

Journées des thèses IRSN, 6-9 octobre 2008

Lauréline BOURCIER

Transport et dépôt de particules et radionucléides à l'échelle de la France

3ème année thèse, débutée en octobre 2005

Ecole Doctorale des Sciences Fondamentales, Université Blaise Pascal

Directeur : Guy CAUTENET (LaMP)

Ingénieur ADEME : Nathalie POISSON

Tuteur : Olivier MASSON (IRSN - DEI/SESURE/LERCM)

Thèse financée par IRSN et ADEME



Contexte

Les travaux menés à la DEI s'attachent à étudier l'impact post-accidentel d'un rejet de radionucléides dans l'atmosphère mais aussi la répartition et les transferts des niveaux d'activité sur le long terme dans les différents compartiments de la biosphère. Les études et expertises réalisées dans le cadre des conséquences de l'accident de Tchernobyl en France ont montré toute l'importance d'étudier les niveaux d'activité en relation avec les sites d'altitude (Pourcelot et al., 2003).

Le présent travail porte sur la caractérisation des niveaux d'activité sur un site de moyenne altitude, notamment le puy de Dôme, et les fonctions de transfert (dépôt sec, dépôt humide, remise en suspension et transport) des radionucléides naturels et artificiels en routine ou dans le cas d'épisodes météo-climatiques événementiels, caractérisés par des flux de dépôts plus intenses. Durant le travail réalisé au LaMP, le transport a été étudié à l'aide de mesures de terrain réalisées sur différents sites. Ces données nous ont permis également d'étudier le dépôt d'aérosols, et en particulier leur lavage en nuage et leur lessivage sous nuage. Pour ce faire, nous avons réalisé une analyse sur les différents réservoirs atmosphériques (aérosol, gouttelette de nuage et goutte de pluie).

Les processus de dépôt sont étudiés en mettant l'accent sur l'analyse événementielle des dépôts humides. En effet, le processus de lessivage est bien connu mais il y a une difficulté à rendre compte du lessivage à cause d'une grande variabilité des coefficients de lessivage, due notamment à une intégration temporelle (analyse mensuelle) et spatiale sur l'ensemble de la colonne atmosphérique (pas de distinction entre washout et rainout) (Todd et al., 1989 ; McNearly and Baskaran, 2003 ; Dueñas et al., 2005). L'originalité de ce travail réside en partie dans l'instrumentation d'un site d'altitude où nous souhaitons faire la distinction entre lessivage et lavage sur le dépôt humide total.

Ce travail doit permettre, in fine, une meilleure compréhension des mécanismes de lessivage, tant à l'intérieur du nuage que sous le nuage. Cette compréhension, acquise avec des mesures de terrain, doit permettre d'améliorer les prévisions données par les codes de calculs pour appréhender au mieux les différents paramètres à prendre en considération lors d'un accident ou en situation pilotée par des processus naturels (situation de routine).

Introduction

Les particules peuvent avoir des conséquences néfastes au niveau de la santé, en particulier lorsqu'elles sont de petites tailles car elles pénètrent au sein du système respiratoire. Elles peuvent également avoir un impact au regard de leur composition chimique. Pour connaître la composante locale de l'aérosol en un lieu donné, il est nécessaire d'estimer les apports « longue distance » par rapport aux contributions locales et de distinguer les sources (naturelle ou anthropique). Ce travail permet d'étudier plusieurs aspects du cycle de l'aérosol : son transport depuis une source et son dépôt humide (lessivage dans et sous le nuage). Le transport a été appréhendé principalement à l'aide des rétrotrajectoires et de l'étude couche limite/troposphère libre par le biais d'une comparaison entre différents sites de mesures. Cette étude permet de caractériser la composition chimique de l'aérosol en fonction de son origine et d'estimer l'influence du transport longue distance par rapport aux aérosols locaux et naturels. Les processus de dépôt humide ont été étudiés en faisant une analyse événementielle des précipitations ainsi qu'une analyse hebdomadaire des gouttelettes de nuages.

Pour caractériser les processus de transport et de lessivage, des prélèvements ont été réalisés au puy de Dôme (1465 m a.s.l.), à Opme (660 m a.s.l.) et aux Cézeaux (394 m a.s.l.) de façon à mesurer la composition chimique des différents réservoirs atmosphériques (phase liquide du nuage, phase aérosol, phase liquide des précipitations), et par conséquent, calculer une fonction de transfert d'un réservoir à l'autre.

