



HAL
open science

Détermination expérimentale et modélisation du dépôt par temps sec de l'iode élémentaire gazeux

Oumar Telly Bah

► **To cite this version:**

Oumar Telly Bah. Détermination expérimentale et modélisation du dépôt par temps sec de l'iode élémentaire gazeux. Sciences de l'environnement. Aix-Marseille Université, 2021. Français. NNT : 2021AIXM0012 . tel-04335549

HAL Id: tel-04335549

<https://irsn.hal.science/tel-04335549>

Submitted on 11 Dec 2023

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.



THÈSE DE DOCTORAT

Présentée et soutenue le 14 janvier 2021
En vue de l'obtention du titre de
Docteur de l'université d'Aix-Marseille

Par
Oumar Telly Bah

**Détermination expérimentale et modélisation du dépôt par temps
sec de l'iode élémentaire gazeux**

Directeurs de thèse : Denis MARO
Didier BOURLES
Tuteur IRSN : Didier HEBERT

Discipline

Sciences de l'Environnement

Spécialité

Géosciences de l'environnement

École doctorale

ED 251-Sciences de l'Environnement

Composition du jury

- Béatrice MARTICORENA **Présidente du jury**
- Directrice de Recherche CNRS, LISA, Université de Paris Est
- Créteil
- Yelva ROUSTAN **Rapporteur**
- Maître de conférences, École des ponts ParisTech, CEREA
- David AMOUROUX **Rapporteur**
- Directeur de Recherche CNRS, IPREM, Université de Pau et
- des Pays de l'Adour
- Lucilla BENEDETTI **Examinatrice**
- Maître de conférences, Université Aix-Marseille
- Benjamin LOUBET **Examineur**
- Directeur de Recherche INRAE, AgroParisTech, Université
- Paris-Saclay
- Yves THIRY **Examineur**
- Docteur, ANDRA, Chatenay-Malabry, France
- Denis MARO **Directeur de thèse**
- Ingénieur-Chercheur, HDR, IRSN, Cherbourg en Cotentin
- Didier BOURLES **Co-Directeur de thèse**
- Directeur du Laboratoire National des Nucléides
- Cosmogéniques (LN2C), Université Aix-Marseille

REMERCIEMENTS

Le travail de recherche mené durant cette thèse a été réalisé au sein du Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-en-Cotentin (LRC) de l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), au sein du Pôle Santé et Environnement (PSE) dans lequel se trouve la Direction de l'Environnement, dans le Service de Recherche sur les Transferts et les Effets des radionucléides dans l'environnement sur les écosystèmes (SRTE). Dans ce cadre je tiens à remercier toute la hiérarchie de l'IRSN et particulièrement Monsieur François PAQUET chef de service du SRTE et Monsieur Denis MARO, responsable du LRC, pour m'avoir accueilli. J'adresse mes remerciements au Centre Européen de Recherche et d'Enseignement des Géosciences de l'Environnement (CEREGE) pour leur collaboration.

Je commencerai par remercier mes directeurs de thèse et mon tuteur à l'IRSN, sans qui ce projet n'aurait abouti.

Monsieur Denis MARO, pour m'avoir fait confiance en m'offrant la possibilité d'effectuer ma thèse sous sa direction durant ces trois années. Je te remercie pour tout le temps que tu as consacré à mon projet tant dans la réflexion que dans la rédaction, pour tes qualités scientifiques et humaines. Je t'adresse mes sincères remerciements pour tous les moyens que tu as mis à ma disposition et qui m'ont permis de travailler dans les meilleures conditions et te témoigne toute mon estime, ma profonde reconnaissance et mon entière admiration.

Monsieur Didier BOURLES, mon co-directeur de thèse, avec qui j'ai échangé pour la première fois sur ce projet de recherche. Je te remercie pour m'avoir encadré et inculqué ta rigueur et ton sens de responsabilité. Je t'adresse toute ma gratitude et ma profonde reconnaissance.

Monsieur Didier Hébert, mon tuteur à l'IRSN, pour tout le temps qu'il m'a accordé, tant dans les manipulations que dans la réflexion et son sens de responsabilité m'ayant permis de mener à bien ce projet, avec beaucoup de sollicitude, de compétence, d'organisation et d'enthousiasme. Permets-moi de t'exprimer mon respect et admiration pour tes qualités humaines et professionnelles et surtout pour ta

compréhension et ta bienveillance à mon égard. Tu resteras un exemple pour moi en tant qu'encadrant et merci pour tout.

Mes chaleureux remerciements à l'ensemble du jury de ma thèse, pour avoir très aimablement accepté d'être mon jury de thèse et pour leurs enrichissantes remarques et suggestions. Veuillez trouver ici, l'expression de mon estime et ma sincère gratitude.

Madame Béatrice MARTICORENA, je vous remercie pour m'avoir fait l'honneur de présider le jury de thèse.

Mes vifs remerciements à Monsieur David AMOUROUX et Monsieur Yelva ROUSTAN, pour avoir accepté d'être les examinateurs de cette thèse.

Madame Lucilla BENEDETTI, Monsieur Benjamin LOUBET et Monsieur Yves THIRY, merci d'avoir accepté d'être les examinateurs de cette thèse.

Je tiens à remercier l'ensemble du LRC pour l'agréable ambiance de travail qu'elle fait régner, la bonne humeur et la disponibilité de ses membres.

Ma profonde reconnaissance à Olivier CONNAN, Luc SOLIER et Philippe LAGUIONIE pour leur gentillesse et pour avoir contribué à la réalisation de ce travail à travers leur aide précieuse lors des expériences de terrain à l'INRAE à Lusignan. Je profite de cette occasion pour remercier toute l'équipe de l'INRAE de Lusignan pour avoir accepté de réaliser une partie de mes travaux au sein de leur établissement par la mise à disposition de la prairie et de leurs locaux et pour la sympathie de ses membres.

J'adresse mes sincères remerciements à :

Marianne LAMOTTE, pour sa gentillesse et son aide administrative.

Bruno FIEVET, pour son assistance informatique, pour nos discussions au tour de l'iode et ses enrichissantes suggestions ainsi qu'à toutes les personnes ayant pris part au Groupe Technique Iode (GT Iode).

Marianne ROSET, Claire VOISEUX, Olivier CAZIMAJOU, Mehdi MORILLON, Claire GODINOT, Pascal BAILLY du BOIS, Johan CHARDEUR et Pierre ROUPSARD, pour leur gentillesse et pour leur soutien technique ou leurs conseils.

J'ai en outre bénéficié d'un espace de travail solidaire et stimulant. Je tiens donc à remercier Pierre-Emmanuel OMS, Dina OKHRIMCHUK et Hugo RENARD, avec qui j'ai partagé le bureau des stagiaires et des doctorants dans la bonne humeur. Merci pour vos remarques et pour votre soutien moral.

Je souhaite exprimer ma gratitude envers toutes les personnes, qui pour différentes raisons, ont été liées à ma thèse. Il s'agit notamment :

Des membres de mon comité de suivi de thèse. Je leur adresse mes remerciements pour le temps conséquent qu'ils m'ont accordé ainsi que pour les différentes idées qu'ils ont pu soumettre.

De l'équipe du Laboratoire de Chimie de l'Environnement (LCE) et particulièrement, Madame Stéphanie ROSSIGNOL et Monsieur Pascal WONG-WAH-CHUNG, pour m'avoir donné l'opportunité de découvrir le monde de la recherche lors de mon stage de Master au sein du groupe Micropolluants Organiques (MPO), grâce à qui j'en fais à présent partie.

Pour terminer, je souhaiterais remercier tous mes amis et particulièrement Madiou Diallo et Gabriel Fatia LENO, pour leur encouragement et leur soutien.

Je dédicace ce manuscrit à ma famille, pour sa confiance, son encouragement quotidien et son amour inconditionnel et indéfectible.

« La connaissance s'acquiert par l'expérience, tout le reste n'est que de l'information. »

Albert Einstein

RESUME

En situation de rejets accidentels sur des centrales nucléaires de production d'électricité, des radionucléides dont des isotopes radioactifs de l'iode et principalement de l'iode-131 sont susceptibles d'être émis dans l'environnement. Les circonstances des rejets ont généralement été telles que l'iode est rejeté sous forme gazeuse (I_2 , ICH_3 , etc.) et particulaire. Suite à son émission dans l'atmosphère, l'iode finit par se déposer sur les surfaces soit par temps humide ou par temps sec. L' ^{131}I peut ensuite s'accumuler dans la glande thyroïde, ce qui peut provoquer des pathologies chez l'Homme via l'ingestion. Les produits issus de l'écosystème prairial étant une composante de la chaîne alimentaire de l'Homme via l'élevage, pour comprendre, évaluer et prévoir l'impact de l'iode dans ce milieu, il est important d'étudier son dépôt par temps humide et par temps sec. L'absence de données robustes sur les vitesses de dépôt sec (V_d) de l'iode sous forme élémentaire gazeux (I_2) en fonction des paramètres météorologiques (vitesse de frottement du vent, flux de chaleur sensible, etc.) et des propriétés de surface de l'herbe (résistance stomatique, indice de surface foliaire, etc.) entraîne des incertitudes sur les résultats des modèles allant jusqu'à trois ordres de grandeur. Dans cette thèse, une méthodologie originale de détermination de la vitesse de dépôt sec d' I_2 a été développée. Elle est basée sur des émissions à court terme (30 minutes à 1 heure) d'iode stable (^{127}I) sous forme I_2 dans l'atmosphère en l'absence de précipitations au milieu d'une prairie. La vitesse de dépôt sec d' I_2 a été déterminée en rapportant la concentration d' I_2 mesurée dans l'herbe placée à 3 m de l'émissaire à la concentration d' I_2 dans l'air mesurée à 26 cm au-dessus de l'herbe. L'influence des paramètres météorologiques et des propriétés du couvert a été étudiée. Ensuite, le modèle de dépôt sec des gaz reposant sur l'analogie électrique dans laquelle le transport d'un gaz dans l'atmosphère vers la surface est régi par trois résistances (la résistance aérodynamique, la résistance quasi-laminaire et la résistance de surface) a été adapté à l'iode. Pour cela, les paramètres d'entrée du modèle ont été déterminés en tenant compte des propriétés physiques et chimiques de l'iode et des propriétés de surface de l'herbe. Enfin, le modèle a été validé dans des conditions météorologiques différentes par des mesures à long terme (30 jours) des transferts par temps sec dans l'herbe d' ^{129}I sous forme I_2 émis par l'usine Orano La Hague. Cette validation sur des

périodes longues a permis de montrer, qu'une quantité significative d'I₂ déposé est éliminée au cours de la période d'exposition de l'herbe au dépôt sec (7 jours < demi-vie d'élimination biologique d'¹²⁹I < 9 jours).

Mots-clés : Accident nucléaire, Émissions, Herbe, Iode, Modèle, Vitesse de dépôt

ABSTRACT

In the event of accidental releases from nuclear power plants, radionuclides including iodine radioactive isotopes and mainly iodine-131 are susceptible to be emitted in environment. The circumstances of releases have generally been such that iodine is released in gaseous (I_2 , ICH_3 , etc.) and particulate form. Following its emission into the atmosphere, iodine is eventually deposited on surfaces by wet or dry deposition. Then, ^{131}I can accumulate in the thyroid gland, which can cause diseases in humans via ingestion. The products from grassland ecosystem being a component of the human food chain via breeding, to assess the impact of iodine in this environment, it's necessary to study its wet and dry deposition. The absence of robust data on the dry deposition velocities (V_d) of iodine in gaseous elemental form (I_2) as a function of meteorological parameters (wind friction speed, sensible heat flux, etc.) and surface properties (stomatal resistance, leaf area index, etc.) causes uncertainties on models up to three orders of magnitude. In this thesis, an original methodology for I_2 dry deposition velocity determining was developed. It's based on short-term (30 minutes to 1 hour) emissions of stable iodine (^{127}I) as I_2 form in atmosphere in the absence of precipitation in the middle of a grassland. The dry deposition velocity of I_2 was determined by dividing the concentration of I_2 measured in grass placed at 3 m from emission source to the concentration of I_2 in the air measured at 26 cm above grass. The influence of meteorological parameters and surface properties on V_d have been studied. Then, the dry deposition model of gases based on electrical analogy in which the transport of a gas in the atmosphere towards the surface is governed by three resistances (the aerodynamic resistance, the quasi-laminar resistance and the surface resistance) has been adapted to iodine. For this, the input parameters of model were determined into taking account the physical and chemical properties of iodine and grass surface properties. Finally, the model was validated under different meteorological conditions by long-term (30 days) measurements of the dry transfers into grass of ^{129}I as I_2 form emitted by Orano La Hague plant. This validation over long periods made it possible to show, that a significant amount of deposited I_2 is eliminated during the period of grass exposition to dry deposit ($7 \text{ days} < \text{biological elimination half-life of } ^{129}I < 9 \text{ days}$).

Keywords : Nuclear accident, Emissions, Grass, Iodine, Model, Deposition velocity

TABLE DES MATIERES

REMERCIEMENTS	1
RESUME	5
ABSTRACT	7
LISTE DES FIGURES	13
LISTE DES TABLEAUX.....	23
INTRODUCTION	27
CHAPITRE I : REVUE DES CONNAISSANCES	31
I.1 Introduction.....	31
I.2 Sources d'iode stable dans l'environnement.....	31
I.2.1 Milieu marin.....	33
I.2.2 Atmosphère	36
I.2.3 Eaux de surface et eaux souterraines	41
I.2.4 Sol	42
I.2.5 Végétation.....	44
I.3 Sources d'iode radioactif dans l'environnement	48
I.3.1 Production naturelle.....	50
I.3.2 Production médicale.....	50
I.3.3 Essais d'armes nucléaires dans l'atmosphère	50
I.3.4 Rejets chroniques des installations nucléaires.....	51
I.3.5 Rejets accidentels des installations nucléaires	51
I.4 Turbulence atmosphérique	54
I.4.1 Définition de la turbulence	54
I.4.2 Couche limite et stabilité atmosphérique	56
I.5 Vitesse de dépôt sec	64

1.5.1	Mécanismes de dépôt par temps sec	65
1.5.2	Méthodes de mesure du dépôt sec.....	66
1.5.3	Vitesses de dépôt sec de l'iode gazeux	70
1.6	Conclusion.....	81
CHAPITRE II : DETERMINATION EXPERIMENTALE DE LA VITESSE DE DEPOT SEC DE L'IODE ELEMENTAIRE GAZEUX		83
II.1	Introduction	83
II.2	Mise au point de la méthodologie	85
II.2.1	Calcul des vitesses de dépôt sec de l'iode élémentaire gazeux	85
II.2.2	Emission d'iode stable (¹²⁷ I) sous forme I ₂ dans l'atmosphère	86
II.2.3	Prélèvement de l'iode dans l'environnement	97
II.2.4	Traitement des échantillons	98
II.2.5	Mesure colorimétrique de l'iode	105
II.3	Mesures des variables environnementales	105
II.3.1	Analyse à l'échelle du couvert végétal, mesure de l'indice de surface foliaire (LAI)	105
II.3.2	Mesures des variables météorologiques	107
II.4	Conclusion	110
CHAPITRE III : MODELE DE DEPOT SEC D'IODE		111
III.1	Introduction	111
III.2	Description.....	111
III.3	Détermination des variables d'entrées du modèle	114
III.3.1	Résistance aérodynamique	114
III.3.2	Résistance quasi-laminaire	115
III.3.3	Résistance de surface	116
III.4	Conclusion	123

CHAPITRE IV : RESULTATS DES CAMPAGNES MIOSEC 1, 2 ET 3.....	125
IV.1 Introduction	125
IV.2 Résultats des mesures.....	128
IV.2.1 Campagne MIOSEC 1.....	128
IV.2.2 Campagne MIOSEC 2.....	133
IV.2.3 Campagne MIOSEC 3.....	143
IV.3 Influence des paramètres météorologiques sur les vitesses de dépôt .	152
IV.3.1 Paramètres météorologiques (u^* , H , SR , T_s et HR) influençant la vitesse de dépôt sec d' I_2	152
IV.3.2 Paramètres météorologiques (H , SR , T_s et H) influençant le rapport entre la vitesse de dépôt sec d' I_2 et la vitesse de frottement du vent.....	156
IV.4 Confrontation des résultats du modèle avec les résultats des mesures	161
IV.4.1 Paramètres d'entrée du modèle	161
IV.4.2 Résultats du modèle.....	164
IV.4.3 Comparaison modèle-mesure	167
IV.4.4 Utilisation du modèle de dépôt sec d' I_2 pour étudier l'influence des variables météorologiques sur V_d	169
IV.5 Confrontation des résultats obtenus lors des campagnes MIOSEC 2 et 3 avec les données de la littérature	177
IV.6 Conclusion	179
CHAPITRE V : VALIDATION DU MODELE DE DEPOT SEC D'IODE A LA PTILH.....	181
V.1 Méthodologie générale.....	183
V.1.1 Description du site expérimental de mesure	183
V.1.2 Mesure des concentrations d' ^{129}I dans l'air et dans l'herbe	184
V.1.3 Reconstitution des concentrations d' ^{129}I dans l'air à partir des données du ^{85}Kr	198
V.1.4 Acquisition des données environnementales	198

V.1.5	Utilisation des modèles de dépôt sec d'iode	201
V.2	Résultats	208
V.2.1	Résultats des mesures réalisées à la PTILH.....	208
V.2.2	Résultats des modèles	222
V.2.3	Confrontation des résultats du modèle avec les mesures	225
V.3	Conclusion	235
CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES		239
BIBLIOGRAPHIE		247
ANNEXES.....		269
ANNEXE I. Influence des paramètres météorologiques sur les résistances de surface calculées à l'aide du modèle durant les campagnes MIOSEC 2 et 3.....		269
ANNEXE II. Activité d' ¹²⁹ I gazeux et particulaire dans l'air et sur l'herbe au niveau de la plateforme technique IRSN La Hague		272
ANNEXE III. Rapports ¹²⁹ I Gazeux/ ¹²⁹ I Total recalculés au niveau de la PTILH en fonction de l'activité totale d' ¹²⁹ I		277

