

Etude des variations des ^7Be , ^{32}P , ^{90}Sr , ^{210}Pb et ^{210}Po dans la troposphère

Par ALAIN MARENCO et JACQUES FONTAN, *Université Paul Sabatier, Centre de
Physique Atomique, Physique des Aérosols et Echanges Atmosphériques (Equipe
de Recherche Associée au C. N. R. S.), Toulouse, France.*

(Manuscrit reçu le 4 avril 1973, révisé le 13 juillet 1973)

ABSTRACT

Radioactive elements of various origins (^7Be , ^{32}P , ^{90}Sr , ^{210}Pb , ^{210}Po) have been measured at Toulouse in South-Western France, for several years (1965 to 1969) in ground-level air with samplings of short duration (1 to 4 days), as well as in precipitations and air in altitude. The study of results shows the very important influence of precipitation scavenging processes upon the variations of activity. As concerns ^{90}Sr , the periodical variation connected with the exchanges between the stratosphere and the troposphere is confirmed, but it is shown that the increase recorded for ^7Be and ^{32}P in spring and summer, in ground-level air, is due to the variation in the precipitation scavenging processes and not to contributions from the stratosphere. In the case of ^{210}Pb , moreover, the origin of the air mass must be taken into account. The $^{90}\text{Sr}/^7\text{Be}$ ratio, allowing to eliminate the influence of scavenging, is quite suitable to characterize the air coming from the stratosphere, but no evidence is found, in ground-level air, of any relation with the possibilities of downward influx from the stratosphere. As concerns the $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ ratio, the results show the existence of a seasonal variation (maximum in winter) likely due to vertical exchange processes. An important discrepancy is noticed between the theoretical and experimental values of this ratio. The results obtained at Toulouse are in good accordance with those found at the same latitude, but a comparison between the measurements obtained in various stations tends to prove that the vertical exchanges are decreasing in summer above the oceans. The vertical distribution of the $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ ratio, deduced from the measurements in precipitations, leads, for the vertical exchange coefficient K_z , to values of about 3 to 6 m^2/s , and for the scavenging coefficient Λ_1 (air-layer between 2 and 6 km), to values of about 1/30 to 1/40 d^{-1} . Lastly, studies by simulation on models confirm the influence of the processes of precipitation scavenging and vertical exchanges.

Introduction

L'étude des éléments radioactifs en suspension dans l'air a fait progresser de manière appréciable nos connaissances en physique de l'atmosphère et permis, en particulier, d'avoir une vue plus exacte sur les phénomènes de circulation générale (zonale, méridienne, verticale), les échanges entre les divers réservoirs (stratosphère-troposphère; échanges interhémisphériques), les phénomènes d'élimination dans la troposphère (lessivage, dépôt sec) et les temps de séjour des aérosols dans la troposphère et la stratosphère.

On a cependant tiré des conclusions parfois hâtives de mesures trop générales ou avancé

des hypothèses sans avoir les éléments pour pouvoir les vérifier, et des polémiques diverses se sont engagées. On a par exemple signalé pour le ^7Be une variation périodique annuelle présentant une certaine analogie avec celle obtenue pour les produits de fission; la plupart des auteurs l'ont reliée aux arrivées stratosphériques et en ont déduit des pourcentages d'air venant de la stratosphère. On a utilisé les produits de fission pour étudier les échanges stratosphère-troposphère et on a conclu que les transferts étaient principalement discontinus. On a aussi envisagé des sources complémentaires de ^{210}Po dans l'air et corrigé les valeurs des temps de séjour troposphériques obtenus.

Nous avons choisi de mesurer simultanément

5 éléments (^7Be , ^{32}P , ^{90}Sr , ^{210}Pb , ^{210}Po), ayant des origines et des périodes différentes, en réalisant pendant plusieurs années des prélèvements dans l'air, continus et de courte durée par rapport à ce qui avait été généralement fait précédemment. Nous avons interprété les variations d'activité en appliquant, en particulier aux résultats expérimentaux, des méthodes numériques de traitement (corrélations) et en procédant parallèlement à des expériences de simulation numérique sur modèles. Ces mesures jointes à celles d'autres auteurs nous permettent ainsi de préciser ou de discuter un certain nombre de conclusions.

I. Rappel des travaux antérieurs

Les éléments que nous avons étudiés sont d'origines diverses. Le ^{90}Sr est un produit de fission à longue période (29 ans). Après les essais nucléaires de grande puissance de 1962, sa concentration moyenne dans l'atmosphère a décliné jusqu'en 1967 — malgré diverses explosions françaises et chinoises de faible puissance entre 1964 et 1966 — le contenu de l'hémisphère nord restant toujours supérieur à celui de l'hémisphère sud. À partir de 1967, des explosions chinoises plus importantes (chaque année entre 1967 et 1970) ont périodiquement relevé son niveau d'activité dans l'hémisphère nord, mais ce n'est qu'après 1968 (essais français importants) que les teneurs dans l'hémisphère sud ont rejoint celles de l'hémisphère nord. En dehors des périodes d'explosion récente, il est essentiellement contenu dans la stratosphère qui se comporte comme un réservoir vis à vis de la troposphère où l'on observe une variation périodique annuelle marquée d'activité (maximum de printemps), liée aux échanges stratosphère-troposphère. L'étude des répartitions spatiales dans la stratosphère et de leur évolution dans le temps a permis de caractériser les grands traits de la circulation générale dans la stratosphère (Machta, 1957; Krey, 1967) et de mettre en évidence des phénomènes de descente rapide d'air stratosphérique dans la troposphère, aux latitudes moyennes, par des brèches dans la tropopause liées aux courants-jet (Danielsen, 1968; Staley, 1960, 1962). Lambert (1963), à partir des résultats d'activité (β global) dans l'air au niveau du sol (étude de la fréquence et de l'amplitude des pics), a conclu à la prédo-

minance de ces échanges discontinus dans les transferts entre la stratosphère et la troposphère.

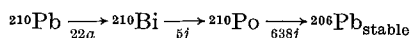
Les ^7Be et ^{32}P sont des éléments cosmogéniques à moyenne période (respectivement 53.7 et 14.45 j). Leurs taux de production restent dans un rapport constant (60) et augmentent avec la latitude et surtout l'altitude (Lal et al., 1958; Peters, 1959). La production stratosphérique, intégrée sur une colonne verticale d'air, devient prépondérante aux moyennes et hautes latitudes, ce qui n'est pas le cas pour la production troposphérique, l'augmentation vers les pôles de la production étant alors compensée par l'abaissement de la tropopause.

De nombreux auteurs ont signalé l'existence d'une variation périodique de ^7Be dans l'air au niveau du sol, avec un minimum d'hiver et un maximum vers la fin du printemps et en été (hémisphère Nord), l'amplitude et la position du maximum variant avec la latitude (Thomas et al., 1970). L'explication de cette variation diffère selon les auteurs mais deux grandes tendances se dégagent. Quelques auteurs sont d'avis que le ^7Be mesuré dans les basses couches est principalement d'origine troposphérique. Les uns font intervenir des causes purement météorologiques, avec les phénomènes de lessivage par les précipitations (Cruikshank et al., 1956) et la variation des échanges verticaux dans la troposphère (Aegerther et al., 1966). Les autres l'expliquent par la variation du taux de production troposphérique, liée au déplacement saisonnier de la tropopause (Walton et Fried, 1962). Cependant, la grande majorité des auteurs, tout en reconnaissant la formation importante de ^7Be dans la troposphère et l'influence éventuelle des facteurs précédents, attribue l'augmentation de printemps et d'été dans les basses couches aux apports d'air stratosphérique (estimations allant de 20 à 60 % pour la contribution en ^7Be) dus à l'élévation de la tropopause à cette époque et aux arrivées rapides (Gustafson et al. 1961; Parker 1962; Schumann et Stoeppler 1963; Peirson, 1963; Bleichrodt et Abkoude, 1963*b*; Noskin, 1969; Thomas et al., 1970; Gopalakrishnan, 1970; Rangarajan et Gopalakrishnan, 1970). Leur raisonnement repose en général sur la similitude de variation au printemps des concentrations moyennes du ^7Be et des produits de fission à longue période. Si les déterminations de ^7Be sont relativement nombreuses dans l'air, celles

de ^{32}P sont par contre bien plus rares et éparses, étant donné les faibles activités à détecter, et rien de caractéristique pour les variations de cet élément n'a encore été mentionné. Il faut signaler également, à côté de la source naturelle, la formation artificielle de ^7Be et ^{32}P lors d'essais nucléaires importants (Drewinsky et al., 1964; Bleichrodt et Abkoude, 1963a; Allkofer et al., 1966). Cependant, étant donné les périodes radioactives relativement courtes des ^7Be et ^{32}P et les temps de séjour troposphériques, cette production n'a pas d'effet important ou prolongé dans les basses couches de la troposphère.

Enfin, les ^{210}Pb et ^{210}Po sont les descendants à longue période du radon diffusant du sol dans l'atmosphère.