Sites et méthodes

Les mesures ont été réalisées sur trois sites situés à l'ouest de Clermont-Ferrand pour le puy de Dôme, au sud de Clermont Ferrand pour le site de Opme et au sud-est pour le site des Cézeaux [voir figure 1].

Au sommet du Puy de Dôme (45° 46' 20'' N, 2° 57' 57'' E, 1465 m par rapport au niveau de la mer), différents paramètres de la phase aérosol sont déterminés à l'aide d'équipements spécifiques : les niveaux d'activité en ^{137}Cs , ^7Be et ^{210}Pb avec un collecteur d'aérosol très haut débit ($700 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$), les concentrations atmosphériques des fractions ioniques et carbonées (avec des filtres totaux en fibre de quartz et en téflon, tous fonctionnant avec un débit de $30 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$), le nombre de particules ainsi que différents paramètres météorologiques.



Figure 1. Emplacement des sites de collectes

Le site d'Opme est un site rural (Putaud et al., 2004), situé à 660 m d'altitude avec les coordonnées suivantes : 45° 43' 00'' N ; 3° 5' 30'' E. Compte tenu de son altitude peu élevée et de la proximité des sources, le site de Opme se trouve dans la couche limite. Les paramètres déterminés sont les niveaux d'activités en ^{137}Cs , ^7Be et ^{210}Pb avec la station OPERA de collecte d'aérosol ayant un débit de $300 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$; la pression et la température.

Le site des Cézeaux (45° 45' 52" N ; 3° 6' 45" E, 394 m a.s.l) est un site péri-urbain (Putaud et al., 2004). Il se trouve d'une part en couche limite mais aussi influencé par les émissions de la ville. Les paramètres mesurés sont les niveaux d'activité du ^{137}Cs , du ^7Be et du ^{210}Pb et les concentrations des composés ioniques dans les précipitations (6 m² de tables de collecte) ainsi que les niveaux d'activité du ^{137}Cs , du ^7Be et du ^{210}Pb (par le biais d'un impacteur haut volume) et les fractions ioniques et carbonées (avec des filtres totaux) de la phase aérosol.

Différentes analyses sont ensuite pratiquées sur les filtres. L'analyse chromatographique (anionique et cationique) est réalisée au LaMP (Clermont-Ferrand) et permet de déterminer les concentrations ioniques. L'analyse thermique évolutive est faite au LGGE (Grenoble) et permet de quantifier les fractions EC/OC (Elemental/Organic Carbon). L'analyse des radionucléides, obtenue par spectrométrie gamma, est faite au LMRE (Orsay et Modane) et permet de mesurer les niveaux d'activité des différents radionucléides naturels et artificiels présents à l'état de trace.

Résultats

Concernant la composition chimique de l'aérosol au puy de Dôme, nous avons mis en place une typologie de l'aérosol en fonction de l'origine des masses d'air. Nous avons constaté une bonne cohérence entre les sources présumées et la composition observée. Nous avons observé une prédominance des composés anthropiques (SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+) dans le cas des masses d'air provenant de secteurs industrialisés. Les particules minérales (Ca^{2+}) sont retrouvées en plus grande masse pour les masses d'air provenant de la région méditerranéenne. Les sels marins (Cl^- , Na^+) ont été mesurés pour les échantillons d'origine marine. Les niveaux d'activité des radionucléides sont également cohérents. Les niveaux d'activité du ^7Be ne varient pas suivant l'origine de la masse d'air, ce qui est consistant avec le fait que ses sources se situent dans la haute troposphère et la stratosphère et que ses variations s'inscrivent dans le plan vertical. Pour le ^{210}Pb et le ^{137}Cs , les niveaux sont deux fois plus importants pour les masses d'air continentales par rapport aux masses d'air marines, là encore, c'est en accord avec les sources terrigènes de ces deux composés. Pour ce qui est de l'évolution saisonnière, nous avons observé des concentrations plus élevées l'été et plus faibles l'hiver pour tous les composés (ioniques et radionucléides) au puy de Dôme. Aux Cézeaux, site de couche limite, nous observons le même comportement pour les radionucléides mais l'inverse pour les composés ioniques, un maximum l'hiver et un minimum l'été. Les composés ioniques et carbonés sont plus concentrés en couche limite alors que c'est l'inverse pour les radionucléides.