LISTE DES FIGURES

Figure I.1 : Cycle biogéochimique de l'iode dans l'environnement (Fuge and Johnson, 2015).	32
Figure I.2 : Réactivité des espèces iodées dans l'atmosphère marine (Saiz-Lopez et al., 2012).	40
Figure I.3 : Représentation des différentes échelles de vent à 100 m d'altitudes selon Van der Hoven (1957), cité par Turbelin (2000).	56
Figure I.4 : Structure de la CLA d'après Stull (1988).	59
Figure I.5 : Longueur de rugosité en fonction de la Longueur de Monin-Obukhov pour différentes classes de Pasquill (Myrup and Ranzieri (1976), cité par Seinfeld and Pandis (1998)).	62
Figure I.6 : Comportement d'un polluant radioactif dans l'atmosphère (Maro, 2013).	64
Figure I.7 : Résumé des vitesses de dépôt sec d'I ₂ trouvées sur plusieurs types de surface de dépôt (d'après Sehmel (1980)).	76
Figure I.8 : (a) Chambre environnementale (ou chambre climatique) avec de l'herbe, (b) herbe exposée à une concentration d' ¹²⁷ I sous forme I ₂ (d'après Karunakara et al. (2018)).	79
Figure II.1 : Représentation schématique de l'émission d'iode stable dans l'atmosphère à l'aide du dispositif expérimental d'émission d'I ₂ . 1 : flacon générateur d'iode contenant un mélange d'acide et d'oxydant (a), et équipé d'un filtre à la sortie du générateur (b) ; 2 : voie d'injection d'iodure goutte à goutte ; 3 : voie d'injection d'air à l'aide d'une bouteille d'air comprimé ; 4 : échantillon d'herbe ; 5 : flacon de piégeage d'I ₂ équipé d'un filtre à l'entrée (d) et contenant 100 ml de NaOH (0,5 N) (c) ; 6 : pompe d'aspiration d'air à 2 L.min ⁻¹	83
Figure II.2 : Générateur d'iode (Model 500 Dynacalibrator).	87
Figure II.3 : Validation du protocole d'émission d'iode à l'aide du générateur d'iode (Model 500 Dynacalibrator).	88
Figure II.4 : Émission d'iode dans l'atmosphère à l'aide du générateur d'iode (Model 500 Dynacalibrator).	90
Figure II.5 : Diagramme potentiel E-pH pour l'iode dans l'eau à 25°C (Van Muylder and Pourbaix (1966), cité par Fuge and Johnson (2015)).	92

Figure II.6 : Dispositif expérimental d'émission d'iode. a : flacon contenant l'acide (H_2SO_4) et l'oxydant (H_2O_2) ; b : flacon de stockage d'iodure sous forme de KI ; c : pipette de remplissage de 20 ml de KI ; d : unité de réglage du débit d'injection de KI ; e : chronomètre ; f : voie injection d'iode dans le flacon ; g : voie d'injection d'air dans le flacon ; h : voie de sortie d'iode sous forme I_2	93
Figure II.7 : Émission d'iode dans l'atmosphère à l'aide du dispositif expérimental d'émission d'iode.	95
Figure II.8 : Disposition des échantillons : au cours de la campagne MIOSEC 1 (image d'en haut) et au cours des campagnes MIOSEC 2 et 3 (image d'en bas). (a) : flacon contenant 100 ml de NaOH (0,5 N) ; (b) : filtre placé au-dessus des éprouvettes d'herbe et à l'entrée du flacon ; (c) : éprouvettes d'herbe.	96
Figure II.9 : Flacon de conditionnement des échantillons d'herbe.....	98
Figure II.10 : Echantillons d'herbe après calcination au four à 400°C.....	100
Figure II.11 : Dispositif de filtration utilisé.	100
Figure II.12 : Représentation schématique du protocole de traitement physique et chimique des échantillons d'herbe.	102
Figure II.13 : Ajout d'iode sous forme de KI à 20 g d'herbe placée dans un creuset.	103
Figure II.14 : Dispositif d'extraction liquide-liquide utilisé pour la séparation de l'iode de l'herbe. a est la phase contenant le triméthyl benzène et b est la phase aqueuse. A gauche : extraction de l'iode du témoin d'herbe (bruit de fond). A droite : extraction de l'iode ajouté de herbe avec une couleur rouge (a), correspondant au piégeage de l'iode.....	104
Figure II.15 : LAI-mètre pour la mesure de la LAI (Li-Cor, LAI-2000).....	106
Figure II.16 : Station météorologique (WatchDog 2000 series) implantée à 1,5 m au-dessus du sol au niveau du site de l'INRAE à Lusignan.	107
Figure II.17 : Anémomètre ultrasonique (Young, Model 81000) monté sur le site de l'INRAE à Lusignan. A gauche : disposition de l'anémomètre dans le canal lors de la campagne expérimentale de mise au point (à 0,1 m au-dessus du sol) (campagne MIOSEC 1). A droite : disposition de l'anémomètre dans l'environnement (0,5 m au-dessus du sol) (campagne MIOSEC 2 et 3).	109
Figure III.1 : Schéma d'analogie des résistances au dépôt sec d'un gaz (Zhang et al., 2003b).	113

Figure IV.1 : Localisation du site expérimental de l'INRAE, à Lusignan (France).....	126
Figure IV.2 : Émission d'iode à l'intérieur de la canalisation lors de la campagne MIOSEC 1 (image à gauche). (a) : disposition de l'orifice de sortie du générateur d'iode (Dynacalibrator, Model 500) ; (b) : disposition de l'anémomètre ultrasonique à l'intérieur de la canalisation. Aggrandissement de l'image (b) montrant l'anémomètre ultrasonique (image à droite).	129
Figure IV.3 : Disposition de la station météorologique montée à 1,5 m au-dessus du sol lors de la campagne MIOSEC 1.	129
Figure IV.4 : Dispositions des échantillons à l'intérieur de la canalisation lors de la campagne MIOSEC 1. (a) : prélèvement d'iode gazeux dans l'air (flacons) ; (b) : prélèvement d'iode particulaire (filtres) ; (c) : prélèvement d'iode déposé (éprouvettes d'herbe).	130
Figure IV.5 : Evolution au cours du temps des vitesses de dépôt d'I ₂ sur l'herbe (rectangles verts) durant la campagne MIOSEC 1. Les barres noires sur les rectangles correspondent au coefficient de variation en pourcentage (RSD = 6,44 %) sur le rendement d'extraction d'I ₂	132
Figure IV.6 : Disposition du générateur expérimental d'émission d'iode et des anémomètres ultrasoniques lors de la campagne MIOSEC 2. L'image à gauche montre la disposition de l'orifice de sortie du générateur d'iode (a) vis-à-vis des échantillons de prélèvement et celle à droite montre la disposition des anémomètres ultrasoniques montés à 1,5 m (b) et à 0,5 m (c) de hauteur par rapport au sol.....	133
Figure IV.7 : Disposition des échantillons lors de la campagne MIOSEC 2. Disposition des préleveurs d'iode gazeux dans l'air (a) et particulaire (b) et des collecteurs (éprouvettes d'herbe) d'I ₂ déposé.	134
Figure IV.8 : Evolution des principaux paramètres météorologiques durant la campagne MIOSEC 2 (anémomètre ultrasonique placé à 0,5 m au-dessus du sol) : température et flux de chaleur sensible.	135
Figure IV.9 : Evolution des principaux paramètres météorologiques durant la campagne MIOSEC 2 (anémomètre ultrasonique placé à 0,5 m au-dessus du sol) : stabilité atmosphérique, direction, vitesse et vitesse de frottement du vent.	136

Figure IV.10 : Evolution de la stabilité atmosphérique durant la campagne MIOSEC 2. Les valeurs de $1/L$ au voisinage de 0 (pointillés rouges) correspondent à celles des conditions neutres ($-0,02 < 1/L < 0,02$). Elles sont encadrées par des pointillés verts.	137
Figure IV.11 : Evolution des principaux paramètres météorologiques durant la campagne MIOSEC 2 (station météorologique placée à 1,5 m au-dessus du sol) : rayonnement solaire global, humidité relative et point de rosée.	139
Figure IV.12 : Evolution au cours du temps des vitesses de dépôt sec d' I_2 sur l'herbe (cercles verts) durant la campagne MIOSEC 2. Les barres noires sur les cercles correspondent au coefficient de variation en pourcentage ($RSD = 6,44 \%$) sur le rendement d'extraction d' I_2	143
Figure IV.13 : Evolution des principaux paramètres météorologiques durant la campagne MIOSEC 3 (anémomètre ultrasonique placé à 0,5 m au-dessus du sol) : température et flux de chaleur sensible.	144
Figure IV.14 : Evolution des principaux paramètres météorologiques durant la campagne MIOSEC 3 (anémomètre ultrasonique placé à 0,5 m au-dessus du sol) : stabilité atmosphérique, direction, vitesse et vitesse de frottement du vent.	145
Figure IV.15 : Evolution de la stabilité atmosphérique durant la campagne MIOSEC 3. Les valeurs de $1/L$ au voisinage de 0 (pointillés rouges) correspondent à celles des conditions neutres ($-0,02 < 1/L < 0,02$). Elles sont encadrées par des pointillés verts.	147
Figure IV.16 : Evolution des principaux paramètres météorologiques durant la campagne MIOSEC 3 (station météorologique placée à 1,5 m au-dessus du sol) : rayonnement solaire global, humidité relative et point de rosée.	148
Figure IV.17 : Evolution au cours du temps de la vitesse de dépôt sec d' I_2 sur l'herbe (triangles verts) durant la campagne MIOSEC 3. Les barres noires sur les triangles correspondent au coefficient de variation en pourcentage ($RSD = 6,44 \%$) sur le rendement d'extraction d' I_2	151
Figure IV.18 : Évolution journalière de la vitesse de dépôt sec d' I_2 et de la vitesse de frottement du vent obtenues durant la campagne MIOSEC 2.....	152
Figure IV.19 : Évolution journalière de la vitesse de dépôt sec d' I_2 et de la vitesse de frottement du vent obtenues durant la campagne MIOSEC 3.....	153
Figure IV.20 : Influence de u^* sur les V_d obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3.	153

Figure IV.21 : Influence de H sur les V_d obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3.	154
Figure IV.22 : Influence de SR sur les V_d obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3.	155
Figure IV.23 : Influence de T_s sur les V_d obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3.	155
Figure IV.24 : Influence de HR sur les V_d obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3.	156
Figure IV.25 : Rapports V_d/u^* mesurés lors des campagnes MIOSEC 2 et 3. La ligne bleue sépare les données obtenues lors de la campagne MIOSEC 2 (en-dessous de la ligne bleue) de celles de la campagne MIOSEC 3 (au-dessus de la ligne bleue).	157
Figure IV.26 : Influence du flux de chaleur sensible sur le rapport V_d/u^*	158
Figure IV.27 : Influence du rayonnement solaire global sur le rapport V_d/u^*	158
Figure IV.28 : Influence de la température sur le rapport V_d/u^*	159
Figure IV.29 : Influence de l'humidité relative sur le rapport V_d/u^*	160
Figure IV.30 : Evolution au cours du temps de la vitesse de dépôt sec d'I ₂ calculée à l'aide du modèle lors de la campagne MIOSEC 2.	165
Figure IV.31 : Evolution au cours du temps de la vitesse de dépôt sec d'I ₂ calculée à l'aide du modèle lors de la campagne MIOSEC 3.	166
Figure IV.32 : Confrontation des résultats du modèle avec les résultats des mesures obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3. Les barres sur les cercles noirs correspondent au coefficient de variation en pourcentage sur le rendement d'extraction d'I ₂ (RSD = 6,44 %). La droite rouge représente la corrélation idéale entre le modèle et la mesure.	167
Figure IV.33 : Confrontation des résultats du modèle avec les résultats des mesures après ajustement de R_{cutd0} . Les barres sur les cercles correspondent au coefficient de variation sur le rendement d'extraction d'I ₂ en pourcentage. La droite rouge représente la corrélation idéale entre le modèle et la mesure.	168
Figure IV.34 : Résistances R_a et R_b calculées à l'aide du modèle et R_c mesurées à partir des V_d issues de la campagne MIOSEC 2.	171
Figure IV.35 : Résistances R_a et R_b calculées à l'aide du modèle et R_c mesurées à partir des V_d issues de la campagne MIOSEC 3.	171
Figure IV.36 : Influence de la vitesse de frottement sur R_c	172

Figure IV.37 : Influence de l'humidité relative sur R_c	173
Figure IV.38 : Influence de la température sur R_c	174
Figure IV.39 : Influence de l'ensoleillement global sur R_c	174
Figure IV.40 : Influence du flux de chaleur sensible sur R_c	175
Figure V.1 : Présentation de l'émissaire de rejet (usine Orano La Hague) et du site expérimental de mesure d' ^{129}I (PTILH).	183
Figure V.2 : Dispositif de prélèvement d'air à haut débit ($60 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$). A gauche : dispositif de prélèvement d'air sur filtres. A droite : agrandissement de la zone de contenance des filtres pour la collecte des aérosols atmosphériques.	185
Figure V.3 : Conditionnement du filtre dans une géométrie de comptage b17.	185
Figure V.4 : A gauche : dispositif de prélèvement d'air à haut débit ($60 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$). A droite : agrandissement de la colonne contenant le charbon actif imprégné au TEDA pour la collecte d' ^{129}I gazeux.	188
Figure V.5 : Représentation schématique de la colonne de piégeage d' ^{129}I gazeux : 1, 2 et 3 correspondent aux trois niveaux de charbon actif imprégné de TEDA.	189
Figure V.6 : Conditionnement du charbon actif dopé de TEDA dans une géométrie de comptage b60.	190
Figure V.7 : Cartouche placée dans l'AS 3000 pour le prélèvement d' ^{129}I gazeux.	192
Figure V.8 : Présentation des lysimètres à toit découvrant par temps sec avec un système de fermeture automatique en cas de pluie, placés à la plateforme technique IRSN La Hague.	193
Figure V.9 : Herbe broyée après séchage à 40°C et son conditionnement. A gauche : herbe broyée après séchage à 40°C . A droite : conditionnement de l'herbe broyée dans une géométrie de comptage b60.	194
Figure V.10 : Exemple de courbe d'étalonnage en rendement pour la géométrie 60 ml en fonction de l'énergie [KeV] du spectromètre gamma utilisée au LRC.	196
Figure V.11 : Principales composantes d'un spectre (nombre de coups en fonction de l'énergie) d' ^{129}I dans un échantillon de charbon actif (géométrie b60).	197
Figure V.12 : Vitesse de dépôt sec normalisée à la vitesse de frottement du vent en fonction du diamètre des particules, pour les conditions atmosphériques neutres et stables (Damay, 2010a).	202

Figure V.13 : Formation de l'aérosol atmosphérique (Whitby and Sverdrup (1980), cité dans Renoux and Boulaud (1998)).	206
Figure V.14 : Evolution au cours du temps de la concentration d'O ₃ à la plateforme technique IRSN La Hague.	208
Figure V.15 : Evolution au cours du temps de la concentration des gaz (NO _x , NO et NO ₂) dans l'air à la plateforme technique IRSN La Hague.	209
Figure V.16 : Evolution au cours du temps de la concentration de SO ₂ à la plateforme technique IRSN La Hague.	210
Figure V.17 : Rose de vents enregistrés au niveau de la plateforme technique IRSN La Hague, de octobre 2018 à décembre 2019. La vitesse du vent est représentée par un code de couleur : bleu pour les vitesses de vent inférieures à 2 m.s ⁻¹ , noir pour les vitesses de vent comprises entre 2 et 5 m.s ⁻¹ , vert pour les vitesses de vent comprises entre 5 et 9 m.s ⁻¹ , rouge pour les vitesses de vent supérieures à 9 m.s ⁻¹	211
Figure V.18 : Fréquence (%) des directions de vent (°) (courbe rouge) reportée sur une rose de vent.....	212
Figure V.19 : Evolution des principaux paramètres météorologiques mesurés toutes les 30 minutes (anémomètre ultrasonique placé à la PTILH à 6 m au-dessus du sol) : température et flux de chaleur sensible.	212
Figure V.20 : Evolution des principaux paramètres météorologiques mesurés toutes les 30 minutes (anémomètre ultrasonique placé à la PTILH à 6 m au-dessus du sol) : stabilité atmosphérique, direction, vitesse et vitesse de frottement du vent.	213
Figure V.21 : Evolution des principaux paramètres météorologiques mesurés toutes les 30 minutes (station météorologique placé à la PTILH à 1,5 m au-dessus du sol) : rayonnement solaire global, humidité relative et point de rosée.	214
Figure V.22 : Evolution des concentrations d' ¹²⁹ I gazeux mesuré tous les 15 jours à la plateforme technique IRSN La Hague (rectangles bleus). Les barres noires sur les rectangles correspondent aux incertitudes de mesures.	215
Figure V.23 : Evolution des concentrations d' ¹²⁹ I particulaire mesuré tous les 15 jours à la plateforme technique IRSN La Hague (rectangles rouges). Les barres noires sur les rectangles correspondent aux incertitudes de mesures.	216

Figure V.24 : Evolution des rapports ^{129}I aérosol / ^{129}I gaz (rectangles noirs) à la plateforme technique IRSN La Hague. Les barres noires sur les rectangles correspondent aux incertitudes de mesures. 216

Figure V.25 : Evolution de l'activité du ^{85}Kr à la plateforme technique IRSN La Hague (losanges gris). 217

Figure V.26 : Evolution de l'activité d' ^{129}I gazeux en fonction du ^{85}Kr à la plateforme technique IRSN La Hague (losanges bleus). Les barres noires sur les losanges correspondent aux incertitudes de mesures. 218

Figure V.27 : Evolution de l'activité d' ^{129}I aérosol en fonction du ^{85}Kr à la plateforme technique IRSN La Hague (losanges rouges). Les barres noires sur les losanges correspondent aux incertitudes de mesures. 218

Figure V.28 : Evolution de l'activité de ^{85}Kr sur des pas de temps de 30 minutes à la plateforme technique IRSN La Hague (losanges gris). 219

Figure V.29 : Evolution de l'activité d' ^{129}I gaz sur des pas de temps de 30 minutes à la plateforme technique IRSN La Hague (rectangles bleus). 220

Figure V.30 : Evolution de l'activité d' ^{129}I aérosol sur des pas de temps de 30 minutes à la plateforme technique IRSN La Hague (rectangles rouges). 220

Figure V.31 : Evolution des concentrations d' ^{129}I mesuré sur l'herbe à la plateforme technique IRSN La Hague (rectangles verts). Les barres noires sur les rectangles correspondent aux incertitudes de mesures. 221

Figure V.32 : Evolution au cours du temps des vitesses de dépôt sec d' ^{129}I gazeux calculée sur des pas de temps de 30 minutes. 222

Figure V.33 : Evolution au cours du temps des vitesses de dépôt d' ^{129}I aérosol calculées sur des pas de temps de 30 minutes. 223

Figure V.34 : Evolution au cours du temps des concentrations totales d' ^{129}I déposé sur l'herbe, calculées à partir du modèle. 224

Figure V.35 : Evolution au cours du temps de la concentration d' ^{129}I calculée (rectangles bleus) et mesurée (rectangles verts) dans l'herbe. Les barres noires sur les rectangles verts correspondent aux incertitudes de mesures. 225

Figure V.36 : Confrontation des concentrations d' ^{129}I calculées avec les modèles avec les valeurs mesurées dans l'herbe au niveau de la plateforme technique IRSN La Hague.