$^{222}\text{Rn} \xrightarrow[3,8\text{ j}]{\quad} \{\text{descendants à vie courte}\} \rightarrow$



Le dégagement du radon est prépondérant sur les continents ($1 \text{ at/cm}^2 \cdot \text{s}$) et négligeable sur les mers, et sa concentration dépend des conditions de stabilité. Elle est en moyenne bien plus élevée dans les basses couches au-dessus des terres (10^{-10} à 10^{-9} ci/m^3) et décroît rapidement avec l'altitude (fonction exponentielle). Le source de radon étant plus importante dans l'hémisphère nord, étant donné l'étendue supérieure des continents, on vérifie bien que la concentration moyenne du ^{210}Pb y est également supérieure (Patterson et Lockhart, 1964; Peirson et al., 1966). Les mesures dans l'air de la basse troposphère montrent en général l'existence d'une variation périodique caractéristique, avec un maximum de concentration en hiver. Les auteurs l'ont attribué à la variation de la source (radon), fonction des conditions locales de stabilité et de l'origine des masses d'air (Peirson et al., 1966; Joshi et al., 1968, 1969, 1971; Gopalakrishnan, 1970).

Bien que de nombreuses déterminations du ^{210}Po (et du rapport $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$) aient été réalisées dans le monde, on trouve cependant très peu de mesures régulières de cet élément dans l'air. La principale détermination, réalisée par Peirson (de 1962 à 1965), indique que le ^{210}Po suit les variations du ^{210}Pb car on ne constate pas de variation caractéristique du rapport $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$, sauf aux printemps 1962 et 1963 où l'on observe une augmentation de ce rapport. Peirson reprend l'hypothèse de formation arti-

ficielle de ^{210}Pb lors des explosions nucléaires de 1962 et attribue cette augmentation à des arrivées stratosphériques de ^{210}Po issu du ^{210}Pb artificiel. Divers auteurs ont ainsi envisagé des sources complémentaires de ^{210}Po dans l'air (sources fossile, tellurique, stratosphérique, artificielle) principalement pour expliquer les différences entre les temps de séjour calculés à partir des rapports $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ et $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ (Mattson, 1970; Martell et Poet, 1969, 1970; Martell, 1970; Vilensky, 1970; Poet et al., 1972). Nous avons montré (Marenco et Fontan, 1972a, 1972b) qu'il n'en est rien en fait, tout au moins dans le Sud-Ouest de la France, et que le ^{210}Po est bien d'origine naturelle et provient de la désintégration du ^{210}Pb présent dans l'air. Feely et Seitz (1970) et Krey (1969) ont, par ailleurs, montré que la formation artificielle de ^{210}Pb , que l'on avait cru mettre en évidence dans la stratosphère, n'était finalement pas confirmée.

En ce qui concerne les répartitions verticales de ces éléments dans l'atmosphère, il existe bien moins de mesures, particulièrement dans la troposphère. On constate que le ^7Be , le ^{32}P , et le ^{90}Sr surtout, sont en concentrations bien plus élevées dans la stratosphère que dans la troposphère où leurs activités assez variables augmentent en moyenne avec l'altitude. Pour les ^{210}Pb et ^{210}Po , la différence entre les deux zones est bien moins accusée. On observe enfin des rapports d'activité $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ et $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ souvent proches des valeurs d'équilibre dans la stratosphère (étant donné les temps de séjour importants) et des rapports très variables mais généralement plus faibles dans la troposphère.

II. Expériences à Toulouse

Nous avons réalisé durant plusieurs années des mesures de ^7Be , ^{32}P , ^{90}Sr , ^{210}Po et ^{210}Pb , à Toulouse dans le Sud-Ouest de la France, en nous efforçant de réduire les temps de prélèvement et d'augmenter la précision des analyses. Nous avons ainsi analysé ces éléments de 1965 à 1969 (à partir de 1966 pour les ^{32}P et ^{90}Sr) de manière continue dans l'air au niveau du sol, avec une durée moyenne de prélèvement de 2 jours (1 à 4 j). Nous avons par ailleurs mesuré en 1966 et 1967 ces diverses activités dans les précipitations à Toulouse (Lacombe, 1968), chaque pluie étant analysée individuellement. Nous avons procédé en 1967 à des mesures si-

multanées dans l'air de stations d'altitude (Pic du Midi : 3 000 m) et de plaine (Tarbes : 200 m) (Marenco et al., 1967; Crozat, 1969). Enfin nous avons réalisé en 1968 et 1969 plusieurs profils de répartition verticale de ces mêmes éléments dans la troposphère (collection par avion) (Julian, 1970).

Dans chaque cas, des prélèvements importants ont été effectués afin d'augmenter la précision des mesures (turbines à fort débit : 600 m³/h pour les prélèvements dans l'air au niveau du sol; pluviomètre de 42 m² pour la collection des précipitations; capteurs à gros débit : 1 500 kg/h pour les mesures en altitude). Les activités collectées sur les filtres ou contenues dans les eaux de pluie ont été analysées selon des méthodes déjà présentées, avec des séparations et purifications chimiques poussées (Marenco et al., 1968). Chaque activité a été ensuite détectée au moyen de détecteurs à très faible bruit de fond et la pureté des sources contrôlée par décroissance radioactive, et par spectrométrie γ de plus dans le cas du ^7Be . Les rendements chimiques ont été déterminés à chaque analyse, en utilisant des traceurs radioactifs (^{208}Po , ^{85}Sr) et des entraîneurs étalonnés (isotopes stables). Cependant, étant donné les teneurs souvent importantes de l'air au niveau du sol à Toulouse en plomb et phosphore stables (pollutions urbaine et industrielle), dont les quantités collectées sur les filtres augmentent la proportion d'entraîneurs ajoutés dans l'analyse, nous avons mesuré parallèlement les concentrations dans l'air des plomb et phosphore stables afin de corriger la gravimétrie des analyses.

Il faut souligner l'intérêt des prélèvements de courte durée qui permettent d'une part une meilleure définition des conditions météorologiques lors de la collection (masse d'air ...), donc la possibilité de traitements statistiques, et d'autre part de réduire les erreurs commises dans le calcul des ^{210}Po et ^{32}P . Il est nécessaire en effet, pour ces deux éléments, de procéder à des corrections pour tenir compte de la formation de ^{210}Po ou de la décroissance du ^{32}P pendant la durée du prélèvement, en supposant les activités constantes dans l'air pendant tout le prélèvement. Nous avons appliqué aux résultats des méthodes de traitement statistiques (Marenco et Fontan, 1972a), en recherchant en particulier l'existence de pics dans les courbes de cross-corrélation linéaire (fonctions filtrées) en fonction du temps (méthode de Panofsky) et

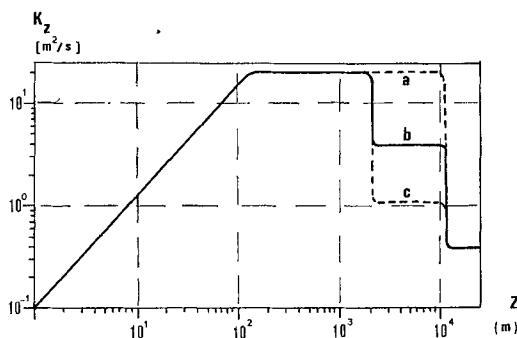


Fig. 1. Profil vertical de coefficient d'échange vertical K_z considéré dans les modèles; (a) et (c) valeurs troposphériques extrêmes; (b) valeur troposphérique moyenne.

en calculant les régressions linéaires mensuelles. Étant donné les transformations mathématiques effectuées sur les résultats (découpage, filtrage), il en résulte un certain étalement dans les variations d'activité dont l'effet est de diminuer la résolution des pics et d'abaisser la valeur absolue des coefficients de corrélation, ce dont il faut tenir compte dans leurs critères d'estimation. Afin de pouvoir décomposer les phénomènes souvent complexes et dégager l'influence des divers paramètres, nous avons mis au point des modèles de simulation numérique, reposant sur l'équation classique de diffusion, permettant de simuler en régime stationnaire ou dépendant du temps les échanges verticaux, les phénomènes de lessivage, le dépôt au sol, la variation de production avec l'altitude ... (Marenco et Fontan, 1972b). On limite en général l'étude à une dimension verticale (atmosphère allant jusqu'à 40 km) et on considère une zone de lessivage (coefficient Λ_1) comprise entre 2 et 6 km, un coefficient de dépôt $\beta = 0.2$ cm/s et une tropopause située à 11 km. Nous avons par ailleurs utilisé un profil vertical de coefficient d'échange K_z (Fig. 1) tenant compte de la couche limite planétaire (Biro, 1971) et de la tropopause, avec un coefficient d'échange moyen dans la troposphère variable (de 1 à 20 m²/s) et un coefficient de l'ordre de 0.4 m²/s dans la stratosphère.

Enfin, nous avons simulé les diverses sources des éléments en considérant, pour les ^7Be et ^{32}P la répartition verticale des taux de production correspondant au 40° de latitude, et pour les ^{90}Sr , ^{210}Pb et ^{210}Po des formations continues ou discontinues selon les modèles envisagés.

III. Variations dans l'air au niveau du sol

III.1. VARIATIONS MENSUELLES

A. Résultats à Toulouse

Les figures (2) et (3) présentent les variations mensuelles des activités et rapports d'activité ($^7\text{Be}/^{32}\text{P}$; $^{90}\text{Sr}/^7\text{Be}$; $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$). Nous avons porté entre septembre 1965 et août 1966 les valeurs mensuelles de ^{90}Sr mesurées à Ispra en Italie (Hasl, 1966 à 1970) représentatives de celles de Toulouse (résultats pratiquement identiques par la suite).

