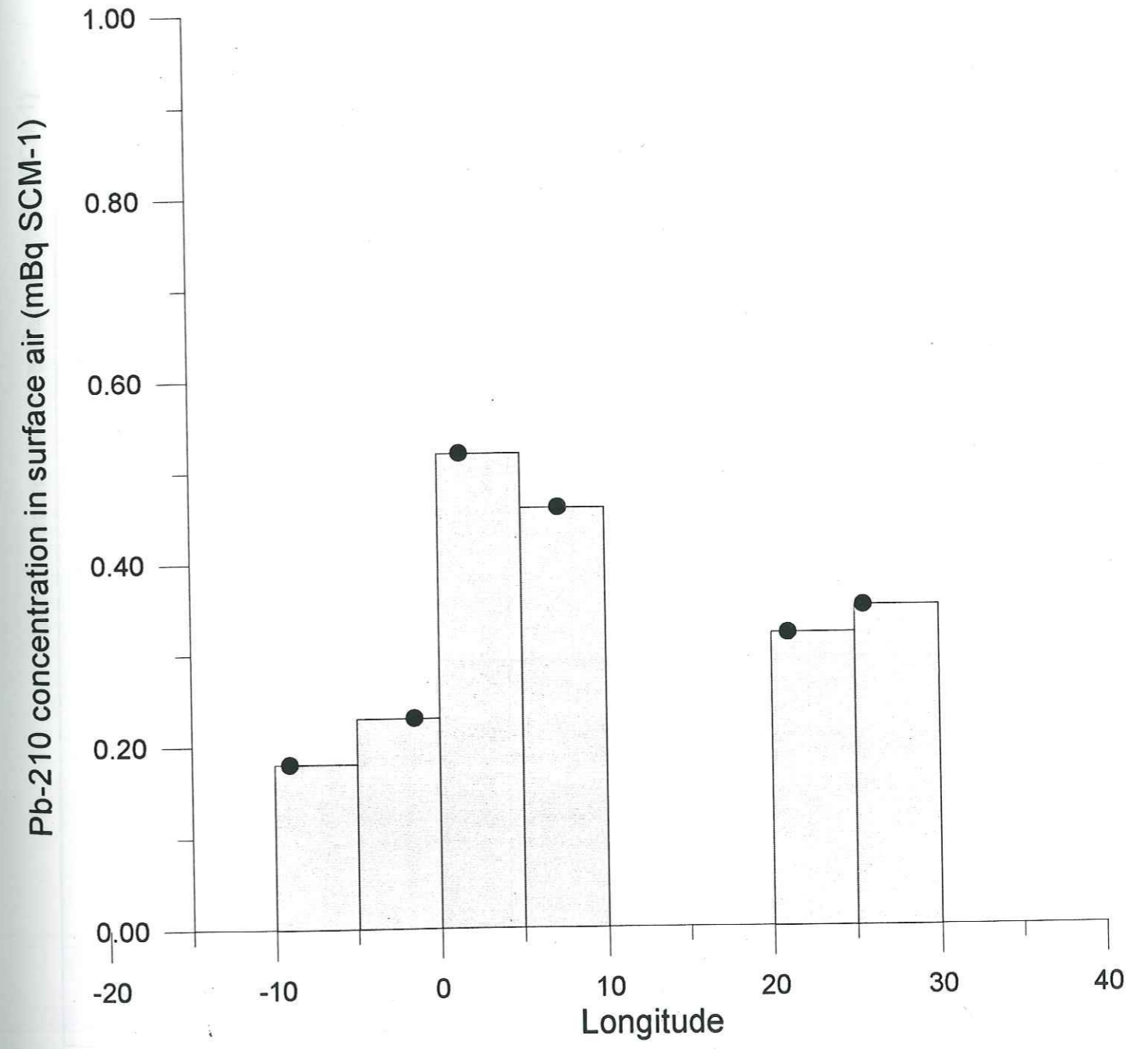


Fig. 5

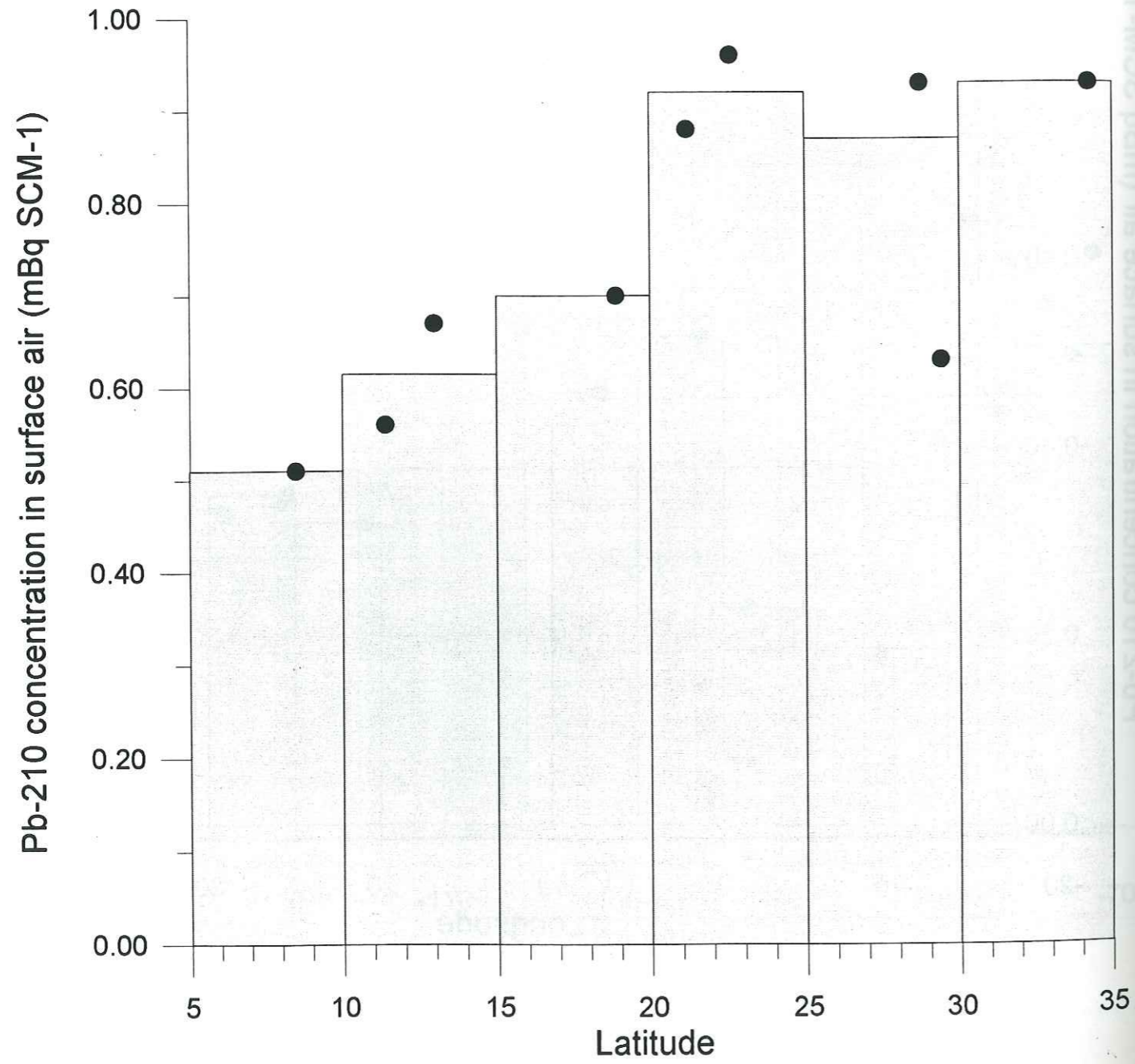


Fig. 6

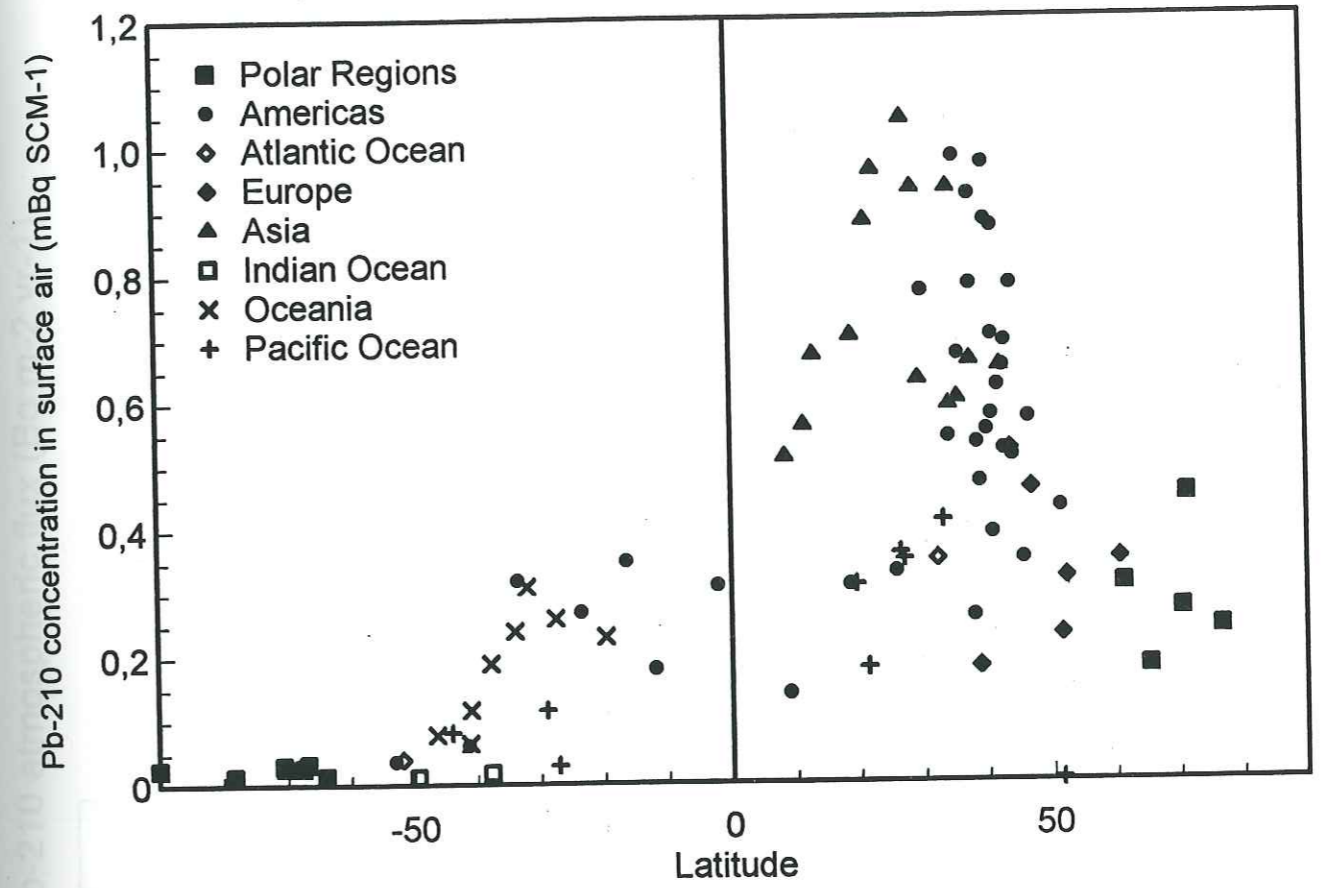


Fig. 9

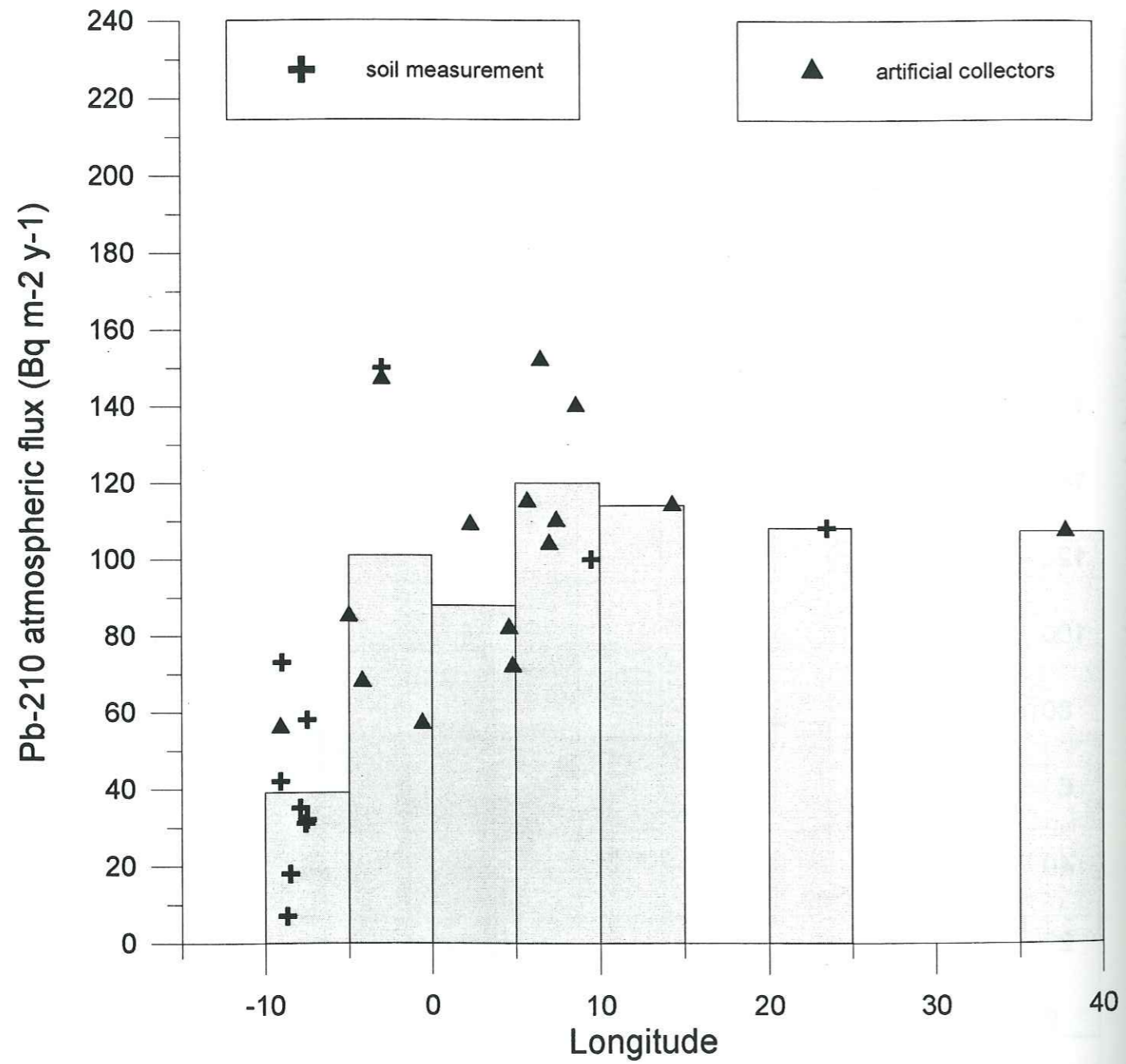


Fig. 10

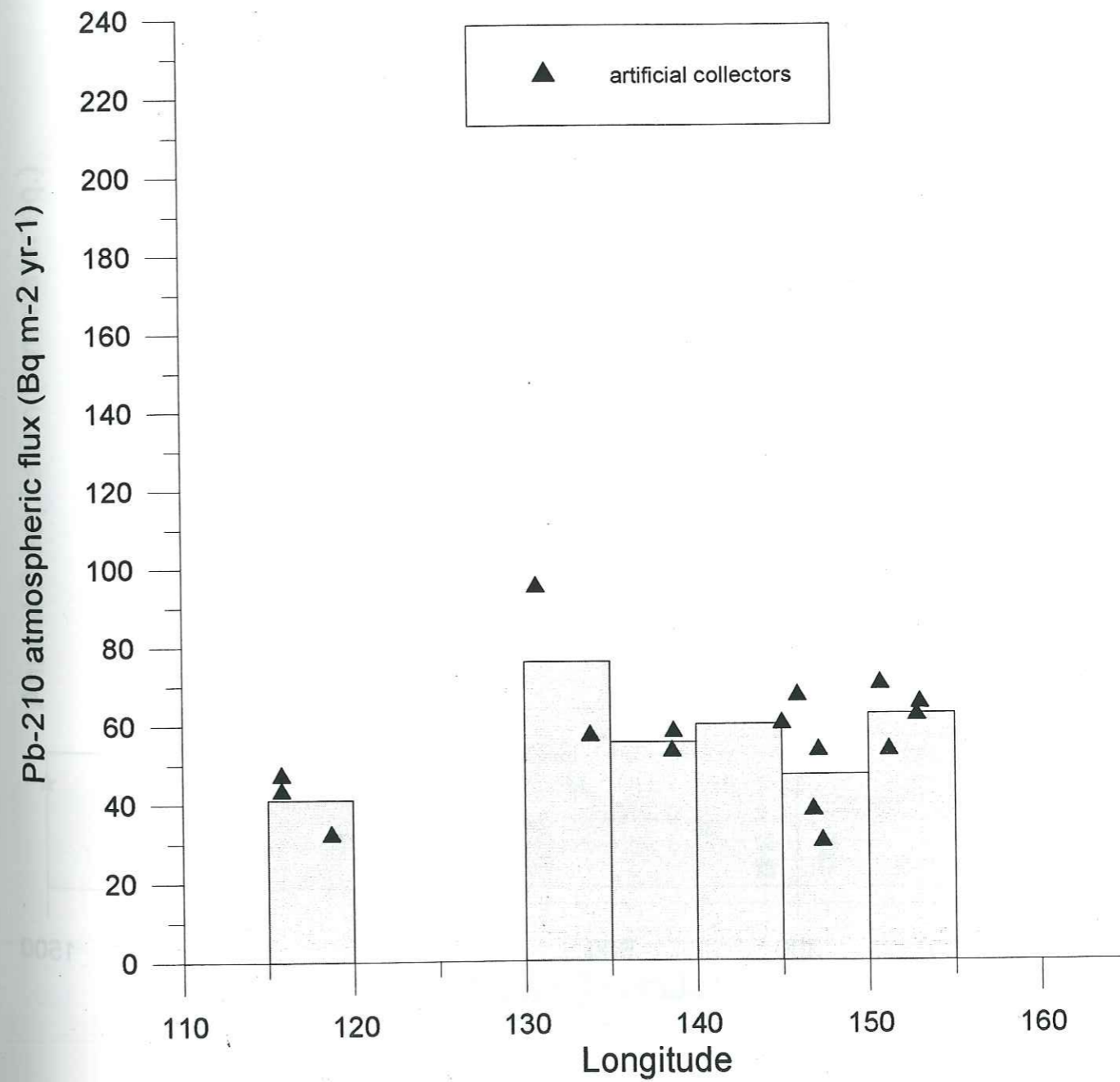


Fig. 11a

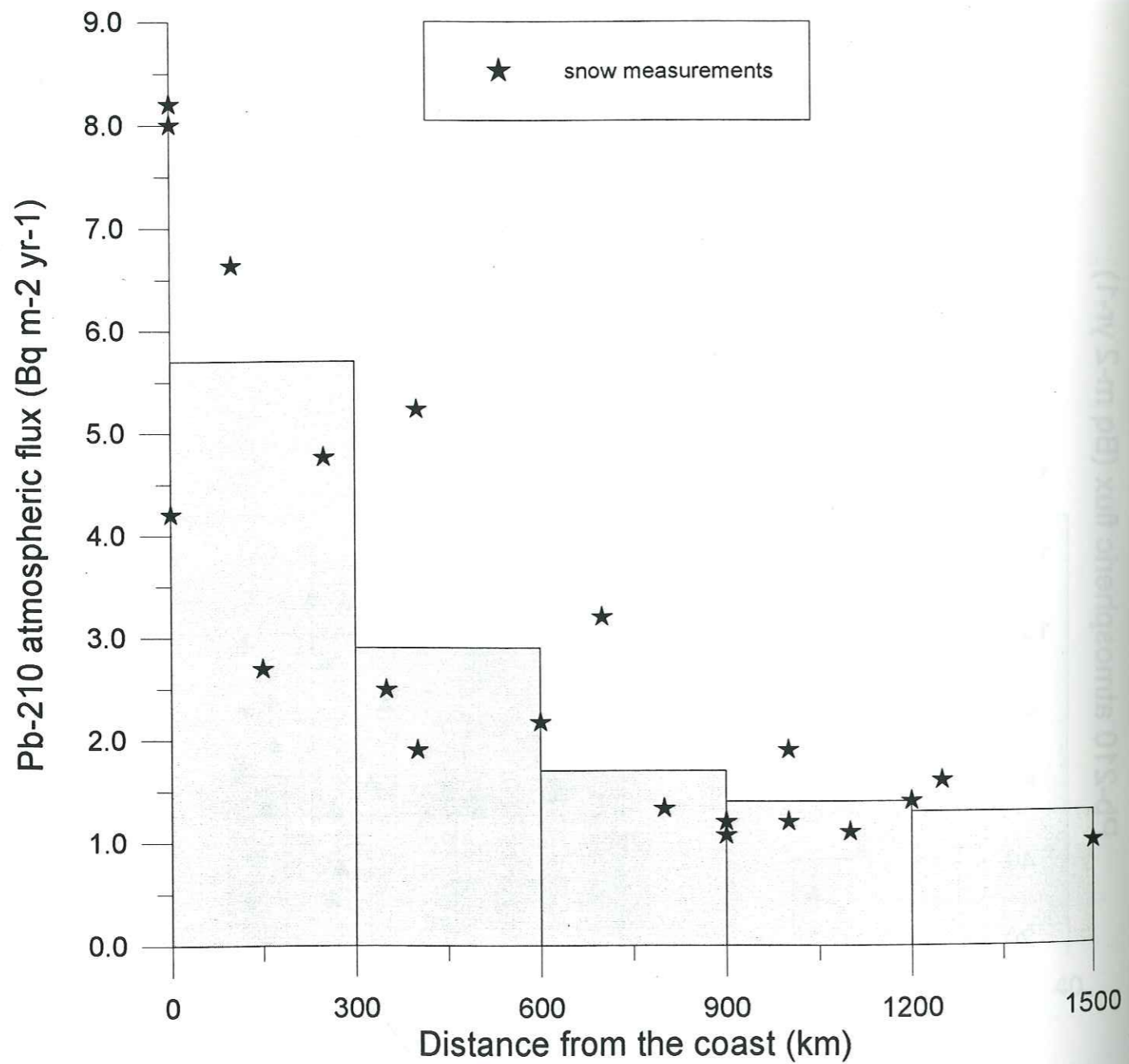


Fig. 11b

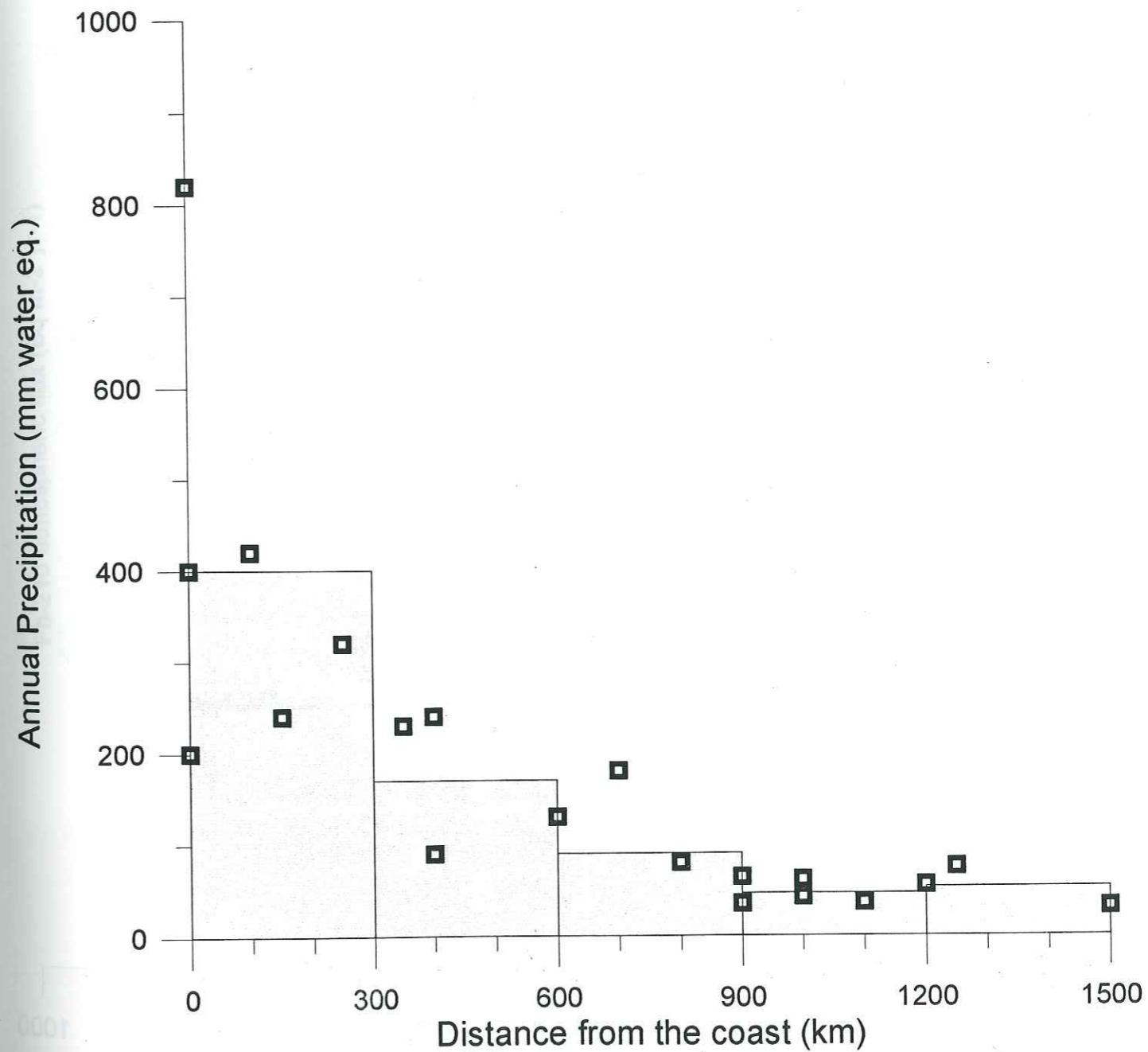


Fig. 11c

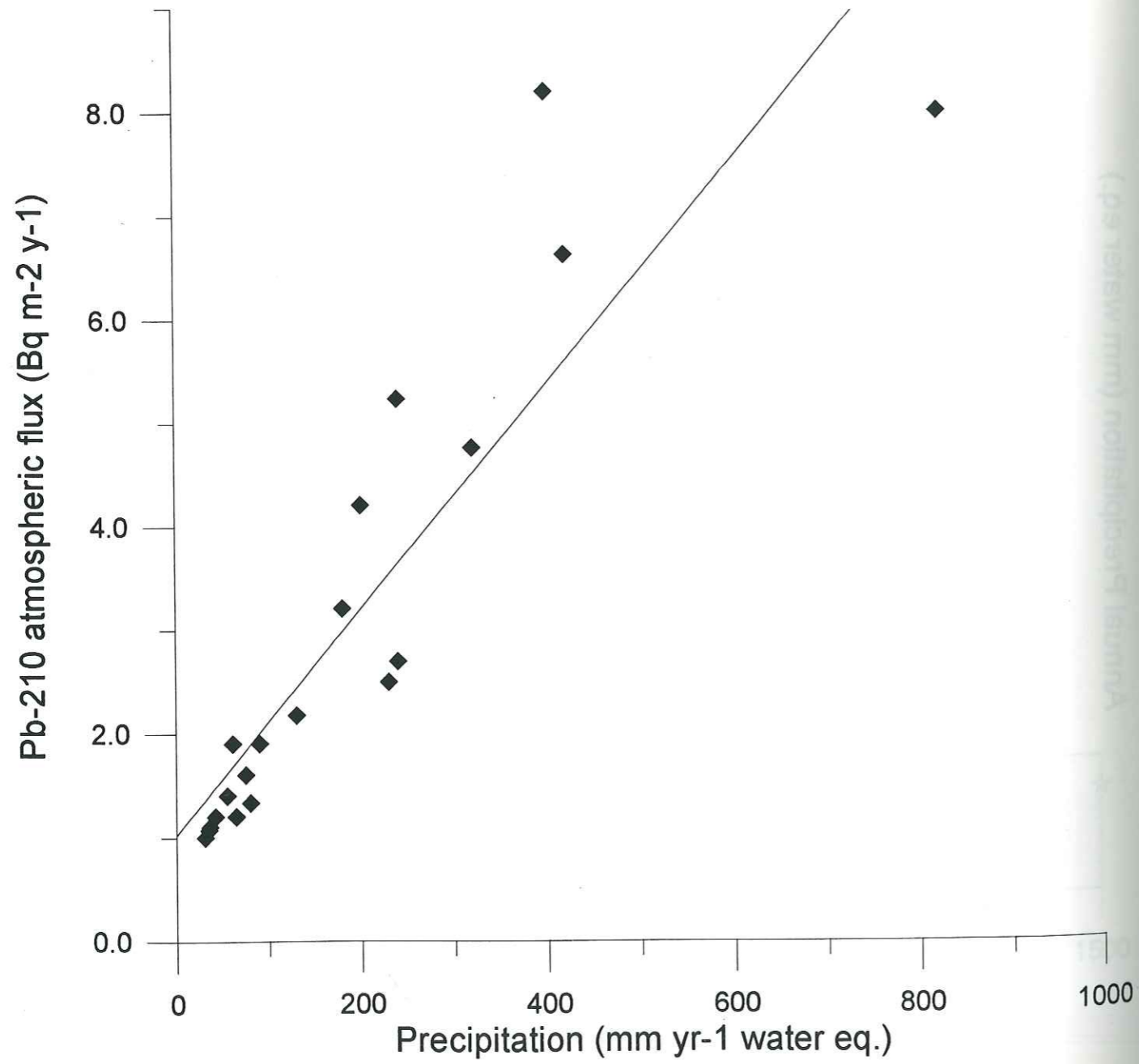


Fig. 12

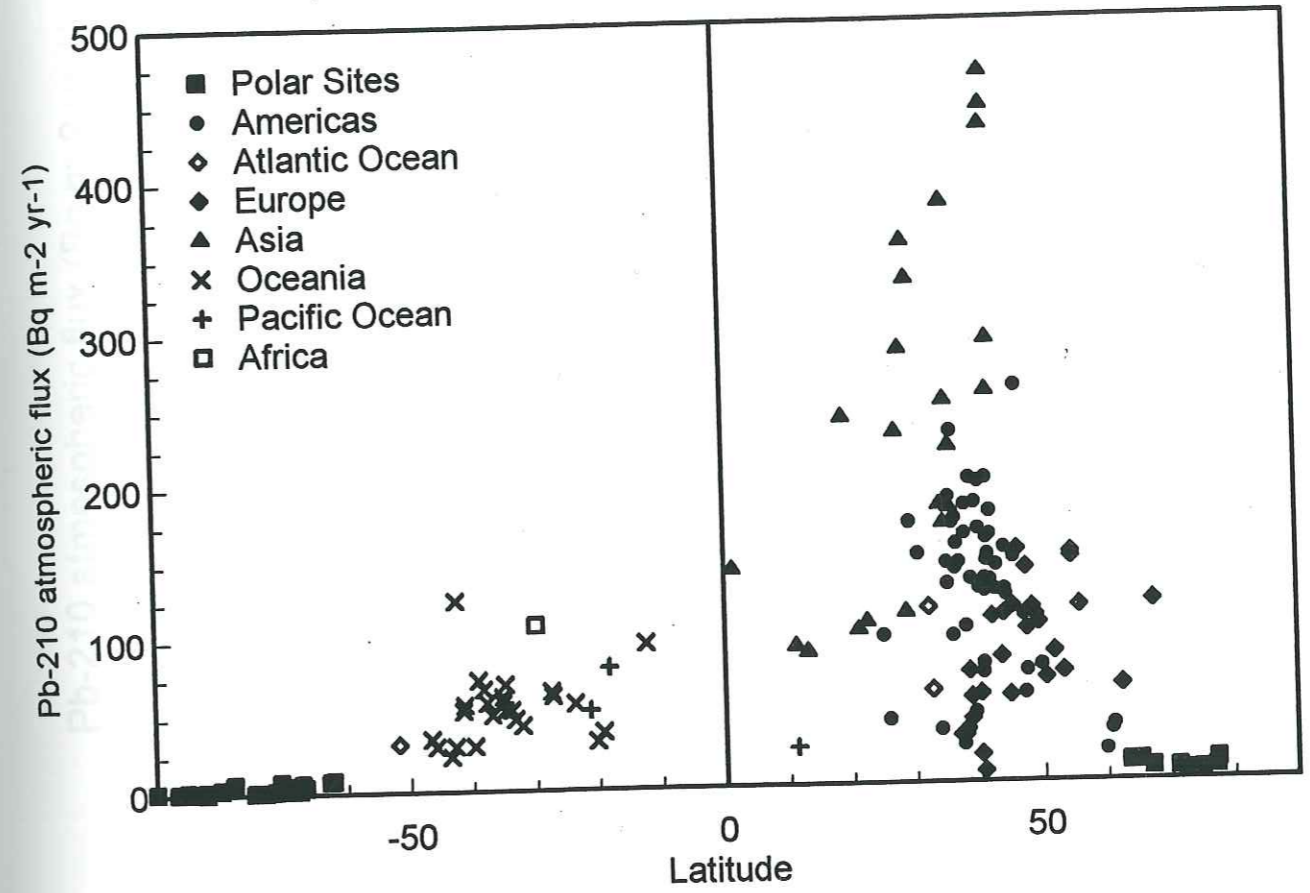


Fig. 13

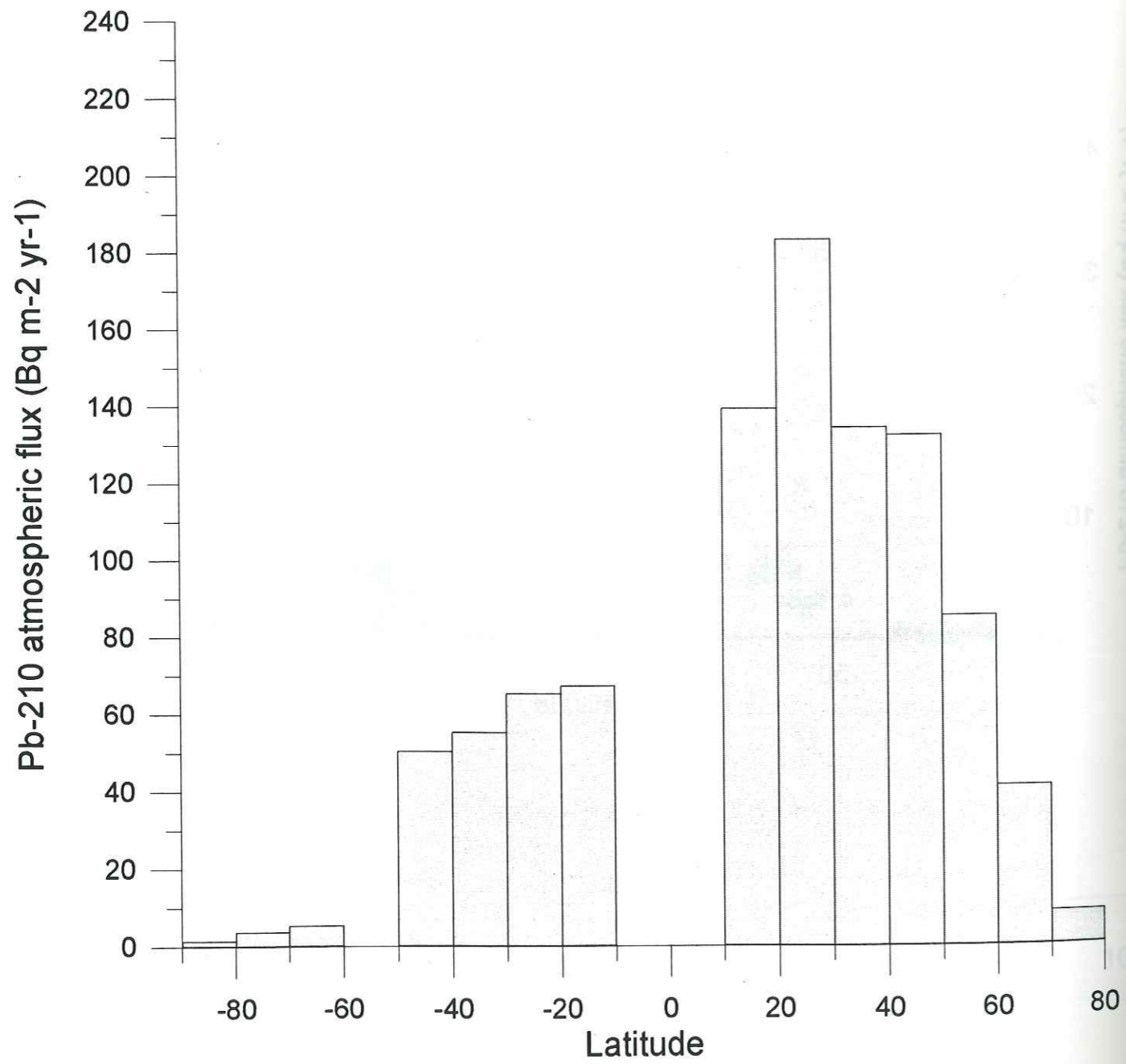


Fig. 14

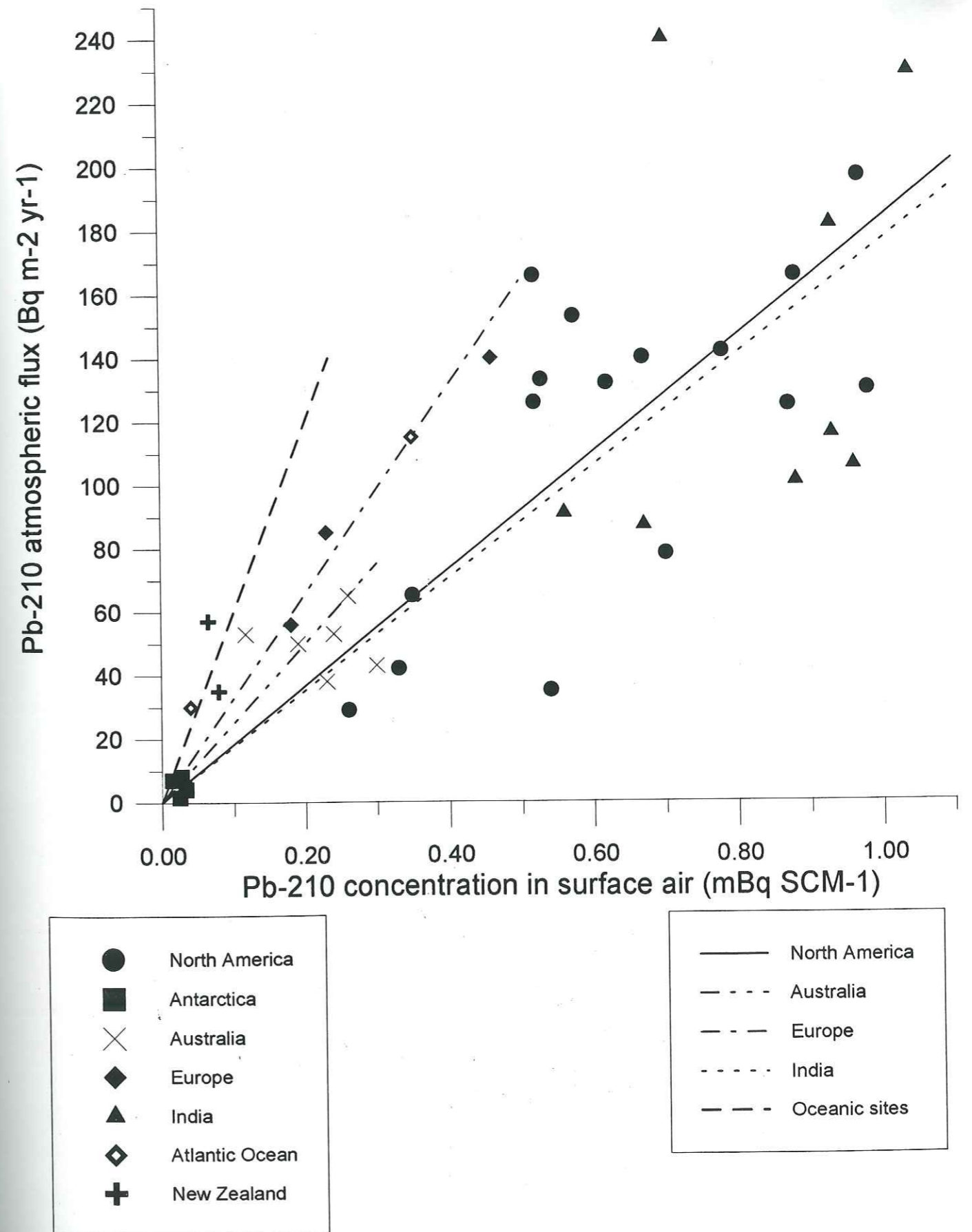
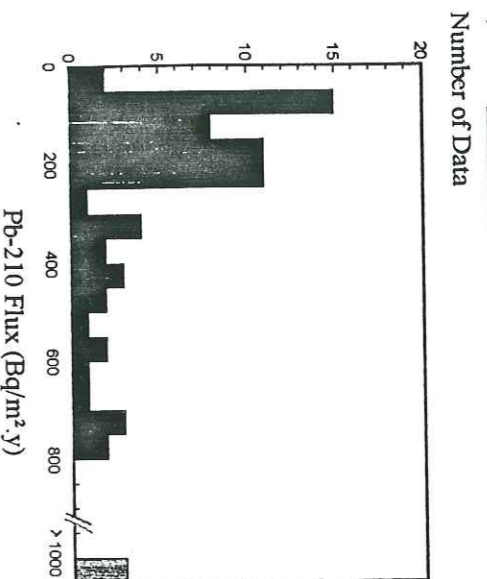
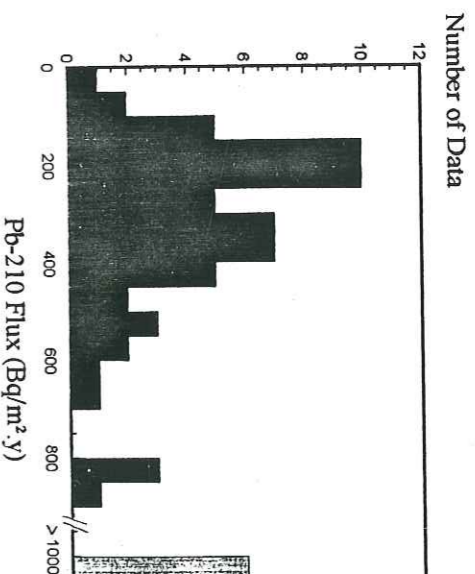


Fig. 16

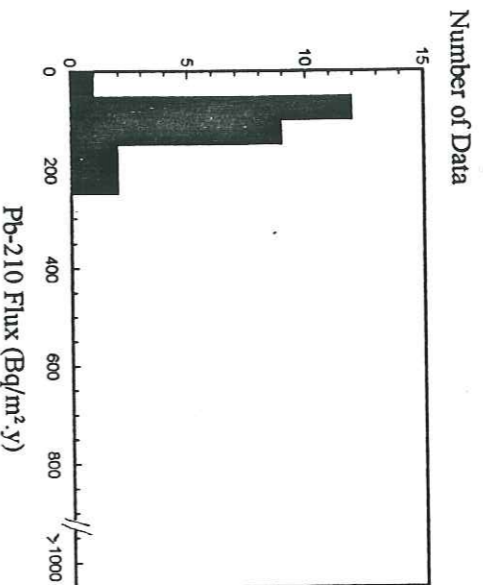
a) Great Lakes



b) Coastal ranges



c) Deep Ocean



d) Lakes, Marshes and Peat Bogs

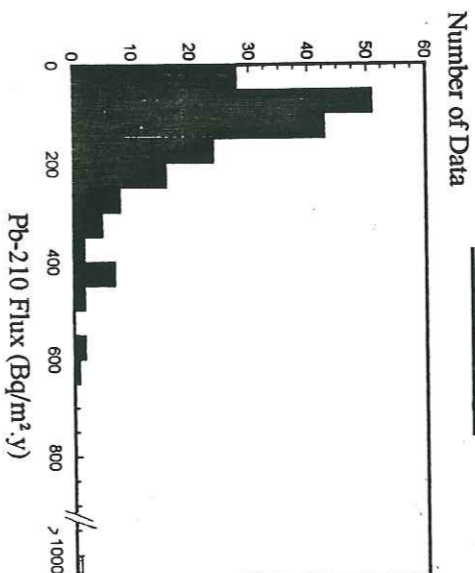
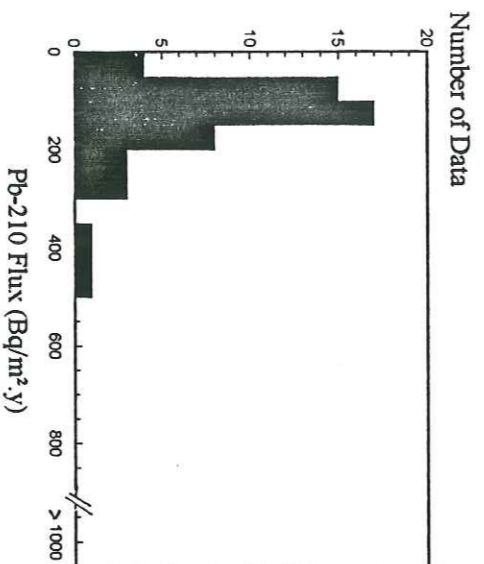


Fig. 15

a) Atmospheric flux



b) Water-sediment flux

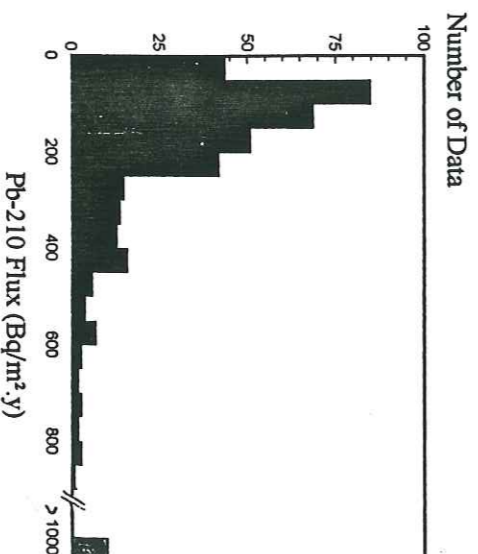


Table I

Latitude band	Lead-210 concentration (mBq m ⁻³)	Ice-free continental area (%)
60° - 80°N	0.31	43.5
30° - 60°N	0.53	50.0
0° - 30°N	0.56	28.7
0° - 30°S	0.28*	22.9
30° - 60°S	0.13	6.0
60° - 90°S	0.024	0.0

* including coastal data only.

Table II

Latitude band	Mean Pb-210 flux (Bq m ⁻² y ⁻¹)
60°- 80° N	25
30°- 60° N	117
10°- 30° N	161
10°- 30° S	66
30°- 50° S	53
60°- 90° S	3.5

Table III:

Regions	NORTH AMERICA	EUROPA	INDIA	AUSTRALIA	ATLANTIC N. ZEALAND	ANTARCTIC CONTINENT
V _d (²¹⁰ Pb) (mm s ⁻¹)	5.8	10.4	5.5	7.9	19.0	7.9

Annexe 4

Utilisation d'une Base de Données de ²¹⁰Pb pour la
Validation d'un Modèle Couplé Climat/Aérosols

**Use of a new database of lead-210 for global aerosol
model validation**

N. Preiss and C. Genthon

Laboratoire de Glaciologie et Geophysique de l'Environnement, CNRS, Saint-Martin
d'Herès, France.

Submitted to J.G.R.

03 October 1996

Use of a new database of lead-210 for global aerosol model validation

N. Preiss and C. Genthon

Laboratoire de Glaciologie et Geophysique de l'Environnement, CNRS, Saint-Martin d'Heres, France.

Abstract. The new comprehensive global database of ^{210}Pb surface concentration and deposition flux assembled by *Preiss et al.* [1996a] is synthesized by reduction and aggregation on a $5^\circ \times 5^\circ$ grid to facilitate and improve the analysis of a GCM-based aerosol and climate model. The model is found to generally underestimate surface concentrations, and to overestimate (underestimate) deposition fluxes over source (non-source) regions (respectively). We think that the simulated precipitation scavenging of aerosols is too efficient in the lower part of the atmosphere, and too weak in the higher levels. This would be consistent with the spatial distribution of concentration and deposition errors in the model, and is backed up by the few available observed vertical profiles of ^{210}Pb concentration. This paper demonstrates the usefulness, appropriateness and convenience for aerosol model validation of the synthesized ^{210}Pb database, which is listed in extenso for use by other modellers.

1 - Introduction

Atmospheric lead-210 (half-life: 22.3 yr), a long-lived radon daughter, is a tracer of atmospheric transport and mixing, and of the deposition processes (dry and moist) which affect aerosols distribution and life time. It is thus sometimes used as a proxy for other aerosol species in global tracer, chemistry, and general circulation models, and as a validation tool for parameterizations of aerosol processes in such models [*Balkansky et al.*, 1993; *Genthon and Armengaud*, 1995b; *Lee and Feichter*, 1995; *WCRP Workshop*, 1995; *Rehfeld and Heimann*, 1995]. Recently, a new global database of ^{210}Pb has been compiled [*Preiss et al.*; 1996a] which groups published and unpublished observed

concentrations in surface air and atmospheric deposition fluxes measured by different types of collectors (natural and artificial). The validation of aerosols models is a natural use of this database and it was, in fact, a main motivation for its assemblage. This paper presents a comparison of data simulated by a global coupled aerosol/general circulation model with a synthetic version of *Preiss et al.* [1996a] database.

Available data of ^{210}Pb are scattered in space and time, and global coverage is sparse and inhomogenous [*Preiss et al.*, 1996b]. The resolution of global models of tracers distribution is several hundred kilometers. To improve the significance of data-model comparisons, we aggregate the comprehensive database of *Preiss et al.* [1996a] on a global $5^\circ \times 5^\circ$ grid and further reduce it by offsetting doubtful or incomplete observations. Altogether, a number can be attributed to only 89 (106) out of $72 \times 36 = 2592$ concentration (deposition flux) grid squares on the globe (respectively). Model results are interpolated on the same $5^\circ \times 5^\circ$ grid (from an irregular grid with $5.6^\circ \times 3.6^\circ$ mean resolution) and we perform model analysis at those grid squares for which an observation is available from the synthesized base.

The coupled model is based on an existing atmospheric general circulation model (GCM). The processes by which climate drives aerosols on a global scale are simulated "in-line" with the climate itself (diffusion, turbulence, convection, large scale transport, and precipitation scavenging). These processes are formulated to take as much advantage as possible of the information provided by the base climate model. Care is exercised to keep the formulations simple and computationally efficient. The formulations developed for some of these processes (transport, turbulence and convection) have already been characterized using ^{222}Rn as a gas tracer [*Genthon and Armengaud*; 1995a]. Here, to some extent, we complement the study using ^{210}Pb as an aerosol tracer. Unlike ^{222}Rn , ^{210}Pb is very sensitive to precipitation scavenging. Also, radioactive decay, which is by far the main sink for ^{222}Rn , has a very weak contribution to removing ^{210}Pb from the atmosphere.

The present introduction is followed by a description of the aerosol-climate model and

of the synthetic database for model validation (section 2). Section 3 is a voluntarily short analysis and discussion of the annual mean simulated ^{210}Pb simulation results, our main point being to illustrate the usefulness and convenience of the synthesized database. Our conclusions on this study are summarized in section 4.

2 - Model, Data, and Simulations

2.1 - The Aerosol-Climate Model

2.1.1 - The base GCM

Much of the model is described in *Genthon and Armengaud* [1995a, 1995b]. It is developed on the basis of the LMD (Laboratoire de Météorologie Dynamique, CNRS, Paris) GCM [*Sadourny and Laval*, 1984]. Formulation is entirely by finite differences. There are 64 equally spaced grid points in longitude (resolution 5.625°) and 50 grid points equally spaced in sine of latitude (mean resolution 3.6°). The vertical coordinate is the normalized pressure $\sigma = P/P_s$, where P is the pressure and P_s the surface pressure. It is discretized on 11 irregularly spaced layers (4 in the boundary layer, 4 in the troposphere, and 3 in the stratosphere). The lowest mid-layer is approximately 70 m above the surface.