Les barres noires sur les rectangles correspondent aux incertitudes de mesures. La droite rouge représente la corrélation idéale entre le modèle et la mesure. 226

Figure V.37 : Vitesse de dépôt sec d' ^{129}I (gazeux et particulaires) mesurées sur l'herbe des lysimètres au niveau de la plateforme technique IRSN La Hague. Les barres noires sur les cercles correspondent aux incertitudes de mesures. 227

Figure V.38 : Evolution au cours du temps de la concentration d' ^{129}I calculée (rectangles bleus) et mesurée (rectangles verts). Les barres noires sur les rectangles verts correspondent aux incertitudes de mesures. 232

Figure V.39 : Confrontation des concentrations d' ^{129}I recalculées suite à la volatilisation d'une quantité significative d' ^{129}I gazeux avec les valeurs mesurées dans l'herbe au niveau de la plateforme technique IRSN La Hague. Les barres noires sur les rectangles correspondent aux incertitudes de mesures. La droite rouge représente la corrélation idéale entre le modèle et la mesure. 233

Figure V.40 : Evolution au cours du temps des vitesses de dépôt sec de l' ^{129}I gazeux calculées sur des pas de temps de 30 jours (cercles bleus). Les barres sur les cercles correspondent aux incertitudes de mesures de l' ^{129}I gazeux dans l'air. 234

Figure V.41 : Evolution au cours du temps des vitesses de dépôt sec de l' ^{129}I particulaire calculées sur des pas de temps de 30 jours (cercles rouges). Les barres sur les cercles correspondent aux incertitudes de mesure de l' ^{129}I particulaire dans l'air. 234

LISTE DES TABLEAUX

Tableau I.1 : Concentrations d'iode dans les eaux de mer (d'après Fuge and Johnson (1986)).	34
Tableau I.2 : Concentrations d'iode dans l'atmosphère (d'après Fuge and Johnson (1986)).	37
Tableau I.3 : Teneur en iode dans le sol (d'après Fuge and Johnson (1986)).	43
Tableau I.4 : Concentrations naturelles en iode dans les échantillons végétaux (d'après Fuge and Johnson (2015), cité par Roulier (2018)).	44
Tableau I.5 : Propriétés radiochimiques de l' ¹²⁹ I et de l' ¹³¹ I (d'après Kaplan et al. (2014)). ^a Le rendement fait référence à la fraction d'un produit de fission produit par fission.	49
Tableau I.6 : Formes physico-chimiques de l' ¹³¹ I mesurées dans l'environnement suite aux accidents nucléaires de Tchernobyl et de Fukushima. Données mesurées (police normal) ou données estimées (<i>en italique</i>) (d'après Mourlon (2014)).	52
Tableau I.7 : Vitesses de dépôt sec de l'iode sous forme gazeuse.	71
Tableau I.8 : Vitesses de dépôt sec d'I ₂ sur divers types de surfaces (d'après Müller and Pröhl (1993), cité par Baklanov and Sørensen (2001)).	78
Tableau II.1 : Comparaison des concentrations d'iode mesurées à la sortie du générateur en fonction du débit du gaz porteur.	89
Tableau II.2 : Comparaison des concentrations d'iode mesurées à la sortie du dispositif expérimental d'émission d'I ₂ .	94
Tableau II.3 : Programme de température du four pour la calcination de l'herbe à 400 °C.	99
Tableau II.4 : Précision de mesure de la station météorologique (Watchdog series 2000) utilisée au niveau du site de l'INRAE à Lusignan.	108
Tableau II.5 : Précision de mesure de l'anémomètre ultrasonique (Young, Model 81000) utilisée au niveau du site de l'INRAE à Lusignan.	108
Tableau III.1 : Résistance stomatique minimale ^a (r _i) pour le calcul de la résistance stomatique.	119
Tableau IV.1 : Récapitulatif de la description des objectifs visés durant les trois campagnes de mesure.	127

Tableau IV.2 : Vitesse de dépôt sec d'iode sur l'herbe naturelle durant la campagne MIOSEC 1.....	131
Tableau IV.3 : Principaux paramètres acquis à l'aide de l'anémomètre ultrasonique aux moments des émissions d'iode durant la campagne MIOSEC 2.....	140
Tableau IV.4 : Principaux paramètres acquis à l'aide de la station météorologique aux moments des émissions d'iode durant la campagne MIOSEC 2.....	141
Tableau IV.5 : Vitesses de dépôt mesurée sur l'herbe au cours de la campagne MIOSEC 2.	142
Tableau IV.6 : Principaux paramètres acquis à l'aide de l'anémomètre ultrasonique aux moments des émissions d'iode durant la campagne MIOSEC 3.....	149
Tableau IV.7 : Principaux paramètres acquis à l'aide de la station météorologique aux moments des émissions d'iode durant la campagne MIOSEC 3.....	149
Tableau IV.8 : Vitesse de dépôt sec de l'iode sur l'herbe durant MIOSEC 3.....	150
Tableau IV.9 : Résistance R_{cutd0} ($s.m^{-1}$) calculée pour I_2 . N est le nombre de mesures pris en compte.....	161
Tableau IV.10 : Récapitulatif des différents paramètres et variables utilisés pour calculer la vitesse de dépôt d' I_2	162
Tableau IV.11 : Vitesses de dépôt modélisées à l'aide des données météorologiques acquises durant la campagne MIOSEC 2 ($W_{st} = 0$, $R_m = 0$).	164
Tableau IV.12 : Vitesses de dépôt modélisées à l'aide des données météorologiques acquises durant la campagne MIOSEC 3 ($W_{st} = 0$, $R_m = 0$).	165
Tableau IV.13 : Résistances de surface obtenues à partir des vitesses de dépôt mesurées durant les campagnes MIOSEC 2 et 3.....	170
Tableau IV.14 : Récapitulatif des V_d obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3. ...	177
Tableau V.1 : Activité de l' ^{129}I mesuré au LRC suite à la reprise d'un filtre ayant prélevé sous le panache de l'usine Orano La Hague : détermination du taux de volatilisation de l' ^{129}I particulaire.	187
Tableau V.2 : Caractéristiques des analyseurs de la pollution environnementale. ...	200
Tableau V.3 : Valeurs de A et de B en fonction du diamètre aérodynamique des particules (D_p) pour la paramétrisation de V_d/u^* (Damay, 2010a).	203
Tableau V.4 : Seuils de coupures des différents étages d'impaction (impacteur Tisch, series 230).....	204

Tableau V.5 : Concentration d' ¹²⁹ I particulaire (μBq.m ⁻³) en fonction de la taille des aérosols.....	205
Tableau V.6 : Demi-biologique de l'iode (¹³¹ I et ¹²⁹ I) déterminée à partir du lait et de la végétation.....	230

INTRODUCTION

En situation de rejets accidentels sur des installations nucléaires, des radionucléides dont des isotopes radioactifs d'iode et principalement de l'iode 131 sont susceptibles d'être émis dans l'environnement. Les circonstances des rejets ont généralement été telles que l'¹³¹I est rejeté sous forme gazeuse (I₂, ICH₃, ...) et particulaire avec une prédominance de la forme gazeuse (Hötzl et al., 1987 ; Masson et al., 2011).

Dans l'atmosphère, l'iode volatilisé sous forme élémentaire I₂ et sous forme d'organoiodés (CH₃I, CH₂I₂, ...) peut réagir avec les autres composés atmosphériques tels que l'ozone, les composés organiques volatils, les composés azotés et soufrés par des processus de photodissociation pour former des oxydes, qui sont des précurseurs des aérosols d'iode et la condensation des nuages. De ce fait, l'iode est présent dans l'atmosphère sous plusieurs formes physico-chimiques : particulaire (associés aux particules d'aérosols atmosphériques) et gazeuses. Les formes gazeuses sont inorganiques I₂, HI, HOI, et organiques : CH₃I, CH₂I₂ (Hou et al., 2009).

L'iode présent dans l'atmosphère est ensuite éliminé vers les surfaces, y compris l'eau, le sol et la végétation par deux voies. Soit par temps humide, l'iode est déposé suite à sa captation au sein d'un nuage (ou « rainout ») et lors des précipitations par rabattement de l'iode par les gouttes de pluie sous le nuage (ou « washout »). Soit par temps sec, le dépôt de l'iode proche de la surface se fait selon plusieurs mécanismes physiques en l'absence des précipitations.

L'¹³¹I peut ensuite s'accumuler dans la glande thyroïde via l'ingestion, ce qui peut provoquer des pathologies chez l'Homme. Les produits issus de l'écosystème prairial constituent une source de contamination pour l'Homme via l'élevage. Pour comprendre, évaluer et prévoir l'impact de l'iode dans ce milieu, il est nécessaire d'étudier son dépôt par temps humide et par temps sec.

La vitesse de dépôt sec (V_d) permet de caractériser le dépôt par temps sec. Elle est le rapport entre la concentration du gaz ou des particules déposée par unité de surface et par unité de temps (flux de dépôt sec) et la concentration atmosphérique du

gaz ou des particules, respectivement. De façon conventionnelle, V_d est positive lorsqu'il s'agit d'un dépôt par temps sec et négative en cas d'émission. Les paramètres influençant la vitesse de dépôt sec des particules sont principalement le diamètre et la densité des particules, la vitesse de frottement du vent, la turbulence atmosphérique et la nature du substrat tandis que la vitesse de dépôt sec des gaz est influencée par la nature chimique de l'espèce qui se dépose (réactivité chimique vis-à-vis de la surface), les conditions météorologiques (vitesse de frottement du vent, humidité, ...) et les propriétés du couvert (résistance stomatique, indice de surface foliaire, ...).

Les vitesses de dépôt sec de l'iode sous forme élémentaire gazeux (I_2) présentées dans la littérature ($0,02-26 \text{ cm.s}^{-1}$) présentent des incertitudes pouvant aller jusqu'à trois ordres de grandeur (Sehmel, 1980) sans qu'une paramétrisation de ces dernières en fonction des paramètres météorologiques (vitesse de frottement du vent, flux de chaleur sensible, température, humidité, ...) et des propriétés de couvert (résistance stomatique, indice de surface foliaire, ...) ne soit effectuée.

Afin de réduire les incertitudes sur les prédictions des transferts d' I_2 par les modèles, les mécanismes de dépôt sec d' I_2 tenant compte des propriétés de surface de l'herbe doivent être connus pour différentes conditions météorologiques.

Les principaux objectifs de la thèse sont :

- Déterminer expérimentalement les vitesses de dépôt sec d' I_2 sur l'herbe à court terme (30 minutes à 1 heure) ;
- Paramétrer les vitesses de dépôt mesurées en fonction des paramètres météorologiques et des propriétés de surface de l'herbe ;
- Etablir un modèle de dépôt sec d' I_2 à partir des vitesses de dépôt issues des expériences, des paramètres météorologiques, des propriétés physiques et chimiques de l'iode et les propriétés de surface de l'herbe ;
- Valider la capacité du modèle à reproduire les dépôts secs d' I_2 pour des conditions météorologiques et temps d'intégration différents et les comparer aux mesures des transferts par temps sec dans l'herbe d' ^{129}I sous forme I_2 émis par l'usine Orano La Hague.

Afin de répondre aux différents objectifs fixés, cette étude est organisée en cinq chapitres.

Dans le **chapitre I**, une revue de connaissances est présentée. Dans un premier temps, elle expose les sources d'iode stable dans l'environnement, ainsi que sa distribution dans le milieu marin, l'atmosphère, les eaux de surfaces et souterraines, le sol et la végétation. Les processus et mécanismes impliqués dans les échanges avec les phases liquide et gazeuse, la spéciation de l'iode, le transfert de l'iode de l'atmosphère vers la surface terrestre (sol, végétation) ainsi que la rétention de l'iode dans le sol et dans la plante, sont présentés. Ensuite la revue met un accent sur les sources d'iode radioactif dans l'environnement. La turbulence atmosphérique conditionnant les processus d'échanges verticaux de polluants (gaz et aérosols) entre l'atmosphère et la surface terrestre est ensuite rappelée. Les processus et mécanismes de dépôt sec et les méthodes de mesure de la vitesse de dépôt sec d'I₂ sont également présentés. Enfin, une revue synthétisant les incertitudes trouvées dans les vitesses de dépôt sec d'I₂ est présentée afin de montrer l'absence de paramétrisation de ces dernières en fonction des paramètres météorologiques (vitesse de frottement du vent, flux de chaleur sensible, température, humidité, ...) ou des propriétés de surface de l'herbe (résistance stomatique, indice de surface foliaire, ...).

Le **chapitre II** présente la méthodologie expérimentale développée pour accéder aux vitesses de dépôt sec d'I₂. Il commence par rappeler les bases de la méthode, et présenter le développement du dispositif expérimental d'émission d'iode stable (¹²⁷I) sous forme I₂ dans l'air et l'établissement d'une procédure de mesure de l'I₂ dans l'air et sur les éprouvettes d'herbe permettant de quantifier le dépôt. Enfin le chapitre se termine par la présentation des appareils utilisés pour l'acquisition de l'indice de surface foliaire (LAI) et des paramètres météorologiques.

Le **chapitre III** se concentre sur la procédure d'adaptation du modèle de dépôt sec des gaz à l'iode. Il présente l'ensemble des paramètres d'entrée du modèle et la procédure de leur acquisition sur la base des V_d mesurées sur l'herbe, des propriétés physiques et chimiques de l'iode, des paramètres météorologiques et des propriétés de surface de l'herbe.

Le **chapitre IV** détaille l'application *in situ* de la méthode de mesure du dépôt sec d'I₂ décrite et validée dans le chapitre II. Dans un premier temps il décrit le site expérimental et retrace sous forme d'un inventaire les trois campagnes expérimentales en commençant par la campagne de mise au point MIOSEC 1 (juillet 2018) suivie de la campagne MIOSEC 2 (septembre 2018) et de la campagne MIOSEC 3 (juin 2019). Les principaux paramètres météorologiques et l'évolution au cours du temps des V_d mesurées lors des trois campagnes sont présentés. Ensuite, à partir des V_d mesurées, l'impact des principaux paramètres influençant le dépôt sec d'I₂ est évalué. Enfin les résultats du modèle sont présentés. À partir de la confrontation des résultats du modèle avec les résultats des mesures obtenus lors des campagnes MIOSEC 2 et 3, les paramètres d'entrée du modèle sont qualifiés et l'impact des principaux paramètres influençant le dépôt sec d'I₂ est déterminé.

Enfin, le **chapitre V** présente la validation du modèle de dépôt sec d'I₂ dans des conditions météorologiques différentes par des mesures à long terme (30 jours) des transferts dans l'herbe d'¹²⁹I sous forme I₂ émis par l'usine Orano La Hague. Il est composé de trois grandes parties. La première commence tout d'abord par présenter le site expérimental et la procédure de mesure de l'¹²⁹I dans l'air et sur l'herbe. Les appareils de mesures utilisés pour l'acquisition des données météorologiques, des gaz (O₃, NO_x et SO₂) dans l'air et de l'activité d'¹²⁹I sont présentés. Elle traite également la procédure utilisée pour déterminer la concentration d'¹²⁹I gazeux et particulaire dans l'herbe en utilisant le modèle de dépôt sec d'I₂ et le modèle de dépôt sec des aérosols, respectivement. La deuxième partie est consacrée à la présentation des résultats des mesures (les concentrations des gaz, les données météorologiques et les concentrations d'¹²⁹I). Enfin la dernière partie confronte les résultats des mesures avec ceux du modèle en tenant compte de la demi-vie d'élimination biologique de l'¹²⁹I de l'herbe.

Les conclusions générales des principaux résultats sont exposées à la fin. Des perspectives de détermination des vitesses de dépôt sec d'I₂ sur d'autres surfaces (laitue, légume, ...) et d'utilisation du modèle sur d'autres gaz tels que le ³⁶Cl sont ensuite entrevues.

CHAPITRE I : REVUE DES CONNAISSANCES

I.1 Introduction

Dans ce chapitre, une revue de connaissances est dressée. Elle présente dans un premier temps les sources d'iode stable dans l'environnement ainsi que les mécanismes et processus d'échanges entre les différents compartiments (milieu marin atmosphère, eaux de surfaces et souterraines, sol, et végétation) et leurs interactions. Ensuite, la revue met un accent sur les sources d'iode radioactif dans l'environnement. La turbulence atmosphérique conditionnant les mécanismes d'échanges verticaux de polluants (gaz et aérosols) entre l'atmosphère et la surface terrestre est également présentée. Enfin, les processus et mécanismes de dépôt par temps sec et les méthodes de mesure de la vitesse de dépôt sec de l'iode sont exposés. Afin de montrer l'originalité et l'intérêt de cette étude, une revue des vitesses de dépôt sec d'I₂ est présentée.

I.2 Sources d'iode stable dans l'environnement

L'iode est un oligoélément appartenant à la famille des halogènes. Son isotope stable (¹²⁷I) est celui dont le numéro et la masse atomiques sont 53 et 126,9, respectivement. Il est important pour les animaux et l'Homme à cause de son rôle essentiel dans le bon fonctionnement de la glande thyroïde. En raison de son existence sous six états d'oxydation (-1, 0, +1, +3, +5 et +7), le cycle biogéochimique de l'iode dans l'environnement est très complexe. L'aspect le plus important dans le cycle biogéochimique de l'iode est basé sur les échanges du compartiment océanique vers l'atmosphère (Figure I.1).

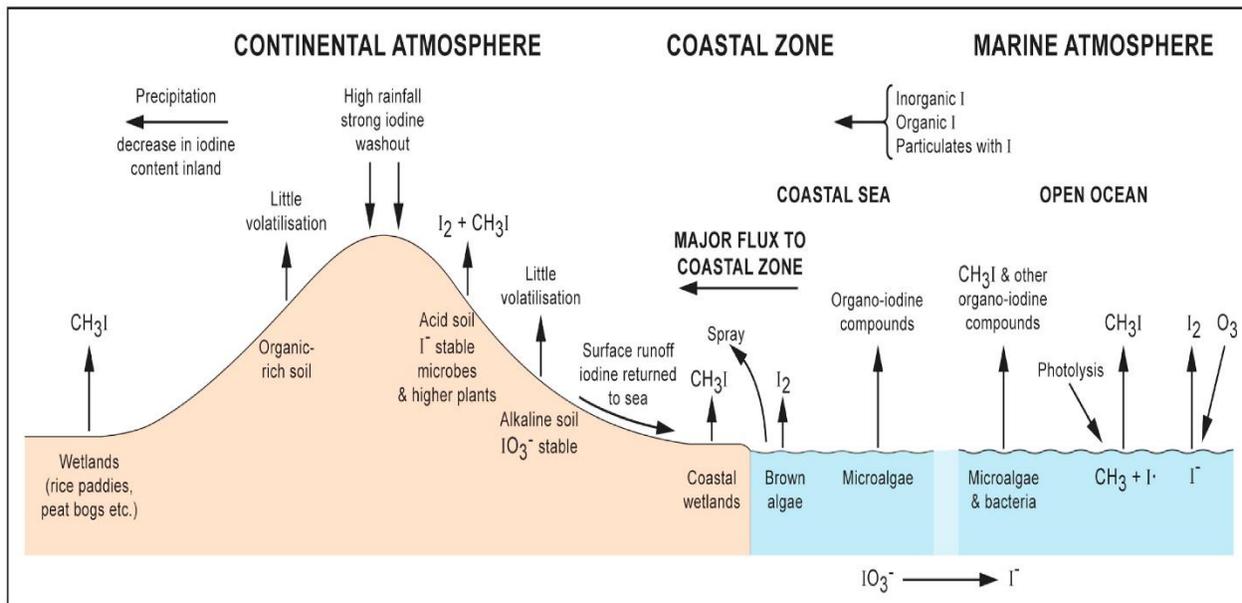


Figure I.1 : Cycle biogéochimique de l'iode dans l'environnement (Fuge and Johnson, 2015).