On constate l'existence de variations périodiques très marquées dans le cas des ^{90}Sr , ^7Be et ^{32}P et plus irrégulières pour les ^{210}Po et ^{210}Pb . On retrouve cependant le plus souvent, pour tous les éléments sauf le ^{90}Sr , les mêmes irrégularités de variation (pics d'activité concordants) correspondant assez bien à l'inverse du temps de pluie (durée des précipitations à Toulouse).

Les variations moyennes du ^{90}Sr sont très accusées (facteur 15) avec un minimum en hiver (décembre) et un maximum de printemps (mai-juin). Les variations de cet élément, et surtout celles du rapport $^{90}\text{Sr}/^7\text{Be}$, témoignent des arrivées d'air stratosphérique; on remarque que leur effet dans les basses couches débute dès la fin de l'hiver et augmente progressivement au printemps, ce qui peut traduire soit que les échanges eux-mêmes augmentent de l'hiver au printemps (liés à l'élévation de la tropopause), soit qu'ils se produisent surtout au début de cette période (liés aux ruptures de tropopause) et que les phénomènes de transport vertical moyen dans la troposphère sont relativement lents.

La variation périodique des ^7Be et ^{32}P est bien moins marquée (facteur 2 pour le ^7Be et 3 pour le ^{32}P); par ailleurs, les fortes valeurs se poursuivent jusqu'en septembre-octobre alors que le ^{90}Sr a complètement décliné. Le rapport d'activité $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ présente également une variation périodique mais différente cependant de celle du rapport $^{90}\text{Sr}/^7\text{Be}$; mis à part quelques irrégularités en 1969, dues à un décalage dans les cycles saisonniers, on observe en général de fortes valeurs en hiver puis une décroissance jusqu'à l'automne.

Enfin les variations des ^{210}Po et ^{210}Pb , périodiques mais différentes de celles des éléments précédents, sont à rapprocher de celle de la fraction d'air continental (fraction mensuelle du temps où l'on observe à Toulouse des masses

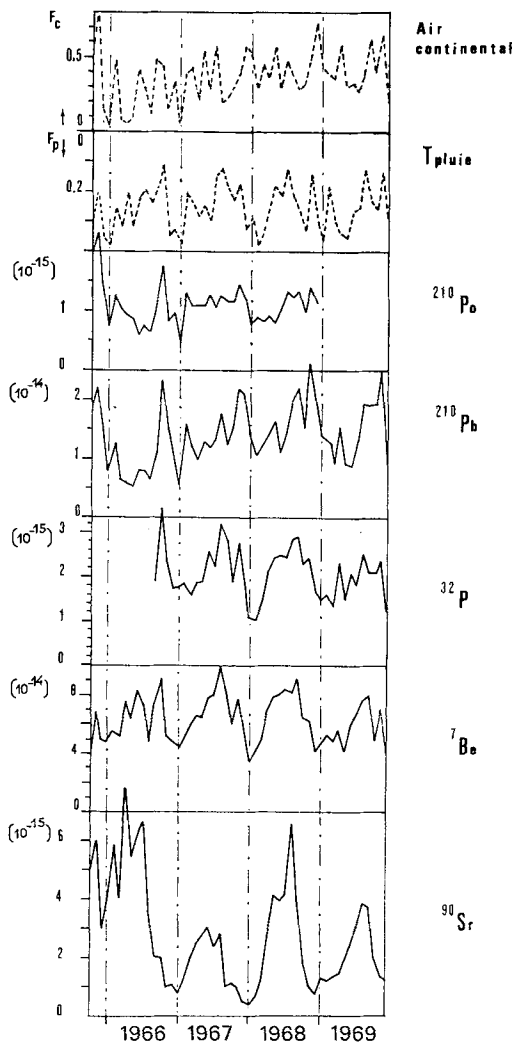


Fig. 2. Variations, dans l'air au niveau du sol à Toulouse, des activités mensuelles et des fractions mensuelles de temps de pluie (F_p) et d'air continental (F_c).

d'air d'origine continentale), surtout dans le cas du ^{210}Pb qui la suit très bien. Ceci explique que le rapport $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$, souvent élevé en hiver, suive assez bien l'inverse de la variation de la fraction d'air continental.

L'étude des corrélations entre les activités et les rapports mensuels confirme que, pour les rapports $^{90}\text{Sr}/^7\text{Be}$ et $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$, c'est l'élément dont la source est la plus variable (^{90}Sr et ^{210}Pb) qui impose ses variations. Dans le cas du rapport $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$, la relation étroite existant avec

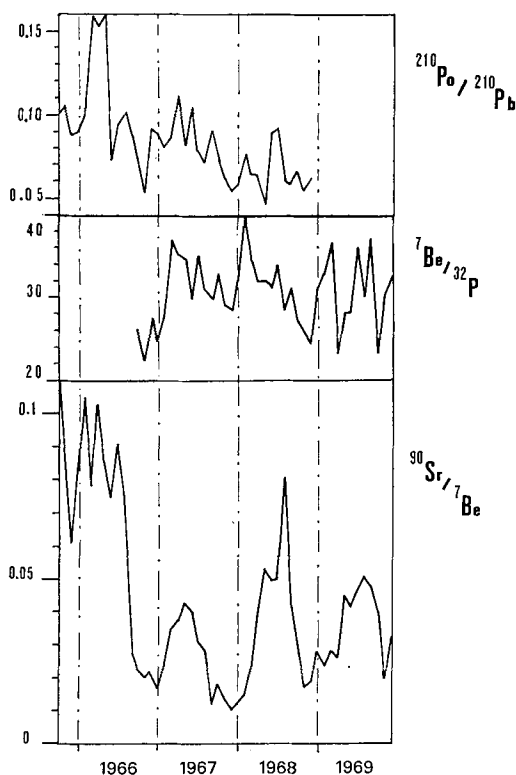


Fig. 3. Variations des rapports mensuels d'activité dans l'air au niveau du sol à Toulouse.

l'inverse du ^{32}P peut provenir de la variabilité plus grande de cet élément, en raison de sa période plus courte.

En résumé, on pourrait croire sur le simple examen des variations périodiques d'activité, plus ou moins en phase, que les augmentations des ^7Be et ^{32}P au printemps et en été sont dues à des apports stratosphériques. En fait, trois constatations s'opposent à une telle conclusion :

- la différence dans les variations périodiques (existence de fortes valeurs de ^7Be et ^{32}P alors que le ^{90}Sr a complètement décaï);

- l'amplitude de variation du ^{32}P supérieure à celle du ^7Be (en effet une introduction stratosphérique ne peut qu'amener relativement plus de ^7Be que de ^{32}P);

- la variation du $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ sans relation avec celle du $^{90}\text{Sr}/^7\text{Be}$ caractéristique des apports stratosphériques.

Il est donc délicat de tirer une conclusion sur les apports stratosphériques avec le seul examen des variations mensuelles d'activité.

En ce qui concerne les ^{210}Po et ^{210}Pb , on ne retrouve pas de variation périodique aussi nette que celles mesurées par les auteurs cités précédemment, ni le maximum important en hiver. Il semble qu'interviennent surtout les phénomènes de lessivage et l'origine de la masse d'air.

B. Comparaison avec d'autres stations

Il est intéressant de comparer les résultats moyens obtenus à Toulouse avec ceux de divers auteurs durant la même période. On constate que, sur un même parallèle, les variations périodiques de ^{90}Sr sont très semblables; mais si les activités sont toujours très voisines pour les différentes stations continentales (Hasl, 1972) (Toulouse; Ispra en Italie; New York et Sterling aux USA), la variation est moins accusée pour les stations océaniques (Charlie; Delta). On observe ainsi en hiver des activités équivalentes dans toutes les stations alors qu'en été les activités des stations océaniques sont 2 à 3 fois plus faibles.

Ce résultat, qui s'oppose à certaines constatations montrant des activités plus fortes au-dessus des océans (Nguyen Ba Cuong, 1971), se répète chaque année de mesure. Il serait possible de l'attribuer à des phénomènes de lessivage (ou de dépôt) plus importants au-dessus des océans (pluies, embruns); cependant, le fait qu'en hiver on trouve à peu près les mêmes concentrations, dans les stations océaniques et continentales, montre que la différence est plutôt due à un phénomène saisonnier. L'hypothèse de descentes stratosphériques, plus importantes au-dessus des continents que des océans, semble très improbable. Il est par contre possible d'expliquer ces différences par le blocage, en été au-dessus des océans, des produits arrivant des couches supérieures de la troposphère, à cause de l'inversion de température présente en été au-dessus de la mer (Byers, 1959). Ce phénomène de blocage est atténué ou détruit au-dessus des continents du fait de la turbulence thermique. En ce qui concerne le ^7Be , les mesures effectuées à Brunswick (51°N) en Allemagne (Kolb, 1970) montrent des activités en général voisines de celles obtenues à Toulouse entre 1965 et 1969. Ceci prouve que les variations moyennes de cet élément sont dues à des phénomènes à moyenne ou grande échelle, plutôt qu'à des phénomènes locaux.