2.1.2 - Tracer mixing and transport

Vertical tracer mixing is by boundary layer turbulence, dry and moist convections, and to a small extent by large scale vertical wind. As much as possible, the tracers formulations mimic the corresponding formulations for climate variables (heat, moisture and momentum) in the GCM. In any case, all the relevant information available from the GCM (mixing coefficients, air mass redistribution, cloud fraction, etc.) is used for tracer modelling. Comparison with ^{222}Rn observations and with other models show that the LMD tracers-climate model performs fairly well for vertical mixing (*Genthon and Armengaud* [1995a], *Jacob et al.* [1996]). As a trade-off between computing cost and advection performance, tridimensional transport by explicit winds (large scale transport) is computed

with the 'slope scheme' [*Russell and Lerner*, 1981].

2.1.3 - Source and sinks of ^{210}Pb

The source of ^{210}Pb is simply set equal to the sink of ^{222}Rn in the atmosphere. Indeed, when ^{222}Rn nuclear fission occurs, the full decay chain to ^{210}Pb lasts less than half an hour, which can be considered negligible for our purpose. Lead 210 itself decays with a time constant of $1.028 \cdot 10^9$ s ($\tau_{1/2} = 22.3$ years), which is very long compared to the other processes of removal from the atmosphere. Nevertheless, this is taken into account in the model. Also very short, the time life of free gaseous ^{210}Pb is neglected. The metal atoms are considered to attach immediately to ambient aerosol, mostly submicron particles. Therefore, rather than modeling ^{210}Pb , we actually model aerosol particles traced by ^{210}Pb . For simplicity, we will still refer to ^{210}Pb when we actually discuss features and properties which pertain to the particles which carry ^{210}Pb .

The main sink of atmospheric ^{210}Pb is by precipitation scavenging. Precipitation is diagnosed in the GCM at every model physics time step (30'). In any grid box and at any time step for which precipitation is formed, aerosol is scavenged according to the following simple expression:

$$\Delta Q = Q_0 \left(1 - \exp\left(-\frac{P}{P_{ref}}\right) \right) \quad (1)$$

where Q_0 is the initial tracer mixing ratio before scavenging, P the quantity of precipitation involved (kg m^{-2}) and P_{ref} a parameter having the dimension of precipitation. ΔQ is the quantity of tracer incorporated in the condensed water. Unlike similar expressions used in other models, there is no explicit reference to time in Equation (1). The temporal characteristics of precipitation are entirely determined by the decision by the GCM to form or not precipitation in a given grid box at a given time step.

Equation (1) is expected to model wet removal by condensation of water vapor on the

aerosol particles (condensation scavenging). In addition, wherever and whenever precipitation is formed in a given layer and sweeps through the layers below all the way to the ground, aerosol is removed from the column according to the same simple law (Equation 1) in each affected grid box. This is meant to simulate collision scavenging. The value of parameter P_{ref} depends on precipitation type (solid or liquid, function of temperature) and scavenging type (condensation or collision).

A small but significant fraction of atmospheric ^{210}Pb removal is by dry deposition. This is parameterized at each physics time step (30') by a combination of aerodynamic and diffusion equations. The atmosphere to surface transfer flux is described by a bulk aerodynamic expression:

$$\Phi_{as} = \rho_a C_d (1 + V_s) (Q_a - Q_s) \quad (2)$$

Across the diffusion layer, the surface to ground flux is diffusive:

$$\Phi_{sg} = \kappa Q_s \quad (3)$$

ρ_a is the surface air density, C_d the drag coefficient computed by the GCM for heat and moisture surface flux calculation, V_s is the surface wind velocity extrapolated from the first and second model layers, Q_a is the tracer mixing ratio in the model first layer and Q_s the mixing ratio at surface level. κ is the product of a particle diffusion coefficient and the thickness of the diffusion layer. Practically, κ is adjusted so that the mean ^{210}Pb dry deposition velocity is about $10 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$, a generally accepted value. Note that the actual deposition velocity is locally dependent on surface atmosphere stability through C_d and V_s . Equation (3) implicitly assumes that the particle concentration at ground level is 0, that is, when a particle reaches the ground it is irremediably captured.

2.2 - The New ^{210}Pb Concentration and Deposition Database

Published and unpublished data of ^{210}Pb concentration in surface air and of ^{210}Pb deposition flux at different interfaces have been compiled and assembled in a now available global database [Preiss *et al.*, 1996a]. In this base, sites are grouped by regions

and latitudes. For each site, location, altitude and annual precipitation are also given. When available, sampling periods or periods of observation are indicated. The base includes deposition measurements performed with the different types of collectors (artificial collectors, soil, and snow) most frequently used for ^{210}Pb studies during the last four decades. Most of the data reported in the base are annually-averaged. The base contains 189 data of ^{210}Pb concentration in surface air from 134 sites, 278 atmospheric deposition flux at the Earth surface from 190 sites, and 413 deposition flux at the water-sediment interface from 178 sites.

The interpretation of water-sediment deposition flux in terms of atmosphere-surface flux is complex, so we have excluded this type of data for the present study. The rest of the dataset has been reduced on the basis of the following quality criteria:

- Only data obtained over a period of observation longer than three quarter of a year are retained. If the period of observation is characteristically unrepresentative of a mean year (e.g., if it excludes monsoon period in monsoon-affected areas), then it is rejected.
- Some values are very different from other neighbouring data because measurements are performed at particular locations (high altitude sites, isolated topographic features, local climatic phenomena, etc...) or because disturbances may be expected in the measurement method itself. These data are at best only very locally representative. They cannot be considered for model validation and are excluded. However, some high altitude sites, located on elevated plateau (for exemple, Chacaltaya, 5200m a.s.l., on the Andean Altiplano) or situated within the local atmospheric boundary layer, are taken into account in the reduced database.