Les océans constituent le principal réservoir du cycle mondial de l'iode avec des contributions à la fois biologiques et non biologiques à l'iode atmosphérique. D'après le diagramme E-pH de l'iode, les iodures (I^-) et les iodates (IO_3^-) sont les principales formes d'iode inorganique dans les conditions environnementales. L'iode est également rencontré sous forme organique. L'iodure de méthyle (ICH_3) serait la forme organique iodée la plus fréquemment retrouvée dans l'environnement (Fuge and Johnson, 2015).

Les échanges avec l'atmosphère ont lieu à partir de l'émission d'iode du milieu marin sous forme moléculaire inorganique (I_2) et inorganique (CH_3I , CH_2I_2 ,...) par le phytoplancton mais aussi par les macro-algues. Dans l'atmosphère, I_2 et les composés organiques iodés sont dissociés par photolyse pour former des radicaux $I\cdot$. Ces derniers sont impliqués dans une chimie atmosphérique complexe conduisant, par réaction avec l'ozone (O_3), les composés azotés (NO , NO_x) et soufrés (SO_2 ,...) pour former des oxydes d'iode (I_xO_y , INO_x ,...). Ces espèces oxydées participent ensuite à la formation des aérosols et à la condensation des nuages (Leblanc et al., 2006 ; Saiz-Lopez et al., 2012).

L'iode volatilisé depuis le milieu marin vers l'atmosphère est transporté dans le milieu terrestre (sol, eaux de surfaces, végétation,...) et cela a généralement été considéré

comme la principale source d'iode terrestre. Cependant, ce transport vers l'environnement terrestre est limité à une zone assez étroite dans la zone côtière immédiate (0-80 km). C'est pour cette raison que l'iode dans les sols est généralement enrichi dans les zones côtières avec des baisses significatives de concentration à l'intérieur des terres. Il a été trouvé que l'iode du sol est fortement lié et les facteurs de transfert indiqués pour l'iode du sol vers les plantes sont faibles. Il a également été démontré que la volatilisation de l'iode est limitée dans les sols riches en matières organiques. Il semble probable que l'absorption d'iode par les parties aériennes des plantes soit une source vitale et dans les zones où la volatilisation est limitée, l'absorption d'iode par les plantes sera faible (Fuge and Johnson, 2015).

I.2.1 Milieu marin

Le milieu marin représente le principal réservoir mondial du cycle d'iode avec une teneur moyenne en iode de $58 \mu\text{g.L}^{-1}$ sans distinction de forme physico-chimique (Fuge and Johnson, 2015). Le Tableau I.1 présente les concentrations d'iode dans les eaux de mer (d'après Fuge and Johnson (1986)). Dans ce dernier milieu, l'iode a été trouvé sous différentes formes physico-chimiques et principalement sous forme d'anions, iodure (I^-) et iodate (IO_3^-) (Chance et al., 2014) et l'iodate serait la forme la plus stable. Ces concentrations seraient différentes selon la profondeur des océans et l'emplacement géographique (Wong, 1980). Il a été trouvé dans l'Arctique que l'iodate augmente avec la profondeur jusqu'à 500 à 1000 mètres où la totalité de l'iode s'est révélée être de l'iodate (Barkley and Thompson, 1960). Les plus fortes concentrations d'iodure sont trouvées dans la couche de surface marine.

Tableau I.1 : Concentrations d'iode dans les eaux de mer (d'après Fuge and Johnson (1986)).

Echantillons	IO ₃ ⁻ (µg.L ⁻¹)	Iode total (µg.L ⁻¹)	Référence
Eau d'estuaire, rivière Yarra, Australie.	1	24	Smith and Butler (1979)
Eau de mer, 34 % de salinité. Baie de Port Phillip, Australie.	28	64	Smith and Butler (1979)
Eau de mer Adriatique près de Rijeka, Croatie.	-	61	Dubravčić (1955)
Eau de mer de surface, Mer Morte.	-	80	Nissenbaum (1977)
Eau de mer de fond, Mer Morte.	-	120	Nissenbaum (1977)
Eaux marines côtières, Détroit du Menai, Pays de Galles. Corrigé à 35,42 % de salinité.	33	52	Truesdale (1978)
Eau de mer, Mer Irlandaise. Corrigé à 34,42 % de salinité.	40	54	Truesdale (1978)
Eau de mer, Océan Atlantique Oriental. Corrigé à 34,42 % de salinité.	55	57	Truesdale (1978)
Eau de mer : 200-2500 m Océan Atlantique Subtropical.	58	58	Truesdale (1978)
Eau de mer : 200-1800 m Océan Atlantique Tropical.	58	59	Truesdale (1978)
Eau de mer : 200-1180 m Océan Indien Occidental Tropical.	59	-	Truesdale (1978)
Eau de mer à plus de 200 m de profondeur. Océan Pacifique.	27-38	60	Barkley and Thompson (1960)
Eau de mer, valeurs moyennes. Océan Pacifique Nord.	51	53	Tsunogai (1971)
Eau de mer, valeurs moyennes pour trois bassins au large des côtes du Sud de la Californie.	52	57	Liss et al. (1973)

Dans cette couche, la concentration d'iodure est plus élevée dans l'eau chaude que dans l'eau froide de température inférieure à 20°C. La concentration la plus élevée parmi les eaux chaudes se trouve dans les eaux de surface de la zone équatoriale où la productivité biologique est également élevée. L'iodure est généralement plus enrichie dans les eaux ayant une activité biologique plus élevée même pour les eaux froides (Tsunogai, 1971). La détermination de l'iodure, de l'iodate et de l'iode total dans l'eau de mer a montré que la somme iodure plus iodate était inférieure à l'iode total (17 à 38 % inférieure) (Luther III and Campbell, 1991), ce qui conduit à conclure que d'autres espèces d'iode sont également présentes dans l'eau de mer. Parmi ces dernières, il y a l'iode moléculaire (I_2), l'hypoiodite (HOI), les organoiodés dont l'iodure de méthyle (ICH_3) et l'iode sous forme particulaire (Happell and Wallace, 1996 ; Küpper et al., 2008 ; Martino et al., 2009 ; Stemmler et al., 2013 ; Wong, 1980). Plusieurs processus conduisant à la formation des différentes espèces d'iode sont rapportés. Par rapport à la production des iodates, des hypothèses impliquant les algues marines ont été prouvées.

En présence d'algues (*Laminaria digitata* et *Fucus serratus*) et d'iode sous forme d'iodures, Truesdale (2008) a montré une disparition des iodures en moins de 0,24 heure. Cependant, 30 heures après avoir ajouté de l'iode sous forme d'iodure, la concentration des iodates a augmenté, ce qui suggère que ces algues sont capables d'absorber les iodures pour ensuite oxyder ces derniers et les libérer sous forme d'iodates. En ce qui concerne l'iode sous forme d'iodure et d'iodate, un mécanisme impliquant les bactéries marines est énoncé par Tsunogai and Sase (1969). Il semblerait que les bactéries marines capables de réduire le nitrate par le nitrate réductase, produirait de l'iodure par réduction des iodates. La réduction des iodates en iodure par le plancton ou encore par photolyse en présence de matières organiques sont également des voies envisagées (Chance et al., 2007 ; Miyake and Tsunogai, 1963). La plupart des macro-algues marines présentent un fort enrichissement en iode. Les algues brunes présentent les plus grands enrichissements avec un facteur d'enrichissement supérieur à 30000 par rapport à l'eau de mer (Fuge and Johnson, 1986 ; Saenko et al., 1978). Elles sont suivies par les algues rouges et les algues vertes présentant le moins d'enrichissement (Saenko et al., 1978). Les variations de saisons peuvent aussi avoir une

influence sur la teneur en iode dans les algues marines. En ce qui concerne l'algue brune *Laminaria digitata*, les concentrations d'iode mesurées à la fin de l'automne et en hiver, correspondant aux périodes durant lesquelles les algues sont plus jeunes, sont plus élevées que celles mesurées pendant l'été (Gall et al., 2004). D'autres études ont suggéré que l'accumulation de l'iode par le phytoplancton est considérablement supérieure à celles des macro-algues (Manley, 1984). Les résultats d'études en laboratoire ont suggéré que l'I₂ est instable dans l'eau de mer et qu'il est rapidement absorbé par les molécules d'eau (1 à 2 minutes), et l'hypoiodite est probablement formée. Etant instable dans l'eau de mer, l'hypoiodite peut réagir avec la matière organique ou subir une auto-décomposition. Au cours de cette expérience, aucune réaction directe entre l'iode moléculaire et la matière organique n'a été observée (Garland and Curtis, 1981 ; Wong, 1980). Toutes fois, Martino et al. (2009) ont démontré que la réaction entre l'iodure présent dans l'eau de mer et l'ozone conduit à la formation de I₂ et HOI. Happell and Wallace (1996) et d'autres auteurs considèrent I₂ comme étant la principale source d'iode en haute mer (Großmann et al., 2013 ; Mahajan et al., 2012) et propose la réactivité de I₂ avec l'ozone comme processus de formation (Carpenter et al., 2013 ; Garland and Curtis, 1981). Les composés organoiodés (ICH₃, I₂CH₂) sont formés à la suite de la production d'I₂ dans l'eau mer. Ainsi, I₂ réagirait avec les radicaux méthyles disponibles ou encore avec la matière organique dissoute par voie photochimique (Martino et al., 2009 ; Stemmler et al., 2013).

1.2.2 Atmosphère

L'iode est présent dans l'atmosphère à des concentrations très variables (Tableau 1.2). Du milieu marin, l'iode est transporté vers le milieu terrestre à travers l'atmosphère par volatilisation, ce qui représente l'aspect le plus important du cycle global de l'iode. La teneur en iode est plus élevée dans les masses d'air d'origine marine que dans celles d'origine continentale. Le Tableau 1.2 présente les concentrations d'iode dans l'air.

Tableau I.2 : Concentrations d'iode dans l'atmosphère (d'après Fuge and Johnson (1986)).

Échantillon	Concentration en iode à l'exception des aérosols ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	Référence
Air à Tokyo, Japon	0,24	Miyake and Tsunogai (1963)
Air à Harwell, Angleterre	0,10	Chamberlain and Chadwick (1966a)
Air marin, Crimée	2,11-2,45	Zyrin and Imadi (1967)
Air continental, plaine russe	0,75-0,94	Zyrin and Imadi (1967)
Air de la mer Noire	10,0-20,0	Perel'man and Perel'man (1977)
Air de la région de Tcherkassy, Ukraine	1,28	Perel'man and Perel'man (1977)
Air au voisinage de la mer à Daghestan, Russie	48,6	Magomedova et al. (1970)
Air, 320 km à l'intérieur des terres du Daghestan, Russie	7,2	Magomedova et al. (1970)
Air à Hawaï	0,0106	Duce et al. (1973)
Air de l'Antarctique :		
- Côte	0,0031	Duce et al. (1973)
- intérieur des terres	0,0032	Duce et al. (1973)
Air en Arizona, USA	0,0173	Moyers et al. (1971)
Air des Bermudes, aérosols (concentrations en $\text{ng}\cdot\text{m}^{-3}$)	0,0487	Moyers et al. (1971)
Hawaii	0,4-2	Lininger et al. (1966)
Hawaii	2,5±0,9	Duce et al. (1973)
Barrow, Alaska	0,3-10	Duce et al. (1973)
Antarctique :		
- côte	0,9±0,4	Duce et al. (1973)
- intérieur des terres	0,5±0,1	Duce et al. (1973)
Cambridge, USA	2,0-10	Lininger et al. (1966)

L'iode libéré dans l'eau de mer par les macro-algues sous forme d'iodure réagirait avec l'ozone pour former l'iode moléculaire I_2 et l'acide hypoiodéux (HOI) (Carpenter et al., 2013). Dans l'atmosphère au voisinage de la mer, les radicaux alkyles présents, principalement sous forme de groupements méthyles, réagissent avec I_2 et HOI pour former des composés organoiodés (ICH_3 , I_2CH_2), ce qui fait que I_2 et les iodocarbones dont ICH_3 , I_2CH_2 et IC_2H_5 sont considérées comme les principales sources d'iode de l'atmosphère marine rendant l'atmosphère côtière au voisinage immédiat de cette dernière fortement enrichie en iode par rapport au milieu continental (Carpenter et al., 2000 ; Chance et al., 2009 ; Jones et al., 2010 ; Küpper et al., 2008 ; Saiz-Lopez et al., 2012). L'iode volatilisé à partir de l'atmosphère sous forme élémentaire I_2 et sous forme d'organoiodés peut se transformer dans l'atmosphère par des processus de photodissociation et réagir avec l'ozone et les oxydants aqueux ($\cdot O$, $\cdot OH$) pour former des oxydes, qui sont des précurseurs des noyaux de condensation des nuages (Küpper et al., 2008).

Sur soixante échantillons d'iode gazeux prélevés à Hawaï, au cours de l'été 1969, Moyers and Duce (1972) ont trouvé des concentrations d'iode de 5 à 20 $ng.m^{-3}$. Les échantillons de particules prélevés simultanément avec les échantillons gazeux ont montré que les concentrations atmosphériques d'iode gazeux dans l'air marin sont 2 à 4 fois supérieures à la concentration de l'iode particulaire (Moyers and Duce, 1972). L'iode contenu dans la végétation et dans le sol peut également se volatiliser pour se retrouver dans l'atmosphère. Une étude ayant utilisé de l'iode sous forme de $Na^{125}I$ comme traceur pour étudier la volatilisation de l'iode à partir des feuilles de haricots a été effectuée par Amiro and Johnston (1989). L'auteur a conclu que les émissions d'iode de la végétation vivante ont une contribution $< 0,1 \%$ de la concentration d'iode stable dans l'atmosphère au-dessus des zones terrestres et que cette voie peut être une voie directe pour le transport d'iode du sol vers l'atmosphère.

1.2.2.1 Spéciation de l'iode dans l'atmosphère

Dans l'atmosphère, la nucléation de l'iode a été évaluée à différents endroits : dans la couche limite de surface marine, au niveau de la troposphère libre, dans les zones côtières ou encore en milieu urbain. Dans la couche de surface marine, de l'iode

sous forme I_2 probablement émise par les macro-algues (O'Dowd et al., 2002) réagit avec l'ozone atmosphérique pour former des particules d'iode ultrafines. La composition des particules formées suite à cette dernière réaction est similaire aux composés trouvés par exposition de l'iode sous forme d' I_2CH_2 et d' I_2 avec l'ozone. Une augmentation de l'humidité relative a induit à un grossissement significatif de la taille des particules d'iode formées à partir de la réaction de I_2CH_2 avec l'ozone contrairement aux particules formées à partir de I_2 qui n'ont grossi que très légèrement. Au niveau des zones côtières, les algues constituent la principale source d'iodocarbones qui réagissent avec les oxydants aqueux et l'ozone pour former de l'iode sous forme I_2 et des oxydes d'iode (IO, OIO), qui sont des précurseurs des noyaux de condensation des nuages (Küpper et al., 2008). La formation des particules se déroule en trois étapes distinctes. Dans un premier temps, il se forme des particules de petites tailles (5-6 nm) par mode de nucléation. Ensuite, ces particules grossissent pour atteindre 40 à 50 nm. A ce niveau, on parle de nucléation, appelé « mode Aitken ». Enfin, ces dernières grossissent (200-250 nm) par des processus de coagulation et de conversion de gaz en particules, sur une période de plusieurs heures, en mode accumulation (Mäkelä et al., 1997). L'occurrence des différents modes dépend des conditions météorologiques et chimiques. La formation des particules n'a été observée que durant les jours ensoleillés, lorsque le rayonnement solaire global est élevé. Dowd (2001) a montré qu'au cours des processus de nucléation et croissance des particules, une augmentation de la concentration des particules induit à une augmentation des noyaux de condensation des nuages. Plusieurs hypothèses conduisant à la formation de ces aérosols d'iode ont été élaborées dont la plus part suggère l'oxydation de l'iode par l'acide sulfurique. Il a été trouvé qu'en plus de l'iode, les aérosols d'iode formés étaient composé de soufre (Mäkelä et al., 2002). La Figure 1.2 présente la réactivité des espèces iodées dans l'atmosphère marine (Saiz-Lopez et al., 2012).

l'atmosphère et transféré à la surface du sol à travers les précipitations et par voie sèche. Les précipitations sont considérées par de nombreux auteurs comme le mécanisme de transfert le plus important (Baker et al., 2001 ; Duce et al., 1973 ; Englund et al., 2010 ; Lai et al., 2008 ; McFiggans et al., 2010 ; Saiz-Lopez and Plane, 2004).

I.2.3 Eaux de surface et eaux souterraines

I.2.3.1 Eaux de surface

Comme dans le milieu marin, l'iode est également rencontré dans les eaux de surfaces mais à des concentrations très largement inférieures (Watts and Mitchell, 2009 ; Whitehead, 1984a). Sur des prélèvements d'eaux de surfaces réalisés en Afghanistan, Watts and Mitchell (2009) ont trouvé des concentrations d'iode comprises entre 5,4 et 22,7 $\mu\text{g.L}^{-1}$. Les concentrations d'iode dans les eaux de surface peuvent varier d'une région à une autre à cause de la proximité ou non des océans, la typologie des roches, les conditions thermodynamiques. Pour une même région donnée, elles sont susceptibles de varier avec la saison de l'année et les conditions météorologiques (Moran et al., 2002 ; Whitehead, 1984a). La contribution océanique est la principale voie d'entrée d'iode pour certains fleuves. Pour d'autres, la contribution est d'origine anthropogène par lessivage des roches ou des sols des bassins versants (Moran et al., 2002). En milieu continental, les concentrations d'iode dans les eaux de surface non polluées sont comprises entre 1,5 et 2,5 $\mu\text{g.L}^{-1}$ et la concentration moyenne de l'iode dans l'eau de pluie est de 1,5 $\mu\text{g.L}^{-1}$. Au Royaume-Uni, dans les rivières qui reçoivent des effluents d'eaux usées de grandes villes, les concentrations d'iode peuvent atteindre 15 à 20 $\mu\text{g.L}^{-1}$. L'iode est rencontré dans les eaux de surfaces principalement sous formes inorganiques, en particulier l'iodure, lequel est capable d'être convertie en iode organique par l'activité microbienne. Il est important de mentionner que la contribution des eaux de surface au cycle global de l'iode est très faible. A titre d'exemple, l'eau des rivières et des lacs ne représente qu'environ 0,1 % de l'iode total mondial (Whitehead, 1984a).