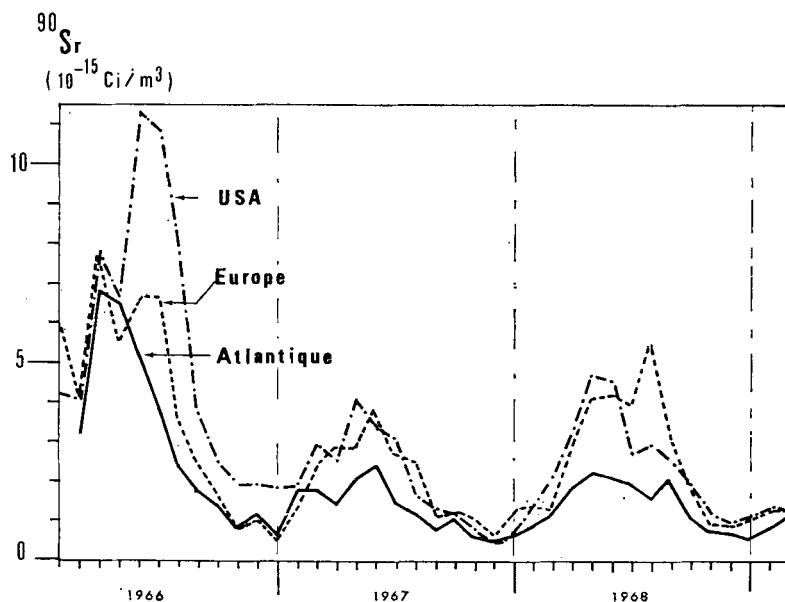


Fig. 4. Variations, dans l'air au niveau du sol, des concentrations de ^{90}Sr : USA (moyenne des stations « Sterling, Virginia » et « New York ») d'après (HASL, 1972). Atlantique (moyenne des stations « Charlie Ocean Station » et « Delta Ocean Station ») d'après (HASL, 1972). Europe (moyenne de Toulouse et Ispira) d'après (HASL, 1966 à 1970).

III.2. ETUDE DE CORRÉLATION

Les mesures fines réalisées dans l'air au niveau du sol à Toulouse nous permettent d'étudier les relations existant entre les activités et divers paramètres, au moyen de diagrammes de corrélation (Marenco et Fontan, 1972a), en opérant sur des fonctions « filtrées » pour éliminer l'effet des phénomènes à grandes périodes (supérieures à 2 mois).

Activités

On constate que les éléments sont tous bien corrélés entre eux mais à des degrés divers

Tableau 1. Coefficients de stricte corrélation linéaire entre les activités et avec l'indice de pluie

	^{90}Sr	^7Be	^{32}P	^{210}Po	^{210}Pb
Indice de pluie	-0,140	-0,230	-0,180	-0,200	-0,300
^{90}Sr		+0,458	+0,326	+0,171	+0,142
^7Be			+0,763	+0,359	+0,438
^{32}P				+0,373	+0,379
^{210}Po					+0,554

(Tableau 1). (Il est surtout significatif de considérer les valeurs relatives des coefficients plutôt que leurs valeurs absolues qui sont abaissées par les diverses transformations mathématiques.)

L'existence de corrélations nettes entre tous les éléments signifie que leurs variations dépendent vraisemblablement de mêmes phénomènes, cependant que les divers degrés obtenus montrent bien l'influence des sources :

- très bonne corrélation entre les éléments de même origine (^7Be et ^{32}P) ou (^{210}Po et ^{210}Pb);
- corrélation minimale entre les éléments de sources très différentes (^{90}Sr et ^{210}Po et surtout ^{90}Sr et ^{210}Pb); les ^7Be et ^{32}P , dont la source est plus répartie dans l'atmosphère, ayant avec les autres éléments des corrélations intermédiaires.

Rapports d'activité

Les relations existant avec les principaux rapports d'activité confirment les résultats obtenus avec les valeurs mensuelles moyennes :

- $^{90}\text{Sr}/^7\text{Be}$ très bien corrélé avec le ^{90}Sr et anticorrélé avec les ^7Be et ^{32}P ;
- $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ très bien anticorrélé avec le ^{32}P mais pas du tout relié au ^7Be ;

— $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ bien corrélé avec le ^{210}Po et très bien anticorrélé avec le ^{210}Pb ;

— $^{90}\text{Sr}/^7\text{Be}$ et $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ pas du tout reliés.

Ces résultats confirment bien que les variations des ^7Be et ^{32}P ne sont pas du tout reliées aux arrivées stratosphériques puisque ni leurs activités ni leur rapport ne sont corrélés avec le rapport $^{90}\text{Sr}/^7\text{Be}$.

Phénomènes de lessivage

On obtient des anticorrélations accentuées entre les activités et les paramètres indicatifs des phénomènes de lessivage, l'indice de pluie représentatif des jours de pluies (Tableau 1) donnant en l'occurrence les relations les plus nettes. On constate que la relation la plus accusée est obtenue pour le ^{210}Pb . En effet à Toulouse les phénomènes de lessivage sont généralement associés aux perturbations océaniques, ce qui se traduit de différentes manières sur le ^{210}Pb :

1. abaissement de l'activité par lessivage (de la même façon pour tous les éléments);
2. abaissement de la concentration moyenne liée à l'origine océanique de l'air;
3. abaissement éventuel du taux de dégagement du radon (terrains mouillés) se traduisant par la diminution dans les basses couches du ^{210}Pb d'origine continentale récente.

Les rapports d'activité sont eux indépendants des phénomènes de lessivage, sauf ceux comportant le ^{210}Pb , car les effets 2. et 3. particuliers au ^{210}Pb se font alors sentir.

Ceci confirme l'influence très importante des phénomènes de lessivage sur les variations d'activité dans l'air des basses couches, ce qui explique la corrélation existant entre les éléments malgré des sources souvent très différentes.

Masses d'air

Les relations existant entre les activités et la nature ou l'origine des masses d'air traduisent en fait l'influence des phénomènes de lessivage ou la variation des sources.

C'est ainsi que les masses d'air plus lessivées (air polaire ou arctique; air océanique; masses d'air dépressionnaires) sont anticorrélées avec les activités et qu'inversement les masses d'air peu lessivées (air continental; air anticyclonique) leur sont assez bien reliées.

Dans le cas du ^{210}Pb les relations sont encore

plus accusées (air polaire; air continental ou océanique) du fait de la variation de la source de radon (faible sur les terrains gelés ou sur les océans; forte sur les continents.)

Les rapports d'activité ne sont pas en général reliés à ces différentes masses d'air, car ils éliminent l'influence des phénomènes de lessivage; cependant, dans le cas où la source varie (cas du ^{210}Pb) ou de celui d'une différence de périodes entre les éléments (cas des éléments cosmogéniques), on observe une relation avec certaines masses d'air. On constate ainsi que le rapport $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ est très bien corrélé avec les masses d'air d'origine maritime, et que le rapport $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ est assez bien relié aux masses d'air polaires (ou arctiques), ce qui peut provenir — comme nous le montrons dans une autre publication (Marengo & Fontan, 1973) — de phénomènes de stabilité verticale de l'air ou de subsidences.

Enfin, on ne met pas en évidence de relation nette entre les activités des éléments ou leurs rapports et des paramètres indicatifs des descentes stratosphériques (dédoublément de tropopause, altitudes de tropopauses, indice cyclonique, présence de jet, passage de fronts froids ...)

III.3. DISCUSSION

Ces divers résultats nous permettent de tirer des conclusions plus sûres que les seules études de variations moyennes. Les variations rapides et accentuées des activités, en phase en général pour tous les éléments, sont dues en grande partie à l'influence des phénomènes de lessivage, ce qui explique les corrélations existant entre les éléments malgré leurs origines différentes.

Dans le cas des ^{90}Sr et ^{210}Pb , les sources sont localisées et susceptibles de changements importants, et l'on observe dans l'air au niveau du sol la variation de la source (petite ou grande échelle) modulée par les phénomènes de lessivage. Les variations des ^7Be et ^{32}P ne sont pas dues, ni en valeur moyenne ni en valeur individuelle, à des contributions stratosphériques; la source principale de ces éléments dans l'air des basses couches est bien la troposphère, et elle varie bien moins dans le temps que celles des ^{90}Sr et ^{210}Pb . Les variations des ^7Be et ^{32}P sont donc dues essentiellement aux phénomènes de lessivage. Lorsque l'on désire s'affranchir le mieux possible de ces phénomènes dans l'étude d'un élément, il est donc particulièrement inté-

ressant de considérer le rapport entre cet élément et le ^7Be (ou le ^{32}P).