To elaborate a resolution-consistent comparison between simulation and observations, we have aggregated the reduced base on a $5^\circ \times 5^\circ$ (latitude/longitude) grid. This box size is chosen as a trade-off between the typical resolution of existing aerosol models (generally at of finer than 5°) and the density of available measurements in densely covered regions. When more than one measurement is available at a given site, data are weight-averaged according to the length of the observation period of each measurement. In the case of deposition flux measurements, data issued from natural soil collectors are

considered with the same statistical weight as data measured with artificial collectors over periods of at least one year. For artificial collection over shorter period, more weight is attributed to the soil measurements. In Antarctica, data from sites located between 85°S and 90°S have been averaged and extrapolated to the entire latitude band (-87.5) because of the uniformity of the region (polar ice sheet) and of the convergence of the meridians.

Figure 1 (a and b) shows that the spatial coverage of the database is sparse not only over the ocean, but also over large continental areas (e.g., Africa, Siberia). We believe that our compilation is quite comprehensive and that the few published data we may have overlooked would not significantly improve this coverage. The (unreduced) database (*Preiss et al.*, 1996a) is continuously being updated to account for new measurements as they are published or otherwise become accessible. Table 1 lists all 89 concentration (from 114 sites) and 106 flux (from 174 sites) entries of the reduced base, along with the number of observation sites within each 5°X5° box. Depending on observation site location within a given box, entries can be representative of all or only part of the regional characteristics. For a tracer which originates from the soil (through soil-exhalation of ^{222}Rn), it is important to know if data are representative of an oceanic, a continental, or a mixed (coastal) site. This information is provided in Table 1 as 'location type'. Ice-covered areas can be continental, yet there is generally no local tracer production. An ice sheet type is thus also defined.

2.3 - Lead 210 simulations

Except for the source, ^{222}Rn is simulated as described in *Genthon and Armengaud* [1995a]. The ^{222}Rn source prescribed for the World Climate Research Program intercomparison of convective and synoptic transport in global atmospheric models, as reported and discussed for instance by *Jacob et al.* [1996], is used here. Decaying ^{222}Rn is the only source of ^{210}Pb in the model.

P_{ref} (Equation 1) and κ (Equation 3) are the only adjustable parameters within the tracer part of the model. The dry deposition flux is linear in κ , so adjusting this parameter against observation is rather straightforward. Determining appropriate values for P_{ref} is more difficult as well as particularly important because most ^{210}Pb deposition is by wet removal. In previous work with the model [*Genthon and Armengaud*, 1995b], a same value of P_{ref} was used for all wet removal processes (condensation and collision, by liquid and solid precipitation). The value was selected in order that the mean simulated quantity of ^{210}Pb in the whole atmosphere is compatible with the estimate of *Lambert et al.* [1982]. Extrapolating over the entire globe a set of scattered observations of radionuclide concentration and deposition flux, *Lambert et al.* [1982] suggest that there are $7.7 \cdot 10^{23}$ atoms of ^{210}Pb in the atmosphere, and that the mean surface exhalation of ^{222}Rn over continents is 7200 atoms per square meter and per second. Our source is close to 10000 atoms per square meter and per second, so that about $11 \cdot 10^{23}$ atoms of ^{210}Pb are expected in the simulated atmosphere. To obtain this number, we found that $1/P_{\text{ref}}$ should be given a value of $0.5 \text{ kg}^{-1} \text{ m}^2$.

In fact, condensation scavenging is generally considered more efficient than collision scavenging. This is particularly true for highly hygroscopic particles such as sulfate which, because they are globally abundant, support most of ^{210}Pb . Condensation within warm clouds is observed to remove 90% or more of the ambient aerosols. The scavenging efficiency of cold cloud condensation is very uncertain, but it might not be much less than for warm clouds. Below cloud scavenging is also uncertain. Below cloud impaction scavenging by rain drops is generally much less efficient than liquid condensation scavenging in the cloud. Impaction by large snow flakes might be rather efficient, yet it is also rather infrequent. Impaction by solid particles of the size of rain drops is probably no more efficient than corresponding liquid impaction.

Altogether, in-cloud condensation scavenging is probably the most efficient process of wet scavenging, a possibility that we test here by setting $1/P_{\text{ref}}$ to 0 for both liquid and solid impaction scavenging. In order that the mean quantity of ^{210}Pb remain constant (about $11 \cdot 10^{23}$ atoms), the value of $1/P_{\text{ref}}$ for liquid and solid condensation is set to 1.0

instead of 0.5.

3. Model Results and Comparison with Observations

The simulation is run for 36 months, including 12 months for initialization and spin-up. Results presented and analyzed here are therefore those of the last 2 years of simulation. To compare directly the model results with observations issued from the synthesized gridded database, the initial model grid is also interpolated on a regular $5^\circ \times 5^\circ$ grid. Then, each box for which an entry exists in the database is compared with the corresponding model grid point. Simulation results are analyzed for ^{210}Pb concentration in surface air (Figure 2) and total ^{210}Pb deposition flux (Figure 3). To quantify model errors, we use the percent model bias (p.m.b.) as defined in *Balkanski et al.* [1993]:

$$\text{p.m.b.} = 100 \frac{(V_s - V_o)}{\max(V_s, V_o)} \quad (4)$$

where V_s and V_o are the simulated and observed values, respectively.

Percent model biases are shown for all available grid box for surface concentration (Figure 4a) and deposition flux (Figure 4b).

Table 2 shows the mean model concentration and flux biases, averaged separately over the continents and the ocean (except the polar regions) and over the polar regions. The model systematically underestimates surface concentrations. The error is small over lands, that is, over source regions. It is larger elsewhere, and particularly high over the Arctic region. If globally integrated, taking into account the respective surface of land and continent on the globe, the mean concentration bias is -19.2%. In other words, the model underestimates surface concentrations by about 20% on average.

Flux biases are positive in source regions as well as in the polar regions. They are

negative over the oceans. Considering that our data-model comparison, although global, addresses only a small fraction of the entire globe, the fact that the areally averaged global flux bias is very close to 0 might be partly fortitious. However, if our prescribed source is correct, then at steady state the regional deposition errors must compensate to yield a correct global sink. The almost zero global deposition bias may then indicate that the spatial distribution of observational control is sufficient to allow globally valid analysis since it is adequate to check that the global source and sink balance.

Yet, model results can certainly be better compared with observations and discussed on a regional basis (Figures 4a and 4b). For instance, in the mid-latitudes, the eastern and western flanks of the continents have very different characteristics. Because of the dominant westerly winds, the west is affected by an oceanic, moist, and ^{210}Pb depleted air flow. The atmosphere is drier, and precipitation generally less, but the air is much more loaded in ^{210}Pb over the eastern lands. The eastern high concentrations are fairly well reproduced by the model (Figure 4a), in South-East Australia (p.m.b. = +5.3%) and in the eastern United States (p.m.b. = +2.9%). Concentrations are slightly underestimated in the Japanese islands (p.m.b. = -18.9%) but these can only partially be considered as continental since medium-range transport across the seas of Japan and of China is involved. As transport gets longer, concentrations tend to be more underestimated (e. g. New-Zealand, p.m.b. = -33.9%). At the west of the continents, where truly long-range transport of ^{210}Pb is involved, concentrations are clearly low, e.g., in Western South America (Chile, p.m.b. = -55.1%), Western Australia (Perth, p.m.b. = -34.8%), Western Europe (p.m.b. = -25.0%) and Western United States (p.m.b. = -24.1%). Concentration biases are also negative in the tropical oceans (p.m.b. = -40.3%) and in the polar regions (p.m.b. = -34.3%).

If this picture at the surface holds deep in the atmosphere, then the aerosol transport efficiency (or, equivalently, the aerosol life-time) is systematically too low in the model. However, the few available ^{210}Pb measurements above the surface (Figure 5) suggest that simulated ^{210}Pb concentrations may be too high rather than too low in the medium and higher tropospheric levels (Figures 5a and 5b). Previous studies of ^{222}Rn in this

model (*Genthon et Armengaud* [1995a], *Jacob et al.* [1996]) suggest that horizontal transport, vertical mixing, and resulting tracer distributions are roughly in agreement with observation for a tracer which is not affected by deposition. Thus, we suspect that inadequate deposition formulations in the model are responsible for a poor reproduction of ^{210}Pb vertical distribution, with consequences on the horizontal distribution of surface concentration and deposition flux.

Even though the surface concentrations are correct in Eastern United States and Southeast Australia, deposition fluxes are too high (p.m.b. = +31.6% and +27.3%, respectively, figure 4b). Globally, the flux bias tends to be less and to become negative as the transport range increases. The model parameterizations for deposition could simply be systematically too efficient, but that would be inconsistent with the requirement that the total amount of ^{210}Pb in the model is correct. If the mean deposition is correct, then its distribution in space and time must be wrong.

A workshop [*WCRP*, 1995] was recently held to, among other goals, evaluate and compare the precipitation scavenging of a number of tracers models worldwide. Visual inspection of standard diagnostics suggested that the LMD model tends to scavenge aerosols more efficiently in the low atmosphere than other models (and correspondingly less efficiently higher in the atmosphere). Measurements of scavenging efficiency are much too scarce to allow a clear identification of which models are right, if any, but we seriously consider the possibility that the LMD model is in error in this respect. In the present study (compared to the model version which participated in the WCRP intercomparison), setting the collision scavenging parameter $1/P_{\text{ref}}$ to 0 (section 2.3) does raise the level of maximum aerosol removal, but might not fully solve the problem. Indeed, the vertical profile of concentration of Figure 5, with a slope opposite to the observed (Figure 4b shows that the surface concentration is too low in the area where this profile was measured), suggests that removal along the pathway of transport to the East Pacific is too low in the high levels.

This is consistent with the general picture (Figure 4a) of a surface concentration being

correct in source regions and increasingly underestimated as the distance to the source increases. Deposition also decreases with distance to the source (Figure 4b) because the low levels where scavenging is more efficient are rapidly depleted. However, this apparently does not hold in the polar regions where deposition is too high.

Precipitation is a climate variable which GCMs do not accurately reproduce, but which directly affects aerosol distributions through wet removal. For instance, in Antarctica, precipitation is strongly overestimated by the LMD GCM, a feature which is consistent with an excess of ^{210}Pb deposition. To primarily sort out the respective responsibilities of climate and tracer modeling shortcomings in deposition errors, we have compared with observed total flux, not only the simulated flux F_s but also a "corrected" flux defined as follows:

$$F_c = \frac{(F_s \cdot P_o)}{P_s} \quad (5)$$

where P_o and P_s are the observed and simulated precipitation, respectively. The corrected flux over Antarctica is less than the observed (p.m.b. = -38.2% on average). It is thus most probably because model precipitation is overestimated that the direct (non-corrected) flux is overestimated and inconsistent with the general picture of a model affected by an inadequate vertical distribution of aerosol scavenging. The corrected flux does fit with this picture.

In addition, if applied to continental India, the flux correction yields a strongly positive flux bias (p.m.b. = +54%) instead of the underestimated direct flux shown on figure 4b. Again, this is in better agreement with the general picture above. On the other hand, applying flux correction to the Arctic does not help fit with this picture. It only makes deposition in the Arctic spatially consistent since the corrected flux bias is positive everywhere, including Svalbard. *Preiss et al.* [1996b] mention that over the Greenland ice sheet, the observed fluxes appear anomalously low with regard to the corresponding atmospheric concentration. This unusual feature in the real world is not reproduced by

the model, possibly because some specific processes (circulation, deposition?) are at work in this region. This point certainly deserves further examination but is outside the limited scope of the present paper.

4. Conclusions

Lead 210 has in a number of instance been used to study and calibrate aerosols models. However, the relatively large number of available observation covers only a limited fraction of the entire globe, with a strong bias toward the lands. In addition, the spatial significance of each of these measurements can be rather limited because the distribution of sources and sinks can induce sharp gradients. As a consequence, the analysis and comparison with these observations of relatively crude resolution global ^{210}Pb models is not straightforward.

Here, to facilitate the analysis of the LMD GCM-based aerosol-climate model, we have sorted and aggregated on a $5^\circ \times 5^\circ$ grid the new compilation of ^{210}Pb surface concentration and deposition observations assembled by *Preiss et al.* [1996a]. Less than 4% of the full grid can be confidently filled. The model is thus quantitatively evaluated over a very small fraction of the globe, but because the balance of source and sink is verified we think that the global representativeness of the synthesized database is sufficient.

It clearly comes out that the simulated surface concentration is mostly underestimated, and more so away from the source regions. Deposition fluxes are overestimated over source regions and underestimated elsewhere. This, along with three published vertical profiles of ^{210}Pb concentration in the atmosphere, is compatible with the following explanation: In the model, the vertical distribution of precipitation scavenging is wrong. It is too strong in the low atmospheric levels and too weak higher up. That our parameterization of precipitation scavenging has deficiencies is not very surprising, considering how simple it is (Equation 1) compared to the complexity of the real processes. Further analysing and tentative improvement of this formulation is beyond the point of the present paper and will be the object of a separate work. Here, we only

illustrate that the synthesized observation database is particularly fitted for model validation, a fact that we think is shown by the simplicity and straightforwardness of the model study presented here. The synthesized database is fully listed in Table 1 for use by other modelers.

Acknowledgements. The LMD GCM was developed by Laboratoire de Météorologie Dynamique (CNRS, Paris). The Centre Grenoblois de Calcul Vectoriel (CEA, Grenoble) and the Institut de Développement des Ressources Informatiques Scientifiques (CNRS, Palaiseau) granted computing time on their respective Cray C90. Support by the French Programme National d'Etude de la Dynamique du Climat is acknowledged.

Figure captions:

Figure 1: The synthesized ^{210}Pb observation database; (a) Lead-210 concentration in surface air, in mBq m^{-3} ; (b) Lead-210 deposition flux at the surface, in $\text{Bq m}^{-2} \text{yr}^{-1}$. In central Antarctica, data between 85°S and 90°S are extrapolated to cover the whole latitude band (see text).

Figure 2: The simulated ^{210}Pb concentration in surface air, in mBq m^{-3} ; (a) Global distribution; and (b) Database grid squares only.

Figure 3: The simulated ^{210}Pb deposition flux, in $\text{Bq m}^{-2} \text{yr}^{-1}$; (a) Global distribution; and (b) Database grid squares only.

Figure 4: The model percent mean biases, in percent; (a) Concentration in surface air; and (b) Deposition flux.

Figure 5: Vertical profiles of ^{210}Pb concentration in air;

(a) Eastern pacific. Observation from *Moore et al.* [1977];

(b) Western Central US. Observation from *Moore et al.* [973];

(c) United Kingdom. Observation from Peirson *et al.* [1966].

Table 1: The synthesized gridded database in extenso. Grid boxes are sorted by continent, latitude and longitude. For each grid box, we give the coordinates of grid centre, the mean surface concentration, the mean deposition flux (in parenthesis, the number of observation averaged), and the location type. Type in normal (*italic*, underlined) police refer to concentration (*flux*, both, respectively).

Table 2: Regionally (continents, oceans, polar regions) and globally averaged concentration and flux percent mean bias. n is the number of data in the synthesized database entering each average. Global averages are surface-weighted.

References

Balkanski, Y. J., D. J. Jacob, G. M. Gardner, W. C. Graustein, and K. K. Turekian, Transport and residence times of tropospheric aerosols inferred from a global three-dimensional simulation of ^{210}Pb , *J. Geophys. Res.*, 98(11), 20,573-20,586, 1993.

Genthon, C., and A. Armengaud, Radon 222 as a comparative tracer of transport and mixing in two general circulation models of the atmosphere, *J. Geophys. Res.*, 100,(2), 2,849-2,866, 1995a.

Genthon, C., and A. Armengaud, GCM simulations of atmospheric tracers in the polar latitudes: South Pole (Antarctica) and Summit (Greenland) cases, *The Sci. Tot. Environ.*, 160/161, 101-116, 1995b.

Jacob, D. J., M. J. Prather, P. J. Rasch, J. Feichter, I. Köhler, P. S. Kasibhatla, G. Verver, P. J. M. Van Velthoven, J. E. Dignon, J. E. Penner, D. J. Bergmann, C. Genthon, Y. J. Balkanski, M. Ramonet, P. Zimmermann, S. R. Beagley, J. de Grandpré, W. T. Blackshear, W. L. Grose, D. A. Rotman, M. Chiba, M. Chipperfield, Z. Stockwell, R. L.

Shia, K. Law, O. Wild, C. E. Reeves, M. Brown, H. Yang, and M.A. Kritz, Intercomparison of global atmospheric transport models using ^{222}Rn and other short-lived tracers, submitted to *J. Atmosph. Res.*, 1996.

Lambert, G., G. Polian, J. Sanak, B. Ardouin, A. Buisson, A. Jegou, and J. C. Le Roulley, Cycle du radon et de ses descendants: application à l'étude des échanges troposphère-stratosphère, *Ann. Geophys.*, 48, 497-531, 1982.

Lee, H. N., and J. Feichter, An intercomparison of wet deposition scavenging schemes and the emission rates of ^{222}Rn for the simulation of global transport and deposition of ^{210}Pb , *J. Geophys. Res.*, 100(11), 23,253-23,270, 1995.

Moore, H. E., S. E. Poet, and E. A. Martell, ^{222}Rn , ^{210}Pb , and ^{210}Po profiles and aerosol residence times versus altitude, *J. Geophys. Res.*, 78(30), 7065-7075, 1973.

Moore, H. E., S. E. Poet, and E. A. Martell, Vertical profiles of ^{222}Rn and its long-lived daughters over the eastern Pacific, *Environ. Sci. Technol.*, 11(13), 1207-1210, 1977.

Peirson, D. H., R. S. Cambay and G. S. Spicer, Lead-210 and polonium-210 in the atmosphere, *Tellus*, 18, 427-433, 1966.

Preiss, N., M. A. Mélières, and M. Pourchet, Database on lead-210 concentration in surface air, lead-210 atmospheric deposition and water-sediment flux, Available on *Websserver*, http://glaciog.grenet.fr/equipes/glacier/donn_html, Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement, Saint-Martin-d'Heres, France, 1996a.

Preiss, N., M. A. Mélières, and M. Pourchet, A compilation of data on lead 210 concentration in surface air and fluxes at the air-surface and water-sediment interfaces, *J. Geophys. Res.*, in press, 1996b.

Rehfeld, S., and M. Heimann, Three-dimensionnal atmospheric transport simulation of the

radioactive tracers ^{210}Pb , ^7Be , ^{10}Be , and ^{90}Sr , *J. Geophys. Res.*, 100(12), 26,141-26,161, 1995.

Russell, G. I., and J. A. Lerner, A new finite differencing scheme for the transport tracer equation, *J. Appl. Meteorol.*, 20, 1483-1498, 1981.

Sadourny, R., and K. Laval, January and july performance of the LMD-GCM, in *New Perspectives in Climate Modelling*, edited by A. L. Berger and C. Nicolis, pp. 173-197, elsevier, New York, 1984.

World Climate Research Program, Modelling the transport and scavenging of trace constituents by clouds in global atmospheric models, Workshop, Cambridge, England, Aug. 1-4, 1995.

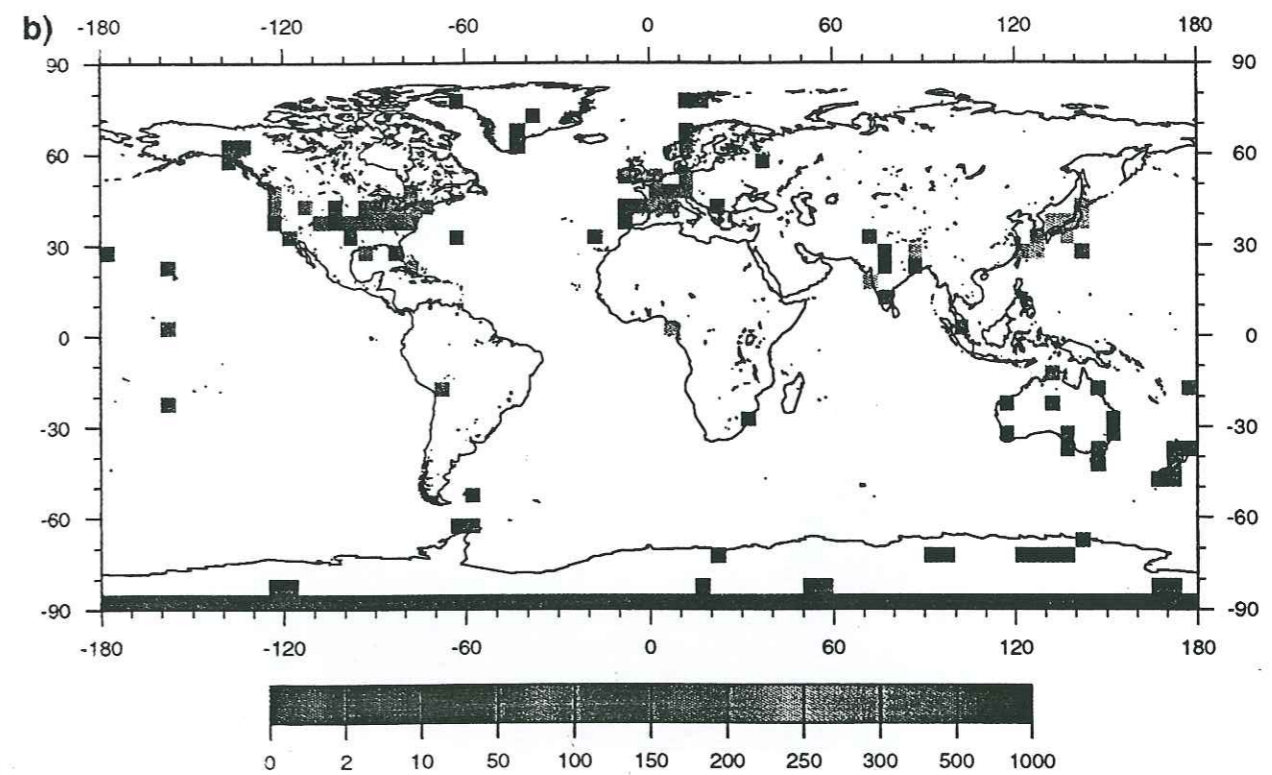
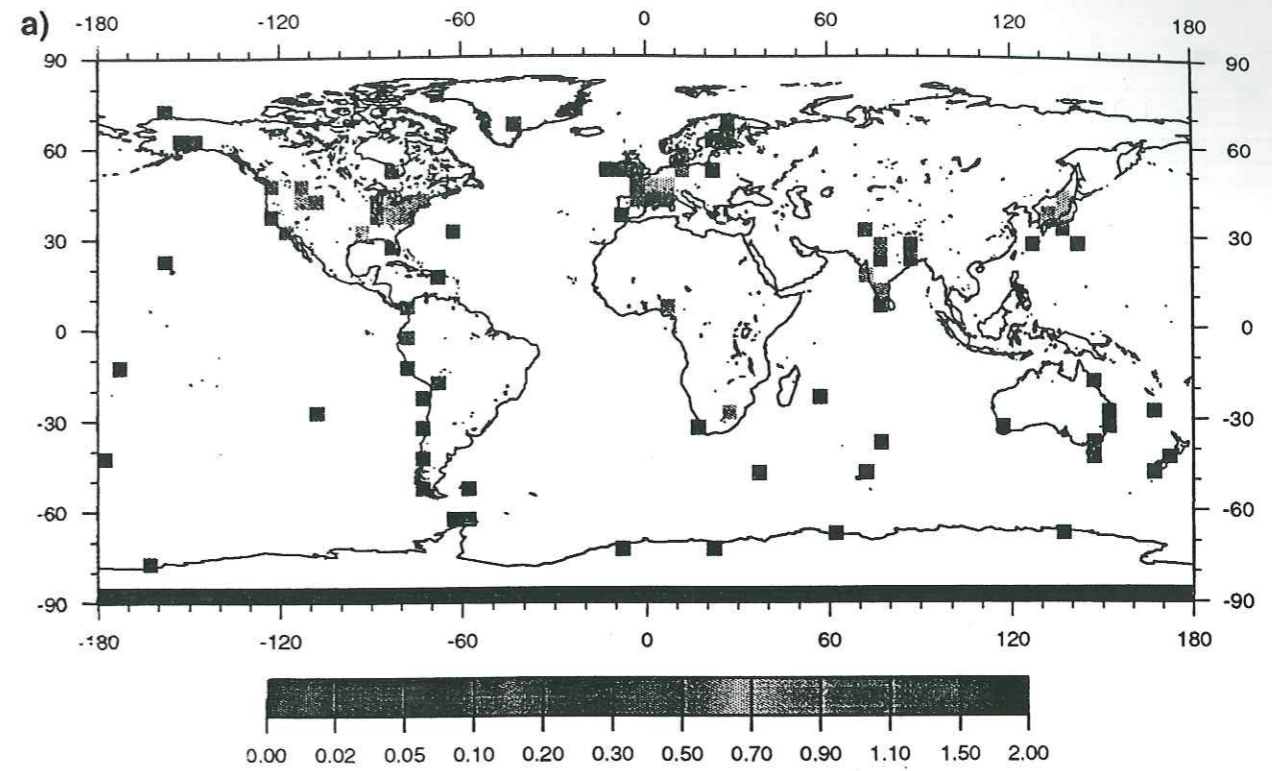


Fig. 1

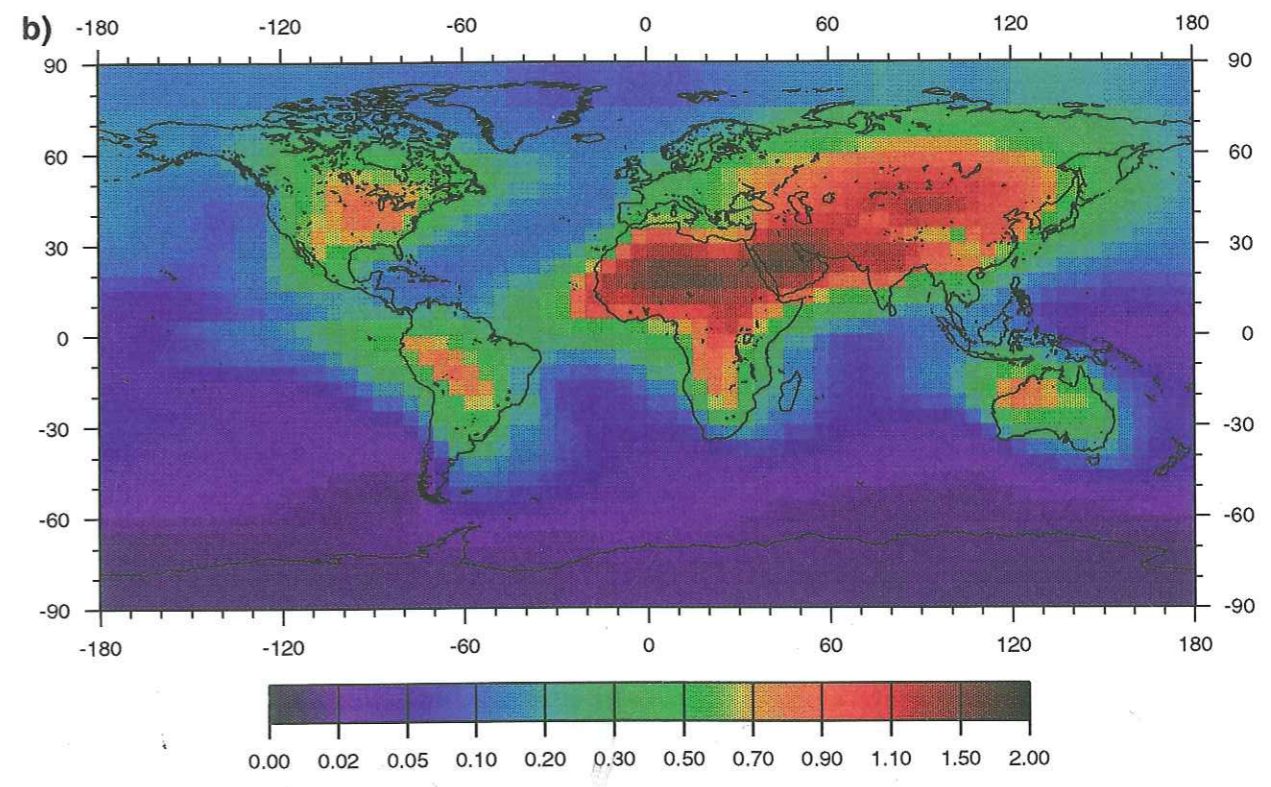
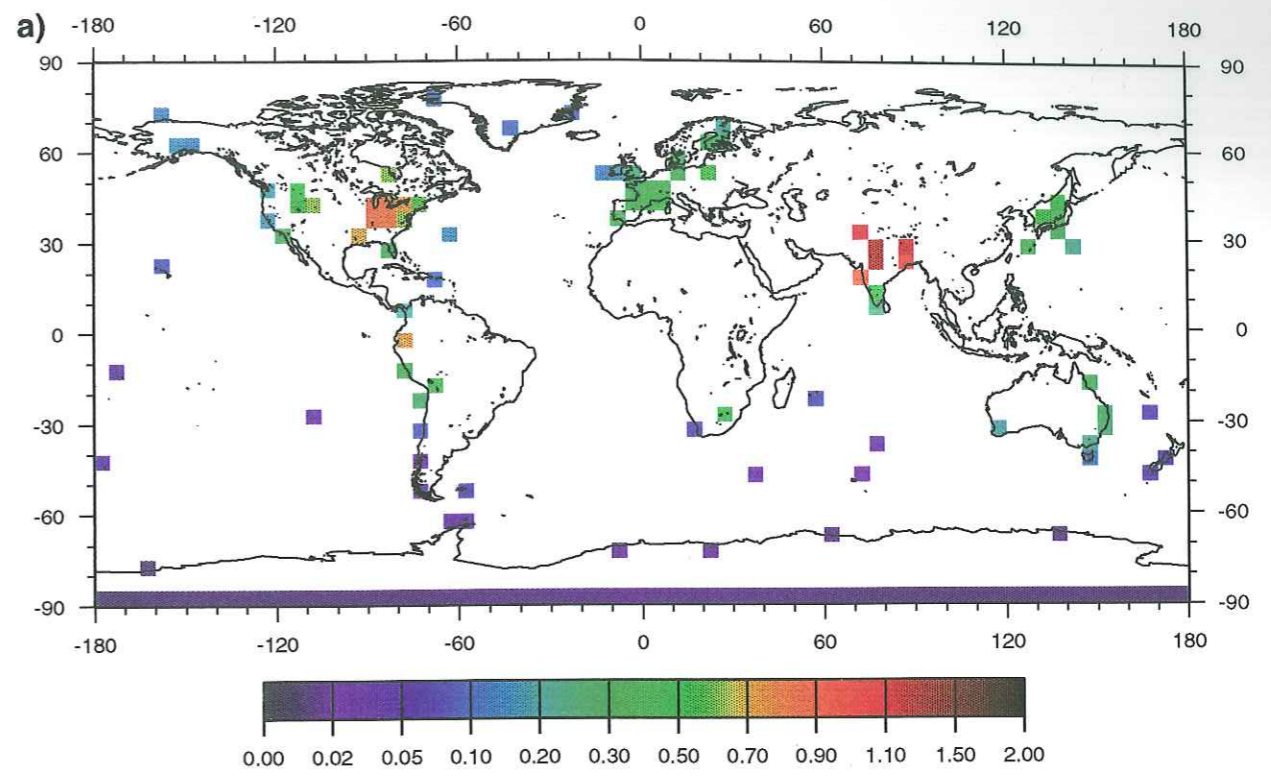