1.2.3.2 Eaux souterraines

Les données de la littérature indiquent que les eaux souterraines sont plus enrichies en iode que les eaux de surface (Johnson, 2003b ; Whitehead, 1984a). Des teneurs en iode allant jusqu'à 2800 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ (Zhao et al., 2000) et jusqu'à 4100 $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ (Tang et al., 2013) ont été trouvées dans les eaux souterraines en Chine, dans la province de Jiangsu et dans la province du Shanxi, respectivement. La présence d'iode dans les eaux souterraines est principalement due à la dégradation de la matière organique iodée, au lessivage des sédiments marins dans les aquifères et à l'évapoconcentration dans les zones arides. Les eaux souterraines s'étendant jusqu'à 120 m sont généralement alcalines et contiennent des teneurs élevées en iode (Li et al., 2013).

1.2.4 Sol

Les teneurs d'iode sont très variables au niveau des sols (Tableau I.3). Cette variabilité peut s'expliquer par plusieurs facteurs dont la proximité des océans, la texture du sol et sa composition, les conditions climatiques. Fuge (1996) suggère que la zone côtière sous influence marine devrait s'étendre jusqu'à 80 km. Les niveaux d'iode les plus élevés ont été enregistrés dans cette zone (0,8-150 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) avec une moyenne géométrique de 11,6 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$. A l'intérieur des terres, à des distances supérieures à 50 km de la mer, les concentrations d'iode mesurées sont plus faibles (0,4-14 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) avec une moyenne géométrique inférieure à 2,6 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$. Au-delà de 100 km, une grande différence entre les niveaux d'iode dans le sol n'a pas été trouvée, ce qui suggère que le mécanisme de dépôt direct de l'iode atmosphérique (sous forme de dépôt humide ou sec) est plus important dans la zone côtière et que d'autres mécanismes à l'intérieur des terres telles que la volatilisation du système sol-plante doivent être plus importants. En utilisant une classification basée principalement sur la texture du sol, l'ordre des niveaux d'iode dans le sol a été déterminé : tourbe (7,0 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) > argile (4,3 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) > limon (3,0 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) > sable (2,2 $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$) (Johnson, 2003a ; Smyth and Johnson, 2011). Quelques valeurs de la teneur en iode dans le sol sont présentées Tableau I.3. Bien que l'apport d'iode via l'atmosphère marin exerce une influence déterminante majeure sur sa répartition géographique dans les sols, la capacité du sol à retenir l'iode est également un facteur important. La capacité de rétention de l'iode par le sol est liée à la composition de ce dernier.

Tableau I.3 : Teneur en iode dans le sol (d'après Fuge and Johnson (1986)).

Type de sol (Terre végétale)	Concentration en iode (mg.kg ⁻¹)	Moyenne (mg.kg ⁻¹)	Référence
Tourbes (>70 % de matière organique), UK	28-98	56	Fuge and Johnson (1986); Johnson (1980) ; Fuge, données non publiées
Tourbe, compilation de la littérature	0,2-28	8,83	Johnson (2003a, b)
Sol riche en fer, UK	7,5-33	16,0	Fuge, données non publiées ; Fuge et al. (1998)
Limon, compilation de la littérature	0,1-135	8,15	Fuge et al. (1998)
Argile, compilation de la littérature	0,1-69	7,27	Fuge et al. (1998)
Sable, compilation de la littérature	0,08-58	4,11	Fuge et al. (1998)
Calcaire, N. Wales, UK	1,0-76	11,0	Fuge, données non publiées
Autres lithologies, N. Wales, UK	3,4-9,0	6,5	Fuge, données non publiées
Sol riche en carbonates, Autriche	1,64-5,3	3,75	Gerzabek et al. (1999)
Sol sans carbonates, Autriche	1,08-4,80	2,58	Gerzabek et al. (1999)
Alluvions marine/estuaire	8,8-36,9	19,6	Whitehead (1984a)

Il a été montré que l'absorption de l'iode était significativement liée à la teneur du sol en matière organique et sa capacité d'échange par le biais des cations du sol (oxydes de fer et d'aluminium) (Biester et al., 2004 ; Dai et al., 2009 ; Fuge and Johnson, 1986 ; Keppler et al., 2003). La composition des sols reflète généralement la composition du matériau d'origine et, à ce titre, la nature du matériau d'origine influence indirectement la chimie de l'iode des sols. Une étude réalisée sur plusieurs types de sols a montré que les roches et les sols altérés sont plus riches en iode que les roches non altérées, les sols développés sur les calcaires étant plus riches que ceux sur les grès, les schistes et les dolomites (Fuge, 1989). Un facteur supplémentaire dans la distribution de l'iode au niveau du sol, est sa biodisponibilité ultérieure. Cette dernière est liée à la

spéciation de l'iode dans les sols. Dans les conditions d'oxydation acide, l'iode est susceptible d'être présent sous forme d'iodure et tant que tel susceptible d'être volatilisé en I₂ alors que dans les conditions alcalines ou presque neutres, l'iode est susceptible d'être présent sous forme d'iodate qui ne se volatilise pas.

1.2.5 Végétation

Bien que n'ayant pas un rôle essentiel dans la physiologie des plantes, l'iode est prélevé par les racines et peut être adsorbé ou absorbé par les feuilles. Des teneurs variables en iode stable sont trouvés dans les plantes, probablement en raison de la proximité des océans, de la variabilité morphologique des plantes, du stade de croissance de la plante mais surtout de la spéciation de l'iode. Elles sont également variables suivant que le dépôt ait lieu par temps humide ou par temps sec (absence de pluie). En général, ces teneurs sont relativement faibles (< 1 mg.kg⁻¹) et sont comprises entre 0,05 et 3,39 mg.kg⁻¹ (Tableau 1.4).

Dans cette partie sont présentées les connaissances sur la spéciation de l'iode au sein de la plante, les processus de transfert foliaire et racinaire, et la volatilisation à partir de la plante.

Tableau 1.4 : Concentrations naturelles en iode dans les échantillons végétaux (d'après Fuge and Johnson (2015), cité par Roulier (2018)).

Type d'échantillon	Concentration en iode (mg.kg ⁻¹)-poids sec	Références
Herbe/herbage (revue de littérature)	0,05 - 0,5	Whitehead (1984a)
Plantes/pâturage (environnement côtier)	0,185 - 3,62	Bowley (2013)
Echantillons de plantes (Russie)	0,121 - 0,221	Korobova (2010)
Aiguilles d'arbres (environnement côtier)	0,11 - 3,39	Al-Ajely (1985)
Echantillons d'arbre (Russie)	0,072 - 0,186	Korobova (2010)
Herbage mixé - parties aériennes (Russie)	0,162	Korobova (2010)

Tableau I.4 (suite).

Type d'échantillon	Concentration en iode (mg.kg ⁻¹)-poids sec	Références
Herbage mixé - parties racinaires (Russie)	0,701	Korobova (2010)
Lichens (Russie)	1,089	Korobova (2010)
Mousses (Russie)	0,743	Korobova (2010)

I.2.5.1 Spéciation dans la plante

Au sein des plantes terrestres, l'iode semble exister principalement sous forme inorganique contrairement à ce qu'on peut observer pour les algues marines où l'iode peut être principalement sous forme organique. Lin et al. (2011) ont montré cela dans le chou, les feuilles de thé et les épinards. Des expériences réalisées par Muramatsu et al. (1983) sur des cultures de Komatsuna (légume-feuille) avec des solutions enrichies en iodure ou iodate ont montré que la forme dominante et stable dans la plante serait l'iodure. Cependant, Wishkerman (2006) a montré à travers des expériences de décomposition des plantes la présence d'espèces organiques dans les plantes.

I.2.5.2 Transfert foliaire

I.2.5.2.1 Transfert foliaire par dépôt sec ou par dépôt humide

Au cours de son transport dans l'atmosphère, une quantité importante d'iode est susceptible d'être interceptée par la végétation par divers processus physico-chimiques dépendant des conditions météorologiques (dépôt sec ou humide), des espèces d'iode (gaz et particules) et des paramètres liés à la surface foliaire (structure des feuilles, ouverture ou fermeture des stomates) ou encore à l'espèce végétale et à son stade de croissance (Henner et al., 2013 ; Tschiersch et al., 2009).

I.2.5.2.2 Translocation

Suite à un dépôt sur le système foliaire, la translocation permet de quantifier l'iode transféré vers les parties comestibles des plantes qui peuvent être aériennes (légumes, feuilles et fruits) ou dans le sol (légume-racine). D'après Whitehead (1984a),

Chamberlain (1970) estime que la translocation d'iode des pousses vers les racines est normalement négligeable. Cependant, dans une étude réalisée sur la luzerne avec des concentrations atmosphériques élevées en I_2 et HI, des quantités appréciables ont été transloquées vers d'autres parties, dont les racines (Whitehead, 1984a).

1.2.5.2.3 Lessivage par les pluies

L'iode retenu par la végétation à la suite du dépôt atmosphérique est susceptible de pertes résultant des effets du vent et des précipitations, ainsi que par la mort et décomposition des tissus des plantes. Pour l'iode gazeux et particulaire, les valeurs moyennes de demi-vie environnementale se sont montrées similaires. Elles sont de 7 à 9 jours pour une végétation herbacée, et un peu plus grandes pour une végétation ligneuse. Garland and Cox (1984) ont d'ailleurs montré que suite au dépôt d'iode élémentaire sur les feuilles d'haricot et à des expositions par forte humidité, une fraction importante d'iode pouvait être lessivée des feuilles parce que l'iode élémentaire se déposerait à la surface. Contrairement à I_2 , l'acide hypoiodéux ne se dépose pas sur les tissus externes. Il pourrait donc être inaccessible au lessivage par la pluie et avoir une demi-vie biologique plus longue (Geunot et al., 1986).

1.2.5.3 Transfert sol-plante

1.2.5.3.1 Prélèvement d'iode du sol par les plantes

L'absorption de l'iode par la plante à partir du sol va dépendre de la biodisponibilité de l'iode. Cette dernière est fortement liée à sa spéciation, avec l'iodure et l'iodate qui ont grande disponibilité par comparaison à l'iode lié à la matière organique (Hou et al., 2009). Le prélèvement d'iode par les plantes semble être plus important pour la forme iodure dans la solution du sol que pour la forme iodate. Cela a été démontré par Voogt et al. (2010) au cours d'une étude sur la biofortification pour la laitue cultivée en système hydroponique contenant de l'iode sous forme iodure ou iodate. Les résultats de cette étude montraient que la concentration obtenue dans les tissus de la plante étaient jusqu'à 5 fois plus élevée pour I^- que pour IO_3^- .

1.2.5.3.2 Translocation depuis les racines

L'absorption de l'iode du sol par les racines varie selon les espèces végétales, les formes chimiques de l'iode et la capacité du sol à fixer l'iode (Whitehead, 1984a). Des études sur le transfert racinaire ont suggéré que la majorité de l'iode reste dans les racines et n'est pas transloquée au reste de la plante. Cette absorption est évaluée par un facteur de transfert. Il a été trouvé dans la plupart des sols riches en iode que les facteurs de transfert de l'iode vers la plupart des plantes étaient faibles (0,0005-0,90). Ces valeurs indiquent que l'iode n'est pas facilement transféré du sol vers la plante et que le principal mode de transfert d'iode aux plantes est la voie atmosphérique (Roulier, 2018).

1.2.5.4 Volatilisation

Si pour certaines espèces d'algues marines la volatilisation des composés organiques volatils iodés est importante, elle est toutefois moins significative pour les plantes terrestres (Whitehead, 1984a). Ceci semble se confirmer pour l'iode prélevé par la plante depuis le sol, mais la volatilisation de l'iode déposé superficiellement peut cependant survenir. Cette volatilisation a été constatée dans des climats chauds et survient dans des proportions négligeables au Royaume Uni (Chamberlain, 1970). La volatilisation de l'iode à partir des plantes serait influencée par le stade de croissance de la plante et la teneur en matière organique du sol. Pour déterminer le taux de volatilisation, des expériences ont été réalisées en laboratoire par Wilding et al. (1986). Ces dernières ont consisté à ajouter de l'iode inorganique au sol des plantes (soja) et d'examiner la formation d'iode volatile organique et inorganique par le sol et la plante. L'auteur conclut que l'¹²⁹I ajouté au sol a été volatilisé par le sol et la plante pendant la croissance de la plante, à des taux de $2 \times 10^{-3}\%$ par jour pour le sol et $9 \times 10^{-3}\%$ par jour pour le feuillage. Cependant, en l'absence de racines en cours de croissance, les taux de volatilisation du sol étaient un ordre de grandeur plus faible. L'iode volatilisé était principalement des iodures d'alkyles formés par des processus du sol et de la plante, et moins de 2 % de l'iode volatilisé ont été par la suite retenus par les plantes. Parmi les composés volatils, de l'iode inorganique avait également été mise en évidence dont la plus grande fraction était produite par les plantes et sols contenant des racines croissantes. Dans l'étude réalisée par Henner et al. (2013), il a été montré que bien que

l'iode soit absorbé par la plante, une quantité importante a probablement été volatilisée.

La volatilisation de l'iode sous forme I_2 peut s'avérer particulièrement significative à cause de sa sublimation à partir des surfaces. Une expérience menée à 25°C a montré que la demi-vie biologique de l' I_2 des plantes passait de 8 à 6,5 jours en raison de la sublimation naturelle de l'iode élémentaire (Andersson et al., 2011).

1.3 Sources d'iode radioactif dans l'environnement

En plus de l'iode stable (^{127}I), il existe d'autres isotopes d'iode provenant de la fission et de nombreuses autres réactions nucléaires. Il y a au moins vingt-quatre isotopes d'iode répertoriés dans les références communes avec des nombres de masse allant de 117 à 140. A l'exception de l' ^{127}I , tous sont radioactifs. Les demi-vies de ces derniers sont de l'ordre de la seconde (^{140}I) à 15,7 millions d'années (^{129}I). Les isotopes de masses 129 et de 131 à 140 sont tous des émetteurs β et γ , connus pour être des produits de fission. Le risque d'exposition pour l'homme dépend du type de radio-isotope, de sa demi-vie, de la quantité de rayonnement ainsi que des voies d'exposition (Holland, 2013). En cas de rejet accidentel par exemple, les circonstances de la libération ont généralement été telles que l' ^{131}I (demi-vie = 8,02 jours) a tendance à être plus prépondérante que les autres en importance tandis que la contribution de l' ^{129}I à l'exposition à la radioactivité est négligeable en raison de son taux de désintégration lent et de sa faible énergie de désintégration totale (0,19 Mev) (Holland, 2013). Cependant, sa longue demi-vie le rend intéressant en tant que traceur pour les études du comportement physique et chimique de l'iode radioactif dans l'environnement sur une échelle de temps plus longue. Le Tableau 1.5 présente les propriétés radiochimiques de l' ^{129}I et l' ^{131}I .

Tableau I.5 : Propriétés radiochimiques de l'¹²⁹I et de l'¹³¹I (d'après Kaplan et al. (2014)). ^aLe rendement fait référence à la fraction d'un produit de fission produit par fission.

Paramètre	¹²⁹ I	¹³¹ I
Demi-vie	1,57 × 10 ⁷ ans	8,02 jours
Neutrons	76	78
Protons	53	53
Radiation	β 0,154 (100 %) MeV ; γ 0,0396 (7,5 %), γ 0,0295 (20 %) MeV	β 0,606 (90 %) MeV ; γ 0,364 (82 %) MeV
Décroissance	$^{129}_{53}\text{I} \rightarrow \beta + ^{129}_{54}\text{Xe}$	$^{131}_{53}\text{I} \rightarrow \beta + ^{131}_{54}\text{Xe}$
Rendement de fission ^a	0,6576 % par fission d' ²³⁵ U	2,8336 % par fission d' ²³⁵ U

Les conséquences radiologiques pour l'Homme, la flore et la faune dues aux rejets de radionucléides dans l'environnement sont des questions clés dans les évaluations d'impact préparées pour les installations nucléaires. Les radioiodes libérés dans l'atmosphère peuvent contaminer les aliments végétaux et provoquer une exposition à l'Homme via la chaîne alimentaire. Il a été démontré que le degré de ces transferts environnementaux dépend des conditions climatiques et environnementales spécifiques au site, de l'utilisation des terres et des habitudes des populations, (Garner and Comar, 1972 ; Klement, 2019 ; Pröhl et al., 2012). Après inhalation par une personne ou consommation d'aliments contaminés tels que les produits laitiers, les radio-isotopes d'iode pourraient ensuite pénétrer dans le corps et s'accumuler dans la glande thyroïde non saturée d'iode stable où ils resteraient pendant des périodes de temps variables et où ses particules bêta à courte portée irradieraient la glande de l'intérieur.

Dans cette partie, sont détaillées les différentes sources d'iode radioactif dans l'environnement.

1.3.1 Production naturelle

L'¹²⁹I est créé naturellement lors des quelques fissions spontanées qui se produisent dans l'uranium naturel. Il est également produit suite à l'interaction des rayonnements cosmiques secondaires sur divers isotopes du xénon présents dans la haute atmosphère (Edwards, 1962). L'¹²⁹I s'accumule notamment dans les océans où le stock global est évalué à environ 7×10^9 Bq. Dans ce contexte, et en l'absence d'apport anthropogénique, le rapport isotopique ¹²⁹I/¹²⁷I dans l'environnement est de l'ordre de 10^{-12} (Lebourgeois, 1997).

1.3.2 Production médicale

En biologie et en médecine nucléaire, les traceurs sont généralement des produits radiopharmaceutiques qui incorporent dans leur formule un atome dont le noyau est radioactif, un marqueur. Le traceur est donc la molécule, le marqueur, l'atome radioactif. C'est l'émission par cet atome d'un rayonnement qui permet de suivre à la trace le parcours dans le vivant de ce traceur. L'¹³¹I fait partie des radionucléides les plus couramment utilisés à cet effet (Jean-Claude, 2013). Bien qu'employé pour comprendre le fonctionnement normal ou anormal des organes, le rayonnement produit par l'¹³¹I au cours de sa décomposition peut présenter un danger pour la vie en endommageant les molécules cellulaires.

1.3.3 Essais d'armes nucléaires dans l'atmosphère

Les radionucléides produits par les essais nucléaires comprennent les produits de fission issus de la réaction nucléaire et une certaine quantité de matières fissiles n'ayant pas réagi, par exemple les isotopes de l'uranium ou du plutonium. L'abondance relative de ces produits dépend des spécifications de conception de l'instrument et s'il est déclenché dans l'air, à la surface terrestre ou sous terre. Les produits sont principalement des radionucléides émetteurs bêta-gamma à courte durée de vie mélangés à quelques isotopes ayant des demi-vies de plusieurs décennies ou plus (Kaplan et al., 2014). Parmi ces radionucléides, on retrouve l'¹³¹I. A titre d'exemple pendant son exploitation entre décembre 1944 et décembre 1949, le site de Handford a libéré $2,6 \times 10^{16}$ Bq d'¹³¹I dans l'atmosphère, soit plus de la moitié de l'¹³¹I libéré au cours des 30 années suivantes (Kaplan et al., 2014).