Le rapport $^{90}\text{Sr}/^7\text{Be}$ permet de caractériser l'air venant de la stratosphère. Le fait que l'on ne mette pas en évidence de relation avec les possibilités de descentes d'air stratosphérique (sauf peut-être l'atténuation de certains phénomènes) montre que les pics d'activité enregistrés dans les basses couches pour le ^{90}Sr ne sont pas dus en général à des phénomènes discontinus d'apport rapide d'air stratosphérique, mais plutôt à l'influence des phénomènes de lessivage et de circulation horizontale (période de rotation de 10 jours). Nos résultats ne permettent pas d'atteindre la nature même des transferts entre la stratosphère et la troposphère (massifs ou progressifs lors de l'élévation de la tropopause au printemps, discontinus...). Cependant, leur effet dans les basses couches ne se faisant sentir que progressivement, on peut penser que, si les processus de transfert sont discontinus, ils restent limités à la troposphère supérieure et que le temps de transit entre les hautes et basses couches doit être suffisamment long pour permettre à ces apports stratosphériques de diffuser dans la troposphère, avant d'arriver au niveau du sol.

Les résultats confirment, d'autre part, l'importance de la source continentale dans le cas du ^{210}Pb . Le ^{210}Pb mesuré à Toulouse (situé à 300 km de la mer) est en pratique la somme de deux composantes : une composante à grande échelle, variant avec l'origine moyenne de la masse d'air, et une composante locale dépendant fortement des conditions régionales (vitesse du vent, pluie, stabilité...). On observe ainsi une très bonne corrélation entre l'activité du ^{210}Pb et les phénomènes de brume ou brouillard (à un degré moindre pour le ^{210}Po), alors que les ^7Be et ^{32}P présentent une certaine anticorrélation. Ce phénomène correspond vraisemblablement à Toulouse à des masses d'air stagnantes très continentalisées dans lesquelles les échanges verticaux moyens sont plus faibles. Cela explique que les éléments formés dans les basses couches soient corrélés (d'autant plus que l'air est plus continental) et ceux venant du haut anticorrélés. Il n'apparaît pas dans le cas du ^{90}Sr de phénomène semblable, à cause de la prépondérance des autres causes de variation de cet élément. Le cas du ^{210}Po est intermédiaire, car sa formation à partir du ^{210}Pb est relativement lente par rapport à celle du ^{210}Pb à partir

du radon; sa production intègre donc sur une certaine échelle de temps les variations de ^{210}Pb dont les changements rapides se font moins sentir. Le ^{210}Po suit donc plutôt les variations à grande échelle du ^{210}Pb , et moins ses variations locales (sauf dans le cas d'effets locaux très importants et prolongés). On vérifie ainsi expérimentalement que le ^{210}Po présente:

— avec les phénomènes de lessivage ou l'origine zonale de la masse d'air des relations comparables à celles du ^7Be ;

— avec l'air arctique (source moyenne du ^{210}Pb plus faible) une anticorrélation intermédiaire entre celle du ^7Be et celle du ^{210}Pb ; et qu'il est en règle générale mieux corrélé que les autres éléments avec le ^{210}Pb . Afin de faire la part entre les phénomènes de lessivage et le changement de production troposphérique des ^7Be et ^{32}P (lié au déplacement saisonnier de la tropopause) nous avons étudié les variations de ces éléments dans l'air, par simulation sur modèle numérique en régime dépendant du temps. Nous avons choisi des conditions moyennes d'échange (K_z troposphérique = $5 \text{ m}^2/\text{s}$) et représenté la troposphère en tenant compte de sa limite supérieure, d'après les hauteurs journalières de tropopauses relevées sur les radiosondages de Bordeaux (à 300 km de Toulouse), que nous avons considérées comme représentatives des variations à grande échelle (40°N). Nous avons introduit le lessivage sous la forme d'un coefficient journalier Λ_1 (dans la couche de 2 à 6 km) fonction de la moyenne glissante et retardée de l'indice de pluie (sur les 15 jours précédents étant donné la rotation des masses d'air). Nous avons ainsi simulé la succession dans le temps des phénomènes de production et d'élimination et calculé, entre 1965 et 1969, les moyennes mensuelles d'activité dans l'air au niveau du sol, à partir des concentrations théoriques journalières données par les modèles. On constate que les variations théoriques mensuelles, obtenues dans l'air des basses couches, correspondent très bien à celles de l'indice de pluie mais assez peu à celles de hauteur de tropopause; si l'on effectue la même simulation, mais sans faire varier la hauteur de tropopause, on obtient dans les basses couches pratiquement les mêmes courbes que précédemment. Ce n'est plus le cas lorsque l'on s'élève en altitude et la variation de production — liée à la hauteur de tropopause — se fait sentir très nettement dans les hautes couches de la troposphère. Les varia-

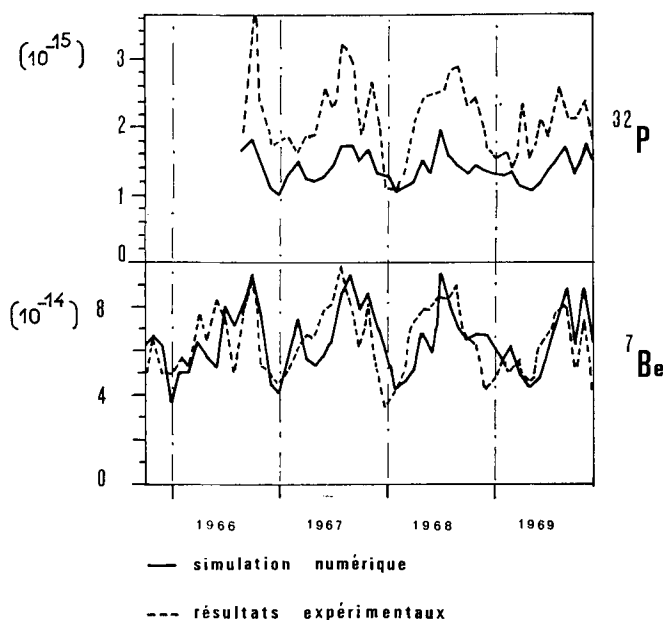


Fig. 5. Comparaison des variations d'activité mensuelles expérimentales et théoriques (simulation sur modèle de la variation des phénomènes de lessivage et de la production troposphérique; K_z troposphérique : $5 \text{ m}^2/\text{s}$).

tions d'activité des ^7Be et ^{32}P dans les basses couches dépendent donc essentiellement des phénomènes de lessivage.

On retrouve au niveau du sol (Fig. 5) des variations périodiques très comparables à celles enregistrées expérimentalement; l'accord est très bon à tout point de vue pour le ^7Be mais il n'est que qualitatif pour le ^{32}P , car ni l'amplitude de variation, ni les niveaux d'activité (trop faibles), ne correspondent pour cet élément. Le rapport d'activité $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ calculé ne varie que très peu et présente une valeur moyenne trop élevée. Cette étude montre que les phénomènes de lessivage ne sont pas les seuls à intervenir; nous n'avons en particulier pas encore fait intervenir la variation des conditions d'échanges verticaux.

IV. Variations avec l'altitude

Les modèles que nous avons utilisés sont un moyen commode pour simuler les phénomènes, mais nous sommes bien conscients qu'il s'agit là d'une simplification, les processus intervenant dans l'atmosphère étant en réalité bien plus complexes. Cependant les résultats obtenus

donnent une représentation de ce qui se passe en moyenne et permettent de dégager l'influence respective des divers phénomènes. Lorsque l'on étudie sur modèle, en régime stationnaire, la distribution dans l'atmosphère des différents éléments pour des conditions moyennes d'échange et de lessivage (Figure 6), on obtient des répartitions verticales qui augmentent avec l'altitude, sauf dans le cas du ^{210}Pb . Dans la troposphère, le rapport $^{90}\text{Sr}/^7\text{Be}$ varie très peu, alors que le rapport $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ augmente et le rapport $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ diminue avec l'altitude (Fig. 7).

Les mesures expérimentales dans l'air (Pic du Midi et Tarbes; prélèvements en avion) montrent qu'en pratique les conditions réelles s'éloignent souvent du régime stationnaire et que les profils obtenus sont assez irréguliers. Chaque cas, correspondant à des conditions expérimentales différentes, requiert en fait une analyse particulière, et la statistique des mesures dans l'air en altitude n'est pas suffisante pour permettre d'établir des répartitions verticales moyennes pouvant correspondre à un régime stationnaire apparent. Cependant, on retrouve en général les tendances mises en évidence avec les profils théoriques. On vérifie ainsi que les activités augmentent en moyenne avec l'altitude dans la

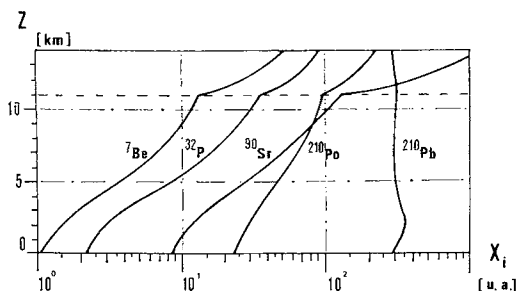


Fig. 6. Simulation sur modèles (K_z troposphérique : $6 \text{ m}^2/\text{s}$; $\Lambda_1 : 1/30 \text{ j}^{-1}$). Répartition verticale des activités dans l'atmosphère.

troposphère, de manière importante pour les ${}^7\text{Be}$ ${}^{32}\text{P}$ et ${}^{90}\text{Sr}$ et moins accusée pour le ${}^{210}\text{Po}$ (Crozat, 1969; Julian, 1970); le ${}^{210}\text{Pb}$ a plutôt tendance à décroître dans la moyenne troposphère. Enfin on constate bien que les basses couches (0–2 km) sont relativement mieux mélangées (couche limite) et l'on observe fréquemment dans la zone de lessivage (2 à 6 km) des baisses importantes d'activités.