Fig. 2

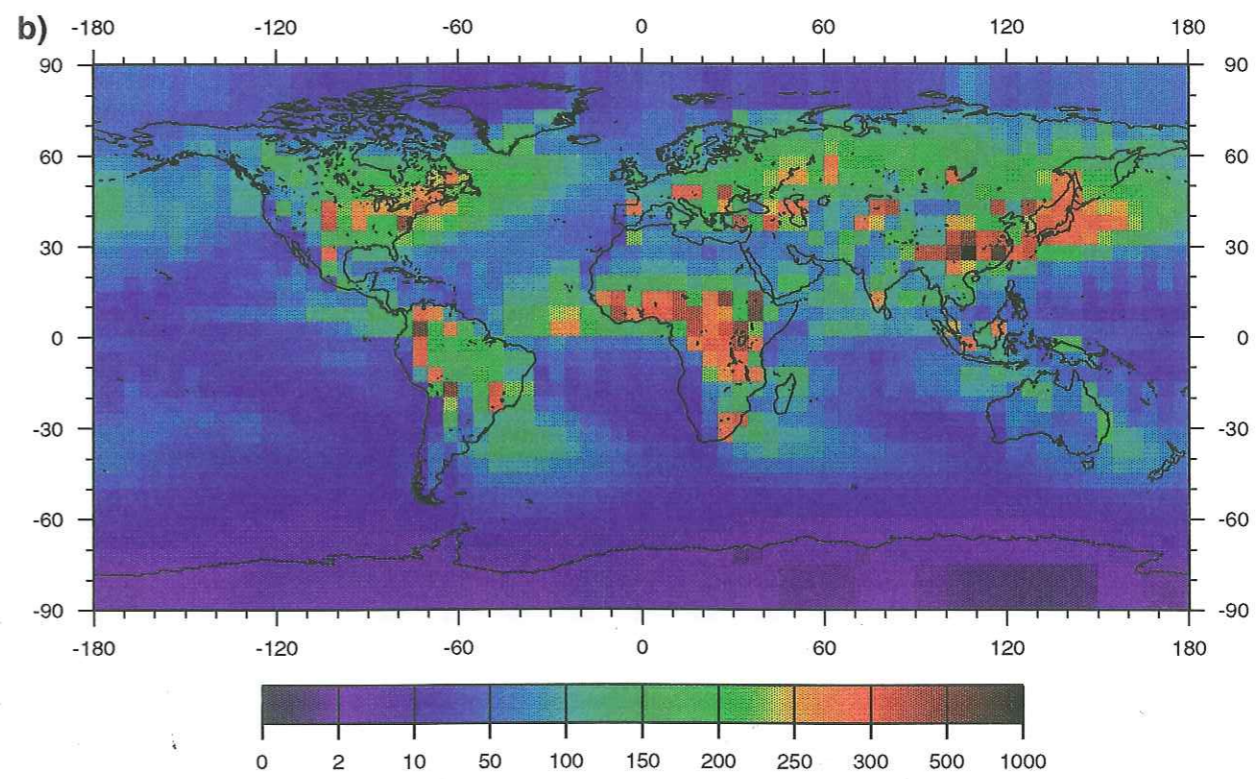
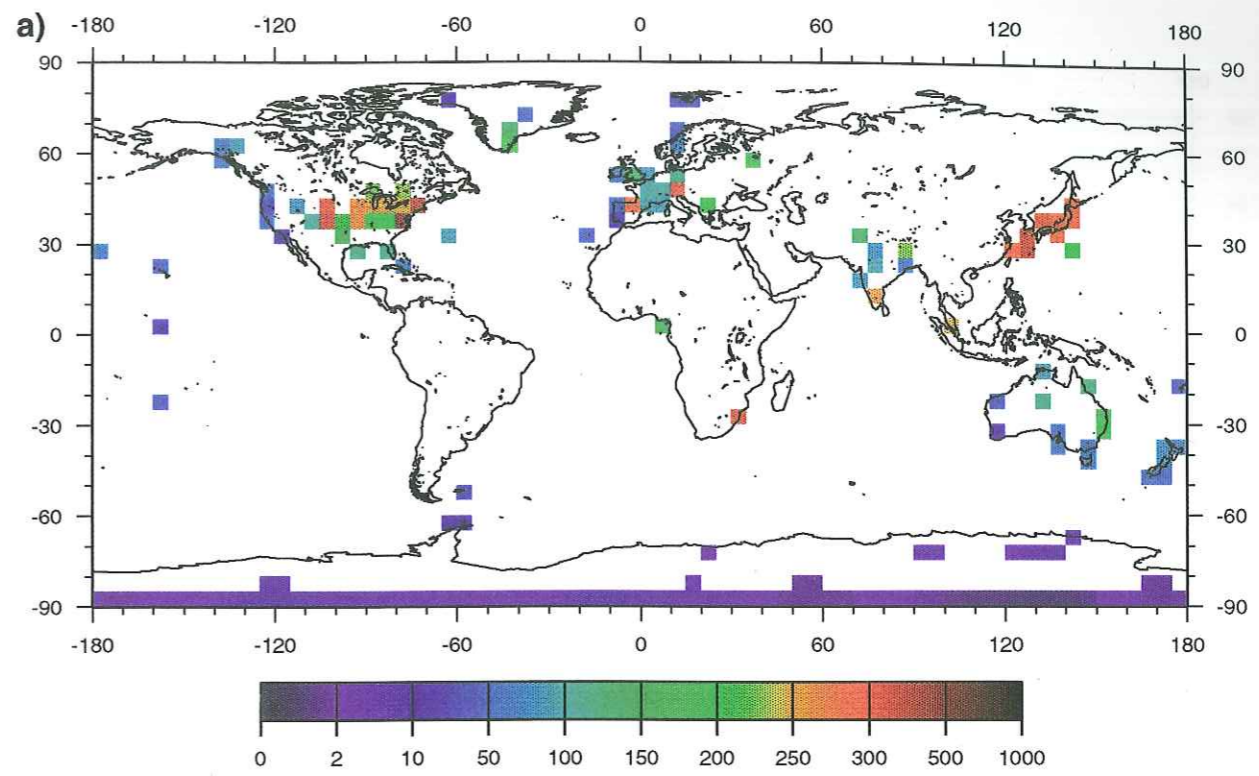


Fig. 3

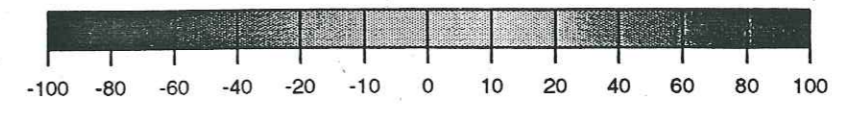
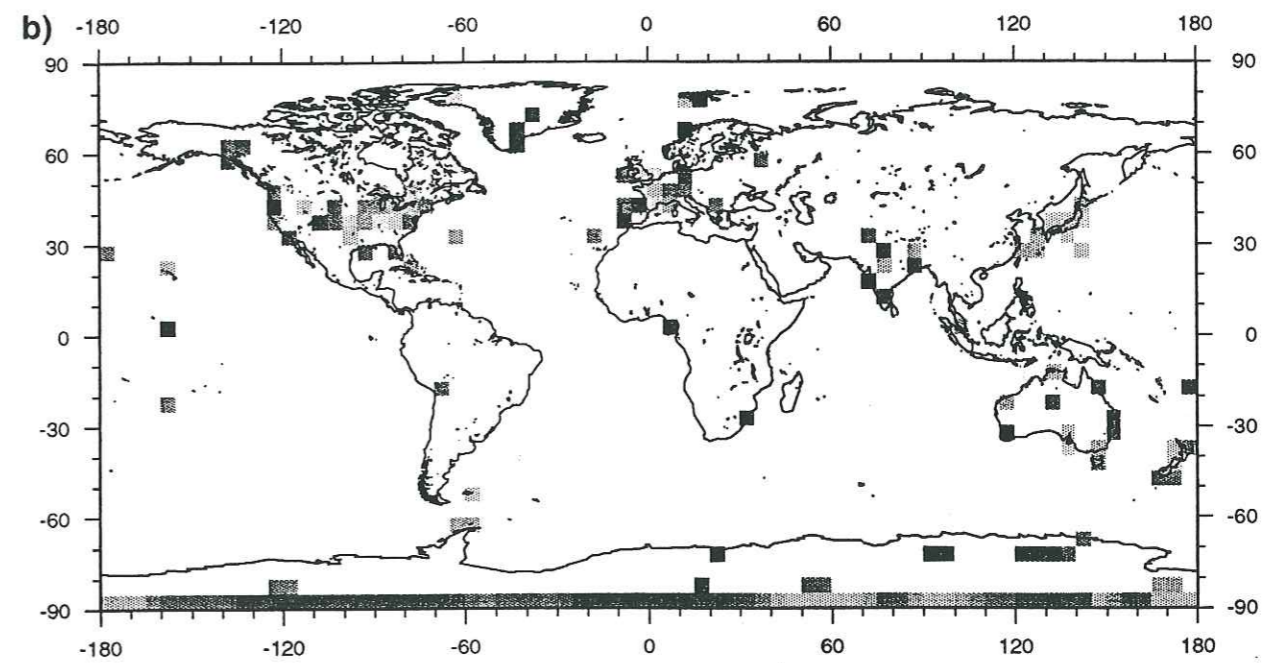
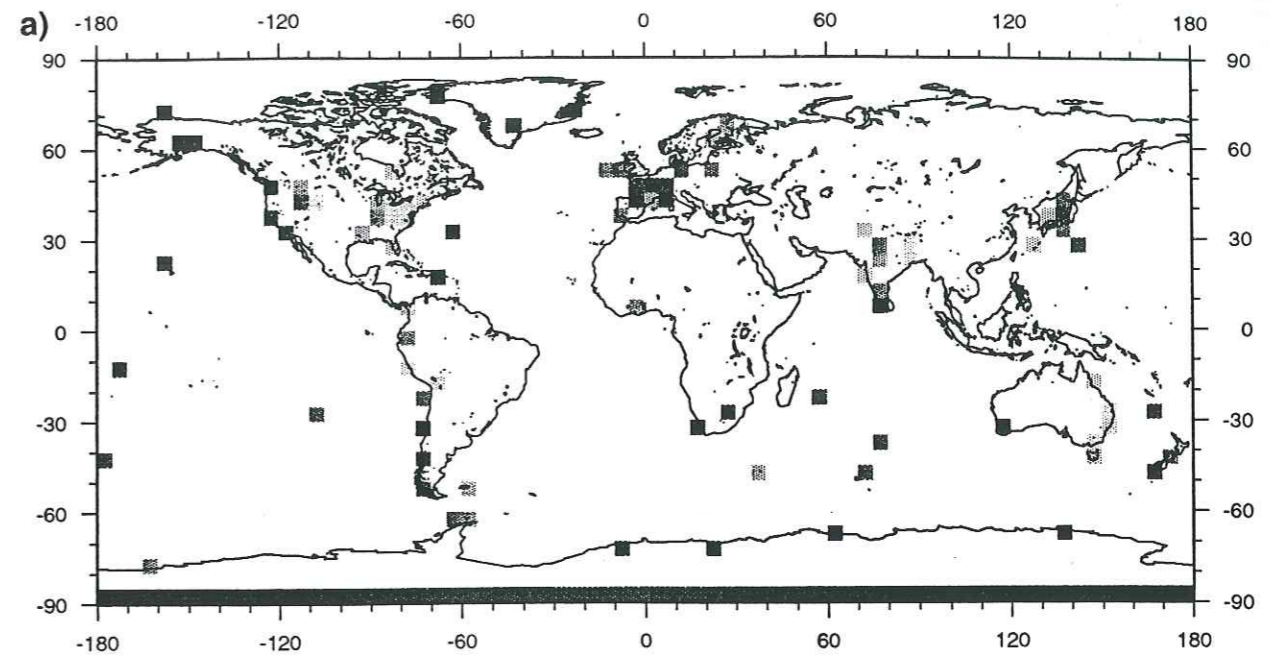
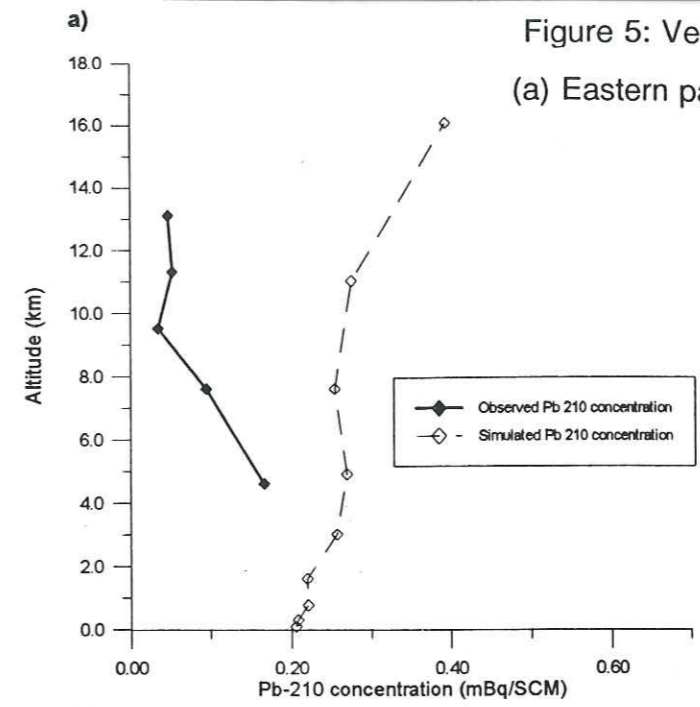


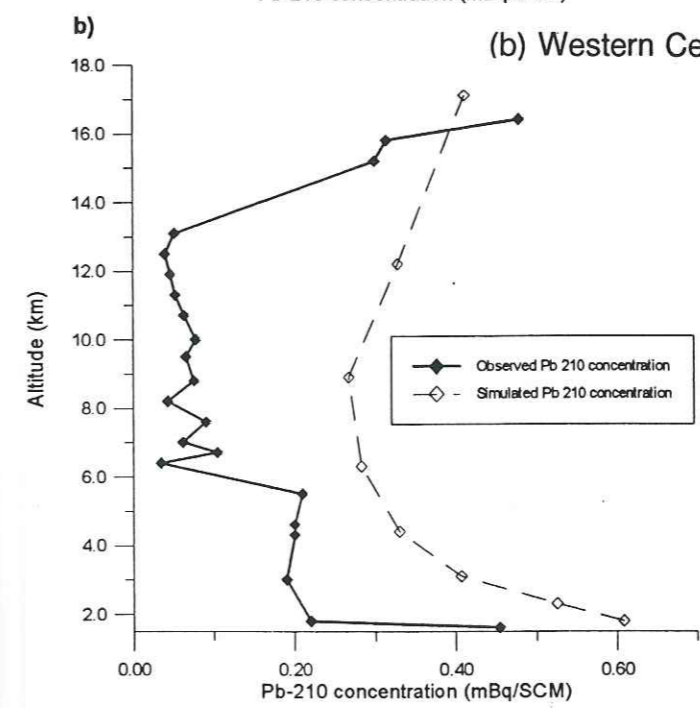
Fig. 4

Figure 5: Vertical profiles of ^{210}Pb concentration in air;

(a) Eastern pacific. Observation from *Moore et al.* [1977];



(b) Western Central US. Observation from *Moore et al.* [973];



(c) United Kingdom. Observation from *Peirson et al.* [1966].

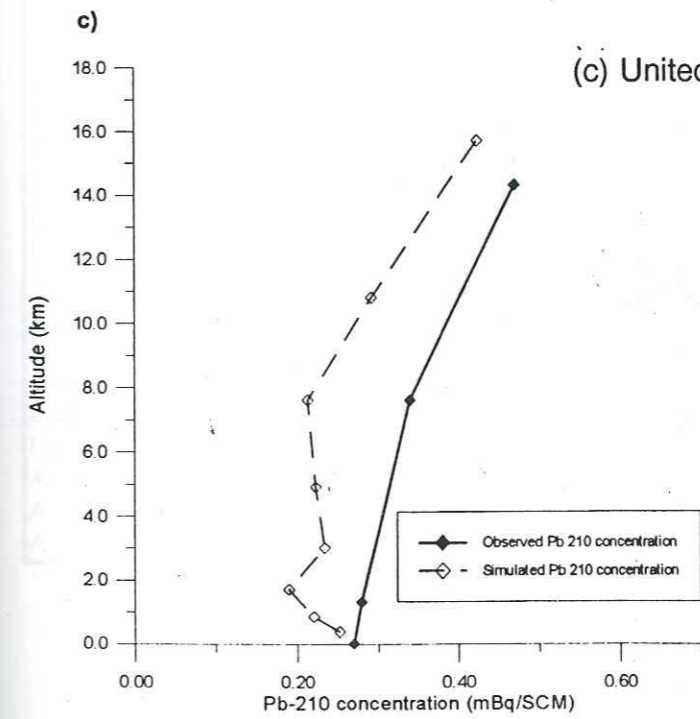


Table 1

Region	Latitude (°)	Longitude (°)	Concentration (mBq SCM ⁻¹)	Flux (Bq m ⁻² yr ⁻¹)	Location type
Svalbard	77,5	12,5		38 (2)	ice sheet
Svalbard	77,5	17,5		96 (3)	ice sheet
Greenland	77,5	-67,5	0,25 (1)		coastal
Greenland	77,5	-62,5		11,5 (2)	ice sheet
Greenland	72,5	-37,5		6,5 (3)	ice sheet
Greenland	72,5	-22,5	0,27 (2)		coastal
Greenland	67,5	-42,5	0,18 (1)	9,7 (2)	ice sheet
Greenland	62,5	-42,5		12 (1)	ice sheet
Alaska	72,5	-157,5	0,44 (1)		coastal
Alaska	62,5	-152,5	0,31 (1)		coastal
	62,5	-147,5	"		
Alaska	62,5	-137,5		37 (1)	continental
Alaska	62,5	-132,5		34 (1)	continental
North America	57,5	-137,5		20 (1)	coastal
North America	52,5	-82,5	0,48 (1)		continental
North America	47,5	-122,5	0,38 (1)	78 (3)	coastal
North America	47,5	-112,5	0,57 (1)		continental
North America	47,5	-87,5		259 (1)	continental
North America	47,5	-77,5		147 (1)	continental
North America	42,5	-122,5		100 (2)	continental
North America	42,5	-112,5	0,71 (2)	78 (1)	continental
North America	42,5	-107,5	0,54 (1)		continental
North America	42,5	-102,5		142 (1)	continental
North America	42,5	-92,5		162 (1)	continental
North America	42,5	-87,5	0,87 (1)	151 (4)	continental
North America	42,5	-82,5	0,79 (2)	166 (1)	continental
North America	42,5	-77,5	0,565 (2)	153 (4)	continental
North America	42,5	-72,5	0,56 (4)	147 (8)	coastal, continental
North America	37,5	-122,5	0,26 (1)	34 (3)	coastal
North America	37,5	-107,5		183 (1)	continental
North America	37,5	-102,5		144 (1)	continental
North America	37,5	-97,5		156(1)	continental
North America	37,5	-92,5		157	continental
North America	37,5	-87,5	0,96 (3)	163 (2)	continental
North America	37,5	-82,5	0,78 (1)	146 (4)	continental
North America	37,5	-77,5	0,56 (3)	154 (4)	coastal, continental
North America	32,5	-117,5	0,54 (1)	35 (1)	coastal
North America	32,5	-97,5		150 (1)	continental
North America	32,5	-92,5	0,77 (1)		continental
North America	27,5	-92,5		171 (1)	coastal
North America	27,5	-82,5	0,33 (1)	42 (1)	coastal
Atlantic Ocean	32,5	-62,5	0,35 (1)	115 (1)	oceanic
Atlantic Ocean	32,5	-17,5		61 (1)	oceanic
Atlantic Ocean	22,5	-77,5		78 (1)	oceanic
Atlantic Ocean	17,5	-67,5	0,31 (1)		oceanic
Atlantic Ocean	-52,5	-57,5	0,05 (1)	33 (1)	oceanic
Europe	67,5	12,5		118 (1)	coastal
Europe	67,5	27,5	0,24 (2)		continental
Europe	62,5	12,5		63 (1)	continental
Europe	62,5	22,5	0,31 (2)		coastal, continental
	62,5	27,5	"		
Europe	57,5	12,5	0,21 (1)		coastal
Europe	57,5	37,5		107 (1)	continental
Europe	52,5	-12,5	0,17 (1)		coastal

Region	Latitude (°)	Longitude (°)	Concentration (mBq SCM ⁻¹)	Flux (Bq m ⁻² yr ⁻¹)	Location type
Europe	52,5	-7,5	0,23 (8)	85 (1)	coastal, continental
Europe	52,5	-2,5	0,23 (1)	109 (2)	continental, coastal
Europe	52,5	2,5		72 (1)	coastal
Europe	52,5	12,5	0,60 (1)	187 (1)	continental
Europe	52,5	22,5	0,32 (1)		continental
Europe	47,5	-2,5	0,43 (1)		continental
Europe	47,5	2,5	0,7 (2)	109 (1)	continental
Europe	47,5	7,5	0,66 (4)	140 (6)	continental
Europe	47,5	12,5		114 (1)	continental
Europe	42,5	-7,5		58 (1)	continental
Europe	42,5	-2,5	0,59 (1)	57 (1)	coastal
Europe	42,5	2,5	0,52 (1)	82 (1)	continental, coastal
Europe	42,5	7,5	1,09 (1)	110 (1)	coastal
Europe	42,5	22,5		108 (1)	continental
Europe	37,5	-7,5	0,18 (1)	44 (5)	coastal, continental
Asia	42,5	137,5	0,65 (1)		coastal
Asia	42,5	142,5		337 (5)	coastal, continental
Asia	37,5	132,5	0,60 (1)	264 (1)	coastal
Asia	37,5	137,5	0,66 (1)	277 (3)	coastal
Asia	37,5	142,5		279 (2)	coastal island
Asia	32,5	72,5	0,92 (1)	182 (1)	continental
Asia	32,5	127,5		359 (1)	coastal
Asia	32,5	137,5	0,41 (1)	233 (3)	coastal island, coastal
Asia	27,5	77,5	0,78 (2)	133 (1)	continental
Asia	27,5	87,5	1,04 (1)	257 (2)	continental
Asia	27,5	122,5		342 (2)	coastal
Asia	22,5	77,5	0,88 (1)	102 (1)	continental
Asia	22,5	87,5	0,96 (1)	102 (1)	continental
Asia	17,5	72,5	0,7 (1)	230 (1)	coastal
Asia	12,5	77,5	0,62 (2)	85 (2)	continental
Asia	7,5	77,5	0,51 (1)		coastal
Asia	2,5	102,5		142 (1)	coastal
Pacific Ocean	27,5	-177,5		36 (1)	oceanic
Pacific Ocean	27,5	127,5	0,36 (1)	262 (1)	oceanic
Pacific Ocean	27,5	142,5	0,35 (1)	166 (1)	oceanic
Pacific Ocean	22,5	-157,5	0,18 (1)	45 (1)	oceanic
Pacific Ocean	2,5	-157,5		54 (1)	oceanic
Pacific Ocean	-12,5	-172,5	0,06 (1)		oceanic
Pacific Ocean	-17,5	177,5		80 (1)	oceanic
Pacific Ocean	-22,5	-157,5		52 (1)	oceanic
Pacific Ocean	-27,5	-107,5	0,04 (1)		oceanic
Pacific Ocean	-27,5	167,5	0,11 (1)		oceanic
Pacific Ocean	-42,5	-177,5	0,07 (1)		oceanic
Latin America	7,5	-77,5	0,15 (1)		coastal
Latin America	-2,5	-77,5	0,41 (1)		coastal
Latin America	-12,5	-77,5	0,33 (1)		coastal
Latin America	-17,5	-67,5	0,36 (1)		continental
Latin America	-22,5	-72,5	0,35 (1)		coastal
Latin America	-32,5	-72,5	0,33 (1)		continental
Latin America	-42,5	-72,5	0,054 (1)		coastal
Latin America	-52,5	-72,5	0,033 (1)		coastal
Africa	2,5	7,5		278 (1)	continental
Africa	-27,5	27,5	0,75 (1)		continental
Africa	-27,5	32,5		108 (1)	coastal

Region	Latitude (°)	Longitude (°)	Concentration (mBq SCM ⁻¹)	Flux (Bq m ⁻² yr ⁻¹)	Location type
Africa	-32,5	17,5	0,13 (1)		coastal
Indian Ocean	-22,5	57,5	0,11 (1)		oceanic
Indian Ocean	-37,5	77,5	0,018 (1)		oceanic
Indian Ocean	-47,5	37,5	0,03 (1)		oceanic
Indian Ocean	-47,5	72,5	0,012 (1)		oceanic
Oceania	-12,5	132,5		95 (1)	coastal
Oceania	-17,5	147,5	0,23 (1)	38 (1)	coastal
Oceania	-22,5	117,5		32 (1)	coastal
Oceania	-22,5	132,5		57 (1)	continental
Oceania	-27,5	152,5	0,26 (1)	64 (2)	coastal
Oceania	-32,5	117,5	0,30 (1)	45 (2)	coastal
Oceania	-32,5	132,5		53 (1)	coastal
Oceania	-32,5	152,5	0,24 (1)	61 (2)	coastal
Oceania	-37,5	137,5		58 (1)	coastal
Oceania	-37,5	147,5	0,19 (1)	63 (2)	coastal
Oceania	-37,5	172,5		62 (3)	coastal/oceanic
Oceania	-37,5	177,5		30 (1)	coastal/oceanic
Oceania	-42,5	147,5	0,11 (1)	41 (2)	coastal island
Oceania	-42,5	172,5	0,075 (1)	68 (3)	coastal/oceanic
Oceania	-47,5	167,5	0,075 (1)	35 (1)	coastal/oceanic
Oceania	-47,5	172,5		30 (1)	coastal/oceanic
Antarctica	-62,5	-62,5	0,017 (2)	8,2 (3)	coastal, coastal island
Antarctica	-62,5	-57,5	0,02 (1)	"	coastal, coastal island
Antarctica	-67,5	62,5	0,029 (1)		coastal/ice sheet
Antarctica	-67,5	137,5	0,033 (1)	4,2 (5)	coastal/ice sheet
Antarctica	-72,5	-7,5	0,031 (1)		coastal/ice sheet
Antarctica	-72,5	22,5	0,027 (1)	8,2 (1)	coastal/ice sheet
Antarctica	-72,5	92,5		1,2 (1)	ice sheet
Antarctica	-72,5	97,5		"	ice sheet
Antarctica	-72,5	122,5		1,1 (1)	ice sheet
Antarctica	-72,5	127,5		1,3 (1)	ice sheet
Antarctica	-72,5	132,5		2,2 (1)	ice sheet
Antarctica	-72,5	137,5		3,8 (2)	ice sheet
Antarctica	-77,5	-162,5	0,014 (1)		coastal/ice sheet
Antarctica	-82,5	-122,5		3,2 (1)	ice sheet
Antarctica	-82,5	-117,5		"	ice sheet
Antarctica	-82,5	17,5		1,1 (1)	ice sheet
Antarctica	-82,5	52,5		1,0 (1)	ice sheet
Antarctica	-82,5	57,5		"	ice sheet
Antarctica	-82,5	167,5		1,9 (1)	coastal/ice sheet
Antarctica	-82,5	172,5		"	coastal/ice sheet
Antarctica	-87,5		0,027 (1)	1,5 (4)	ice sheet

Table 1: The synthesized gridded database in extenso. Grid boxes are sorted by continent, latitude and longitude. For each grid box, we give the coordinates of grid centre, the mean surface concentration, the mean deposition flux (in parenthesis, the number of observation averaged), and the location type. Type in normal (*italic*, underlined) police refer to concentration (*flux*, both, respectively).