1.3.4 Rejets chroniques des installations nucléaires

1.3.4.1 Centrales nucléaires pour la production d'électricité (CNPE)

Au cours de la production d'électricité dans les centrales nucléaires à eau pressurisée, la fission induite par les neutrons est une réaction nucléaire dans laquelle le noyau d'un atome (par exemple, ^{235}U) se divise lorsqu'il est bombardé de neutrons en isotopes de poids atomique inférieur (par exemple, ^{129}I), produisant des neutrons et de l'énergie. Les réactions forment une variété de produits de fission, dont l' ^{129}I et l' ^{131}I (Kaplan et al., 2014). Les connaissances sur la spéciation de l'iode dans l'enceinte en fonctionnement normal semblent peu nombreuses, à la fois en mesure et en modélisation. Une étude récente explorant le comportement de différentes formes d'iode (I_2 , I_3 , I^- , IO^- , HOI) a montré que la spéciation de l'iode dépend principalement des conditions redox et de la radiolyse de l'eau. La forme I^- semble majoritaire pendant les périodes de fonctionnement et d'arrêt (Tigeras et al., 2011).

1.3.4.2 Usines de retraitement du combustible nucléaire

Le combustible ayant servi au fonctionnement des CNPE est retraité après son usage par les usines de retraitement du combustible nucléaire. En ce qui concerne l'iode, le temps passé depuis le stockage du combustible utilisé jusqu'à son retraitement (> 4 ans) fait qu'en raison de la durée de vie des radioiodes, l' ^{129}I est encore présent. Ainsi, les usines de retraitement du combustible nucléaire, telles que l'usine Orano La Hague (France), l'usine de Sellafield (Grande-Bretagne), l'usine de retraitement à Rokkasho (Japon) ou encore l'usine de Karlsruhe, ont constitué une voie importante de rejet d' ^{129}I à travers les effluents liquides et gazeux (Fréchou and Calmet, 2003 ; Hou et al., 2009 ; Kaplan et al., 2014 ; Maro, 2013 ; Silverio and de Queiroz Lamas, 2011 ; Wershofen and Aumann, 1989 ; Yiou et al., 1994).

1.3.5 Rejets accidentels des installations nucléaires

En cas d'accident grave sur un réacteur nucléaire, des matières radioactives dont l' ^{131}I sous forme de gaz et d'aérosols pourraient être rejetés dans l'environnement (Maro, 2013 ; Xu et al., 2015). En plus de l' ^{131}I , les mesures après la catastrophe de Fukushima ont montré la présence de l' ^{129}I . Ce dernier étant de faible énergie, sa contribution aux expositions est considérée négligeable devant celle de l' ^{131}I .

Cependant, sa longue durée de vie a permis de reconstituer les activités d'¹³¹I (Xu et al., 2015). L'accident survenu à la centrale nucléaire de Three Mile Island en mars 1979 (USA) a libéré environ $5,5 \times 10^{11}$ Bq d'¹³¹I dans l'atmosphère. Les accidents de Tchernobyl en avril 1986 (Ukraine) et de Fukushima Dai-ichi en mars 2011 (Japon) ont rejetés dans l'atmosphère environ 10^{18} Bq et $1,6 \cdot 10^{17}$ Bq d'¹³¹I, respectivement (Lebel et al., 2016).

Suite aux accidents nucléaires de Tchernobyl et de Fukushima, un certain nombre de mesures d'¹³¹I dans l'environnement a permis d'accéder à une connaissance de la spéciation de l'iode dans l'air. Ces mesures sont synthétisées dans le Tableau I.6.

Tableau I.6 : Formes physico-chimiques de l'¹³¹I mesurées dans l'environnement suite aux accidents nucléaires de Tchernobyl et de Fukushima. Données mesurées (police normal) ou données estimées (*en italique*) (d'après Mourlon (2014)).

Conditions	¹³¹ I gaz inorganique	¹³¹ I gaz organique	¹³¹ I particulaire	Référence
Accident de Tchernobyl, mesures dans l'environnement				
Passage du nuage de Tchernobyl à Aachen, Allemagne	(non mesuré)	(non mesuré)	25-35 % (mesuré)	Maqua et al. (1987)
<i>Estimation à partir d'une compilation de mesures, utilisée pour la modélisation</i>	<i>30 % I₂</i>	<i>40 %</i>	<i>30 %</i>	
Mesure sur charbon actif pendant le passage du nuage de Tchernobyl en Angleterre	Pas de discrimination entre la forme inorganique et organique		25-50 %	Clark and Smith (1988)
Compilation bibliographique de données, après Tchernobyl Italie, France, Belgique, Allemagne, USA	<i>27 % I₂</i>	<i>51 %</i>	<i>22 %</i>	Hoffman (1989)
<i>Estimations choisies pour les calculs</i>				
Mesure à Tokai au Japon : 6-19 mai 1986	<i>5 % I₂</i> <i>6 % HOI</i>	<i>70 %</i>	<i>19 %</i>	Noguchi and Murata (1988)

Tableau I.6 : (suite).

Conditions	¹³¹ I gaz inorganique	¹³¹ I gaz organique	¹³¹ I particulaire	Référence
Mesure pendant le passage du nuage de Tchernobyl au Japon : 5-30 mai 1986	70-90 % Pas de discrimination entre la forme inorganique et organique		10-30 %	Imanaka and Koide (1986)
Accident de Fukushima, mesures dans l'environnement				
Mesures réalisées en Europe entre le 20 mars et le 13 avril 2011 (basé sur 210 paires de données gaz/particules)	72,2 %			Masson et al. (2011)
Mesures à Chiba au Japon, réalisées du 14 mars 2011 à fin mai 2011	15-16 mars : 71 % 20-21 mars : 52 % 22-23 mars : 68 %			Amano et al. (2012)
Mesures à Tsukuba au Japon, entre le 15 mars et 31 mai 2011			de 0 à 86 %	Doi et al. (2013)
Mesures à Fukushima au Japon, du 6 au 13 avril 2011	30 à 60 %			Momoshima et al. (2012)

L'ensemble des mesures indiquent clairement que les formes gazeuses (dont la différenciation n'est pas toujours connue) sont majoritaires (Hötzl et al., 1987 ; Masson et al., 2011), de l'ordre de 4 à 5 fois plus que les aérosols, ce qui doit représenter des équilibres issus de la chimie dans l'atmosphère. Ces proportions peuvent être dues par le fait que l'iode gazeux dans l'atmosphère peut être adsorbé sur des particules par processus lent et réversible. Une désorption ayant lieu, un lent équilibre est atteint, avec au final une large proportion d'iode restant sous forme gazeuse (Garland, 1967).

I.4 Turbulence atmosphérique

I.4.1 Définition de la turbulence

Les processus d'échanges entre l'atmosphère et la biosphère sont essentiellement contraints par le transport turbulent. La turbulence permet donc de comprendre ces échanges verticaux des gaz et des aérosols. Elle peut être décrite comme un ensemble de tourbillons de différentes tailles superposés les uns aux autres. L'origine de la turbulence est multiple mais généralement liée à des forçages en surface comme le réchauffement radiatif du sol (turbulence thermique), les cisaillements de vents créés par le frottement de l'air sur la surface du sol, par le sillage d'obstacles ou par des forts gradients de vent (turbulence mécanique). Les tourbillons produits directement par les forçages évoqués ci-dessus sont les plus intenses (plus grands tourbillons). Il existe des tourbillons de plus petite taille. Ces derniers sont apparents dans les tourbillons des feuilles et dans les mouvements ondulés de l'herbe par exemple. Ces tourbillons se nourrissent des plus gros. Les plus petits tourbillons sont de l'ordre de quelques millimètres (Arya, 1999 ; Seinfeld, 1985 ; Stull, 2012).

Suivant le postulat de Reynolds une variable atmosphérique X peut être décomposée en une valeur moyenne \bar{X} et une fluctuation X' :

$$X = \bar{X} + X' \quad \text{Équation I.1}$$

Ainsi, les trois composantes du vent (u , v et w) et d'autres grandeurs scalaires telles que la température (T) ou la concentration de la substance (C), peuvent être décrites par l'Équation I.1. La turbulence peut ensuite être calculée en utilisant des outils statistiques tels que la variance et la covariance.

L'Équation I.2 présente l'expression de la variance pour le calcul de l'intensité de la turbulence :

$$\text{Var}(X') = \overline{X'^2} \quad \text{Équation I.2}$$

L'intensité de la turbulence (I) (Équation I.3) dans une direction est un indicateur de l'agitation turbulente par rapport au champ cinématique moyen.

$$I = \frac{(\overline{u'^2})^{1/2}}{\overline{U}}$$

Équation I.3

La covariance qui met en lien deux variables X et Y, permet de calculer les flux turbulents (F) (Équation I.4) :

$$F = \text{CoVar}(XY) = \overline{X'Y'}$$

Équation I.4

La troposphère représente cette partie de la couche atmosphérique où les principaux phénomènes météorologiques prennent leur place. Elle correspond donc à la partie de l'atmosphère qui est directement influencée par la présence de la surface terrestre. La formation de tourbillons, donc de la turbulence est une conséquence de cette influence. Van der Hoven (1957) a représenté le spectre d'énergie associé aux mouvements horizontaux de l'atmosphère. L'étendue du spectre est considérable puisque la période des tourbillons va de quelques secondes à 1 an. Ainsi, pour les variations à long terme, l'énergie est principalement concentrée près des périodes de 1 an (variations saisonnières, cycle annuel du climat), 4 jours (variations climatiques associées aux perturbations qui traversent une région donnée) et 24 heures (variations journalières, phénomènes thermiques jour-nuit). Les périodes supérieures à 1 heure correspondent à des mouvements atmosphériques de grandes et méso-échelles ou des mouvements instationnaires liés aux instabilités de l'écoulement moyen. On observe une absence d'énergie des tourbillons ou "trou d'énergie" pour les périodes comprises entre 10 minutes et 1 heure tandis que pour les variations à court terme, l'énergie est concentrée autour des périodes de l'ordre de la minute. Ces périodes de l'ordre de la minute sont celles de la turbulence générée par la rugosité des sols et par les obstacles de la surface terrestre. A cette échelle, le vent est un écoulement d'air turbulent, constitué d'une multitude de tourbillons de tailles différentes, emportées par le mouvement d'ensemble (Turbelin, 2000). Les périodes de 30 minutes correspondent à celles de la turbulence et les périodes supérieures celles pour le cycle diurne et les processus météorologiques (Mestayer, 2007). De ce fait, l'échelle de temps des calculs de moyennes des mesures de turbulence sera alors de l'ordre de 30 minutes à 1 heure au maximum.

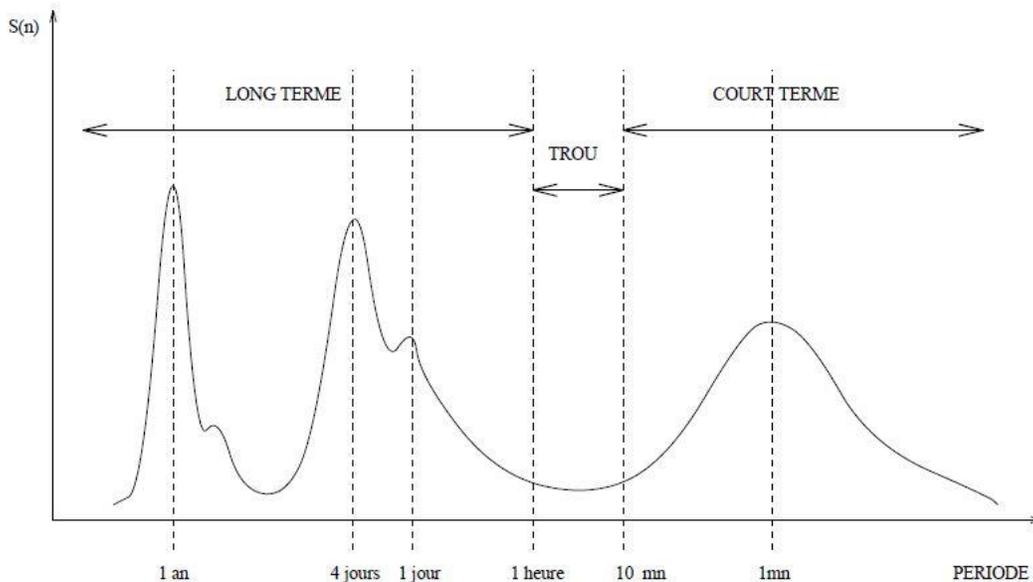


Figure 1.3 : Représentation des différentes échelles de vent à 100 m d'altitudes selon Van der Hoven (1957), cité par Turbelin (2000).

1.4.2 Couche limite et stabilité atmosphérique

La couche limite atmosphérique (CLA) est surtout cette partie de la troposphère qui est directement influencée par la présence de la surface terrestre et qui répond aux forçages de surface avec une échelle de temps d'environ une heure ou moins. C'est donc au niveau de la CLA qu'à lieu les échanges de masse, de quantité de mouvement, de chaleur et d'humidité entre l'atmosphère et la biosphère. En raison de ces interactions air-surface, de fortes variations de la vitesse du vent, de la température et des concentrations scalaires se produisent souvent près de la surface. L'épaisseur de la couche limite est assez variable dans le temps et dans l'espace, allant de centaines de mètres à quelques kilomètres, en lien avec les cycles journaliers de réchauffement diurne et de refroidissement nocturne de la surface terrestre, et aussi en lien avec la nature de la surface du sol et de la topographie. La dispersion à courte distance des polluants émis par des sources proches de la surface est essentiellement déterminée par des mouvements et des processus à petite échelle se produisant dans la CLA (Arya, 1999 ; Stull, 2012). Par exemple, sous l'action de la turbulence et des mouvements des masses d'air, les substances émises dans la CLA sont dispersés verticalement et

horizontalement (Chen et al., 2001). Pour une masse d'air donnée et une situation météorologique synoptique, la rugosité de la surface et la topographie déterminent la résistance au frottement ou la traînée que la surface exerce sur l'atmosphère et, par conséquent, l'échange atmosphérique vers la surface. De même, les propriétés thermiques de la surface, l'émissivité et la teneur en humidité, déterminent les propriétés thermodynamiques de la CLA et les échanges de chaleur et de vapeur d'eau associés entre la terre et l'atmosphère (Stull, 2012).

La Figure I.4 présente la partie inférieure de la troposphère, la CLA, correspondant à l'évolution de l'altitude des différentes couches d'air composant la CLA pendant 24 heures. On observe plusieurs couches dont une couche stable nocturne et une couche de surface. Sous l'influence du chauffage à la surface, le développement de la CLA dépend de la stabilité atmosphérique. La CLA est alors le siège d'intenses activités turbulentes, d'origines thermique et dynamique, surmontée par la zone d'entraînement. La stabilité atmosphérique est un paramètre qui permet de définir l'état de turbulence de l'atmosphère et donc sa capacité de mélange. En général trois conditions de stabilité sont distinguées et définies : le cas instable, le cas neutre et le cas stable (Delmas et al., 2005).

Les conditions instables (ou convectives) se produisent principalement le jour lorsque le soleil réchauffe le sol et l'air qui est en contact avec lui, donc en absence de nuages (nébulosité faible) et par vent faible (moins de 2 m.s^{-1} à 10 m). Elles ont donc lieu lorsque la surface est plus chaude que l'air la surplombant et le flux de chaleur associé est ascendant. Dans ce cas, les masses d'air qui s'élèvent se refroidissent moins vite que le gradient adiabatique et ont tendance à continuer leur ascension par des mouvements convectifs (turbulence thermique), tandis qu'elles sont remplacées, près du sol, par des masses d'air froides issues des couches supérieures. Ainsi, le flux de chaleur devient la principale source d'instabilité et les polluants sont mélangés suivant la verticale, sur toute la hauteur de la couche limite.

L'atmosphère est en condition neutre de stabilité lorsque le vent et la nébulosité augmentent. L'intensité des transferts est alors augmentée par la turbulence mécanique générée par le cisaillement entre le sol et le vent. En s'opposant à la formation de

courants de convection, la turbulence mécanique a également pour effet de favoriser le transport horizontal (advection) des polluants.

Les conditions stables sont observées la nuit lorsque le sol refroidit l'air qui est en contact direct avec lui conduisant ainsi à l'atténuation de la turbulence voir même à sa disparition. La turbulence résiduelle devient alors faible et les flux turbulents aussi. Dans ce cas, les masses d'air qui s'élèvent se refroidissent plus vite que le milieu environnant et ont tendance par gravité à redescendre et les polluants émis à la surface ont alors tendance à rester près du sol (Affre, 1997).

La partie de la couche limite en contact direct avec le sol est la couche de surface. Elle représente environ 10 % de la hauteur de la CLA mélangée (Panofsky, 1984) et constitue la couche au sein de laquelle les polluants en champ proche de la source vont se disperser. Dans cette couche, la turbulence ne dépend pas de chaque élément de rugosité mais d'une rugosité globale et les flux turbulents sont considérés comme conservatifs (indépendants de la hauteur). On parle alors de couche à flux constant.

Deux sous-couches sont distinguées. La première, la sous-couche de rugosité, elle est dynamiquement influencée par des échelles de longueurs liées aux rugosités (Raupach, 1994). Elle s'étend du sol à une altitude de 2 à 5 fois la hauteur des rugosités. La seconde couche est la couche inertielle, dans laquelle les flux thermique, de quantité de mouvement ou de masse sont approximativement constants.

En fin de journée, et en l'absence de forçage dynamique, les polluants contenus dans la couche mélangée vont soit sédimenter vers la surface, soit resté piégés dans la couche résiduelle. Cette couche résiduelle peut être stable ou rester turbulente (particulièrement en milieu urbain). La majeure partie des aérosols vont cependant sédimenter après le coucher du soleil, et constituer la couche nocturne. La couche nocturne va avoir tendance à se stabiliser la nuit. En milieu urbain, elle pourra cependant rester neutre, voire instable dans certains cas (sous l'effet du chauffage anthropique nocturne, de processus turbulents très locaux comme des recirculations d'air entre les immeubles) (Turbelin, 2000).