En ce qui concerne les rapports d'activité, on peut considérer aussi les résultats dans les précipitations (Lacombe, 1968), représentatives de l'air en altitude, qui fournissent par le nombre de mesures réalisées une meilleure statistique. On retrouve dans le cas du rapport ${}^{90}\text{Sr}/{}^7\text{Be}$ l'absence de variation systématique avec l'altitude dans la troposphère. Par contre, pour le rapport ${}^7\text{Be}/{}^{32}\text{P}$, les résultats sont variables :

- les mesures à Tarbes (plaine) donnent des rapports ${}^7\text{Be}/{}^{32}\text{P}$ supérieurs à ceux du Pic du Midi (3 000 m);

- les profils verticaux (avion), très divers, montrent plutôt une augmentation de ce rapport avec l'altitude;

- enfin, les résultats dans les précipitations donnent dans 60 % des cas des rapports ${}^7\text{Be}/{}^{32}\text{P}$ inférieurs ou égaux à ceux existant dans l'air au niveau du sol; les autres cas correspondent à des valeurs en altitude bien plus élevées.

Il est en définitive difficile de fixer pour ce rapport une répartition verticale, car il est possible aussi bien d'avoir des profils décroissants avec l'altitude et correspondant au régime stationnaire, que des valeurs élevées en altitude traduisant un régime variable dans le temps.

Les résultats sont plus réguliers par contre dans le cas du rapport ${}^{210}\text{Po}/{}^{210}\text{Pb}$ et confirment qu'il augmente avec l'altitude. Il est même

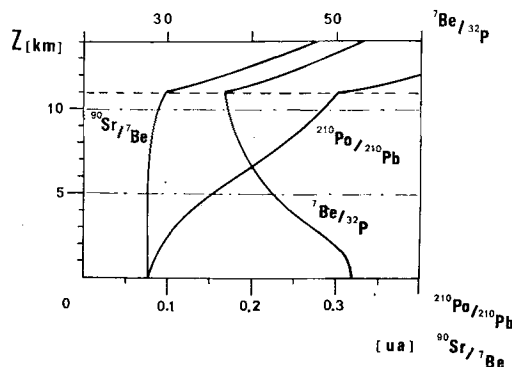


Fig. 7. Simulation sur modèles (K_z troposphérique : $6 \text{ m}^2/\text{s}$; $\Lambda_1 : 1/30 \text{ j}^{-1}$). Répartition verticale des rapports d'activité dans l'atmosphère.

possible d'établir, à partir des mesures dans les pluies, une répartition verticale moyenne de ce rapport, d'après l'altitude moyenne des nuages générateurs. Nous avons pour cela considéré l'ensemble de tous les résultats dans les précipitations à Toulouse, et non pas, comme auparavant (Lacombe, 1968; Marenco et Fontan, 1972a) les seuls cas de prélèvements fractionnés de pluies correspondant à des nuages bien déterminés (représentativité trop faible). La bonne statistique des résultats dans les précipitations (mesures continues sur deux années) permet de penser que l'estimation du profil moyen est correct et que l'on peut le comparer avec les profils théoriques donnés par les modèles en régime stationnaire (plan source infini de dégagement du radon). Il y a lieu cependant de tenir compte de la position du lieu de mesures; en effet, Toulouse, située à 300 km de l'océan Atlantique, est soumise principalement aux influences océaniques. Les valeurs moyennes du rapport ${}^{210}\text{Po}/{}^{210}\text{Pb}$, alors obtenues dans les basses couches (et particulièrement au niveau du sol), sont donc plus élevées que celles données par les modèles de simulation dans des conditions de dégagement uniforme de radon (Marenco et Fontan, 1972b). Les modèles plus complexes, simulant la succession des continents et des océans pour le 40° de latitude, montrent ainsi que, dans des conditions moyennes d'échange et de lessivage, la valeur du rapport ${}^{210}\text{Po}/{}^{210}\text{Pb}$ de 0.080, obtenue à Toulouse dans l'air près du sol, correspond à une valeur moyenne sur le globe (dégagement considéré comme uniforme) de 0.060 à 0.070.

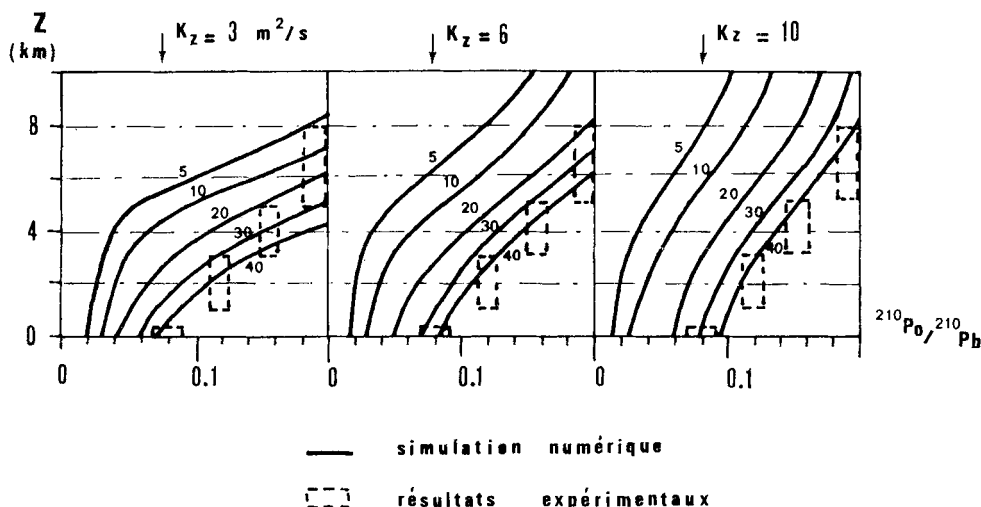


Fig. 8. Rapport d'activité $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$. Comparaison des résultats expérimentaux avec les profils obtenus par simulation sur modèles, pour différentes valeurs des coefficients d'échange troposphériques (K_z : 3, 6, 10 m^2/s) et de lessivage ($1/\Delta_1$: 5, 10, 20, 30, 40 j).

La comparaison avec les profils théoriques (Fig. 8) montre que la répartition moyenne dans la troposphère du rapport $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ correspond à des conditions d'échanges verticaux (K_z troposphérique de 3 à 6 m^2/s) et de lessivage (Δ_1 de 1/30 à 1/40 j^{-1}) comparables à celles envisagées dans la littérature. Ces conditions permettent d'estimer les valeurs des temps de séjour troposphériques, à partir des modèles de simulation : le temps de séjour troposphérique est de l'ordre de 45 jours pour le ^{210}Po et il varie de 10 à 90 jours pour des éléments injectés continuellement entre le niveau du sol et la tropopause.

V. Influence des échanges verticaux

Nous avons vu que les concentrations des éléments, dans l'air au niveau du sol, dépendaient fortement de la variation des sources et des phénomènes de lessivage, les phénomènes de circulation horizontale intervenant aussi dans certains cas. Cependant, il est vraisemblable que les échanges verticaux vont avoir une influence importante sur les variations d'activité dans les basses couches, étant donné les répartitions des éléments dans la troposphère. Nous ne traiterons ici que de l'influence des mouvements moyens, en simulant en régime stationnaire la variation du coefficient d'échange troposphérique

que moyen K_z . On constate que conformément à ce que l'on pouvait attendre de l'allure des répartitions verticales, les activités dans les basses couches des ^7Be , ^{32}P , ^{90}Sr et ^{210}Po augmentent avec K_z , alors que c'est l'inverse pour le ^{210}Pb (amplitude de variation plus faible) (Fig. 9). Les rapports $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ et $^{90}\text{Sr}/^7\text{Be}$ augmentent et diminuent respectivement lorsque s'accroissent les échanges verticaux. On observe un maximum du rapport $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ pour une valeur de K_z de l'ordre de 2 m^2/s ; dans la troposphère (où K_z est en général supérieur à cette valeur) l'augmentation de K_z entraîne donc une diminution du rapport $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ qui passe ainsi de 54 à 40 lorsque K_z varie de 2 à 20 m^2/s .