Zone	concentration bias	n	flux bias	n	surface
Continents	-9,8%	62	13,4%	74	24,2%
Oceans	-19,2%	13	-12,7%	10	63,1%
Polar Regions	-34,3%	13	40,4%	21	12,7%
Arctic	-54,1%	5	42,2%	8	5,9%
Antarctic	-22,0%	8	39,3%	13	6,8%
Global biases	-18,8%		0,4%		

Table 2: Regionally (continents, oceans, polar regions) and globally averaged concentration and flux percent mean bias. n is the number of data in the synthesized database entering each average. Global averages are surface-weighted.

Annexe 5

**Etude de la Sédimentation Récente de Divers Lacs de
l'Altiplano Bolivien par la Méthode du ^{210}Pb**

Sédimentation récente dans le lac Titicaca (Bolivie)

Michel Pourchet, Philippe Mourguiart, Jean-François Pinglot, Nicolas Preiss, Jaime Argollo
et Denis Wirmann

C.R. Acad. Sci. Paris,
t. 319, série II,
p. 535 à 541,
1994

M. P., J.F. P. et N. P. : Laboratoire de
Glaciologie
et Géophysique de l'Environnement,
CNRS,
BP n° 96, 38402 Saint-Martin-d'Hères
Cedex, France ;

P. M. : Mission ORSTOM, CP 9214, La
Paz, Bolivie ;

J. A. : Universidad Mayor de San
Andrés,
CP 12198, La Paz, Bolivie ;

D. W. : Centre ORSTOM, BP n° 1857,
Yaoundé, République du Cameroun.

Résumé Sur l'ensemble du lac Titicaca, on a estimé la sédimentation actuelle, par la méthode du plomb-210, à 3,9 Mt.an⁻¹. Plus de 90 % du dépôt se produit à des profondeurs inférieures à 5 m. Les variations bathymétriques du lac entraînent parfois des hiatus dans cette zone littorale.

Mots-clés : Sédimentation, ²¹⁰Pb, Titicaca, Colombie.

Abstract Modern sedimentation of Lake Titicaca, Bolivia

Using the ²¹⁰Pb method, we have estimated the sedimentation rate of Lake Titicaca at 3.9 Mt.a⁻¹. More than 90% of deposits occur in the first 5 m water depth. In this littoral area hiatuses are sometimes caused by bathymetric variations.

Keywords : Sedimentation, ²¹⁰Pb, Titicaca, Columbia.

**Abridged
English
Version**

FOR this recent sedimentation rate study, we have selected Lake Titicaca (figure 1), located in the intertropical zone (15-17° Lat. S) and at high altitude (3,810 m). Measurements are conducted with the ²¹⁰Pb method using the *constant rate of supply* model (Goldberg, 1963; Robbins, 1978; Oldfield and Appleby, 1984). For the chemical extraction of ²¹⁰Po, we have followed the Hasänen method (1977).

Except for the deeper location (LK1), all sediment cores show a decrease of unsupported ²¹⁰Pb versus depth (figure 3) with an abrupt slope change corresponding to the Titicaca low level (Roche *et al.*, 1991) (figure 4). Lukurmata core profile (Binford *et al.*, 1991) is similar and we have reinterpreted this work in the light of our results.

In relation with water depth, these abrupt slopes are probably caused by hiatus sedimen-

tation or by considerable mixing induced by human activity, principally the mowing of totora (Levieil and Orlove, 1991).

Our first estimation of sedimentation rate (table II) is 1.3 Mt.a⁻¹ for Huinamarca Lake (small lake) and 2.6 Mt.a⁻¹ for Chucuito lake (great lake). More than 90% of deposits occur in the first 5 m water depth.

Comparison between flux calculated with the residual activity of unsupported ²¹⁰Pb, and flux calculated with the activity of ²¹⁰Pb in the water-sediment interface (table I), confirms a sedimentation hiatus in the first 5 m water depth and partial erosion in the two deeper stations (SJ1 and LK1).

For a long continuous palaeorecord, the prospection of the deeper area of Lake Titicaca : NW area of Huinamarca lake below 20 m depth, or area between 150 to 250 m depth for Chucuito lake, should be performed.

I. INTRODUCTION

Le lac Titicaca, à cheval sur la frontière entre le Pérou et la Bolivie (figure 1), a été choisi, dans le cadre de cette étude, pour sa situation géographique exceptionnelle. Il se

situe, en effet, dans la zone intertropicale entre 15 et 17° de latitude sud et entre 68°30' et 70° de longitude ouest à une altitude d'environ 3810 m, ce qui en fait le lac navigable le plus haut du monde. La sédimentation, qu'elle soit d'origine endogène ou exogène,

Note

présentée par
Georges Pédro.
remise le 18 avril 1994,
acceptée après révision
le 16 juin 1994.

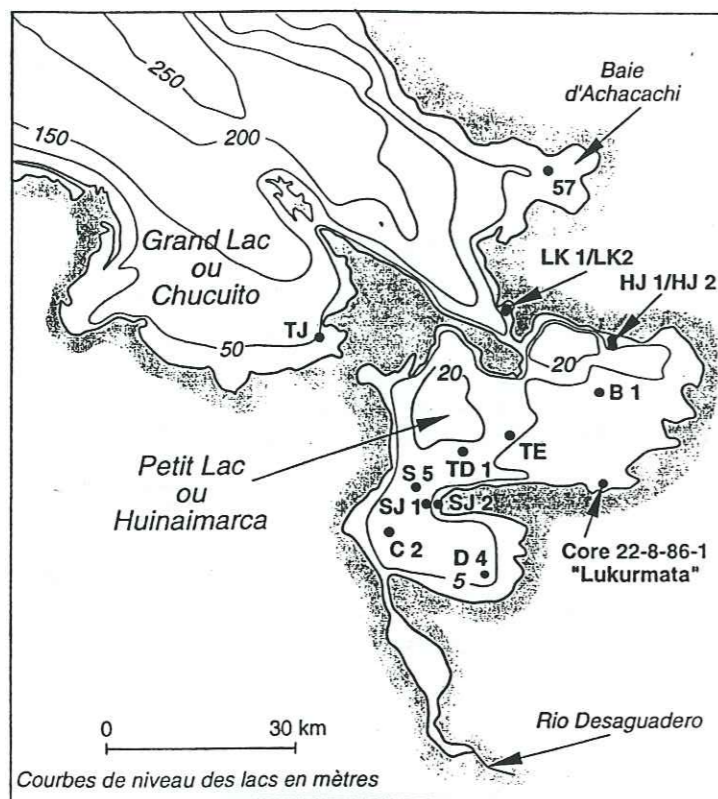
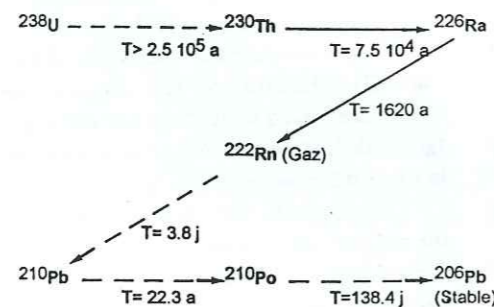


Figure 1 Localisation des sites étudiés dans la partie bolivienne du lac Titicaca.

Location of studied stations in the Bolivian part of Lake Titicaca.

Figure 2 Schéma simplifié de la famille de l'uranium-238.

Simplified decay scheme of uranium-238 family.



a fait l'objet d'études uniquement qualitatives (Boulangé et al., 1981; Rodrigo et Wirrmann, 1991). Nous présentons des données quantitatives originales, obtenues à partir d'analyses radiométriques du plomb-210. En dehors de cas très particuliers, tels que les dépôts varvés, cette méthode semble être l'une des plus fiables et des plus précises pour estimer un taux d'accumulation sédimentaire (Sharma et al., 1987; Orson et al., 1990). Nous avons ici procédé à différents sondages en prenant en compte la hauteur d'eau et la topographie du bassin lacustre. Ainsi, quatre carottes sont lo-

calisées dans le lac Huinamarca, milieu caractérisé par de très faibles pentes; les deux autres proviennent du lac Chucuito dont les berges plongent abruptement jusqu'à des profondeurs pouvant largement dépasser la centaine de mètres (figure 1).

II. PRINCIPE ET MÉTHODES DE MESURE

Du radon-222 est émis en continu dans l'atmosphère à partir de la désintégration de l'uranium-238 contenu dans les sols et donne, par filiation radioactive, du plomb-210 (figure 2). Ce ²¹⁰Pb dit « non supporté » (²¹⁰Pb_n) se dépose et se retrouve partiellement entraîné et isolé dans les sédiments, où il décroît avec une période radioactive de 22,3 ans. Une contribution secondaire de ²¹⁰Pb se retrouve également dans les sédiments; il s'agit de ²¹⁰Pb formé *in situ* dans la matrice sédimentaire par filiation radioactive des parents à vie longue de l'uranium-238 qu'elle contient (²³⁸U, ²³⁴U, ²³⁴Th ou ²²⁶Ra). A l'échelle du siècle, l'activité de ce ²¹⁰Pb dit « supporté » (²¹⁰Pb_s) peut être considérée comme constante (Robbins, 1978). Pour les datations, elle est déduite de l'activité totale mesurée (²¹⁰Pb_t):

$$^{210}\text{Pb}_t = ^{210}\text{Pb}_n + ^{210}\text{Pb}_s$$

Elle est généralement estimée à partir des échantillons « assez vieux » pour que ²¹⁰Pb_n puisse être considéré comme négligeable par rapport à ²¹⁰Pb_s (environ 1 siècle); dans ce cas:

$$^{210}\text{Pb}_t \approx ^{210}\text{Pb}_s$$

Dans la présente étude, les carottes de sédiments ont été obtenues à l'aide d'un petit carottier à piston de 5,5 cm de diamètre et d'environ 80 cm de long. Dès leur sortie de l'eau, les carottes ont été découpées centimètre par centimètre et chaque échantillon a été conditionné dans des flacons polyéthylène étanches. Ils ont ensuite été séchés à l'étuve à 60 °C. Les taux de sédimentation ont été mesurés par la méthode du ²¹⁰Pb en utilisant le modèle *Constant Rate of Supply* (Goldberg, 1963; Robbins, 1978; Oldfield et Appleby, 1984). Les teneurs en ²¹⁰Pb ont été me-

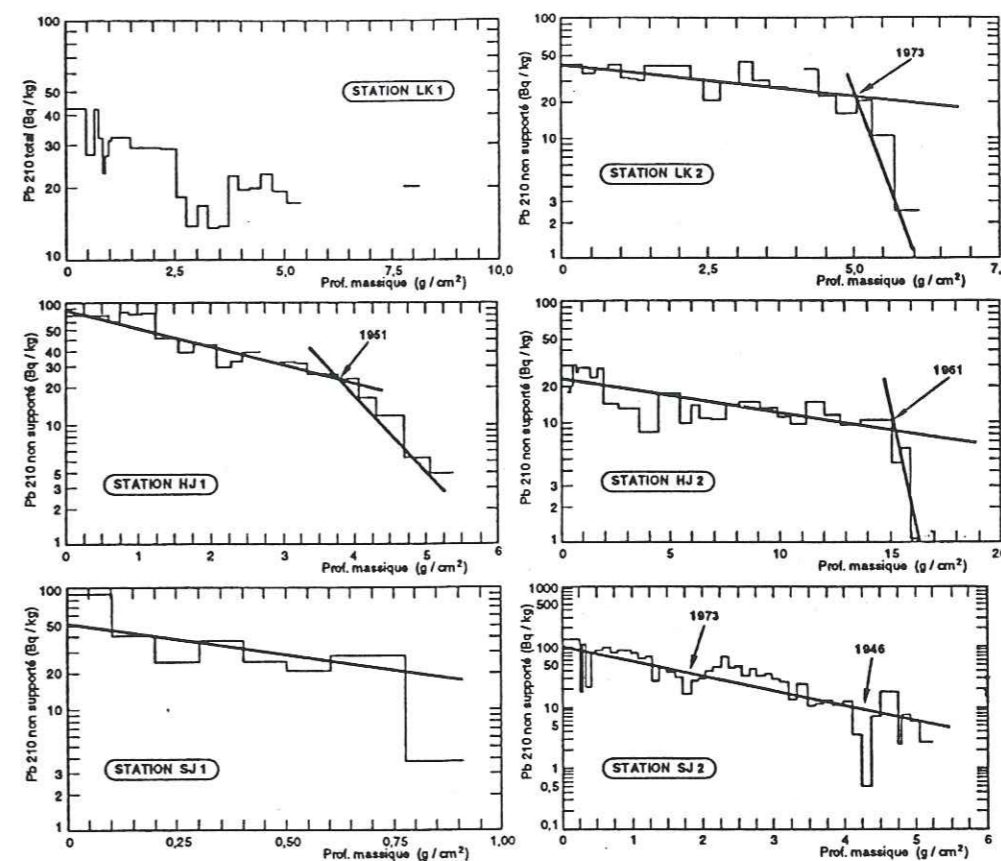


Figure 3 Variations du ²¹⁰Pb en fonction de la profondeur pour l'ensemble des stations étudiées. ²¹⁰Pb versus depth for all stations.

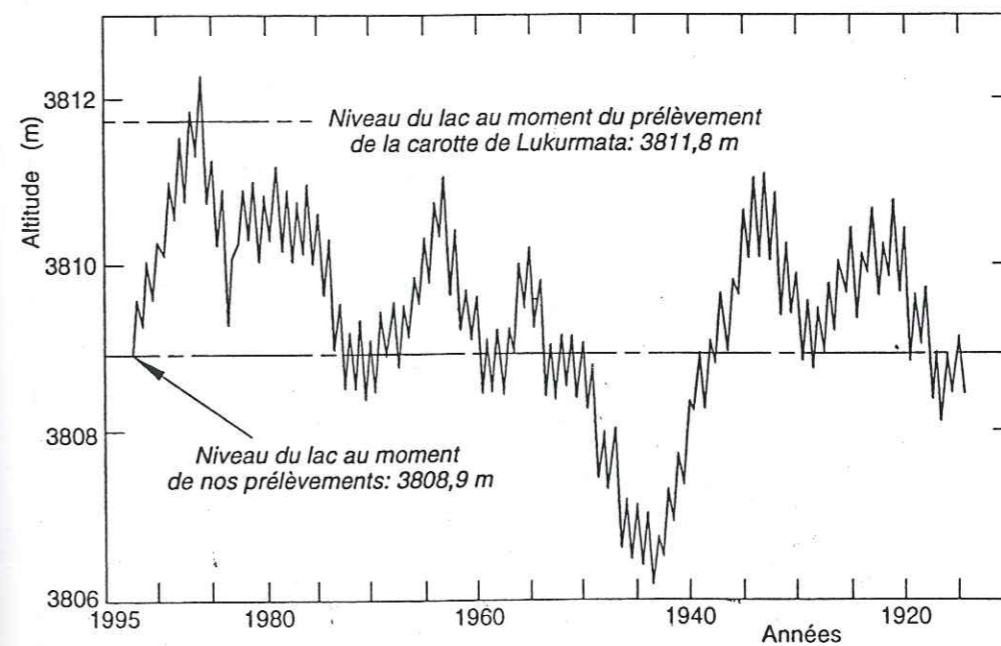


Figure 4 Variations du niveau du lac Titicaca au cours du xx^e siècle. Variations of Titicaca level during the 20th century.

Figure 5 Variations des taux de sédimentation en fonction de la profondeur d'eau.

Sedimentation rate versus water depth.

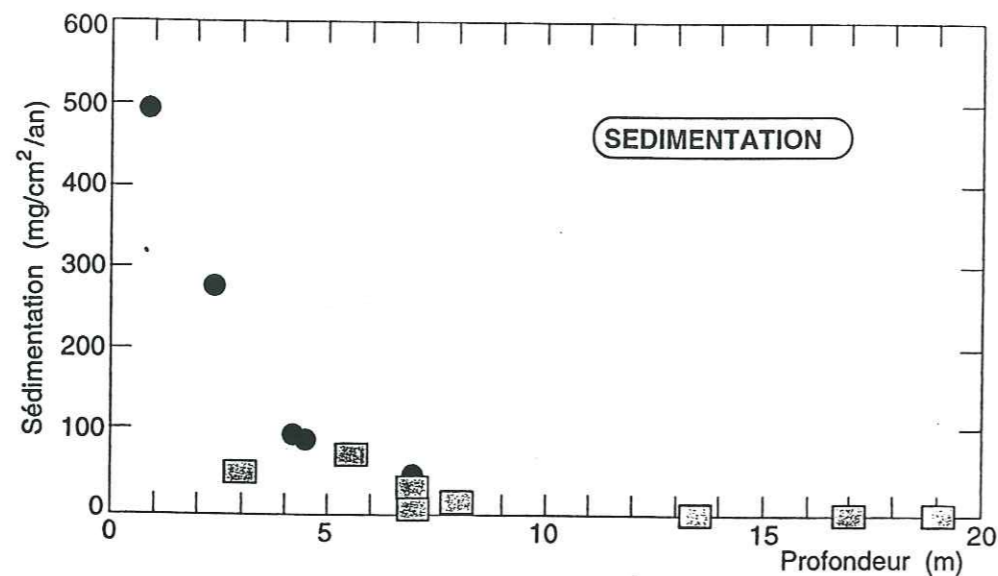


Tableau I Valeurs des taux de sédimentation pour les différentes carottes étudiées. Pour l'ensemble de nos stations ainsi que pour la carotte 22-VIII-86-1 de Lukurmata, les datations ont été obtenues par la méthode du ^{210}Pb ; dans les autres cas, nous avons utilisé les datations au ^{14}C pour les niveaux continus les plus récents. Dans la colonne indiquant les flux en ^{210}Pb , la première valeur correspond au flux calculé à partir de l'activité résiduelle; la seconde valeur, entre parenthèses, donne le flux calculé à partir de l'activité à l'interface eau-sédiment.

Sedimentation rate in studied cores. For our stations and for Lukurmata core, datings are obtained by the ^{210}Pb method. In the other cases we have used ^{14}C dating of the more recent levels. For ^{210}Pb flux, the first value corresponds to the flux calculated from the residual activity, the second value (in brackets) to the flux deduced from the activity at the water-sediment interface.

Stations	Profondeur (m)	Sédimentation (mg/cm ² .an)	Activité résiduelle en ^{210}Pb (Bq/m ²)	Flux de ^{210}Pb (Bq/m ² .an)	Références
Grand Lac					
LK1.....	11,5	?	364	11 - (?)	Cette étude
LK2.....	2,4	278	1761	55 - (111)	»
Petit Lac					
HJ1.....	4,3	96	2 145	73 - (96)	»
HJ2.....	0,9	493	2 193	69 - (148)	»
SJ1.....	7	28	292	9 - (25)	»
SJ2.....	4,5	90	1 958	62 - (96)	»
Lukurmata:					
57.....	< 3 (?)	50	1 500	47 - (90)	Binford et al.
TD1.....	7	15			Fontes et al.
TE.....	19	3			Mourguiart et al.
B1.....	8	15			»
D4.....	5,6	70			Wirrmann et al.
	7	9			(données non publiées)
C2.....	13,5	2,6			»
S5.....	17	2,7			»

surées en spectrométrie alpha, par l'intermédiaire du ^{210}Pb . L'incertitude sur nos déterminations d'âge est principalement liée à la statistique de comptage du ^{210}Po , dans notre cas on peut estimer l'écart-type à 5%. L'extraction du ^{210}Po a été faite en utilisant la méthode décrite par Hasänen (1977).

III. INTERPRÉTATION DES PROFILS DE SÉDIMENTATION

Exception faite de la carotte la plus profonde (LK1 prélevée par 11,5 m d'eau), tous les autres profils montrent une décroissance

Tableau II Estimation de la sédimentation annuelle par tranches de profondeurs, s1 et M1 se rapportent au petit lac, s2 et M2 au grand lac.

Estimation of the annual sedimentation by depth sections; s1, M1 and s2, M2 refer respectively to the small and great lake.

Plage bathymétrique (m)	Superficie (km ²)		Carottes utilisées	Vitesse moyenne de sédimentation (mg/cm ² .an)	Masses (kt/an)	
	s1	s2			M1	M2
0-5 m	599	1 210	LK2, HJ1, HJ2, SJ2, Lukurmata	201	1 204	2 432
5-10 m	334	151	SJ1, Achacachi, TE, B1, D4	27	90	41
10-20 m	267	288	TD1, C2, S5	3	8	9
>20 m	167	2 682		(≈5)	(≈8)	(≈134)
				Σ	1 310	2 616

de l'activité du ^{210}Pb non supporté en fonction de la profondeur (figure 3). Ces profils ne sont pas monotones mais présentent tous, à partir d'un certain niveau, une brusque variation de pente. En utilisant la première partie de la courbe, nous avons pu dater cette rupture. Dans tous les cas, elle correspond à un niveau bas du lac (Roche et al., 1991), (figure 4). Suivant la profondeur de la carotte, ce niveau se situe en 1946, en 1961, ou en 1973. On peut observer que les deux carottes HJ1 et SJ2, prélevées à des profondeurs sensiblement égales, n'ont pas enregistré de manière similaire les mêmes événements hydrologiques. Une étude détaillée des conditions locales: étendue de la végétation aquatique, importance du faucardage, etc., au cours des 50 dernières années serait nécessaires pour amener d'éventuels éléments de réponses.

Le profil de la carotte de Lukurmata (Binford et al., 1991) est identique; une réinterprétation de ce travail nous donne une rupture de pente qui se situe également vers 1970. Nous pensons que seule la première partie des courbes correspondant aux différents profils donne une valeur significative de la sédimentation et que, dans la plage de profondeur que nous avons étudiée, l'abrupte décroissance des profils après la rupture de pente est liée, soit à une absence de sédimentation lorsque le site n'est plus immergé, soit à un mixage important lié à l'activité humaine, lorsque la hauteur d'eau devient suffisamment faible pour permettre le faucardage de la végétation aquatique, principalement de la grande totora (Levieil et Orlove, 1991).

D'une manière générale, on observe une forte décroissance de la sédimentation en fonction de la profondeur (figure 5) et un bon accord avec l'ensemble des valeurs relevées dans la littérature (tableau I). En extrapolant tous les résultats disponibles sur l'ensemble du lac Titicaca, nous avons essayé d'estimer la masse annuelle de sédiments déposés par tranche de profondeur (tableau II). On peut observer que plus de 90% du dépôt sédimentaire se fait entre 0 et 5 m d'eau et que la masse annuelle de sédiments déposés est de l'ordre de 1,3 Mt pour le lac Huinamarca (petit lac) contre 2,6 Mt pour le lac Chucuito (grand lac). Notre échantillonnage est insuffisant pour tenter une estimation de la part respective des constituants sédimentaires: carbonates détritiques, matières organiques, etc.

IV. LES FLUX DE ^{210}Pb

IV. LES FLUX DE ^{210}Pb

Le flux en ^{210}Pb (F) arrivant à la surface des sédiments peut être déduit des profils de ^{210}Pb non supporté. Si A est l'activité résiduelle en ^{210}Pb non supporté et k la constante radioactive du ^{210}Pb ($k = 0,03144 \text{ an}^{-1}$), on a la relation:

$$F = k A$$

Entre 0 et 5 m de profondeur, pour l'ensem-

ble de nos résultats (table I), on obtient un flux moyen de $63 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{an}^{-1}$, la valeur minimale étant de $55 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{an}^{-1}$ et la valeur maximale de $73 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{an}^{-1}$. A partir des résultats de Binford *et al.* (1991) pour la carotte de Lukurmata, on aboutit à un flux du même ordre de grandeur ($47 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{an}^{-1}$). Ces valeurs sont sensiblement inférieures à celles que l'on peut déduire des activités du ^{210}Pb à l'interface eau-sédiment. En effet, si A_0 est l'activité à l'interface eau-sédiment et S le taux de sédimentation que nous avons déterminé pour chaque station, le flux F est donné par la relation :

$$F = A_0 S$$

Dans notre cas, entre 0 et 5 m de profondeur, on trouve un flux moyen de $110 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{an}^{-1}$ avec comme valeurs extrêmes 96 et $148 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{an}^{-1}$. Le site de Lukurmata est sensiblement équivalent avec un flux de $90 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{an}^{-1}$. Ces écarts entre les flux estimés à partir de l'intégration des valeurs de ^{210}Pb résiduels ou de la valeur du flux en surface sont conformes à l'observation des courbes de sédimentation qui indiquent toutes une rupture du rythme de sédimentation pour des âges inférieurs à 50 ans. Ces hiatus de sédimentation entraînent un déficit du ^{210}Pb résiduel et, par voie de conséquence, du flux de ^{210}Pb estimé par cette méthode. Pour les deux sites situés au-delà de 5 m de profondeur, SJ1 et LK1, respectivement prélevés par 7 et 11,5 m d'eau, les flux de ^{210}Pb (9 et $11 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{an}^{-1}$) sont nettement plus faibles que ceux des zones moins profondes. Ils demeurent très inférieurs au flux atmo-

sphérique régional (Pourchet *et al.*, à paraître) et traduisent l'érosion partielle que subit cette tranche de profondeurs.

V. CONCLUSION

Pour l'ensemble du lac Titicaca, nous avons pu estimer la sédimentation annuelle à environ 3,9 Mt se répartissant en 1,3 Mt pour le lac Huinamarca et 2,6 Mt pour le lac Chucuito. Nous avons pu mettre en évidence que plus de 90 % de la sédimentation se fait entre 0 et 5 m de profondeur d'eau, mais que cette zone subit des hiatus importants en période de basses eaux. Dans cette tranche de hauteur d'eau, la sédimentation détritique est très fortement freinée par la végétation aquatique et principalement par la grande totora. Au-delà de cette zone et au moins jusqu'à une profondeur d'une vingtaine de mètres, on observe une érosion partielle des dépôts sédimentaires, érosion sans doute liée à l'action conjointe de la pente et des courants. Ces observations mettent en évidence la difficulté d'utiliser la sédimentation littorale comme support de paléoinformations. On doit en particulier s'attendre à des hiatus dans les séquences d'enregistrement. Une prospection des zones profondes serait certainement judicieuse afin d'obtenir de longues séquences continues, par exemple la zone NW du lac Huinamarca en dessous de 20 m et la zone comprise entre 150 et 250 m de profondeur pour le lac Chucuito, cette dernière zone couvrant environ 36 % de la surface de ce lac.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- BINFORD, M. W., BRENNER, M. et ENGSTROM, D. R., 1991. Patrones de sedimentation temporal en la zona litoral del Huinamarca, *El Lago Titicaca*, DEJOUX, C. et ILTIS, A., éd., p. 47-56.
- BOULANGÉ, B., VARGAS, C. et RODRIGO, L. A., 1981. *Rev. Hydrobiol. Trop.*, 14, (4), p. 299-309.
- GOLDBERG, E. D., 1963. Radioactive dating, *Geochronology with lead 210*, IAEA, p. 121-131.
- FONTES, J. C., BOULANGÉ, B. et RODRIGO, L. A., 1981. Carbone 14, carbone 13 et oxygène 18 dans les sédiments carbonatés du lac Titicaca. Premières estimations des vitesses de sédimentation et essais

de paléoclimatologie, *C.R. Acad. Sci. Paris*, 293, série II, p. 53-56.

- HASÄNEN, E., 1977. Dating of sediments based on ^{210}Pb measurements, *Radiochemical Radioanalytical letters*, 31, (4-5), p. 207-214.
- LEVIEIL, D. et ORLOVE, B. S., 1991. Importancia socio-economica de las macrofitas, *El Lago Titicaca*, DEJOUX, C. et ILTIS, A., éd., p. 509-516.
- MOURGUIART, Ph., WIRRMANN, D., FOURNIER, M. et SERVANT, M., 1992. Reconstruction quantitative des niveaux du petit lac Titicaca au cours de l'Holocène, *C.R. Acad. Sci. Paris*, 315, série II, p. 875-880.

- OLDFIELD, R. et APPLEBY, P. G., 1984. *Lake sediments and environmental history*, HAWORTH, E. L. et LUND, J. W., éd., p. 93-124.
- ORSON, R. A., SIMPSON, R. L. et GOOD, R. E., 1990. *Journal of Sedimentary Petrology*, 60, (6), p. 859-869.
- POURCHET, M., MOURGUIART, Ph., PINGLOT, J. F., PREISS, N., ARGOLLO, J. et WIRRMANN, D. Sédimentation récente dans les lacs de la haute vallée de Jichhu Kota (Bolivie) (à paraître).
- ROBBINS, J. A., 1978. Geochemical and geophysical applications of radioactive Lead. In NRIAGU, éd.,

The Biogeochemistry of Lead in the Environment, p. 285-393.