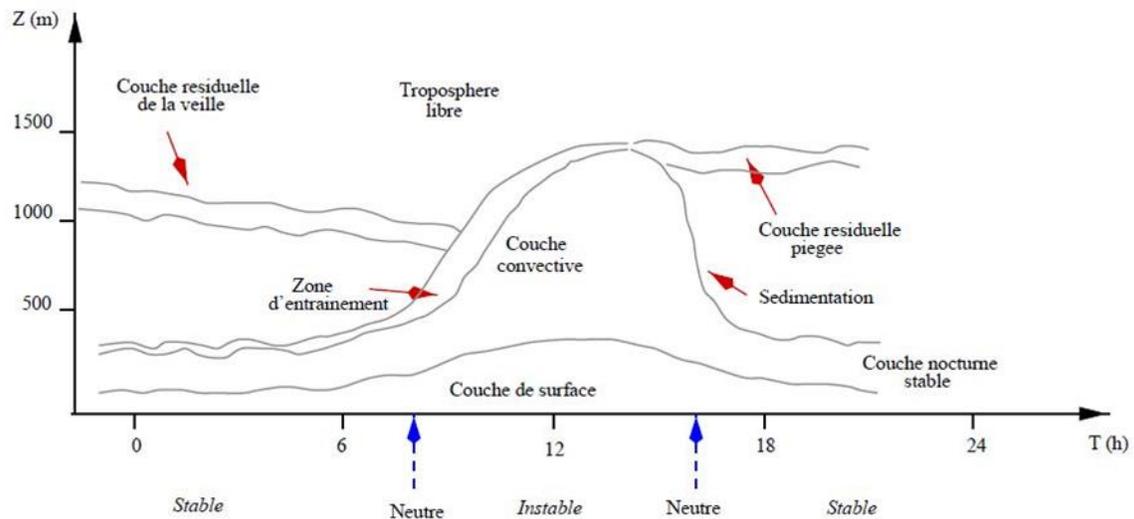


Figure I.4 : Structure de la CLA d'après Stull (1988).

D'autres variations temporelles de la profondeur et de la structure de la couche limite se produisent souvent en raison de l'évolution et du passage des systèmes à échelle méso-échelle et synoptique. Généralement, la couche limite s'amincit sous l'influence d'un affaissement à grande échelle (mouvement vertical vers le bas) et d'une divergence horizontale de bas niveau associée au passage d'un système haute pression (anticyclone).

Les variations spatiales de la profondeur et de la structure de la couche limite se produisent à la suite de changements dans l'utilisation des terres et la topographie de la surface sous-jacente et également en raison des variations spatiales de variables météorologiques à grande échelle (Stull, 2012).

Le gradient de vitesse varie fortement dans la couche de surface tandis qu'il varie peu au-delà de cette couche. De ce fait, la détermination du profil vertical des composantes horizontales de vitesse de vent est un paramètre important pour déterminer la profondeur de la couche de surface.

En condition neutre et sur un site homogène, le profil vertical du vent horizontal suit une loi logarithmique (Tennekes, 1972) qui dépend de la rugosité de surface (Équation I.5) :

$$u(z) = \frac{u_*}{k} \ln \left[\frac{z-d}{z_0} \right]$$

Où $u(z)$ est la vitesse horizontale du vent (m.s^{-1}) à la hauteur de mesure z (m), k est la constante de Von Karman (0,4), u^* est la vitesse de frottement du vent (m.s^{-1}), d est la hauteur de déplacement (m) et z_0 est la longueur de rugosité (m). Costes (1996) définit z_0 comme étant “la hauteur au-dessus du sol à laquelle il convient d’admettre que le vent s’annule pour tenir compte de la présence des aspérités”. Elle caractérise l’influence globale de la sous-couche rugueuse sur le vent et est fonction de la taille, de la forme et de la densité des obstacles qui recouvrent le sol.

Théoriquement, la vitesse du vent s’annule à l’altitude $z = z_0 + d$. On prend généralement d égal à 0 dans les cas des couverts de quelques centimètres de hauteur. En réalité, à proximité de la surface le profil de vitesse ne suit plus une loi logarithmique. Les grandeurs caractéristiques de la turbulence dans la couche de surface sont décrites par la théorie de similitude de Monin and Obukhov (1954). Cette théorie est basée sur l’hypothèse générale selon laquelle la variabilité de structure de la couche de surface peut se traduire par une variation de l’échelle des phénomènes. Si les phénomènes peuvent être représentés sous forme adimensionnelle, ils sont alors identiques. La couche de surface est définie par les paramètres qui sont l’altitude z , les flux au sol (conservatif dans la couche de surface, Stull (1988)), le paramètre de flottabilité $\frac{g}{T_0}$ rapport entre l’accélération de la pesanteur g (m.s^{-2}) et la température de référence T_0 (K), et la masse volumique de l’air ρ . Pour addimensionner les grandeurs, les échelles de vitesse, de température (ou scalaire) et de longueur doivent être définies :

- L’échelle de la vitesse de frottement du vent u^* peut être directement quantifié à l’aide du flux de quantité de mouvement à la surface et la contrainte de cisaillement turbulent suivant l’Équation I.6.

$$u_* = \left[\frac{\tau_0}{\rho} \right]^{\frac{1}{2}} = \left[\frac{\overline{\rho u' w'}}{\rho} \right]^{\frac{1}{2}} = \sqrt{-\overline{u' w'}} \quad \text{Équation I.6}$$

Avec u' et w' qui sont les fluctuations turbulentes des composantes horizontales et verticales du vecteur vitesse (Équation I.1).

- L'échelle de température T_* caractérise la production de turbulence par flottabilité, qui est reliée au flux de chaleur sensible à la surface (H_0).

$$T_* = -\frac{H_0}{\rho C_p u_*} \quad \text{avec} \quad H_0 = \rho C_p \overline{w' T'} \quad \text{Équation I.7}$$

Où C_p est la chaleur spécifique de l'air à pression constante et T' est la fluctuation de température (Équation I.7).

Deux échelles de longueurs sont également définies :

- La hauteur de mesure, z ;
- La longueur de Monin-Obukhov, L (m). Elle établit une relation entre les processus dynamiques, thermiques et la flottabilité, et est proportionnelle à la hauteur de la couche de surface (Foken and Wichura, 1996). L'expression de L (Équation I.8) est la suivante :

$$L = \frac{u_*^2}{k \left(\frac{g}{T_0} \right) T_*} = \frac{-u_*^3}{k \left(\frac{g}{T_0} \right) \overline{w' T'}} \quad \text{Équation I.8}$$

$\frac{g}{T_0}$ étant le paramètre de flottabilité.

L est positive pour un flux de chaleur dirigé vers le bas correspondant à une stratification stable, négative pour une atmosphère convective.

Pour $H_0 = 0$ (cas neutre) $L \rightarrow \infty$. $|L|$ représente l'épaisseur de la couche d'influence dynamique près de la surface où les effets de la contrainte de cisaillement sont prépondérants.

Les effets de flottabilité sont dominants pour $z > |L|$: le rapport $\zeta = z/L$ est un paramètre mesurant l'importance relative des forces de flottabilité par rapport aux contraintes de cisaillement dans une couche limite stratifiée (Mestayer, 2007).

La Figure I.5 représente la relation entre la longueur de Monin-Obukhov et la longueur de rugosité pour différentes classes de Pasquill (Myrup and Ranzieri (1976), cité par Seinfeld and Pandis (1998)). Pasquill distingue six classes de stabilité atmosphérique, définies à partir de la mesure de la vitesse du vent à 10 m, de l'ensoleillement le jour et de la nébulosité la nuit, la stabilité agissant à la fois sur la diffusion verticale et la diffusion horizontale. Les six classes s'échelonnent entre les très fortes et les très faibles turbulences atmosphériques : A très instable, B modérément instable, C légèrement instable, D neutre, E stable et F très stable.

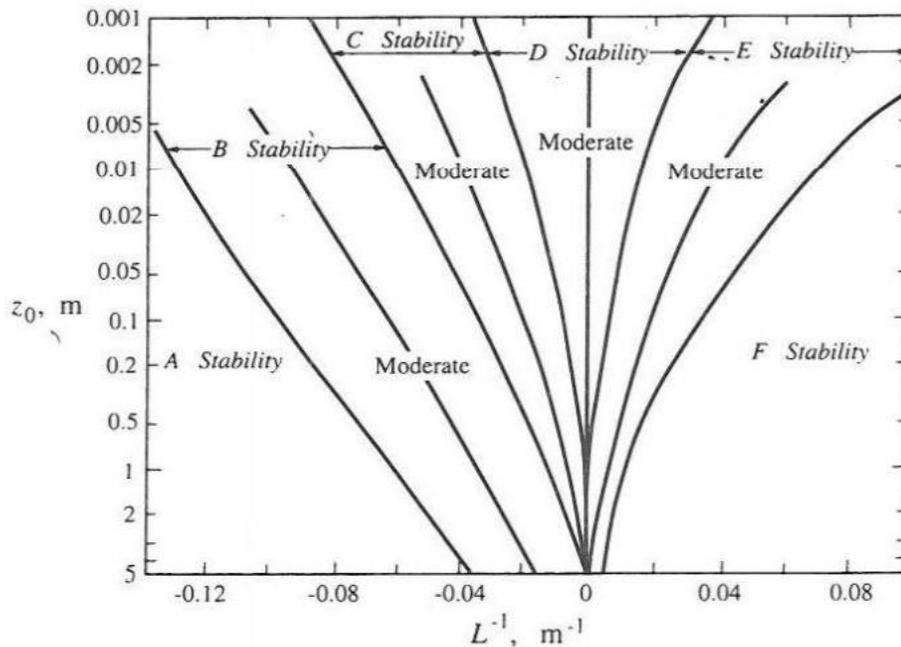


Figure I.5 : Longueur de rugosité en fonction de la Longueur de Monin-Obukhov pour différentes classes de Pasquill (Myrup and Ranzieri (1976), cité par Seinfeld and Pandis (1998)).

Les paramètres de rugosité z_0 et d caractérisant la surface, dépendent de la taille h des éléments rugueux et de leur arrangement géométrique. Pour la végétation, Shaw and

Pereira (1982) ont montré que z_0/h et d/h dépendent de la répartition verticale des surfaces et de l'indice foliaire. Dans certaines études, sont prises arbitrairement $z_0/h = 0,1$ et $d/h = 0,75$ (Raupach (1994), pour des prairies et des couverts agricoles. Dans cette étude, la hauteur de l'herbe étant de quelques centimètres (5 cm), $d = 0$ a été appliquée. z_0 dépend de la nature du substrat et permet d'établir plus précisément les bornes de $1/L$ définissant aussi le régime de stabilité atmosphérique (Golder, 1972).

D'autres échelles peuvent être définies lorsque d'autres scalaires (C) sont étudiés (Équation I.9), comme les concentrations de gaz (CO_2 , ozone, iode, ...) ou d'aérosols :

$$C_* = - \frac{\overline{w'c'}}{u_*} \quad \text{Équation I.9}$$

D'après Monin and Obukhov (1954), les flux adimensionnés sont des fonctions du paramètre ζ (paramètre de stabilité souvent utilisé). Pour $\zeta < 0$, l'atmosphère est instable, lorsque $\zeta > 0$, l'atmosphère est stable. La neutralité est atteinte à $\zeta = 0$. Les flux adimensionnés de la vitesse horizontale du vent (Équation I.10), de la température (Équation I.11) et de tout scalaire passif X (n'ayant pas de vitesse de chute propre) (Équation I.12) s'écrivent de façon générale :

$$\varphi_m(\zeta) = K_m \frac{(z-d)}{u_*} \frac{\partial U}{\partial z} \quad \text{Équation I.10}$$

$$\varphi_h(\zeta) = K_h \frac{(z-d)}{T_*} \frac{\partial T}{\partial z} \quad \text{Équation I.11}$$

$$\varphi_c(\zeta) = K_c \frac{(z-d)}{C_*} \frac{\partial C}{\partial z} \quad \text{Équation I.12}$$

Les fonctions φ sont appelées fonctions flux-profil : elles sont supposées universelles pour toutes les couches de surface. Elles ont été établies et vérifiées empiriquement à partir d'un grand nombre de mesures réalisées sur des surfaces planes et homogènes.

I.5 Vitesse de dépôt sec

Suite à leur émission dans l'atmosphère lors d'un rejet chronique ou accidentel, l'iode gazeux ou les aérosols d'iode peuvent être soumis à des processus tels que :

- la formation ou la coagulation des aérosols ;
- la décroissance radioactive ;
- le dépôt humide ;
- le dépôt sec ;
- la remise en suspension.

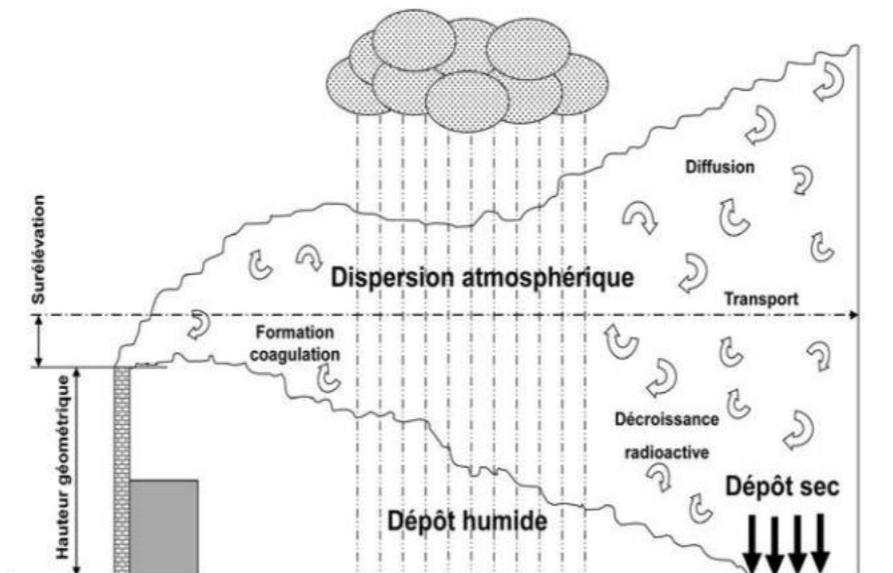


Figure I.6 : Comportement d'un polluant radioactif dans l'atmosphère (Maro, 2013).

La Figure I.6 illustre le comportement d'un polluant (gaz ou aérosol) radioactif dans l'atmosphère suite à un rejet chronique ou accidentel.

L'élimination de ces gaz et aérosols radioactifs de l'atmosphère vers les surfaces, y compris l'eau, le sol et la végétation se fait donc par deux voies. Soit par dépôt humide, l'iode est déposé suite à sa captation au sein d'un nuage (ou « rainout ») et lors des précipitations par rabattement de l'iode par les gouttes de pluie sous le nuage (ou « washout »). Soit par dépôt sec, le dépôt de l'iode proche de la surface se fait selon plusieurs mécanismes physiques en l'absence des précipitations.

Sur la base des modèles atmosphériques existants, il n'est pas pratique de simuler de manière explicite les voies physiques par lesquelles les gaz et particules sont transportés de l'atmosphère jusqu'aux surfaces où ils adhèrent. La formulation universelle (Équation I.13) utilisée pour la détermination de la vitesse de dépôt (V_d) suppose que le flux de dépôt sec vertical (F) est directement proportionnel à la concentration atmosphérique de l'espèce déposée, à la hauteur z au-dessus de la surface (C_z). Le flux de dépôt sec est la quantité de matériau déposé par unité de surface et par unité de temps. Comme C est une fonction de la hauteur z au-dessus du sol, V_d est également une fonction de z et doit être liée à une hauteur de référence à laquelle C est spécifiée. Par convention, un flux ascendant est positif, de sorte que V_d est positive pour une substance en dépôt (Arya, 1999 ; Seinfeld and Pandis, 1998).

$$F = -V_d \times C_z \qquad \text{Équation I.13}$$

I.5.1 Mécanismes de dépôt par temps sec

En ce qui concerne le dépôt par temps sec, le processus de transfert des gaz ou particules vers les surfaces peut être divisé en trois étapes.

La première étape est appelée la composante aérodynamique de transfert. Elle implique la turbulence de la couche de surface qui consiste au transport du matériau à travers la couche superficielle atmosphérique jusqu'au voisinage immédiat de la surface.

La deuxième étape implique le transfert à travers la sous-couche moléculaire autrement appelé sous-couche quasi-laminaire, par diffusion moléculaire pour les gaz et par diffusion Brownienne, interception ou impaction pour les particules. La sous-couche quasi-laminaire est une couche très mince d'épaisseur de l'ordre du millimètre. Elle tire son nom du fait qu'un écoulement laminaire lisse et profilé ne peut s'établir sur une surface aérodynamiquement rugueuse irrégulière.

La dernière étape, appelée le composant de transfert de substrat, implique l'absorption réelle des molécules ou particules par les surfaces et leur élimination par des processus physiques, chimiques et biologiques. Cependant, cette étape n'inclue pas tous les gaz. Par exemple, les gaz non réactifs tels que l'argon et l'hélium ne sont pas éliminés par

dépôt sec. Les gaz peuvent être adsorbés de manière irréversible ou réversible dans la surface tandis que les particules adhèrent simplement. Étant donné que la solubilité et la réactivité chimique peuvent affecter l'absorption du polluant à la surface, la quantité d'humidité sur la surface est un facteur important à cette étape. Ainsi, les propriétés de surface sont également très importantes dans cette phase finale du processus de dépôt. Pour un couvert végétal, l'indice de surface foliaire (LAI) est une bonne mesure de la structure du couvert végétal. Pour les gaz solubles, tels que le SO_2 et l' O_3 , la présence d'humidité de surface peut avoir un effet marqué sur l'élimination ou non de la molécule. Pour les gaz très solubles et chimiquement actifs, tels que le HNO_3 , le dépôt est rapide et irréversible sur presque toutes les surfaces (Arya, 1999 ; Seinfeld and Pandis, 1998).

1.5.2 Méthodes de mesure du dépôt sec

Plusieurs techniques utilisées pour mesurer les dépôts secs sont rapportées (Businger, 1986 ; Cetin and Odabasi, 2007 ; Fowler et al., 2009 ; Gallagher et al., 1997 ; McMahon and Denison, 1979 ; Nemitz, 2015 ; Nicholson, 1988 ; Petroff et al., 2008 ; Pryor et al., 2008b ; Ruijrok et al., 1995 ; Sehmel, 1980 ; Sievering, 1989 ; Sportisse, 2007 ; Tasdemir et al., 2004 ; Zhang and Vet, 2006 ; Zufall and Davidson, 1998). Les méthodes détaillées ici n'englobent pas l'ensemble des techniques existantes mais permettent d'aborder les principales méthodes de mesure. Suivant la nature des espèces chimiques et la complexité du terrain, l'applicabilité à différentes échelles spatiales et temporelles d'une technique est privilégiée par rapport à une autre.

Les différentes techniques peuvent être classées en deux groupes ; les méthodes directes et les méthodes indirectes. Les méthodes directes consistent à déterminer de façon explicite le flux de matière vers la surface soit en collectant la matière déposée sur la surface elle-même ou en mesurant le flux vertical dans l'air près de la surface. Elles impliquent moins d'hypothèses mais exigent plus d'efforts dans l'acquisition des données micrométéorologiques (Balducchi et al., 1988 ; Businger, 1986 ; Erisman, 1993a, b). Les méthodes indirectes quant à elles passent par des mesures de grandeurs secondaires, telles que la concentration moyenne ou des gradients verticaux de la concentration moyenne du composé déposé pour ensuite relier ces quantités au flux.