La comparaison entre les concentrations des composés ioniques/carbonés et les radionucléides nous a permis de caractériser les particules transportant les radionucléides. A cette occasion et avec une analyse du levoglucosane, un traceur des feux de biomasse, nous avons mis en évidence l'importance des feux de biomasse sur les niveaux d'activité de ^{137}Cs .

L'analyse des eaux de pluie a révélé un comportement similaire à celui de la phase aérosol. Nous avons observé un comportement saisonnier semblable à celui de la phase aérosol uniquement pour les composés anthropiques prélevés au puy de Dôme. Cela semble indiquer qu'il est plus correct d'échantillonner l'aérosol au niveau du nuage pour prévoir la composition de la pluie en couche limite. Les rapports de lessivage ont été calculés en tenant compte de la composition de l'aérosol au niveau du nuage et au niveau des tables de collecte situées en couche limite. Dans le cas des composés ioniques, ils s'avèrent être plus élevés et plus stables avec l'aérosol, au niveau du nuage. En revanche, pour le ^{137}Cs , nous observons le phénomène inverse avec un rapport de lessivage 2 fois plus faible au puy de Dôme du fait des niveaux d'activités plus élevés au sommet dans la phase aérosol. Pour les radionucléides naturels, les rapports de lessivage sont équivalents quel que soit le site de prélèvement de l'aérosol et sont du même ordre de grandeur que ceux relevés dans la littérature (Ishikawa et al., 1995 ; Dueñas et al., 2005).

Concernant la phase liquide du nuage, nous avons observé des niveaux d'activité 5 fois plus importants dans les gouttelettes de nuage (environ 26 000 mBq.L^{-1} pour le ^7Be et de 1 600 mBq.L^{-1} pour le ^{210}Pb) par rapport à la pluie. Grâce aux moyens métrologiques du LMRE installés à Modane, nous avons également déterminé pour la première fois à notre connaissance, les niveaux d'activité du ^{137}Cs . Ils sont d'environ 0.5 mBq.L^{-1} , ce qui est 2.5 fois plus important que ce que nous avons mesuré dans l'eau de pluie sur la même période. Les niveaux plus faibles observés dans la pluie sont en accord avec le phénomène de dilution qui a lieu lors de la croissance de la gouttelette de nuage jusqu'à l'obtention des gouttes de pluie. L'étude des taux d'incorporation (gouttelettes de nuage) et des rapports de lessivage (gouttes de pluie) a révélé l'importance du choix des temps de prélèvement de la phase aérosol, ceux-ci doivent être identiques à la durée de l'évènement nuageux ou pluvieux étudié.

Bibliographie

- Dueñas C., M. C. Fernández, J. Carretero, E. Liger and S. Cañete, Deposition velocities and washout ratios on a coastal site (southern Spain) calculated from ^7Be and ^{210}Pb measurements, *Atmos. Environ.*, 39, 6897-6908, 2005.
- Ishikawa Y., H. Murakami, T. Skine and K. Yoshihara, Precipitation scavenging studies of radionuclides in air using cosmogenic ^7Be , *Journal of Environmental Radioactivity*, 26, 19-35, 1995.
- McNeary D. and M. Baskaran, Depositional characteristics of ^7Be and ^{210}Pb in southeastern Michigan, *J. Geophys. Res.*, 108, D7, 4210, 2003.
- Putaud J.-P., Raes, F., Van Dingenen, R., Brüggemann, E., Facchini, M. C., Decesari, S., Fuzzi, S., Gehrig, Hüglin, C., Laj, P., Lorbeer, G., Maenhaut, W., Mihalopoulos, N., Müller, K., Querol, X., Rodriguez, S., Schneider, J., Spindler, G., Ten Brink, H., Tørseth, K. and Wiedensohler, A., A European aerosol phenomenology—2: chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe, *Atmos. Environ.*, 38, 2579-2595, 2004.
- Todd J. F., G. T. F. Wong, C. R. Olsen and I. L. Larsen, Atmospheric depositional characteristics of beryllium 7 and lead 210 along the southeastern Virginia coast, *J. Geophys. Res.*, 94, 11 106-11 116, 1989.
- Pourcelot L., Louvat D., Gauthier-Lafaye F. and Stille P., Formation of radioactivity enriched soils in mountain areas, *J. Environ. Radioact.*, 68, 215-233, 2003.