- ROCHE, M. A., BOURGES, J., CORTES, J. et MATTOS, R., 1991. Climatología e hidrología de la cuenca del lago Titicaca, *El Lago Titicaca*, DEJOUX, C. et ILTIS, A., éd., p. 83-104.
- RODRIGO, L. A. et WIRRMANN, D., 1991. Aspecto general de la sedimentación actual, *El Lago Titicaca*, DEJOUX, C. et ILTIS, A., éd., p. 39-43.
- SHARMA, P., GARDNER, L. R., MOORE, W. S. et BOLLINGER, M. S., 1987. *Limnol. Oceanogr.*, 32, p. 313-326.

Évaluation des vitesses de sédimentation récente dans les hautes vallées des Andes boliviennes. Son intérêt dans l'estimation des paléo-pollutions atmosphériques

Michel Pourchet, Philippe Mourguiart, Jean-François Pinglot, Nicolas Preiss, Jaime Argollo et Denis Wirmann

Résumé Nous indiquons des vitesses de sédimentation récentes dans plusieurs lacs d'une haute vallée des Andes Boliviennes. Les mesures de ^{210}Pb et de ^{137}Cs indiquent que plusieurs de ces sites pourraient servir à la reconstitution des pollutions atmosphériques.

Mots-clés : Sédimentation, Altiplano, ^{210}Pb , ^{137}Cs , Flux atmosphérique.

Abstract Evaluation of modern sedimentation in the high valley of Bolivian Andes and its value for estimating past atmospheric pollution

We have estimated recent sedimentation rates in several lakes of a high valley of the Bolivian Andes. Measurements of ^{210}Pb and ^{137}Cs show that some of these lake sediments should be used for the palaeo-estimation of atmospheric pollution.

Keywords: Sedimentation, Altiplano, ^{210}Pb , ^{137}Cs , Atmospheric flux.

Abridged English Version

We give recent sedimentation rates and ^{210}Pb fluxes in several lakes of the high valley of Jichhu Kota located in the Bolivian Andes (figure 1). Sedimentation rates have been determined by the ^{210}Pb method using the *Constant rate of supply model* (Goldberg, 1963). In three cores, the unsupported ^{210}Pb ($^{210}\text{Pb}_i$) profiles (figure 2) show a positive sedimentation rate (table I). Two other cores (ik_3 and ik_4) contain only $^{210}\text{Pb}_i$, which therefore indicate a zero or negative sedimentation rate (erosion).

From one site to another we observe a great spatial variation in the sedimentation rate but for each core a constant value for the last century.

The supported ^{210}Pb ($^{210}\text{Pb}_s$) is smaller in the organic sediment of the Jichhu Kota peat than in the contiguous Kara Kota lake sediment

(respectively 9 and 112 Bq.kg^{-1}), where the detritic mineral contribution is more important.

For ik_1 and ik_2 , the high value of $^{210}\text{Pb}_i$ flux at the water-sediment interface is due to the contribution of catchment. On the contrary, for the Jichhu Kota peat, the sediment water flux of $^{210}\text{Pb}_i$ ($41 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{a}^{-1}$) is similar to the atmospheric flux observed at the same latitude. This observation is confirmed by ^{137}Cs measurement: the total ^{137}Cs content in sediment (table II) is 196 Bq.m^{-2} at the time of deposition, compared with 220 Bq.m^{-2} deduced from the atmospheric observations made in the nearby stations of La Paz and Chacaltaya.

Located at high altitude, Jichhu Kota peat is therefore a good observatory for the paleo-reconstruction of the circulation of atmospheric pollutants at this latitude and at least for the last century.

GÉOMATÉRIAUX/
GEOMATERIALS
(SÉDIMENTOLOGIE/
SEDIMENTOLOGY)

C.R. Acad. Sci. Paris,
t. 320, série II a,
p. 477 à 482,
1995

M. P., J.-F. P. et N.P. : Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement, CNRS, BP n° 96, 38402 Saint-Martin-d'Hères Cedex, France ;

P. M. : Mission ORSTOM, CP 9214, La Paz, Bolivie ;

J. A. : Universidad Mayor de San Andrés, CP 12198, La Paz, Bolivie ;

D. W. : Centre ORSTOM, BP n° 1857, Yaoundé, République du Cameroun.

Note

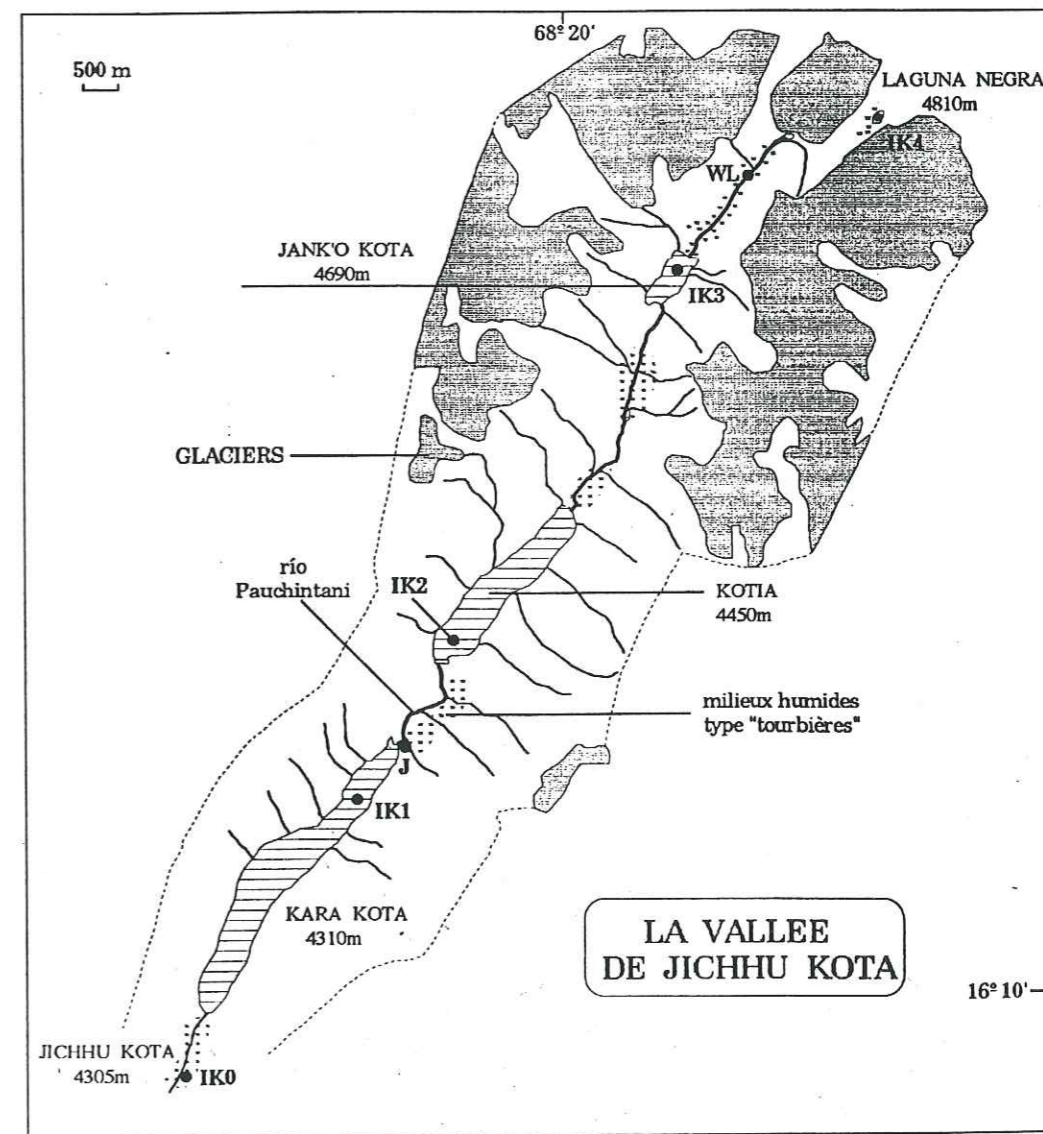
présentée par
Georges Pédro.
remise le 11 juillet 1994,
acceptée après révision
le 5 janvier 1995.

I. INTRODUCTION

La vallée de Jichhu Kota ($16^{\circ}10'$ lat. S et $68^{\circ}20'$ long. O), située au NE de La Paz dans la Cordillère Royale des Andes boliviennes, est une vallée d'origine glaciaire dont les bas-fonds sont occupés, soit par des lacs, soit par des milieux marécageux (Pierre et Wirmann, 1986). Les trois lacs principaux ont pour noms : Kara Kota, Kotia et Jank'o Kota et se situent à des altitudes respectives de 4 310, 4 450 et 4 690 m. Un quatrième lac occupe une toute petite dépression, au pied d'un gla-

cier du versant est de la montagne, à 4 810 m d'altitude ; il a été nommé Laguna Negra (figure 1). A l'exception de la flore (Ostria, 1987 b), ces milieux aquatiques n'ont été que très peu étudiés. Il nous a paru intéressant d'effectuer des prélèvements tout au long de la vallée, dans ces lacs et milieux humides, afin de mieux comprendre les mécanismes de la sédimentation dans une vallée tropicale de haute altitude. Nous présentons ici les résultats obtenus à partir de la mesure du ^{210}Pb , et parfois du ^{137}Cs , sur les quatre principaux lacs et sur la « tourbière » de Jichhu Kota (figure 1).

Figure 1 Localisation des sites étudiés dans la vallée de Jichhu Kota.
Location of studied stations in the Jichhu Kota valley.



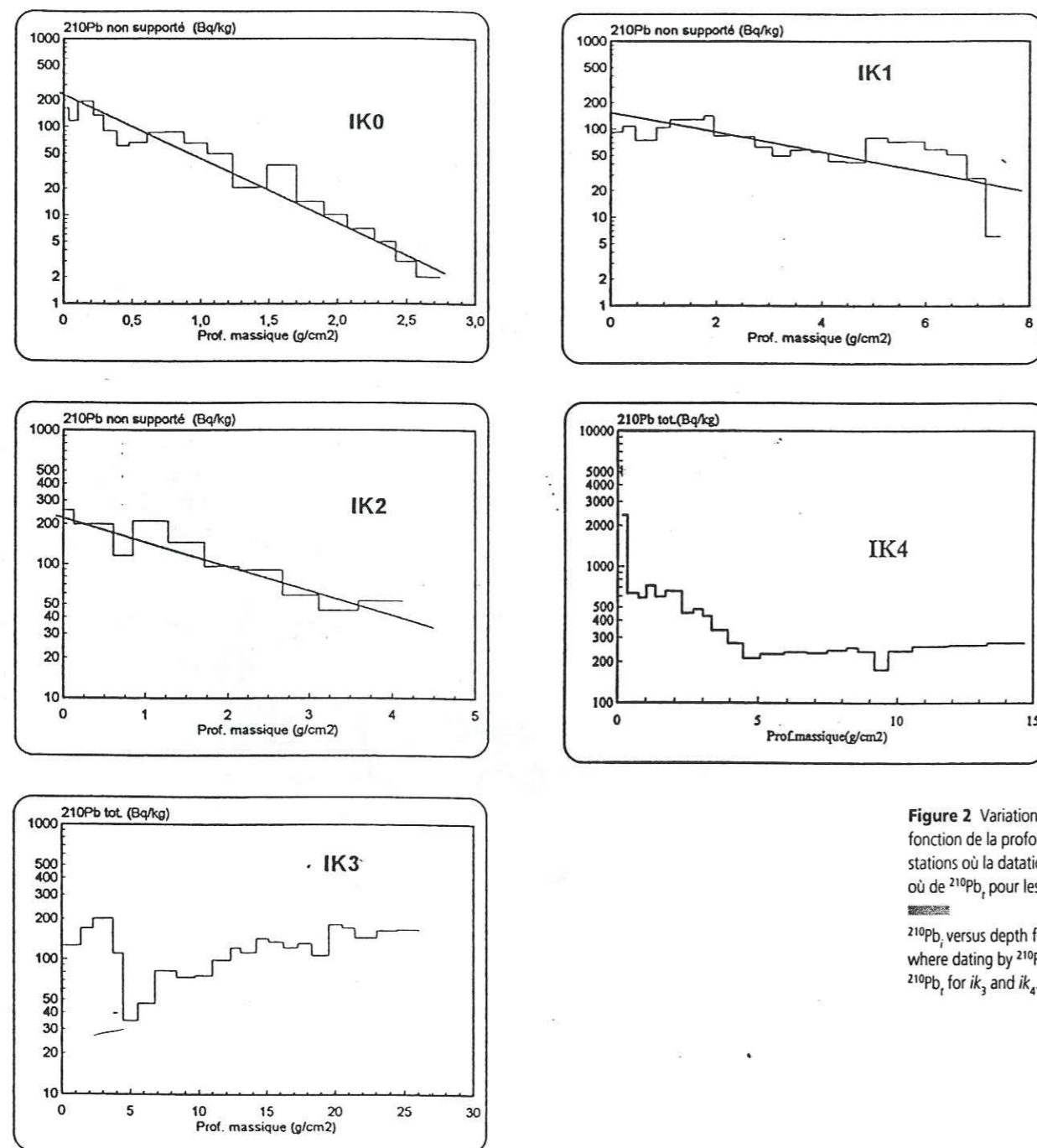


Figure 2 Variations du $^{210}\text{Pb}_i$ en fonction de la profondeur pour les stations où la datation a été possible, ou de $^{210}\text{Pb}_i$ non supporté, pour les stations ik_3 et ik_4 .

II. PRINCIPE ET MÉTHODES DE MESURE

Les méthodes utilisées sont décrites plus en détail par Pourchet *et al.* (1994). Succinctement, la datation par le ^{210}Pb est basée sur l'existence d'un flux atmosphérique continu

de ^{222}Rn qui, par filiation radioactive donne du ^{210}Pb . Par différents processus, ce plomb-210 dit « non supporté » ($^{210}\text{Pb}_i$) est incorporé aux sédiments où il est fixé définitivement dans la colonne de sédiments et où il décroît avec sa période radioactive de 22,3 ans. Une

Tableau I Valeurs des vitesses de sédimentation pour les différentes carottes étudiées. Ce tableau donne également les flux de ^{210}Pb non supporté ($^{210}\text{Pb}_i$) à l'interface eau-sédiment, et la concentration moyenne en ^{210}Pb supporté ($^{210}\text{Pb}_s$).

Sedimentation rates in studied cores. Also shown are the unsupported ^{210}Pb flux ($^{210}\text{Pb}_i$) and the mean concentration of supported ^{210}Pb ($^{210}\text{Pb}_s$).

Sites	Vitesse de sédimentation (mg.cm ⁻² .an ⁻¹)	Flux de ^{210}Pb (Bq.m ⁻² .an ⁻¹)	^{210}Pb supporté (Bq.kg ⁻¹)
ik_0 Jichhu Kota	22	41	9
ik_1 Kara Kota	114	162	112
ik_2 Kotia	75	147	259
ik_3 Jank'o Kota	0	#0	#127
ik_4 Laguna Negra	#0	#0	238

contribution secondaire de plomb-210 dit « supporté » ($^{210}\text{Pb}_s$) est due à la formation, dans la matrice sédimentaire, de ^{210}Pb issu de parents à vie longue qu'elle contient (^{238}U , ^{234}U , ^{234}Th ou ^{226}Ra). A l'échelle du siècle, l'activité du ^{210}Pb de cette dernière contribution peut être considérée comme constante (Robbins, 1978). L'activité utilisable pour les datations est déduite de l'activité totale mesurée ($^{210}\text{Pb}_i$) :

$$^{210}\text{Pb}_i = ^{210}\text{Pb}_t - ^{210}\text{Pb}_s$$

On l'estime à partir d'échantillons assez vieux (environ 100 ans) pour que $^{210}\text{Pb}_i$ puisse être considéré comme négligeable :

$$^{210}\text{Pb}_i \approx ^{210}\text{Pb}_t$$

Les carottes de sédiments ont été obtenues à l'aide d'un petit carottier à piston. Elles ont été découpées centimètre par centimètre dès leur sortie de l'eau et conditionnées individuellement dans des flacons polyéthylène étanches, avant d'être séchées à l'étuve à 60°C.

Les vitesses de sédimentation ont été déterminées à partir des profils de $^{210}\text{Pb}_i$ en utilisant le modèle *Constant Rate of Supply* (Goldberg, 1963).

Le ^{210}Pb a été mesuré en spectrométrie alpha par l'intermédiaire du ^{210}Po , suivant la méthode décrite par Hasänen (1977).

Le flux de $^{210}\text{Pb}_i$ à l'interface eau-sédiment (F , Bq.m⁻².an⁻¹) peut se déduire de l'activité totale (A , Bq.m⁻²) du ^{210}Pb , contenu dans une colonne de sédiments de surface

unitaire, par l'équation : $A = F/\lambda$ où λ est la constante radioactive du ^{210}Pb . Dans notre cas, A représente pour chaque site la somme des activités par unité de surface du $^{210}\text{Pb}_i$ contenu dans chacun des échantillons : $A = \sum A_i$ où A_i est l'activité du $^{210}\text{Pb}_i$ dans la couche i .

Dans tous nos calculs, les épaisseurs réelles de sédiments ont été converties en profondeurs massiques correspondant au poids du sédiment sec déposé par unité de surface jusqu'à l'épaisseur considérée.

III. INTERPRÉTATION DES PROFILS DE SÉDIMENTATION

Trois carottes sur les cinq prélevées présentent des profils de ^{210}Pb non supporté (figure 2) indiquant une sédimentation positive (tableau I) ; les deux autres (ik_3 et ik_4) ne contiennent que du ^{210}Pb supporté, ce qui signifie qu'en ces deux sites, la sédimentation est nulle, voire négative (érosion).

Dans les trois lacs intermédiaires (Kara Kota, Kotia et Jank'o Kota), la sédimentation est très influencée par les nombreux émissaires qui arrivent dans ces lacs et dont les débits varient considérablement dans l'année. Ce phénomène génère une grande hétérogénéité spatiale des vitesses de sédimentation d'un lac à l'autre et, sans doute à l'intérieur même de chacun d'eux. Une confirmation de cette dispersion a été donnée pour le lac Kara Kota où une carotte

(J), voisine de notre site ik_1 , a indiqué un âge de 3 150 ans à 150 cm, soit environ $27 \text{ mg.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$ (Servant-Vildary et Roux, 1990). Par contre, l'allure régulière des courbes de ^{210}Pb , indique qu'aux sites que nous avons étudiés, les vitesses sont restées sensiblement constantes au cours des 100 dernières années.

Aux extrémités de la vallée, la tourbière de Jichhu Kota et la Laguna Negra ont une alimentation sédimentaire beaucoup plus calme. Dans le premier site, le filtre végétal périphérique sert de régulateur ; dans le second, le bassin versant est constitué d'un glacier, dont le lac reçoit l'eau de fusion et, avec elle, les polluants qu'elle contient et qui s'étaient préalablement déposés sur le glacier.

A 4 800 m d'altitude, dans la tourbière de Wila Llojeta, C. Ostria (1987a) a déterminé pour les 1 000 dernières années des âges qui permettent de déduire une vitesse de sédimentation sur 1 000 ans d'environ $6 \text{ mg.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$, ce qui est sensiblement plus faible que pour la tourbière de Jichhu Kota.

IV. LES FLUX DE ^{210}Pb

Dans la tourbière de Jichhu Kota, la fraction de ^{210}Pb supporté est bien plus faible que celle que nous avons mesurée dans les autres lacs de la vallée : 9 Bq.kg^{-1} contre 112 Bq.kg^{-1} pour le lac Kara Kota attenant. Cette différence s'explique aisément par la nature même des sédiments : dans le premier cas à dominante organique, et formé des végétaux même de la tourbière, dans le second cas, d'apports détritiques minéraux provenant de l'érosion des bassins versants.

Pour les sites ik_1 , et ik_2 , la valeur élevée du flux de ^{210}Pb non supporté est la conséquence de l'entraînement et du dépôt dans ces lacs d'une partie du ^{210}Pb provenant du bassin versant et fixé sur la matière détritique. Par opposition, la faible teneur observée sur la tourbière de Jichhu Kota indique, pour ce site, la faible influence du bassin versant comparé au flux direct arrivant à la surface du lac par l'atmosphère. Cette tourbière, avec une faible minéralisation de la matrice sédimentaire et une prépondérance des flux atmosphériques directs, apparaît comme un site particulière-

Tableau II Indique, pour la tourbière de Jichhu Kota, l'activité et le dépôt de ^{137}Cs en fonction de la profondeur exprimée en milligrammes de sédiment sec par centimètre carré.

Profondeur massique (mg.cm^{-2})	Activité du ^{137}Cs (Bq.kg^{-1})	Bilan du ^{137}Cs (Bq.m^{-2})
0-388	14,4	55,9
388-744	11,2	39,9
744-1 231	0	0

ment propice à l'étude des flux atmosphériques des polluants. La valeur de $^{210}\text{Pb}_i$ que nous en avons déduite ($41 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{an}^{-1}$) est voisine des mesures directes de flux relevées à des latitudes voisines : $32 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{an}^{-1}$ à Port Hedland (20° lat. Sud), $38 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{an}^{-1}$ à Townville (19° lat. Sud) (Krishnaswami et Lal, 1978).

V. LE BILAN EN ^{137}Cs DE LA TOURBIÈRE DE JICHHU KOTA

La qualité de l'enregistrement en ^{210}Pb observé sur la carotte que nous avons prélevée ainsi que la forte présomption suggérée par les mesures du ^{210}Pb que ce site pourrait fournir de bonnes valeurs de flux atmosphériques pour cette latitude nous ont amené à vérifier cette hypothèse à partir de la mesure de la contamination radioactive introduite, via la stratosphère, par les essais thermonucléaires atmosphériques. La mesure du ^{137}Cs dans les échantillons de la tourbière de Jichhu Kota a été faite par spectrométrie gamma à très bas niveau (Pinglot et Pourchet, 1994). Les résultats obtenus (tableau II) nous indiquent un dépôt total de 96 Bq.m^{-2} au moment de la mesure (1992). Compte tenu de la période radioactive de cet élément ($T = 30,15$ ans), le bilan en ^{137}Cs ramené au moment du dépôt correspond à 196 Bq.m^{-2} . Pour les stations de La Paz et de Chacaltaya, très proches et d'altitudes comparables (respectivement 3 500 et 5 220 m), les mesures en continu du ^{90}Sr , effectuées entre 1960 et 1979 (HASL 329) et qui ont donc couvert pratiquement toute la période des essais thermonucléaires, indiquent un dépôt de 147 Bq.m^{-2} . Compte tenu du rapport $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ de 1,5, bien établi, on en déduit un

dépôt de ^{137}Cs de 220 Bq.m^{-2} , très voisin de ce que nous avons mesuré dans la tourbière. Ces observations confirment donc bien les mesures en ^{210}Pb et indiquent la potentialité d'utiliser cette tourbière pour les reconstitutions des circulations générales des polluants à cette latitude et pour au moins le dernier siècle.

VI. CONCLUSION

Dans le cas de la haute vallée glaciaire de Jichhu Kota, les dépôts sédimentaires de la

tourbière du même nom fournissent, sur au moins 1 siècle, un enregistrement très peu perturbé, avec des flux de radioéléments similaires aux flux atmosphériques relevés dans cette région. L'éloignement de cette tourbière de toute industrie pourrait en faire un site privilégié pour l'étude de la circulation à grande distance des contaminants atmosphériques, comme par exemple le ^{137}Cs issu des essais thermonucléaires atmosphériques ou plus généralement des polluants anthropogéniques.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- GOLDBERG, E. D., 1963. Radioactive dating, *Geochronology with lead 210*, IAEA, p. 121-131.
- HASÄNEN, E., 1977. Dating of sediments based on ^{210}Pb measurements, *Radiochemical Radioanalytical Letters*, 31, (4-5), p. 207-214.
- HASL-329, Final tabulation of monthly ^{90}Sr fallout data: 1954-1976, UC-11, 1977. *US Energy Research and Development administration*, New York 10014.
- KRISHNASWAMI, S. et LAL, D., 1978. Radionuclide Limnology, *Lakes Chemistry, Geology, Physics*, Abraham Lerman, p. 153-177.
- OSTRIA, C., 1987a. Végétation actuelle et fossile de haute altitude (exemple d'une vallée glaciaire : Hichu Kkota, Cordillère Royale des Andes de Bolivie), *Géodynamique*, 2(2), p. 109-113.
- OSTRIA, C., 1987b. Phytoécologie et paléoécologie d'une vallée glaciaire alto-andine, Hichu-Kkota (Cordillère Orientale Bolivie), *Bull. Soc. bot. Fr., Lettres bot.*, 134, (4/5), p. 385-397.
- PIERRE, J. F. et WIRRMANN, D., 1986. Diatomées des sédiments holocènes du lac Khara-Kkota (Bolivie), *Géodynamique*, 1(2), p. 135-145.
- PINGLOT, J. F., POURCHET, M., 1994. Spectrométrie gamma à très bas niveau avec anti-Compton NaI (Ti), pour l'étude des glaciers et des sédiments, *Note CEA-N-2756*, ISSN 0429-3460, p. 291-296.
- POURCHET, M., MOURGUIART, P., PINGLOT, J. F., PREISS, N., ARGOLLO, J. et WIRRMANN, D., 1994. Sédimentation récente dans le lac Titicaca (Bolivie), *C. R. Acad. Sci. Paris*, 319, série II, p. 535-541.
- ROBBINS, J. A., 1978. Dans NRIAGU, éd., *The Biogeochemistry of Lead in the Environment*, p. 285-393.
- SERVANT-VILDARY, S. et ROUX, M., 1990. Variations de température estimées à partir du déplacement en altitude des associations de diatomées dans une séquence holocène de la Cordillère Orientale de Bolivie, *C. R. Acad. Sci. Paris*, 311, série II, p. 429-436.

Bibliographie Générale

Bibliographie Générale

- Abe, M., and S. Abe. (1978). Trends of the chemical state of polonium-210 in the atmosphere. *N.R.E. III*, p. 430-439, April 23-28, Houston, Texas, United States
- Appleby, P. G..(1995). Personal Communication.
- Appleby, P. G., V. J. Jones, and J.C. Ellis-Evans. (1995). "Radiometric dating of lake sediments from Signy Island (maritime Antarctic): evidence of recent climatic change." *J. Paleolimnol.* **13**: 179-191.
- Appleby, P. G., and F. Oldfield. (1983). "The assessment of ^{210}Pb data from sites with varying sediment accumulation rates." *Hydrobiologia*, **103**: 29-35.
- Appleby, P. G., and F. Oldfield. (1992). Application of lead-210 to sedimentation studies. In *Uranium series disequilibrium*, M. Ivanovitch and R.S. Harman (Eds), pp. 732-778, Oxford, United Kingdom.
- Appleby, P. G., F. Oldfield, R. Thomson, P. Huttunen, and K.Tolonen. (1979). " ^{210}Pb dating of annually laminated lake sediments from Finland." *Nature*, **280**: 53-55.
- Armentano, T. V. and G. M. Woodwell. (1975). "Sedimentation rates in a Long Island marsh determined by ^{210}Pb -dating." *Limnol. Oceanogr.*, **20**: 452-456.
- Asikainen, M., L. Blomqvist, and K. Sinkko. (1977). Radionuclides in ground-level air. Studies on environmental radioactivity in Finland, 1971-1975. *Report n° STL-A21*, pp. 7-20, Institute of Radiation Protection, Helsinki, Finland.
- Balkanski, Y. J., D. J. Jacob, G. M. Gardner, W. C. Graustein, and K. K. Turekian. (1993). "Transport and residence times of tropospheric aerosols inferred from a global three-dimensional simulation of ^{210}Pb ." *J. Geophys. Res.*, **98**(D11): 20,573-20,586 .
- Baranov, V. I. and V. D. Vilenskii. (1965). "Pb-210 in the atmosphere and in fallout." *Sov. Atom. Energy*, **18**: 645-648.
- Baskaran, M., C. H. Coleman, and P. H. Santschi. (1993). "Atmospheric deposition fluxes of ^7Be and ^{210}Pb at Gavelston and College Station, Texas." *J. Geophys. Res.*, **98**(D11): 20555-20571.
- Battarbee, R. W. (1978). "Observations on the recent history of Lough Neagh and its drainage basin." *Phil. Trans. R. Soc. B.*, **281**: 303-345.
- Bendezu, A.M.. (1978). Application des mesures de plomb 210 et Sr-90 à l'étude des échanges entre l'atmosphère et la calotte Antarctique, Ph.D Thesis, p. 108, Université de Paris.

Benninger, L. K. (1976). The Uranium-series radionuclides as tracers of geochemical processes in Long Island Sound. Ph.D.Thesis, Yale University, New Haven, Conn., United States.

Benninger, L. K. (1978). ^{210}Pb balance in Long Island Sound." *Geochem. Cosmochem. Acta*, **42**: 1165-1174.

Benninger, L. K., D. M. Lewis and K. K. Turekian. (1975). The use of natural ^{210}Pb as a heavy metal tracer in river-estuarine systems. In *Marine chemistry in the coastal environment, Symp. Ser. 18*, T.M. Church (Ed), pp. 201-210, American Chemical Society, New York.

Benoit, G. and H. F. Hemond. (1991). "Evidence for diffusive redistribution of ^{210}Pb in lake sediments." *Geochem. Cosmochem. Acta*, **55**: 1963-1975.