Lorsque l'on utilise ces résultats théoriques pour interpréter les variations expérimentales, il faut tenir compte de ce que les effets sont masqués dans le cas des rapports $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ et $^{90}\text{Sr}/^7\text{Be}$, car la variation des sources de ^{90}Sr et ^{210}Pb est prépondérante. Il est par contre possible d'expliquer qualitativement la variation périodique du rapport $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$, où les sources sont bien moins variables, par la diminution du coefficient d'échange troposphérique en hiver (augmentation du rapport), ce qui concorde avec ce que l'on connaît de la variation de ce coefficient au cours de l'année. C'est ainsi que, dans les modèles de simulation (Seitz et al., 1968; Machta et al., 1970), les auteurs considèrent

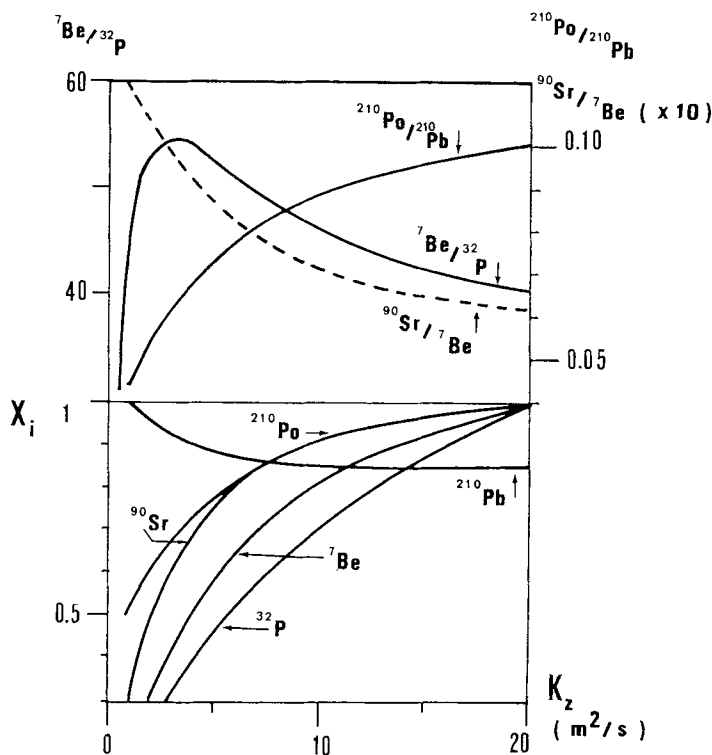


Fig. 9. Simulation sur modèles ($\Lambda_1 : 1/30 \text{ j}^{-1}$). Variations des activités et rapports d'activité, dans l'air au niveau du sol, en fonction du coefficient d'échange troposphérique moyen K_z .

rent généralement des valeurs de K_z de l'ordre de $3 \text{ m}^2/\text{s}$ en hiver et de 6 à $10 \text{ m}^2/\text{s}$ en été (convection thermique). Un tel effet n'est pas contredit par les variations d'activité, observées à Toulouse, montrant l'augmentation des ^{90}Sr , ^7Be et ^{32}P , au printemps et en été, et la diminution à cette époque du ^{210}Pb (le ^{210}Po étant intermédiaire). Cependant, la variation des échanges verticaux ne saurait expliquer seule l'amplitude de variation du rapport $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$, à moins de considérer pour K_z une variation telle qu'elle semble peu probable. Il est vraisemblable que les phénomènes intervenant en régime transitoire sont aussi responsables de la variation du rapport $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$, en raison notamment de la différence de comportement des ^7Be et ^{32}P due à leurs périodes radioactives différentes.

VI. Discussion

Nous avons montré, à l'aide de mesures fines de divers éléments, que l'augmentation des ^7Be

et ^{32}P , au printemps et en été, n'était pas due à des apports stratosphériques. Cette conclusion s'oppose en particulier à celle tirée par Rangarajan et Gopalakrishnan (1970) de mesures relativement courtes (prélèvements de 7 jours) réalisées pendant une année à Bombay (18° N); ces auteurs observent des variations très proches pour les ^7Be et ^{137}Cs durant toute l'année (maximum de printemps) et concluent à une contribution stratosphérique en ^7Be variant de 25 à 60 %. En fait, la concordance des variations de ^7Be et ^{137}Cs aux faibles latitudes ne suffit pas à prouver l'existence de tels apports. En effet, il est reconnu que les arrivées stratosphériques se produisent principalement aux latitudes moyennes (jet stream lié au front polaire); étant donné la répartition des activités (maximum pour le ^7Be et les produits de fission à ces latitudes), celles-ci vont se comporter comme un réservoir vis à vis des faibles et hautes latitudes. On observe donc, de part et d'autre (régions tropicales et polaires), la variation des échanges méridiens, modulée par les conditions locales de

lessivage et d'échanges verticaux. Il est donc normal d'observer des variations équivalentes pour ces deux séries d'éléments, dans les régions polaires (Thomas et al., 1970) et dans les régions tropicales (Rangarajan et Gopalakrishnan, 1970). Le décalage des maxima, existant dans l'air des basses couches aux moyennes latitudes, se retrouve aussi bien dans nos mesures à Toulouse (42°N) que dans celles de Thomas (46°N) et de Kolb (51°N). Il existe cependant une contribution stratosphérique résultant des échanges continus durant toute l'année à travers la tropopause, mais elle est relativement constante; une étude sur modèle, dans des conditions moyennes (tropopause à 11 km; Kz troposphérique de $6\text{ m}^2/\text{s}$; Kz stratosphérique de $0,4\text{ m}^2/\text{s}$; Λ_1 égal à $1/30\text{ j}^{-1}$) permet de la chiffrer à environ 5 % pour le ^{32}P et 15 % pour le ^7Be , dans l'air au niveau du sol. Les variations des ^7Be et ^{32}P dans l'air des basses couches sont donc dues à la combinaison des phénomènes de lessivage et d'échanges verticaux dans la troposphère.

Notre étude montre un désaccord manifeste entre les valeurs moyennes du rapport $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ calculées à l'aide des modèles et celles déterminées expérimentalement. On enregistre ainsi à Toulouse, entre 1966 et 1969, une valeur moyenne du rapport d'activité $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ de

l'ordre de 30 dans l'air au niveau du sol, et pouvant varier entre 38–40 en hiver et environ 24 en automne. Les résultats de la simulation numérique sur modèles en régime stationnaire donnent une valeur moyenne de ce rapport d'environ 52 ($K_z : 6\text{ m}^2/\text{s}$; $\Lambda_1 : 1/30\text{ j}^{-1}$). Il passe de 54 à 40 lorsque K_z varie de 2 à $20\text{ m}^2/\text{s}$ ($\Lambda_1 : 1/30\text{ j}^{-1}$) et de 59 à 34 lorsque Λ_1 passe de $1/100$ à $1/5\text{ j}^{-1}$ ($K_z : 6\text{ m}^2/\text{s}$). Même si le régime stationnaire n'est jamais strictement réalisé dans l'atmosphère, il est cependant possible de trouver un régime stationnaire apparent, représentant en valeur moyenne les conditions d'échange et de lessivage. Or, on constate que les valeurs du rapport d'activité $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ obtenus théoriquement sont toujours bien supérieures aux résultats expérimentaux moyens. Même dans le cas où l'on prend des conditions de lessivage très intenses, on approche à peine de la valeur 34 pour le rapport $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$, et ces conditions sont incompatibles avec les niveaux d'activité des ^7Be et ^{32}P ainsi qu'avec les valeurs expérimentales moyennes du rapport $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$. L'explication de ce désaccord réside en fait, comme nous le montrons dans une autre publication (Marenco et Fontan, 1973), dans une sous-estimation de l'efficacité de production du ^{32}P , les courbes de répartition verticale des taux d'étoiles nucléaires restant inchangées.

REFERENCES

- Aegerter, S., Bhandari, N., Rama & Tamhane, A. S. 1966. ^7Be and ^{32}P in ground level air. *Tellus* 18, 212.
- Allkofer, O. C., Fox, J. M. & Simon, M. 1966. Be-7 im radioaktiven fallout. *Atomkernenergie* 11, 515.
- Biot, A. 1971. Contribution à l'étude de la diffusion du radon et des aérosols dans la troposphère. Thèse de doctorat n° 428, Toulouse.
- Bleichrodt, J. F. & Van Abkoude, E. R. 1963a. Artificial Be-7 in the lower stratosphere. *J. Geophys. Res.* 68, 4629.
- Bleichrodt, J. F. & Van Abkoude, E. R. 1963b. On the deposition of cosmic-ray-produced Be-7. *J. Geophys. Res.* 68, 5283.
- Byers, H. R. 1959. *General meteorology*. McGraw-Hill, New York, 51.
- Cruikshank, A. J., Cowper, G. & Grummitt, W. E. 1956. Production of ^7Be in the atmosphere. *Canad. J. Chem.* 34, 214.
- Crozat, G. 1969. Contribution à l'étude de la répartition verticale des éléments radioactifs à vie longue dans l'atmosphère. Thèse de spécialité, Faculté des Sciences de Toulouse.
- Danielsen, E. F. 1968. Stratospheric-tropospheric exchange based on radioactivity, Ozone and potential vorticity. *J. Atm. Sc.* 25, 502.
- Doury, A. & Bourgeon, P. 1966. Les retombées radioactives en France après la seconde explosion nucléaire chinoise. Processus de transferts atmosphériques. Rapport CEA-R 3020.
- Drevinsky, P. J., Wasson, J. T., Couble, E. C. & Dimond, N. A. 1964. ^7Be , ^{32}P , ^{33}P and ^{35}S : stratospheric concentrations and artificial production. *J. Geophys. Res.* 69, 1457.
- Feely, H. W. & Seitz, H. 1970. Use of Lead-210 as a tracer of transport processes in the stratosphere. *J. Geophys. Res.* 75, 2885.
- Gopalakrishnan, S. S. 1970. Levels and variations of atmospheric radioactivity in surface air. *Proceedings of National Symposium on Radiation Physics, Trombay, Nov. 24–47*, 521.
- Gustafson, P. F., Kerrigan, M. A. & Brar, S. S. 1961. Comparison of Be-7 and Cs-37 radioactivity in ground-level air. *Nature* 191, 454.
- Hasl (1966 à 1970) (Euratom joint nuclear research centre, Ispra Establishment, Quarterly report). Quarterly report, USAEC, New York.