Bhandari, N. and V. N. Nijampurkar. (1981). Radiometric chronology of some himalayan glaciers. in *Symposium on variations in global water budget*, Oxford, United Kingdom.

Binford, M. W. and M. Brenner. (1986). "Dilution of ^{210}Pb by organic sedimentation in lakes of different trophic states, and application to studies of sediment-water interactions." *Limnol. Oceanogr.*, **31**(3): 583-595.

Binford, M. W., M. Brenner, and D. R. Engstrom. (1991). Patrones de sedimentacion temporal en la zona litoral del Huinamarca. In *El lago Titicaca*, C. Dejoux and A. Iltis (Eds), pp. 47-58, ORSTOM-Hisbol, La Paz, Bolivia.

Biscaye, P. E., R. F. Anderson, and B. L. Deck. (1988). *Cont. Shelf Res.*, **8**: 855-904.

Bloesch, J. and R. D. Evans. (1982). "Lead-210 dating of sediments compared with accumulation rates estimated by natural markers and measured with sediment traps." *Hydrobiologia*, **92**: 586-597.

Bonnyman, J., J.C. Duggleby, and J. Molina-Ramos. (1971). "The concentrations of radioactive isotopes in Australian surface air during the period may 1965 - may 1970." *Techn. Rep. CKRL/5*, Commonwealth X-ray and Radium Laboratory, Melbourne, Australia.

Bonnyman, J., and J. Molina-Ramos. (1971). Concentrations of lead-210 in rain-water in Australia during the years 1964-1971. *Tech. Rep. CXRL/7*, Commonwealth X-ray and Radium Laboratory, Melbourne, Australia .

Boulangé, B., C. Vargas, and L.A. Rodrigo. (1981). *Rev. Hydrobiol. Trop.*, **14**(4): 299-309.

Bruland, K. W. (1974). Pb-210 geochronology in the coastal marine environment. Ph.D.Diss., University of California, San Diego, United States.

Bruland, K. W., M. Koide, and E. D. Goldberg. (1974). "The comparative marine

geochemistries of lead 210 and radium 226", *J. Geophys. Res.*, **79**(21): 3083-3086.

Brunskill, J. G., and P. Wilkinson. (1987). "Annual supply of U238, U234, Th230, Ra226, Pb210, Po210 and Th232 to lake 239 (ELA, Ontario) from terrestrial and atmospheric sources." *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, **44**: 215-230.

Brush, G. S., E. A. Martin, R. S. Defries, and C. A. Rice.(1982). "Comparisons of ^{210}Pb and pollen methods for determining rates of estuarine sediment accumulation." *Quatern. Res.*, **18**: 196-217.

Buesseler, K. O., H. D. Livingston, and E. R. Sholkovitz.(1985-86). " $^{239,240}\text{Pu}$ and excess ^{210}Pb inventories along the shelf and slope of the Northeast U.S.A." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **76**: 10-22.

Burton, W. M., and N. G. Stewart. (1960). "Use of long-lived natural radioactivity as an atmospheric tracer." *Nature*, **186**: 584-589.

Calmet, D.. (1996). Données IPSN/DPRE/SERE/LMRE, Commissariat a l'Energie Atomique (C.E.A.), Orsay, France.

Cambray, R. S., K. Playford, G. N. J. Lewis, and R. C. Carpenter. (1989). Radioactive fallout in air and rain: results to the end of 1987. AERE Report n° 13226, UKAEA Harwell, United Kingdom.

Carpenter, R., J. T. Bennett, and M. L. Peterson. (1981). " ^{210}Pb activities in and fluxes to sediments of the Washington continental slope and shelf." *Geochem. Cosmochem. Acta*, **45**(7): 1155-1172.

Carvalho, F. P. (1990). Contribution a l'étude du cycle du polonium-210 et du plomb-210 dans l'environnement. Thèse de doctorat, Université Sophia-Antipolis, Nice, France.

Christensen, E. R., and P. K. Bhunia. (1986). "Modeling radiotracers in sediments: Comparison with observations in lakes Huron and Michigan." *J. Geophys. Res.*, **91**(C7): 8559-8571.

Clifton, R. J..(1991). The use of radionuclides (unsupported ^{210}Pb , ^7Be and ^{137}Cs) in describing the mixing characteristics of estuarine sediments. In *Radionuclides in the study of marine processes*, P.J. Kershaw and D.S. Woodhead (Eds), pp. 255-264, Elsevier Sci., New York.

Clements, W. E., and M. H. Wilkening. (1974). "Atmospheric pressure effects on ^{222}Rn transport across the earth-air interface." *J. Geophys. Res.*, **79** (33): 5025-5029, .

Coale, K. H., and K. W. Bruland. (1986). Dynamic processes in the chemistry of the upper ocean. J.D. Burton, P.G. Brewer, and R. Chasselet (Eds), pp.159-172, Plenum, New York.

Cochran, J. K., T. Mc Kibbin-Vaughan, M. M. Dornblaser, D. Hirshberg, H. D. Livingston, and K. O. Buesseler. (1990). "²¹⁰Pb scavenging in the North Atlantic and North Pacific oceans." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **97**: 332-352, .

Crozaz, G.. (1967). Mise au point d'une méthode de datation des glaciers basée sur la radioactivité du plomb-210. Ph. D. Thesis, Université Libre de Bruxelles, Bruxelles, Belgium.

Crozaz, G., and P. Fabri. (1966). "Mesure du polonium a l'échelle de 10⁻¹³ Curies, traçage par le ²⁰⁸Po et application a la chronologie des glaces." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **1**: 446-448.

Crozaz, G.. (1969). "Fission products in Antarctic snow, an additional reference level in Jan. 1965." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **6**: 6.

Crozaz, G., and C. C. Langway Jr. (1966). "Dating Greenland firn ice core with Pb-210." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **1**: 194-196.

Crozaz, G., E. Piccioto, and W. De Breuck. (1964). "Antarctic snow chronology with Pb-210." *J. Geophys. Res.*, **69**: 2594-2604.

Crusius, J., and R. F. Anderson. (1992). "Inconsistencies in accumulation rates of Black Sea sediments inferred from records of Laminiae and ²¹⁰Pb." *Paleoceanography*, **7**(2): 215-227.

Cutter, G.A., K. W. Bruland, and R. W. Risebrough. (1979). "Deposition and accumulation of plutonium isotopes in Antarctica." *Nature*, **279**: 628-629.

D'Alberti, A.. (1996). "Personnal Communication".

Davidson, C. I.. (1989). Mechanism of wet and dry deposition of atmospheric contaminants to snow surfaces. In *The Environmental Records in Glaciers and Ice Sheets*, H. Oeschger and C.C. Langway Jr. (Eds), pp. 29-51, John Wiley and Sons Ltd..

Davis, R. B., C. T. Hess, S. A. Norton, D. W. Hanson, K. D. Hoagland, and D. S. Anderson. (1984). "¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb dating of sediments from soft-water lakes in New England (USA) and Scandinavia, a failure of ¹³⁷Cs dating." *Chem. Geol.*, **44**: 151-185.

Dearing, J. A., H. Håkanson, B. Liedberg-Jönsson, A. Persson, S. Skansjö, D. Widholm, and F. El Daouhy. (1987). "Lake sediment use to quantify the erosional response to land use change in Southern Sweden." *OIKOS*, **50**: 60-78.

DeConinck, J. N., M. Bernat and B. Chassefiere. (1983). "Etude des isotopes de U, Th et du Pb-210 dans les sédiments de l'étang de Canet (Pyrennee-Orientales)." *Oceanol. Act.*, **6**(2): 131-138.

Delmas, R., and M. Pourchet. (1977). Utilisation de filtres échangeurs d'ions pour l'étude de l'activité Beta globale d'un carottage glaciologique. *IASH-AISH Publ.*, Vol.

118, pp. 158-163.

Deutsch, C., A. Journal. (1992). *Geostatistical software library and user's guide*, Oxford University press.

Dibb, J. E.. (1990a). "Recent deposition of ²¹⁰Pb on the Greenland ice sheet: Variations in space and time." *Ann. Glaciol.*, **14**: 51-54.

Dibb, J. E.. (1990b). "Beryllium-7 and lead-210 in the atmosphere and surface snow over the Greenland ice sheet in the summer of 1989." *J. Geophys. Res.*, **95**(D13): 22407-22415.

Dibb, J. E.. (1992). "The accumulation of ²¹⁰Pb at Summit, Greenland, since 1855." *Tellus*, **44B**: 72-79.

Dibb, J. E., and J. L. Jaffrezo. (1993). "Beryllium-7 and lead-210 in aerosol and snow in the Dye-3 gas aerosol and snow sampling program." *Atmosph. Env.*, **27A**(17/18): 2751-2760.

Dominik, J., D. Burrus, and J. P. Vernet. (1987). "Transport of the environmental radionuclides in an alpine watershed." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **84**: 165-180.

Dominik, J., A. Mangini, and G. Müller. (1981). "Determination of recent deposition rates in lake Constance with radioisotopic methods." *Sedimentology*, **28**: 653-677.

Durham, R. W., and S. R. Joshi. (1980a). "The ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs profiles in sediment cores from lakes Matagami and Quevillon, Northwest Quebec, Canada." *Can. J. Earth Sci.*, **17**: 1746-1750.

Durham, R. W., and S. R. Joshi. (1980b). "Recent sedimentation rates, ²¹⁰Pb fluxes and particle settling velocities in lake Huron, Laurentian Great lakes." *Chem. Geol.*, **31**: 53-66.

Durham, R. W., and S. R. Joshi. (1981). "Sedimentation rates in Western Nipigon bay, Lake Superior, using the ²¹⁰Pb method." *Sci. Tot. Environ.*, **22**: 51-59.

Durham, R. W., and S. R. Joshi. (1984). Lead-210 dating of sediment from some Northern Ontario lakes. In *Quaternary dating method*, pp. 75-85, W.C.Mahaney (Ed), Elsevier Sci., Amsterdam, Netherland.

Eakins, J. D., R. S. Cambray, K. C. Chambers, and A. E. Lally. (1984). The transfer of natural and artificial radionuclides to Brotherswater from its catchment. In *Lake sediments and environmental history*, pp.125-144, E.Y. Haworth and J.W.G.Lund (Eds), Leicester University Press.

Edgington, D. N., J. Val Klump, J. A. Robbins, Y. S. Kusner, V. D. Pampura, and I. V. Sandimirov. (1991). "Sedimentation rates, residence times and radionuclides inventories in lake Baikal from ¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb in sediment cores." *Nature*, **350**:

601-604.

Eisenbud, M.. (1987). *Environmental Radioactivity from Natural, Industrial and Military Sources*, p. 475, Academic Press Ins..

El-Daoushy, F. (1986). "Scandinavia limnology of sediments and heavy metals." *Hydrobiologia*, **143**: 267-276.

El-Daoushy, F.. (1987). The Pb210 global cycle: dating and tracing applications. First International Summer School on "Low-level measurements and their applications to environmental radioactivity", Sept. 27 to Oct. 10, 1987, La Rabida, Andalucia, Spain.

El-Daoushy, F., and K. Tolonen. (1984). "Lead-210 and heavy metal contents in dated ombrotrophic peat hummocks from Finland." *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*, **223**: 392-399.

Elnor, J., and C. Wood. (1980). "The history of two linked but contrasting lakes in N. Wales from a study of pollen, diatoms and chemistry in sediment cores." *J. Ecol.*, **68**: 95-121.

Erten, H. N., H. R. Von Gunten, E. Rössler, and M. Sturm. (1985). "Dating of sediments from lake Zurich (Switzerland) with ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs." *Schweiz. Z. Hydro.*, **47**: 5-11.

Evans, J. E., T. C. Johnson, E. C. Alexander Jr, R. S. Lively, and S. J. Eisenreich. (1981). "Sedimentation rates and depositional processes in lake Superior from ²¹⁰Pb geochronology." *J. Great Lakes Res.*, **7**(3): 299-310.

Farmer, J. G.. (1978). "The determination of sedimentation rates in lake Ontario using the ²¹⁰Pb dating method." *Can. J. Earth Sci.*, **15**: 431-437.

Feely, H. W., E. Laurence Toonkel, and J. R. Larsen. (1980). Radionuclides and trace metals in surface air. Report EML-380, Environmental Measurement Laboratory, New York.

Feely, H. W., H. Seitz, R. J. Lagomarsino, and P. E. Biscaye. (1966). "Transport and fallout of stratospheric radioactive debris." *Tellus*, **18**(2): 316-328.

Fisene, I. M.. (1968). Distributions of lead-210 and radium-226 in soils. Report UCRL-18140, pp. 145-158, U.S. D.O.E., Washington.

Fisher, N. S., J. K. Cochran, S. Krishnaswami, and H. D. Livingstone. (1988). "Predicting the ocean flux of radionuclides on sinking biogenic debris." *Nature*, **335**: 622-625.

Flower, R. J., A. C. Stevenson, J. A. Dearing, I. D. L. Foster, A. Airey, B. Rippey, J. P. S. Wilson, and P. G. Appleby. (1989). "Catchment disturbance inferred from paleolimnological studies of three contrasted sub-humid environments in Marocco." *J. Paleolimnol.*, **1**: 293-322.

Fontes, J. C., B. Boulangé, and L.A. Rpdriego. (1981). "Carbone 14, carbone 13 et oxygène 18 dans les sédiments carbonatés du lac Titicaca. Premières estimations des vitesses de sédimentation et essais de paléoclimatologie." *C.R. Acad. Sci. Paris*, **293**(II): 53-56.

Fukuda, K., and S. Tsunogai. (1975). "Pb-210 in precipitation in Japan and implication for the transport of continental aerosols across the ocean." *Tellus*, **27**: 514-521.

Füller, C., and D. E. Hammond. (1983). "The fallout rate of Pb-210 on the Western coast of the United States." *Geophys. Res. Lett.*, **10**(12): 1164-1167.

Gäggeler, H., H. R. Von Gunten, E. Rössler, H. Oeschger, and U. Schotterer. (1983). "²¹⁰Pb dating of cold alpine firn/ice cores from Colle Gniffetti, Switzerland." *J. Glaciol.*, **29**(101): 165-177.

Gavini, M. B., J. N. Neck and P. K. Kuroda. (1974). "Mean residence times of the long-lived radon daughters in the atmosphere." *J. Geophys. Res.*, **79**(30): 4447-4452.

Genthon, C., and A. Armengaud. (1995a). "Radon 222 as a comparative tracer of transport and mixing in two general circulation models of the atmosphere." *J. Geophys. Res.*, **100**(D2): 2,849-2,866.

Genthon, C., and A. Armengaud. (1995b). "GCM simulations of atmospheric tracers in the polar latitudes: South Pole (Antarctica) and Summit (Greenland) cases." *The Sci. Tot. Environ.*, **160/161**: 101-116.

Giresse, P., S. Ngos et M. Pourchet. (1994). "Processus sédimentaires séculaires et géochronologie au ²¹⁰Pb des principaux lacs de la dorsale camérounaise." *Bull. Soc. geol. France*, **165**(4): 363-380.

Glöbel, B., H. Muth, and E. Oberhausen. (1965). *Strahlentherapie*, **131**: 218.

Goldberg, E. D.. (1963). Geochronology with lead-210. In *Radioactive Dating*, pp. 121-131, IAEA, Vienna, .

Graf, W., H. Moser, O. Reinwarth, J. Kipfstuhl, H. Oerter, A. Minikin, D. Wagenbach. (1994). "Snow accumulation rates and isotopic content (²H, ³H) of near surface firn from the Filchner- Ronne Ice Shelf, Antarctica." *Ann. Glaciol.*, **20**: 121-128.

Graustein, W. C., and K. K. Turekian. (1986). "²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs in air and soils measure the rate and vertical profile of aerosol scavenging." *J. Geophys. Res.*, **91**: 7065-7075.

Hasänen, E.. (1977). "Dating of sediments based on ²¹⁰Pb measurements." *Radiochem. Radioanalyt. Lett.*, **31**(4-5): 207-214.

Hashimoto, T., T. Morimoto, Y. Ikeuchi, K. Yoshimizu, T. Torii, and K. Komura. (1989). "A survey of artificial radionuclides in the Antarctic." *Radioisotopes*, **38**: 209-218.

Hasl-329. (1977). Final tabulation of monthly ^{90}Sr fallout data: 1954-1976. *Report UC-11*, U.S. Energy and Development Administration, New York.

Heidam, N.Z.. (1984) "The components of the Arctic aerosol." *Atmos. Environ.*, **18**(2): 329-343, .

Helz, G. R., G. H. Setlock, A. Y. Cantillo, and W. S. Moore. (1985-86). "Processes controlling the regional distribution of ^{210}Pb , ^{226}Ra , and anthropogenic zinc in estuarine sediments." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **76**: 23-34.

Hemmerich, R.. (1980). Bestimmung des Pb-210 Flusses an Bodenprofilen. Staatsexamenarbeit, Institut für Umweltpophysik, Universität Heidelberg, Deutschland.

Hermanson, M. H.. (1990). " ^{210}Pb and ^{137}Cs chronology of sediments from small, shallow Arctic lakes." *Geochim. Cosmochim. Acta*, **54**: 1443-1451.

Heyraud, M.. (1982). Contribution a l'étude du polonium-210 et du plomb-210 dans les organismes marins et leur environnement. Thèse de doctorat d'Etat, p. 144, Université Pierre et Marie Curie, Paris.

Hussain, N., T. Church, M. Heyraud, S. Fowler, S. Heussner, A. Monaco, P. Biscaye, and R. F. Anderson. (1990). "Systematics of radon daughters (^{210}Pb - ^{210}Po). Atmospheric fallout to coastal regions." *EOS transactions*, **73**(2): 72.

Imboden, D. M., and M. Stiller. (1982). "The influence of radon diffusion on the ^{210}Pb distribution in lake sediments." *J. Geophys. Res.*, **87**(C1): 557-565.

Jacob, D. J., M. J. Prather, P. J. Rasch, J. Feichter, I. Kölher, P. S. Kasibhatla, G. Verver, P. J. M. Van Velthoven, J. E. Dignon, J. E. Penner, D. J. Bergmann, C. Genthon, Y. J. Balkanski, M. Ramonet, P. Zimmermann, S. R. Beagley, J. de Grandpré, W. T. Blackshear, W. L. Grose, D. A. Rotman, M. Chiba, M. Chipperfield, Z. Stockwell, R. L. Shia, K. Law, O. Wild, C. E. Reeves, M. Brown, H. Yang, and M.A. Kritz. (1996). "Intercomparison of global atmospheric transport models using ^{222}Rn and other short-lived tracers." submitted to *J. Atmosph. Res.*.

Jambu, M.. (1991). *Exploratory and multivariate data analysis*, Academic press.

Joshi, L. U., and T. L. Ku. (1979). "Measurement of ^{210}Pb from a sediment core of the coast of California." *J. Radioanalyt. Chem.*, **52**(2): 329-334.

Joshi, L. U., C. Rangarajan, and S. Gopalakrishnan. (1969). "Measurement of lead-210 in surface air and precipitation." *Tellus*, **21**: 107-112.

Joshi, S. R.. (1985). "Recent sedimentation rates and ^{210}Pb fluxes in Georgian Bay and lake Huron." *Sci. Tot. Environ.*, **41**: 219-233.

Joshi, S. R., and M. E. Fox. (1985). "The ^{210}Pb and ^{137}Cs profiles in sediment cores from Bay of Quinte, lake Ontario." *J. Radioanalyt. Nuclear Chem.*, **90**(1): 207-215.

Joshi, S. R., B. S. Shukla, and A. G. Bobba. (1992). Lead-210 sedimentation in lake Ontario, *Environ. Geol. Water Sci.*, **19**(2): 121-126, .

Jouzel, J., L. Merlivat, M. Pourchet, and C. Lorius. (1979). "A continuous record of artificial tritium fallout at the South Pôle (1954-1978)." *Earth. Planet. Sci. Lett.*, **45**: 188-200.

Jouzel, J., M. Pourchet C., Lorius, and L. Merlivat. (1978). Artificial tritium fallout at the South Pole. In *Behaviour of Tritium in the Environment*, SM 232/38, pp. 31-46, IAEA, Vienna.

Junge, C.C.. (1963). *Air chemistry and Radioactivity*, Academic, New York.

Kada, J., and M. Heit. (1992). "The inventories of anthropogenic Pb, Zn, As, Cd and the radionuclides ^{137}Cs and excess ^{210}Pb in lake sediments of the Adirondack region, U.S.A." *Hydrobiologia*, **246**: 231-241.

Kershaw, P. J.. (1985). " ^{14}C and ^{210}Pb in NE Atlantic sediment: Evidence of biological reworking in the context of radioactive waste disposal." *J. Environ. Radioact.*, **2**: 115-134.

Knuth, R.H., E.O. Knutson, H.W. Feely, and H.L. Volchok. (1983). "Size distribution of atmospheric Pb and ^{210}Pb in rural New Jersey: Implications for wet and dry deposition.", in *Precipitation Scavenging, Dry Deposition, and Resuspension*, H.R. Pruppacher, R.G. Semonin, and W.G.N. Slinn (Eds), pp. 1325-1335, Elsevier, New York.

Koide, M., K. Bruland, and E. D. Goldberg. (1976). " ^{226}Ra chronology of a coastal marine sediment." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **31**: 31-36.

Koide, M., and E. D. Goldberg. (1981). " $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ ratios in polar glaciers." *Earth. Planet. Sci. Lett.*, **54**: 239-247.

Koide, M., E. D. Goldberg, M. M. Heron, and C. C. Langway Jr.(1977). "Transuranic depositional history in South Greenland firn layers." *Nature*, **269**: 137-139.

Koide, M., R. Michel, E. D. Goldberg, M. Heron, and C. C. Langway Jr. (1979). "Depositional history of artificial radionuclides in the Ross ice shelf, Antarctica." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **44**: 205-223.

Koide, M., A. Soutar, and E. D. Goldberg. (1972). "Marine geochronology with ^{210}Pb ." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **14**: 442-446.

Kolb, W.. (1970). "Jahreszeitliche Schwankungen der ^7Be , ^{54}Mn and Spalt product - Konzentrationen der bodennahen Laft." *Tellus*, **22**: 443-450.

Kownacka, L., Z. Jaworowski, and M. Suplinska. (1990). "Vertical distribution and flows of lead and natural radionuclides in the atmosphere." *Sci. Tot. Environ.*, **91**: 199-221.

Krishnaswami, S., and D. Lal. (1978). Radionuclide limnology. In *Lakes Chemistry, Geology, Physics*, A. Lerman (Ed), pp. 153-177.

Krishnaswami, S., D. Lal, J. Martin, and M. Meybeck. (1971). "Geochronology of lake sediments." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **11**: 407.

Kurata, T., and S. Tsunogai. (1986). "Exhalation rates of ^{222}Rn and deposition rates of ^{210}Pb at the Earth's surface estimated from ^{226}Ra and ^{210}Pb profiles in soils." *Geochem. J.*, **20**: 81-90.

Lambert, G., B. Ardouin, and E. Brichet. (1971). "Balance of ^{90}Sr over Antarctica: existence of a protected area." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **11**: 317-323.

Lambert, G., B. Ardouin, and A. Mesbah-Bendezu. (1983). Atmosphere to snow transfer in Antarctica. In *Precipitation, scavenging, dry deposition and resuspension*, H.R. Pruppacher, R.G. Semonin, and W.G.N. Slinn (Eds), pp.1289-1300, Elsevier, New York.

Lambert, G., B. Ardouin, M. Nezami, and G. Polian. (1966). "Possibilities of using ^{210}Pb as an atmospheric tracer." *Tellus*, **18**: 421

Lambert, G., B. Ardouin, and G. Polian. (1982). "Volcanic output of long-lived radon daughters." *J. Geophys. Res.*, **87**(C13): 11,103-11,108, .

Lambert, G., B. Ardouin, and J. Sanak. (1990). "Atmospheric transport of trace elements towards Antarctica." *Tellus*, **42B**: 76-82.

Lambert, G., B. Ardouin, J. Sanak, C. Lorius, and M. Pourchet. (1977). Accumulation of snow and radioactive debris in Antarctica: a possible refined radiochronology beyond reference levels. In *Isotopes and Impurities in Snow and Ice*, Vol. 118, pp. 146-158, IAHS-Publ..

Lambert, G., J. Labeyrie, et B. Ardouin. (1965). "Sur l'existence d'une structure zonale de la basse atmosphère, principalement dans l'hémisphère sud." *C. R. Acad. Sci. Paris*, **261**: 3857-3860.

Lambert, G., G. Polian, J. Sanak, B. Ardouin, A. Buisson, A. Jegou et J. C. Le Roulley. (1982). "Cycle du radon et de ses descendants : application à l'étude des échanges troposphère-stratosphère." *Ann. Geophys.*, **48**: 497-531.

Larsen, R. J., and C. G. Sanderson. 1991). "EML Surface Air Sampling Program, 1989 Data." *Environ. Rep.*, EML-541, Environmental Measurement Laboratory, U.S. Department of Energy, New York.

Larsen, R. J., and C. G. Sanderson. (1995). "EML Surface Air Sampling Program, 1990-1993 Data." *Report n° EML-572*, Environmental Measurement Laboratory, U.S. Department of Energy, New York.

Lee, H. N., and J. Feichter. (1995). An intercomparison of wet deposition scavenging schemes and the emission rates of ^{222}Rn for the simulation of global transport and deposition of ^{210}Pb , *J. Geophys. Res.*, **100**, D11, 23,253-23,270, .

Legates, D. R., and C. J. Willmott. (1992). Monthly average surface air temperature and precipitations. Digital data on a 30 minutes geographic (lat/long) 360x270 grid. In Global ecosystems database version 1.0: disc A. 48 independent and 4 derived single attribute spatial layers on CD-ROM, 47.2MB, NOAA National Geophysical Data Center, Boulder, CO, United States.

Levieil, D., and B. S. Orlove. (1991). Importancia socio-economica de las macrofitas, In *El lago Titicaca*, C. Dejoux and A. Iltis (Eds), pp. 509-516, ORSTOM-Hisbol, La Paz, Bolivia.

Li, W. Q., N. L. Guinasso, K. H. Cole, and M. D. Richardson. (1985). "Radionuclides as indicators of sedimentary processes in abyssal caribbean sediments." *Mar. Geol.*, **68**: 187-204.

Lockhart, L. B., R. L. Patterson, and A. W. Saunders. (1966a). "Airborne radioactivity in Antarctica." *J. Geophys. Res.*, **71**(8): 1985-87.

Lockhart, L.B., R.L. Patterson, and A.W. Saunders. (1966b). Atmospheric radioactivity in Antarctica 1959-1963. *Report n° 6341*, U.S. Naval Research Laboratory.

Lockhart, Jr., L. B., R. L. Patterson, Jr., A. W. Saunders, Jr., and R. W. Black. (1964). "Summary report on fission product radioactivity in the air along the 80th meridian (West), 1957-1962." *NRL Report 6104*, U.S. Naval Research Laboratory, Washington, D.C..

Luyanas, V. Yu., R. Yu. Yasyulyonis, D.A. Shopauskiene, and B.I. Styra. (1970). "Cosmogenic ^{22}Na , ^7Be , ^{32}P , and ^{33}P in atmospheric dynamics research." *J. Geophys. Res.*, **75**: 3665-3667.

Mac Caffrey, R. J.. (1977). A record of the accumulation of sediment and trace metals in a Connecticut, U.S.A., salt marsh. Ph.D Thesis, Yale University, New Haven, Conn., United States.

Mac Caffrey, R. J., and J. Thomson. (1974). A record of trace metal fluxes to a Connecticut salt marsh as determined by ^{210}Pb dating. A.E.C. Tech. Rep. COO-3573-8, Yale University, New Haven, Conn., United States.

Mac Call, P. M., J. A. Robbins, and G. Matisoff. (1984). " ^{137}Cs and ^{210}Pb transport and geochronologies in urbanized reservoirs with rapidly increasing sedimentation rates." *Chem. Geol.*, **44**: 33-65.

Maenhaut, W., and W. H. Zoller. (1979). "Radionuclides in the South Pole atmosphere." *J. Geophys. Res.*, **84**(C6): 3131-3138.

Magno, P. J., P. R. Groulx, and J. C. Apidianakis. (1970). "Lead-210 in air and total diets in the United States during 1966." *Health Physics*, **18**: 383-388.

Marenco, A.. (1974). Utilisation des éléments radioactifs ^7Be , ^{32}P , ^{40}K , ^{210}Po et ^{210}Pb pour l'étude du comportement de la matière à l'état particulaire dans la troposphère. Thèse, Université Paul Sabatier, Toulouse, France.

Martell, E. A.. (1970). Transport patterns and residence times for atmospheric trace constituents versus altitude. In *Radionuclides in the Environment*, Atmospheric Trace Constituents, **9**: 138-157.

Martell, E. A., and H. E. Moore. (1974). "Tropospheric aerosol residence times: a critical review." *J. Rech. Atmos.*, **8**: 903-910.

Matsumoto, E.. (1981). "Sedimentation rates in several lakes of Japan measured with ^{210}Pb method." *Verh. Internat. Verein. Limnol.*, **21**: 603-608.

Matsumoto, E., and C. S. Wong. (1977). "Heavy metal sedimentation in Saanish Inlet measured with ^{210}Pb technique." *J. Geophys. Res.*, **82**(34): 5477-5482.

Matsunami, T., A. Mizohata, and T. Mamuro. (1974). "Some attempts to interpret the variations with time of monthly depositions of ^{210}Pb , ^7Be , ^{137}Cs and ^{144}Ce ." *Ann. Rep. Radiat. Cent. Osaka Prefect.*, **15**: 24-29.

Mattson, R.. (1970). "Seasonal variation of short-lived radon progeny, ^{210}Pb and ^{210}Po in ground level air in Finland." *J. Geophys. Res.*, **75**(9): 1741-1744.

Mauviel, A., H. V. Nguyen, R. Chasselet, M. Sibuet, Y. Yokohama, and G. Auffret. (1982). "Etude des variations des taux de bioturbations par la spectrométrie gamma non-destructive (GeHP), dans trois zones de l'Atlantique Nord, à 2000m et à plus de 4000m de profondeur." *Bull. Inst. Geol. Bassin Aquitaine (Bordeaux)*, **31**: 257-274.

Mélières, M. A., M. Pourchet, J. F. Pinglot, R. Bouchez, and M. Piboule. (1988). "Chernobyl ^{134}Cs , ^{137}Cs , and ^{210}Pb in high mountain lake sediment: measurements and modeling of mixing process." *J. Geophys. Res.*, **93**(D6): 7055-7061.

Merlivat, L., J. Jouzel, J. Robert, and C. Lorius. (1978). Distribution of artificial tritium in firn samples from East Antarctica. *AISH Symp. Grenoble*, Vol. 118, pp. 138-145, Aug-Sept.1975, IAHS-AISH Pub..

Ming, X., Z. Chenghui, M. Zhibang, L. Zhuocheng, and Z. Xiuyun. (1981). " ^{210}Pb dating method and sedimentation rates in Zhujiang estuary and Jinzhou bay." *Kexue Tongbao*, **28**(6).

Mishra, U. O., O. Ransarajan, and C. D. Eapens. (1978). Natural radioactivity of the atmosphere over the Indian land mass, inside deep mines and over adjoining oceans. NRE III, US DOE Symposium series 51: 327-346.

Mitchell, P. I., W. R. Schell, A. Mac Garry, T. P. Ryan, J. A. Sanchez-Cabeza, and A. Vidal-Quadras. (1992). "Studies of the vertical distribution of ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Pu , ^{241}Am , and ^{210}Pb in ombrogenous mires at mid-latitude." *J. Radioanalyt. Nucl. Chem.*, **156**(2): 361-387.

Monaghan, M. C.. (1989). " ^{210}Pb in surface air and soils from California - Implications for the behavior of trace constituents in the planetary boundary layer." *J. Geophys. Res.*, **94**(D5): 6449-6456.

Monaghan, M. C., and G. Holdworth. (1990). "The origin of non-sea-salt sulphate in the Mount Logan ice core." *Nature*, **343**: 245-248.

Monaghan, M. C., S. Krishnaswami, and K. K. Turekian. (1986). "The global-average production rate of ^{10}Be ." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **76**: 279-287.

Monna, F., J. Lancelot, M. Bernat, et H. Mercadier. (1996). "Etude des taux de sédimentation dans l'étang de Thau (Hérault, France) à partir des données géochronologiques, géochimiques et des repères stratigraphiques." *Oceanol. Act.*, in press.

Moore, H. E., and S. E. Poet. (1976). " ^{210}Pb fluxes determined from ^{210}Pb and ^{226}Ra soil profiles." *J. Geophys. Res.*, **81**: 1056-1058.

Moore, H. E., S. E. Poet, and E. A. Martell. (1973). " ^{222}Rn , ^{210}Pb , and ^{210}Po profiles and aerosol residence times versus altitude." *J. Geophys. Res.*, **78**(30): 7065-7075.

Moore, H. E., S. E. Poet, and E. A. Martell. (1977). "Vertical profiles of ^{222}Rn and its long-lived daughters over the eastern Pacific." *Environ. Sci. Technol.*, **11**(13): 1207-1210, .

Moore, H. E., J. E. Poet, E. A. Martell, and M. H. Wilkening. (1974). "Origin of ^{222}Rn and its long-lived daughters in air over Hawaii." *J. Geophys. Res.*, **79**(33): 5019-5024.

Moser, R. M., H. R. Von Gunten, and M. Sturm. (1991). Remobilisation of lead-210 : A possible exclamation for local activity anomalies in lake Zurich (Switzerland). Proc. Heavy Metals in the Environment, pp. 351-355, Edimburgh, United Kingdom.

Mourguiart, P., D. Wirrmann, M. Fournier, and M. Servant. (1992). "Reconstruction quantitative des niveaux du petit lac Titicaca au cors de l'holocène." *C. R. Acad. Sci. Paris*, **315**(II): 875-880.

Murchie, S. L.. (1985). " ^{210}Pb dating and the recent geology history of Crystal bay, lake Minnetonka, Minnesota." *Limnol. Oceanogr.*, **30**(6): 1154-1170.

Nevissi, A. E.. (1985). "Measurement of ^{210}Pb atmospheric flux in the Pacific Northwest." *Health Physics*, **48**: 169-175.

Nevissi, A. E., and W. R. Schell. (1978). Use of lead-210 and polonium-210 as tracers

of atmospheric processes. *NRE III*, pp. 405-414, US DOE Symp. series 51.

Nezami, M., G. Lambert, C. Lorius, and S. Labeyrie. (1964). "Mesure du taux d'accumulation de la neige au bord du continent Antarctique par la méthode du plomb-210." *C.R. Acad. Sci. Paris*, **259**: 3319-3322.

Nho, E.-Y., B. Ardouin, M. F. Le Cloarec, and M. Ramonet. (1996). "Origins of ^{210}Po in the atmosphere at Lamto, Ivory Coast: Biomass burning and saharan dusts." *Atmosph. Environ.*, **30**(22): 3705-3714.

Nijampurkar, V. N., and H. B. Clausen. (1990). "A century old record of lead-210 fallout on the Greenland ice sheet." *Tellus*, **42B**: 29-38.

Nosaki, Y., J. K. Cochran, K. K. Turekian, and G. Keller. (1977). "Radiocarbon and ^{210}Pb distribution in submersible-taken deep sea cores from project Famous." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **34**: 167-173.

Nosaki, Y., D. J. De Master, D. M. Lewis, and K. K. Turekian. (1978). "Atmospheric ^{210}Pb fluxes determined from soil profiles." *J. Geophys. Res.*, **83**(C8): 4047-4051.

Oldfield, F., and P. G. Appleby. (1984). Empirical testing of ^{210}Pb -dating models for lake sediments. In *Lake sediments and environmental history*, E.Y. Haworth and J.W. Lund (Eds), pp. 93-124, Leicester University Press.

Oldfield, F., P. G. Appleby, and R. W. Battarbee. (1978). "Alternative ^{210}Pb dating: results from the New Guinea highlands and Lough Erne." *Nature*, **271**: 339-342.

Oldfield, F., P. G. Appleby, and D. Petit. (1980). "A re-evaluation of lead-210 chronology and the history of total lead influx in a small South Belgian Pond." *Ambio*, **9**: 87-99.

Olsen, C. R., L. Larsen, P. D. Lowry, N. H. Cutshall, J. F. Todd, G. T. F. Wong, and W. H. Casey. (1985). "Atmospheric fluxes and marsh-soil inventories of ^7Be and ^{210}Pb ." *J. Geophys. Res.*, **90**(10): 10487-10495.

Orson, R. A., R. L. Simpson, and R. E. Good. (1990). *J. Sediment. Petrol.*, **60**(6): 859-869.

Ostria, C.. (1987a). "Végétation actuelle et fossile de haute altitude (exemple d'une vallée glaciaire: Hichu Kkota, Cordillère Royale des Andes de Bolivie)." *Géodynam.*, **2**(2): 109-113.

Ostria, C.. (1987b). "Phytoécologie et paléoécologie d'une vallée glaciaire alto-andine, Hichu Kkota (Cordillère Orientale, Bolivie)." *Bull. Soc. Bot. Fr., Lettres Bot.*, **134**(4/5): 385-397.

Paatero, J., R. Mattson, and J. Hatakka. (1994). Measurement of airborne radioactivity in Finland, 1983-1990, and applications to air quality studies. Publications on Air

Quality n° 17, Finnish Meteorological Institute, Helsinki, Finland.

Paez-Osuna, F., and E. F. Mandelli. (1985). " ^{210}Pb in a tropical coastal lagoon sediment core." *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **20**: 367-374.

Pannatier, Y.. (1995). Variowin, MS-Windows programs for spatial data analysis in 2D. Ph.D thesis to be published, Lausanne.

Patterson, R. L., and L. B. Lockhart, Jr. (1963). Geographical distribution of lead-210 (RaD) in the ground level air. *N.R.E. III*, pp. 383-393, US DOE Symp. series 51.

Peirson, D. H., R. S. Cambray, and G. S. Spicer. (1966). "Lead-210 and polonium-210 in the atmosphere." *Tellus*, **18**: 427-433.

Persson, B. H.. (1970). " ^{210}Pb -atmospheric deposition in lichen-carpets in Northern Sweden during 1961-1969." *Tellus*, **22**(5): 564-571.

Petit, D.. (1974). " ^{210}Pb et isotopes stables du plomb dans des sédiments lacustres." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **23**: 199-205. Pheiffer Madsen, F., and J. Sorensen. (1979). "Validation of the lead-210 dating method." *J. Radioanalyt. Chem.*, **54**(1-2): 39-48.

Pettré, P., J.F. Pinglot, M. Pourchet, and L. Reynaud. (1986). "Accumulation distribution in Terre Adélie, Antarctica." *J. Glaciol.*, **32**(112): 486-500.

Picciotto, E., R. Cameron, G. Crozaz, S. Deutsch, and S. Wilgain. (1968). "Determination of the rate of snow accumulation at the pole of relative inaccessibility, Eastern Antarctica : a comparaison of glaciological and isotopic method." *J. Glaciol.*, **7**: 273-287.

Picciotto, E., G. Crozaz, and N. De Breuck. (1964). "Rate of accumulation of snow at the South Pole as determined by radioactive measurements." *Nature*, **203**: 393-394.

Picciotto, E., G. Crozaz, and W. De Breuck. (1971). "Accumulation on the South Pole - Queen Maud Land traverse, 1964-1968." *Antarctic Research Series*, **16**: 257-315.

Picciotto, E., and S. Wilgain. (1963). "Fission products in Antarctic Snow; a reference level for measuring accumulation." *J. Geophys. Res.*, **68**: 5965-5972.

Pierre, J. F., and D. Wirrmann. (1986). "Diatomées des sédiments holocènes du lac Khara-Kkota (Bolivie)." *Géodyn.*, **1**(2):135-145.

Pinglot, J. F., and M. Pourchet. (1979). "Low level beta counting with an automatic sample changer." *Nucl. Instrum. Meth.*, **166**: 483-490.

Pinglot, J. F., and M. Pourchet. (1994). Spectrométrie gamma à très bas niveau avec anti-compton NaI (Ti), pour l'étude des glaciers et des sédiments. *Note CEA-N-2756*, ISSN 0429-3460, pp. 291-296.

Pinglot, J. F., M. Pourchet, B. Lefauconnier, J. O. Hagen, R. Vaikmäe, J. M. Punning, O. Watanabe, S. Takahashi, and T. Kameda. (1994). "Natural and artificial radioactivity in the Svalbard glaciers." *J. Environ. Radioact.*, **25**: 161-176.

Poet, S. E., H. E. Moore, and E. A. Martell. (1972). "Lead 210, bismuth 210, and polonium-210 in the atmosphere: accurate ratio measurement and application to aerosol residence time determination." *J. Geophys. Res.*, **77**(33): 6515-6527.

Pollard, D.. (1996). "Personnal Communication".

Pourchet, M., S. K. Bartarya, M. Maignan, J. Jouzel, J. F. Pinglot, A. J. Aristarain, G. Furdada, V. M. Kotlyakov, E. Mosley-Thomson, N. Preiss, and N.W. Young. (1996). "Radionuclides in Antarctica: Deposition and distribution." *J. Glaciol.*, in press.

Pourchet, M., P. Mourguiart, J. F. Pinglot, N. Preiss, J. Argollo, and D. Wirmann. (1994). "Sédimentation récente dans le lac Titicaca (Bolivie)." *C.R. Acad. Sci. Paris*, **319**(II): 535-541.

Pourchet, M., P. Mourguiart, J. F. Pinglot, N. Preiss, J. Argollo, and D. Wirmann. (1994). "Evaluation des vitesses de sédimentation récente dans les hautes vallées des Andes boliviennes. Son intérêt dans l'estimation des paléo-pollutions atmosphériques." *C.R. Acad. Sci. Paris*, **320**(IIa): 477-482.

Pourchet, M., J. F. Pinglot, and C. Lorius. (1983). "Some meteorological applications of radioactive fallout measurements in Antarctic snows." *J. Geophys. Res.*, **88**(C10): 6015- 6020.

Pourchet, M., J. F. Pinglot, and M. A. Melieres. (1989). "Cesium 137 and lead 210 in alpine lake sediments : Measurements and modeling of mixing processes." *J. Geophys. Res.*, **94**(C9): 12761-12770.

Pourchet, M., J. F. Pinglot, and N. Preiss. "Unpublished data".

Pourchet, M., L. Porcart, and J. F. Pinglot. (1994). "Personal Communication."

Preiss, N., M. Pourchet, and J.F. Pinglot.(1996)."Unpublished data."

Preiss, N., P. Wagnon, M. Pourchet, and J.F. Pinglot.(1996)."Unpublished data."

Radakovitch, O.. (1995). Etude du transfert et du dépôt du matériel particulaire par le ²¹⁰Po et le ²¹⁰Pb. Application aux marges continentales du Golfe de Gascogne (NE Atlantique) et du Golfe du Lion (NW Méditerranée). Thèse de Doctorat, Université de Perpignan, France.

Raisbeck, G. M., F. Yiou, D. Bourles, C. Lorius, J. Jouzel, and N.I. Barkov. (1987). "Evidence for two intervals of enhanced ¹⁰Be deposition in Antarctic ice during the last glacial period." *Nature*, **326**: 273-277.

Raisbeck, G. M., F. Yiou, M. Fruneau, J. M. Loiseaux, M. Lieuvin, J. C. Ravel, and C. Lorius. (1981). "Cosmogenic ¹⁰Be concentrations in Antarctic ice during the past 30,000 years." *Nature*, **292**: 825-826.

Raisbeck, G. M., F. Yiou, J. Jouzel, and J. R. Petit. (1990). "¹⁰Be and ³H in polar ice cores as a probe of the solar variability's influence on climate." *Phil. Trans. R. Soc. Lond.*, **A330**: 463-470.

Rama, K.. (1963). Atmospheric circulation from observations of natural radioactivity." *J. Geophys. Res.*, **77**: 6515.

Rangarajan, C., S. Gopalakrishnan, V. R. Chandrasekaran, and C.D. Eapen. (1975). "The relative concentrations of radon daughter products in surface air and the significance of their ratios." *J. Geophys. Res.*, **80**(6) : 845-848.

Rangarajan, C., S.M.T. S. Gopalakrishnan, S. Sadasivan, and P. V. Chitale. (1968). "Atmospheric and precipitation radioactivity in India." *Tellus*, **20** (2): 269-283.

Rehfeld, S., and M. Heimann. (1995). "Three dimensional atmospheric transport simulation of the radioactive tracers ²¹⁰Pb, ⁷Be, ¹⁰Be, and ⁹⁰Sr." *J. Geophys. Res.*, **100**(D12): 26,141-26,161.

Reiter, E. R.. (1978). Atmospheric Transport Processes (Pt-4): Radioactive tracers. *D.O.E. Critical Review Series*, p. 605, Tech. Inf. Center, U.S. Dept. of Energy.

Robbins, J. A.. (1978). Geochemical and geophysical applications of radioactive lead. In *Biogeochemistry of lead in the environment*, pp. 285-393, J.O. NRIagu (Ed).

Robbins, J. A., and D. N. Edgington. (1975). "Determination of recent sedimentation rates in lake Michigan using ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs." *Geochem. Cosmochem. Acta*, **39**: 285-304.

Robbins, J. A., D. N. Edgington, and A. L. W. Kemp. (1978). "Comparative ²¹⁰Pb, ¹³⁷Cs and pollen geochronologies of sediments from lake Ontario and Erie." *Quatern. Res.*, **10**: 256-278.

Robbins, J. A., J. R. Krezoski, and S. C. Mosley. (1977). "Radioactivity in sediments of the Great Lakes : Post-depositional redistribution by deposit feeding organisms." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **36**: 325-333.

Robbins, J. A., A. Mudroch, and B. G. Oliver. (1990). "Transport and storage of ¹³⁷Cs and ²¹⁰Pb in sediments of lake St-Clair." *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, **47**: 572-587.

Roche, M. A., J. Bourges, J. Cortes, and R. Mattos. (1991). Climatología e hidrobiología de la cuenca del lago Titicaca. In *El lago Titicaca*, C. Dejoux and A. Iltis (Eds), pp. 83-104, ORSTOM-Hisbol, La Paz, Bolivia.

Rodrigo, L. A., and D. Wirmann. (1991). Aspecto general de la sedimentación actual.

In *El lago Titicaca*, C. Dejoux and A. Iltis (Eds), pp. 39-43, ORSTOM-Hisbol, La Paz, Bolivia.

Roos, P., E. Holm, R. B. R. Persson, A. Aarkrog, and S. P. Nielsen. (1994). "Deposition of ^{210}Pb , ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{238}Pu , and ^{241}Am in the Antarctic Peninsula area." *J. Environ. Radioact.*, **24**: 235-251.

Rulik, P., I. Malatova, D. Drabova, and K. Machacek. (1993). "Obsah ^{210}Pb v prazskem ovzduši" ("Content of ^{210}Pb in the air in Prague"). *Bezpecnost Jaderne Energie*, **1**(39): 181-183.

Russell, G.I., and J. A. Lerner. (1981). "A new finite differencing scheme for the transport tracer equation." *J. Appl. Meteorol.*, **20**: 1483-1498, .

Sadourny, R., and K. Laval. (1984). January and July performance of the LMD-GCM. In *New Perspectives in Climate Modelling*, A. L. Berger and C. Nicolis (Eds), pp. 173-197, Elsevier, New York.

Sanak, J.. (1983). Contribution a l'étude du transport des aérosols d'origine continental vers l'Antarctique. Thesis, Université Pierre et Marie Curie, Paris, France.

Sanak, J., A. Gaudry, and G. Lambert. (1981). "Size distribution of ^{210}Pb aerosols over oceans." *Geophys. Res. Lett.*, **8**: 1067-1069.

Sanak, J., G. Lambert, and B. Ardouin. (1978). Lead-210 in the atmosphere. *N.R.E. III*, pp. 445-457, US DOE Symp. series 51, New York.

Sanchez, C. I., R. Garcia-Tenorio, M. Garcia-Leone, J. M. Abril, and F. El-Daoushy. (1992). "The use of ^{137}Cs in marine and lacustrine sediment dating." *Nucl. Geophys.*, **6**(33):395-403.

Santschi, P. H., Y. H. Li, J. Bell, R. Trier, and K. Kawtaluki. (1980). "Pu in coastal marine environments." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **51**: 248-265.

Sayles, F. L., and H. D. Livingstone. (1985). The distribution of $^{239,240}\text{Pu}$, ^{137}Cs and ^{55}Fe in continental margin sediments : relation to sedimentary redox environment. *4th Annual Int. Ocean Disposal Symp.*, Plymouth, United Kingdom.

Schell, W. R.. (1974). Sedimentation rates and mean residence times of stable Pb and Pb-210 in lake Washington, Puget Sound and a coastal region. *Wash. Rep. RLO-2225-T18-18*, University of Washington, Seattle, U.S.A..

Schell, W. R.. (1977). "Concentration, physico-chemical states and mean residence time of ^{210}Pb and ^{210}Po in marine and estuarine waters." *Geochem. Cosmochem. Acta*, **41**: 1019-1031.

Schuler, C., E. Wieland, P. H. Santschi, M. Sturm, A. Lueck, S. Bollhalder, J. Beer, G. Bonani, H. J. Hoffmann, M. Suter, and W. Wolfli. (1991). "A multitracer study of

radionuclides in lake Zurich, Switzerland. 1. Comparaison of atmospheric and sedimentary fluxes of ^7Be , ^{10}Be , ^{210}Pb , ^{210}Po and ^{137}Cs ." *J. Geophys. Res.*, **96**(C9): 17,051-17,065.

Servant-Vildary, S., and M. Roux. (1990). "Variations de température estimées à partir du déplacement en altitude des associations de diatomées dans une séquence holocène de la Cordillère Orientale de Bolivie." *C. R. Acad. Sci. Paris*, **311**(II): 429-436.

Sharma, P., L. R. Gardner, W. S. Moore, and M. S. Bollinger. (1987). *Limnol. Oceanogr.*, **32**: 313-326.

Shinagawa, T.. (1980). Atmospheric transport of chemical substances of land origin to the ocean. Ph.D. Dissertation, pp. 67-76, Hokkaido University, Japan.

Shleien, B., and A. G. Friend. (1966). "Local ground-level air concentrations of lead-210 at Winchester, Massachusetts." *Nature*, **210**: 579-580.

Smith, J. N., and K. M. Ellis. (1982). "Transport mechanism for ^{210}Pb , ^{137}Cs and Pu fallout radionuclides through fluvial-marine systems." *Geochem. Cosmochem. Acta*, **46**: 941-954.

Smith, J. N., and A. Walton. (1980). "Sediment accumulation rates and geochronologies measured in the Saguenay fjord using the ^{210}Pb dating method." *Geochem. Cosmochem. Acta*, **44**: 225-240.

Stanford, J. L.. (1973). "Possible sink for stratospheric water at the winter Antarctic Pole." *J. Atm. Sci.*, **30**: 1431-1436.

STATLAB. (1994). Program manual by SLP.

Stordal, M. C., J. W. Johnson, N. L. Guinasso, and D. R. Schink. (1985). "Quantitative evaluation of bioturbation rates in deep ocean sediments. II. Comparaison of rates determined by ^{210}Pb and $^{239,240}\text{Pu}$." *Mar. Chem.*, **17**: 99-114.

Surbeck, H., and G. Ferreri. (1995). Luft, Niederschlage, Flusswasser, Boden, Gras. in *Environmental Radioactivity and Radiation Exposure in Switzerland, 1994*, Swiss Federal Office of Public Health, Fribourg, Switzerland.

Talbot, R. W., and A. W. Andrew. (1983). "Relationship between Pb and Pb 210 in aerosol and precipitation at a semiremote site in Northern Wisconsin." *J. Geophys. Res.*, **88**(C11): 6752-6760.

Taylor, C. B.. (1968). "A comparison of tritium and strontium-90 fallout in the southern hemisphere." *Tellus*, **20**: 569-576.

Telegadas, K. (1972). "Atmospheric radioactivity along the HASL ground level sampling network, 1968 to mid 1970, as an indicator of tropospheric and stratospheric

sources." *J. Geophys. Res.*, **77**: 1004-1011.

Thomas, A. J.. (1988). Géochimie des radioéléments naturels et artificiels : application a l'étude de l'interface continent-océan. Thèse de Doctorat-es-Sciences, Université Paris VI, France.

Thomson, J., S. Colley, R. Anderson, G. T. Cook and A. B. Mackenzie. (1993). "²¹⁰Pb in sediments and water column of the Northeast Atlantic from 47° to 59°N along 20°W." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **115**:75-87.

Thomson, J., S. Colley, and P. P. E. Weaver. (1988). "Bioturbation into a recently emplaced deep-sea turbidite surface as revealed by ²¹⁰Pb-excess, ²³⁰Th-excess and planktonic foraminifera distributions." *Earth Planet. Sci. Lett.*, **90**: 157-173.

Thompson, L. G., E. Mosley-Thompson, P. M. Grootes, M. Pourchet, and S. Hastenrath. (1984). " Tropical glaciers: potential for ice core paleoclimatic reconstructions." *J. Geophys. Res.*, **89**(D3): 4638-4646.

Todd, J. F., G. T. F. Wong, C. R. Olsen, and I. R. Larsen. (1989). "Atmospheric depositional characteristics of Beryllium 7 and Lead 210 along the Southeastern Virginia coast." *J. Geophys. Res.*, **94**(D8):11,106-11,116.

Tsunogai, S., T. Kurata, T. Suzuki and K. Yokota. (1988). "Seasonal variation of atmospheric ²¹⁰Pb and Al in the Western North Pacific region." *J. Atmos. Chem.*, **7**(4): 389-407.

Tsunogai, S., T. Shinagawa, and T. Kurata. (1985). "Deposition of anthropogenic sulfate and Pb-210 in the western North Pacific area.", *Geochem. J.*, **19**:77-90.

Turekian, K. K., L. K. Benninger, and E. P. Dion. (1983). "⁷Be and ²¹⁰Pb total deposition fluxes at New Haven, Conn. and at Bermuda." *J. Geophys. Res.*, **88**(C9): 5411-5415.

Turekian, K. K., and J. K. Cochran. (1981). "²¹⁰Pb in surface air at Enewatak and the Asian dust flux to the Pacific." *Nature*, **292**: 522-524

Turekian, K.K., W.C. Graustein, and J.K. Cochran. (1989). "Lead-210 in the SEAREX program: An aerosol tracer across the Pacific.", in *Chemical Oceanography*, J.P. Riley and R. Chester (eds), vol. 10, pp. 51-81, Academic, 1989.

Turekian, K. K., Y. Nosaki, and L. K. Benninger.(1977). "Geochemistry of atmospheric radon and radon products." *Ann. Rev. Earth Planet. Sci.*, **5**: 227-255.

Val Klump, J., R. Paddock, C. C. Remsen, S. Fitzgerald, M. Boraas, and P. Anderson. (1989). "Variations in sediment accumulation rates and the flux of labile organic matter in Eastern lake Superior basins." *J. Great Lakes Res.*, **15**(1): 104-122.

Viel, M. (1983). "Etude sédimentologique et géochimique des dépôts récents du lac Majeur." Publications du Département de Géologie et de Paléontologie de l'Université

de Genève, Vol. 2, pp. 99-101.

Von Damm, K. L., L. K. Benninger, and K. K. Turekian. (1979). "²¹⁰Pb chronology of a core from Mirror lake, N.H." *Limnol. Oceanogr.*, **24**:434-439.

Von Gunten, H. R., and R. N. Moser. (1993). "How reliable is the ²¹⁰Pb method ? Old and new result from Switzerland." *J. Paleolimnol.*, **9**: 161-178.

Volchok, H. L., V.T. Bowen, T.R. Folsom, W.S. Broecker, E.A. Schwart, and G. S. Bien. (1971). Oceanic distribution of radionuclides from nuclear explosions. In *Radioactivity in the Marine Environment*, pp. 42-89, U.S. National Academy of Sciences.

Von Gunten, H. R., M. Sturm, H. N. Erten, H. N. Rössler, and F. Wegmüller. (1987). "Sedimentation rates in the central lake Constance determined with ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs." *Schweiz. Z. Hydrol.*, **49**:275-283.

Wagenbach, D., U. Görlach, K. Moser, and K.O. Münnich. (1988). "Coastal Antarctic aerosol: the seasonal pattern of its chemical composition and radionuclide content." *Tellus*, **40B**: 426-436.

Wan, G. J., P. H. Santschi, M. Sturm, K. Farrenkhoten, A. Luck, E. Werth, and C. H. Schuler. (1987). "Natural (²¹⁰Pb, ⁷Be) and fallout (¹³⁷Cs, ^{239,240}Pu, ⁹⁰Sr) radionuclides as geochemical tracers of sedimentation in Greifensee, Switzerland." *Chem. Geol.*, **53**: 181-196.

Wessel, P., and W. H. F. Smith. (1995). New version of the Generic Mapping Tools (GMT) released. *EOS Transaction*, vol. 76, p. 329, American Geophysical Union.

Wilgain, J.. (1970). Contribution a l'étude de la radioactivité de l'air et des précipitations dans l'Antarctique. Thèse de l'Université libre de Bruxelles, Belgium.

Wilgain, S., E. Picciotto, and W. De Breuck. (1965). "Strontium-90 fallout in Antarctica." *J. Geophys. Res.*, **70**: 6023-6032.

Windom, H.. (1969). "Atmospheric dust records in permanent snowfield: implications to marine sedimentation." *Geol. Soc. Ann. Bull.*, **80**:761.

World Climate Research Program. (1995). Modelling the transport and scavenging of trace constituents by clouds in global atmospheric models. *W.C.R.P. Workshop*, Aug. 1-4, Cambridge, United Kingdom.

Xingfu, W., X. Zhengyu, and Q. Jiangchu. "The exchange and sedimentary process of Pb-210 in the Changjiang estuary and its adjacent shelf." in *Biochemical studies of the Changjiang Estuarine*.

Yarus, J., and R. Chambers. (1995). AAPG Computers Applications in geology.

Yokoyama, Y., H. V. Nguyen, C. E. Lambert and R. Chesselet. (1985). "Etude de la



bioturbation dans les sédiments superficiels de la Méditerranée Occidentale par le traceur ^{210}Pb ." *Oceanologica Acta*, 8(3).

Zuo, Z., and D. Eisma. (1993). " ^{210}Pb and ^{210}Po distributions and disequilibrium in the coastal and shelf waters of the Southern North Sea."