- Hasl 1972. ^{90}Sr Concentrations in surface air (1965–1969). Hasl-249 (Appendix) C-43.
- Joshi, L. U. & Mahadevan, T. N. 1968. Seasonal variations of radium D (Lead-210) in ground level air in India. *Health Physics* 15, 67.
- Joshi, L. U., Rangarajan, C. & Gopalakrishnan, S. S. 1969. Measurement of Lead-210 in surface air and precipitation. *Tellus* 21, 107.
- Joshi, L. U., Rangarajan, C. & Gopalakrishnan, S. S. 1971. Investigations on ^{210}Pb concentrations in various regions of India. *Health Physics* 20, 665.
- Julian, A. 1970. Etude des différents dispositifs de prélèvement en altitude des aérosols. Thèse de spécialité, Faculté des Sciences de Toulouse.
- Kolb, W. 1970. Jahreszeitliche Schwankungen der ^7Be , ^{54}Mn und Spaltprodukt-Konzentrationen der bodennahen Luft. *Tellus* 22, 443.
- Krey, P. W. 1967. Strontium-90 concentrations and stratospheric transport. *J. Geophys. Res.* 72, 2987.
- Krey, P. W. 1969. ^{90}Sr and ^{210}Pb in the upper stratosphere. HASL-207, USAEC, New York.
- Lacombe, J. P., 1968. Contribution à l'étude de la radioactivité des précipitations. Thèse de spécialité, Faculté des Sciences de Toulouse.
- Lal, D., Malhotra, P. K. & Peters, B. 1958. On the production of radioisotopes in the atmosphere by cosmic radiation and their application to meteorology. *J. Atmos. Terr. Phys.* 12, 306.
- Lambert, G. 1963. Sur l'aspect discontinu des transferts entre la stratosphère et la troposphère. *C. R. Acad. Sc.* 256, 4064.
- Machta, L. 1957. *The nature of radioactive fallout and its effect on man*. US Government Printing Office, Washington D.C., 141.
- Machta, L., List, R. J., Smith, M. E. & Oeschger, H. 1970. Use of natural radioactivities to estimate large-scale precipitation scavenging. Precipitation scavenging (1970), AEC Symposium series 22, USAEC Div. Techn. Inf. Ext. CONF-700601, 465.
- Marenco, A., Fontan, J., Blanc, D., Lacombe, J. P. & Crozat, G. 1967. Variations of the concentrations of Be-7, P-32, Sr-90, Pb-210 and Po-210 in air and rainfalls at Toulouse. C.A.C.R. Symposium Lucerne.
- Marenco, A., Blanc, D., Fontan, J., Lacombe, J. P. & Crozat, G. 1968. Dosage par analyse chimique des traces de Be-7, P-32, Sr-90, Pb-210 et Po-210 présentes dans l'air et les précipitations. *Chimie analytique* 50, 133.
- Marenco, A. & Fontan, J. 1972a. Sources of Polonium-210 within troposphere. *Tellus* 24, 38.
- Marenco, A. & Fontan, J. 1972b. Etude par simulation sur modèles numériques du temps de séjour des aérosols dans la troposphère. *Tellus* 24, 429.
- Marenco, A. & Fontan, J. 1973. Sur la production des ^7Be et ^{32}P et l'utilisation de leur rapport d'activité. *Tellus* 26, 376.
- Martell, E. A. & Poet, S. E. 1969. Excess atmospheric ^{210}Po —pollutant or natural constituent? *Trans. American Nuclear Society*, Winter meeting, Dec. 69, 484.
- Martell, E. A. 1970. Transport patterns and residence times for atmospheric trace constituents vs. altitude. *Advances in Chemistry Series* 93, 138.
- Martell, E. A. & Poet, S. E. 1970. Residence times of natural and pollutant aerosols in the troposphere. *Contrib. to the Univ. of Colorado workshops on research problems in air and water pollution*, Aug. 3–15. Colorado Assoc. Univ. Press.
- 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, 1741.
- Nguyen Ba Cuong. 1971. Etude par les traceurs radioactifs des échanges entre les diverses zones de l'atmosphère au-dessus des continents et des océans. Rapport CEA-R-3977.
- Noshkin, V. E. 1969. Fallout radionuclides and Be-7 in over-ocean aerosols. *Tellus* 21, 414.
- Parker, R. P. 1962. Be-7 and fission products in surface air. *Nature* 193, 967.
- Patterson, R. L. & Lockhart, L. B. 1964. *Geographical distribution of Lead-210 (RaD) in ground-level air. The natural radiation environment*. The University of Chicago Press, Chicago, 383.
- Peirson, D. H. 1963. Be-7 in air and rain. *J. Geophys. Res.* 68, 3831.
- Peirson, D. H., Cambray, R. S. & Spicer, C. S. 1966. Lead-210 and Polonium-210 in the atmosphere. *Tellus* 18, 427.
- Peters, B. 1959. Cosmic-ray produced radioactive isotopes as tracers for studying large-scale atmospheric circulation. *J. Atmos. Terr. Phys.* 13, 351.
- Poet, S. E., Moore, H. E. & 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. Geophys. Res.* 77, 6515.
- Rangarajan, C. & Gopalakrishnan, S. S. 1970. Seasonal variation of Be-7 relative to Cs-137 in surface air and at tropical and sub-tropical latitudes. *Tellus* 22, 115.
- Schumann, G. & Stoeppler, M. 1963. Be-7 in the atmosphere. *J. Geophys. Res.* 68, 3827.
- Seitz, H., Davidson, B., Friend, J. P. & Feely, H. W. 1968. Final report on project streak: numerical models of transport, diffusion and fallout of stratospheric radioactive material. Report no. NYO-3654-4 USAEC, Washington D.C.
- Staley, D. O. 1960. Evaluation of potential—vorticity changes near the tropopause and the related vertical motions, vertical advection of vorticity, and transfer of radioactive debris from stratosphere to troposphere. *J. Meteorol.* 17, 591.
- Staley, D. O. 1962. On the mechanism of mass and radioactivity transport from stratosphere to troposphere. *J. Atm. Sc.* 19, 450.
- Thomas, C. W., Young, J. A., Wogman, N. A. & Perkins, R. W. 1970. The measurement and behavior of airborne radionuclides since 1962. *Advances in Chemistry Series* 93, 158.
- Vilenskiy, V. D. 1970. The influence of natural radioactive dust in determining the mean stay time of Lead-210 in the troposphere. *IZV, Atmosph. and Ocean. Phys.* 6, 3, 307.
- Walton, A. & Fried, R. E. 1962. The deposition of Be-7 and P-32 in precipitation at north temperature latitudes. *J. Geophys. Res.* 67, 5335.

ИЗУЧЕНИЕ ВАРИАЦИЙ ^7Be , ^{32}P , ^{90}Sr , ^{210}Pb И ^{210}Po В ТРОПОСФЕРЕ

В течение ряда лет (с 1965 по 1969 гг.) в Юго-Западной части Франции в Тулузе производились измерения содержания радиоактивных элементов различного происхождения (^7Be , ^{32}P , ^{90}Sr , ^{210}Pb , ^{210}Po) в воздухе на уровне земли, взятого в пробах краткой длительности (от 1 до 4 дней), а также в осадках и в воздухе более высоких слоев. Анализ результатов указывает на очень важную роль процессов вымывания осадками на изменение активности. Что касается ^{90}Sr , то подтверждается периодическое изменение его концентрации, связанное с обменом между стратосферой и тропосферой, однако, показано, что увеличение, отмеченное для ^7Be и ^{32}P весной и летом на уровне земли, вызывается изменениями в процессах вымывания осадками, а не благодаря влиянию стратосферы. В случае ^{210}Pb к тому же необходимо учитывать происхождение воздушных масс. Отношение $^{90}\text{Sr}/^7\text{Be}$, позволяющее исключать влияние вымывания, удобно для характеристики воздуха, приходящего из стратосферы, однако, в приземном слое воздуха не было найдено каких-либо указаний

на возможность существования нисходящего потока из стратосферы. Что касается отношения $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$, то результаты его измерения указывают на существование сезонных вариаций с максимумом зимой, вызванных, вероятно, процессами вертикального обмена. Отмечается важное расхождение между теоретическими и экспериментальными значениями этого отношения. Результаты, полученные в Тулузе, находятся в хорошем согласии с другими измерениями на той же широте, вместе с тем, сравнение между измерениями, полученных на различных станциях, указывает на уменьшение вертикального обмена летом над океанами. Вертикальное распределение отношения $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$, полученное из измерений в осадках, позволяет оценить коэффициент вертикального обмена K_z величиной от 3 до 6 м²/с, а коэффициент вымывания A_1 для слоя воздуха между 2 и 6 км величиной от 1/30 до 1/40 час⁻¹. Наконец, модельные исследования также подтверждают важность процессов вымывания осадками и вертикального обмена.