Ces différentes méthodes sont décrites de façon générale sans distinction entre les formes gazeuses et particulaires.

I.5.2.1 Méthodes directes

I.5.2.1.1 Mesures par accumulation

Cette technique consiste à quantifier l'espèce chimique concernée dans les surfaces. Les surfaces de collectes utilisées pour quantifier l'espèce déposée peuvent être artificielles ou naturelles. En ce qui concerne les aérosols, l'utilisation des surfaces artificielles facilite l'extraction des composés pour leur analyse. Cependant, les flux mesurés sur ces dernières ne correspondent pas forcément à ceux qu'on pourrait trouver sur des surfaces naturelles à cause de leur représentativité (forme, rugosité) qui peut être différente de celle des substrats artificiels (Davidson et al., 1985 ; Zhang and Vet, 2006). De ce fait, l'utilisation des substrats naturels semble être plus appropriée. Ainsi, les composés déposés sur les surfaces sont extraits et analysés afin de déduire les vitesses de dépôt correspondantes.

I.5.2.1.2 Méthode par Eddy Accumulation

La méthode par Eddy Accumulation permet d'estimer le flux de dépôt en mesurant la différence de concentration entre l'air en mouvement ascendant et l'air descendant (Wesely and Hicks, 2000). Pour cela, un échantillonnage d'air est effectué proportionnellement à la vitesse du courant ascendant et descendant. En ce qui concerne les aérosols, l'air est collecté sur deux filtres séparés (ou dans des conteneurs) pour que suivant la vitesse verticale, un filtre collecte l'air pour les vitesses verticales positives et l'autre filtre collecte l'air pour les vitesses verticales négatives. A partir des données accumulées au fil du temps, la concentration moyenne de courant ascendant est soustraite de la concentration moyenne descendante et les résultats sont utilisés pour calculer le flux net (Balducchi et al., 1988 ; Businger, 1986 ; Hicks and McMillen, 1984).

I.5.2.1.3 Mesure par corrélation turbulente

La méthode par corrélation turbulente est l'une des techniques les plus utilisées pour déterminer de façon directe les flux de dépôt sec (Wesely et al., 1982). Elle est

basée sur les mesures des fluctuations du vent et des concentrations de l'espèce étudiée afin d'obtenir les valeurs des flux verticaux associés. Pour cela, l'échantillonnage de la vitesse verticale instantanée du vent w et de la concentration instantanée du composé C sont effectuées de façon rapide, c'est-à-dire supérieur à 1 Hz (Businger, 1986). Ces mesures doivent être effectuées dans le respect des conditions de stationnarité de la vitesse verticale du vent et de la concentration du composé sur la période d'échantillonnage (Damay, 2010b ; Pearson Jr and Stedman, 1980). Elles doivent être faites sur des surfaces planes et homogènes pour chaque couvert (Damay, 2010b ; Petroff et al., 2008 ; Pryor et al., 2008a). La covariance de la vitesse verticale du vent w' et la concentration instantanée du composé C' issues de ces mesures sont ensuite utilisées pour calculer le flux turbulent vertical moyenné dans le temps F suivant l'Équation I.14.

$$F = \overline{-w'C'} \quad \text{Équation I.14}$$

I.5.2.2 Méthodes indirectes

I.5.2.2.1 Méthode du gradient

La méthode du gradient permet d'estimer le flux turbulent en mesurant le gradient vertical de la substance de dépôt. Pour cela, la concentration du composé C est déterminée à deux hauteurs différentes, un niveau haut et un niveau bas. Le choix de ces hauteurs est très important pour avoir des valeurs de C relativement précises parce que si la vitesse de dépôt est faible, la différence entre ces valeurs peut être très faible. Par exemple, pour une vitesse de dépôt de $0,2 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ et un u^* de $0,4 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, les concentrations à 2 m et 4 m au-dessus de la surface ne différeront que de 1 % dans les conditions neutres. Dans cette méthode, le flux turbulent est ensuite déduit en faisant intervenir la concentration C du composé à la hauteur de prélèvement z et un coefficient de diffusion turbulente D_T (Panofsky and Dutton, 1984) selon l'Équation I.15.

$$F = -D_T \frac{dC}{dz}$$

Équation I.15

La précision des valeurs de C aux différentes hauteurs étant nécessaire, l'utilisation d'un seul détecteur pour la substance étudiée au moment de l'échantillonnage de l'air est recommandée, par exemple une sonde d'échantillon mobile avec un mécanisme qui bascule entre l'échantillonnage.

I.5.2.2.2 Méthode inférentielle

La méthode inférentielle permet de calculer le flux de dépôt sec d'une substance suivant l'Équation I.13, donc en impliquant les concentrations ambiantes de cette dernière à une hauteur de référence particulière et sa vitesse de dépôt supposée représentative de la surface locale. Le calcul du flux de dépôt est ainsi basé sur l'application directe de cette dernière équation. Ainsi, les flux calculés dépendent de la validité des estimations des vitesses de dépôt (Seinfeld and Pandis, 1998).

1.5.3 Vitesses de dépôt sec de l'iode gazeux

En général les vitesses de dépôt des gaz sont influencées par la réactivité chimique vis-à-vis de la surface, y compris l'eau et la végétation. La pression partielle des gaz près de la surface et la diffusivité moléculaire déterminent leur vitesse de diffusion à travers la sous-couche moléculaire. Mais le dépôt ne se produira uniquement à la suite de l'absorption à la surface, du transfert moléculaire à travers le matériau du substrat et des processus biologiques se déroulant dans les stomates des feuilles des plantes. Ainsi, en plus de la température et de l'humidité de l'air qui peuvent influencer la réactivité chimique de l'iode, pour un couvert végétal, l'indice de surface foliaire est une bonne mesure de la structure du couvert végétal (Arya, 1999 ; Seinfeld and Pandis, 1998).

Le Tableau 1.7 présente une partie des vitesses de dépôt sec de l'iode sous forme gazeuse rapportées dans la littérature. Il est important de mentionner que ce dernier n'est en aucun exhaustif et représente des exemples de vitesses de dépôt d'iode inorganique (I_2) et organique ($I(CH_3)$) issues des mesures d'iode stable et d'iode radioactif (^{129}I , ^{131}I). Ces vitesses de dépôt ont été mesurées sur une gamme de surface différente à la fois dans l'environnement extérieur et intérieur (chambre climatique). Elles varient globalement entre $5,4 \times 10^{-4}$ et $26 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$, tandis qu'une vitesse de dépôt de $1 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ est suggérée dans la plupart des modèles correspondant ainsi à une dispersion des données sur plusieurs ordres de grandeurs. Ces différences s'expliquent par le fait que les vitesses de dépôt des gaz sont influencées par divers facteurs physiques, chimiques et biologiques. L'influence de la nature chimique de l'espèce déposée est discutée pour l'ensemble des formes d'iode présentées. Cependant, étant donné que cette étude se rapporte à l'iode sous forme I_2 , l'étude de l'influence de la surface de dépôt et des variables météorologiques est limitée à l'iode sous forme I_2 .

Tableau I.7 : Vitesses de dépôt sec de l'iode sous forme gazeuse.

Surface de dépôt	u* (m.s ⁻¹)	Stabilité atmosphérique	Vitesse de dépôt sec (cm.s ⁻¹)	Référence
Prairie	0,4	Instable	1,0	(Zimbrick and Voilleque, 1969)
Prairie	0,6	Instable	0,7	
Prairie	0,6	Instable	0,6	
Prairie	0,6	Instable	1,2	
Prairie	0,4	Stable	0,1	
Prairie	0,1	Stable	0,2	
Prairie			7,2 ± 0,9	
Eau			0,2-1,2	Allen and Neff (1975)
Plaque contre la retombée de charbon actif :				Bunch (1968); Markee Jr (1971); Zimbrick and Voilleque (1969)
Laps			0,38-0,87	
Inversion			0,03-0,30	
Neige neutre			(0,085-0,41) : valeur médiane 0,34	Bunch (1968)
Herbe de blé à crête en plein air :		Instable	(0,033-4,2) : valeur médiane 0,85	Bunch (1968)
Humide			0,15 (0,033-0,66)	
Humide			0,1 (0,019-0,225)	
Herbe de prairie mixte, sèche et poussiéreuse :			Valeur médiane ± écart (gamme)	
sec		Instable	1,2 ± 1,6 (0,66-3,4)	
sec		Instable	1,0 ± 1,2 (0,42-3,2)	

Tableau I.7 : (suite).

Surface de dépôt	u^* (m.s ⁻¹)	Stabilité atmosphérique	Vitesse de dépôt sec (cm.s ⁻¹)	Référence
en croissance		Instable	0,61 ± 1,6	
en croissance		Instable	0,79 ± 2,0 (0,15-6,2)	
en croissance		Neutre	0,79 ± 1,5	
verdure		Stable	3,3 ± 3,3 (1,4-26)	
verdure		Stable	0,087 (0,021-0,41)	
fraîchement tondu		Stable	1,7 ± 2,6 (0,21-6,2)	
fraîchement tondu		Stable	0,41 (0,26-4,8)	
fraîchement tondu		Stable	0,23 (0,025-0,5)	
Herbe			1,2-3,8	Chamberlain (1953)
Herbe			0,9-1,6	Chamberlain and Chadwick (1966a)
Champ ($z_0 = 0,01-0,05$) :	0,15-0,48			Chamberlain (1960)
Herbe + sol			1,1-2,6	
Feuilles			0,3-1,3	
Feuilles de papier			0,6-2,0	
Papier dans une boîte de pétri			0,3-0,9	
Champ de graminées			0,3-0,6	Cline et al. (1965)
Champ :				Fields (1960)
Herbe			0,5-4,0	

Tableau I.7 : (suite).

Surface de dépôt	u^* (m.s ⁻¹)	Stabilité atmosphérique	Vitesse de dépôt sec (cm.s ⁻¹)	Référence
Champ :				Fields (1960)
Herbe			0,5-4,0	
Papier collant			0,02-0,90	
Accident nucléaire :				Gifford and Pack (1962)
1 km			0,25	
8,5 km			0,21	
67 km			0,23	
Graminées de pâturage			0,4-1,1	Hawley Jr (1964)
Rejets de routine, Handford			2,8	Parker (1955)
Herbe	0,10-0,69		0,3-2,7	Heinemann et al. (1974)
Herbe			0,12-8,0	Heinemann et al. (1976)
surface sèche			0,3-2,8	
surface humide			0,9-6,3	
Trèfle			1,0-4,2	
Graminées de pâturage			0,2-1,2	Markee (1967)
			Fonction de la densité de l'herbe	
Champ			2,2	Megaw and Chadwick (1956)
Accident de Windscale				Stewart and Crooks (1958)
Nord de l'Angleterre			0,30	
Sud de l'Angleterre			0,11	
Herbe			0,12-6,9	Vogt (1976)
Herbe de prairie mixte			2,1-2,4	Zimbrick and Voilleque (1969)

Tableau I.7 : (suite).

Surface de dépôt	u^* (m.s ⁻¹)	Stabilité atmosphérique	Vitesse de dépôt sec (cm.s ⁻¹)	Référence
Herbe			0,8	Chamberlain (1959)
Herbe			1,8	Chamberlain and Chadwick (1966a)
Herbe			2,0	Heinemann and Vogt (1980)
Herbe, chambre climatique			$5,0 \times 10^{-4}$ - $3,3 \times 10^{-3}$	Karunakara et al. (2018)
Feuille d'haricot, chambre climatique			$5,4 \times 10^{-5}$	Singhal et al. (2004)
Iode avec HIO ₃ , HIO ₄ et iodures organiques :				Miyanaga et al. (1973)
sol			$2,7 \times 10^{-2}$	
sable			$2,5 \times 10^{-3}$	
eau			$1,0 \times 10^{-3}$	
“zone foliaire”				
aiguille de pin			$2,0 \times 10^{-3}$	
betterave à feuilles			$2,1 \times 10^{-3}$	
épinard			$1,1 \times 10^{-3}$	
chou chinois			$7,0 \times 10^{-4}$	
ICH ₃ , herbe de prairie			$1,4 \times 10^{-4}$ - $2,4 \times 10^{-3}$	Atkins et al. (1967)
ICH ₃ , plaque anti-retombée de charbon actif			0,12	Bunch (1968)
ICH ₃ , herbe de prairie mixte			10^{-4} - 10^{-2}	Bunch (1968)
ICH ₃ , herbe de prairie mixte			(< 0,05 % de celle de d'iode moléculaire)	Zimbrick and Voilleque (1969)

1.5.3.1 Influence des formes d'iode

Les processus de dépôt sont influencés par les propriétés physiques de l'espèce qui se dépose. Par rapport aux espèces chimiques d'iode présentées dans le Tableau 1.7, les vitesses de dépôt sec d'I₂ mesurées sur l'herbe dans l'environnement extérieur varient entre 0,02 et 26 cm.s⁻¹. Pour le même couvert végétal, elles sont largement supérieures à celles de l'iode organique sous forme ICH₃ qui sont comprises entre 10⁻⁴ et 10⁻² cm.s⁻¹. D'autres études rapportent que la vitesse de dépôt sec d'I₂ est supérieure à celle d'ICH₃ d'environ 200 fois (Atkins et al., 1967 ; Katagiri et al., 1997 ; Muramatsu et al., 1996). Cependant, une estimation beaucoup plus élevée de V_d pour l'ICH₃ (0,2 cm.s⁻¹) (Oram and Penkett, 1994) a été calculée pour le dépôt d'ICH₃ sur un champ de blé. L'étude conclue que la contribution d'ICH₃ au dépôt d'iode est faible (< 3 % du dépôt total d'iode) (Baker et al., 2001). Même lorsque l'iode est sous forme inorganique, pour la même surface de dépôt, des écarts peuvent exister entre les différentes formes d'iode (I₂ et HOI par exemple). Une étude réalisée sur des feuilles de tournesol a montré que la vitesse de dépôt sec d'I₂ était 10 fois supérieure à celle de HOI. Ces différents exemples montrent que la forme de l'iode a une grande influence sur la vitesse de dépôt sec de l'iode gazeux.

1.5.3.2 Influence de la surface de dépôt

Suite à une exposition de rats sans poils, de vêtements, de cheveux humains, du papier filtre et de l'eau à de l'iode émise sous forme I₂ dans une chambre en verre pendant 60 à 120 minutes, les vitesses de dépôt sec d'I₂ mesurées dans la chambre allaient de 0,006 cm.s⁻¹ sur le papier filtre et l'eau à environ 0,05 cm.s⁻¹ sur la peau et les vêtements. La dispersion de ces données sur un ordre de grandeur montre que les V_d sont variables d'une surface à une autre (Hou, Andersson et al. 2007). Les vitesses de dépôt sec d'I₂ présentées dans le Tableau 1.7 varient selon le type de surface de dépôt. Par exemple, les vitesses de dépôt d'I₂ mesurées sur l'eau sont comprises entre 0,2 et 1,2 cm.s⁻¹ tandis que celles mesurées sur la neige varient entre 0,085 et 0,41 cm.s⁻¹. Sur un papier placé à l'intérieur d'une boîte de pétri, elles sont comprises entre 0,3 et 0,9 cm.s⁻¹. Même pour le même type de surface, l'indice de surface foliaire peut influencer les V_d. A titre d'exemple, lorsque l'herbe est en pleine croissance, les vitesses de dépôt sec d'I₂ varient entre 0,087 et 26 cm.s⁻¹. Elles sont plutôt faibles

(0,025-6,2 cm.s⁻¹) lorsque l'herbe est fraîchement tondu. La Figure I.7 présente les vitesses de dépôt sec d'I₂ pour divers types de surface.

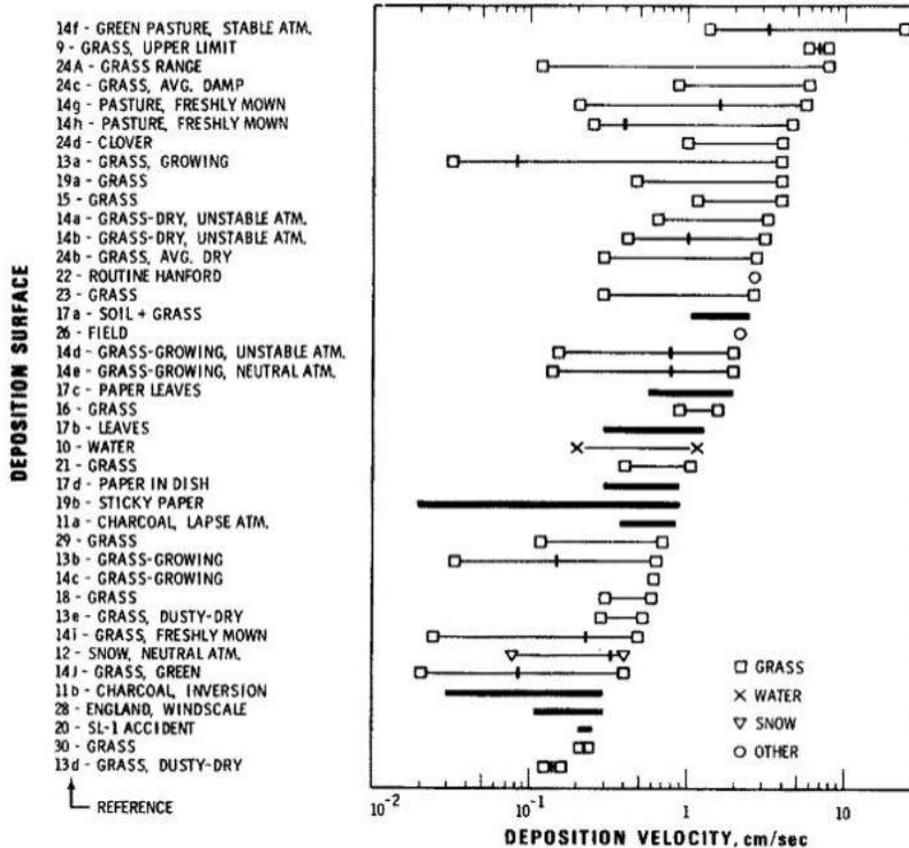


Figure I.7 : Résumé des vitesses de dépôt sec d'I₂ trouvées sur plusieurs types de surface de dépôt (d'après Sehmel (1980)).

Toutes ces différences sont dues d'une part par le fait que le dépôt sec d'I₂ peut être différent d'une surface à une autre et d'autre part d'une structure à une autre. Par exemple, pour des vents violents les brins d'herbe se plient à partir de leur orientation. De plus la surface disponible dans un couvert végétal décrite par un indice de surface foliaire est toujours plus grande que celle du sol tandis que pour les prévisions du dépôt sec d'I₂ calculé à partir du produit de la concentration dans l'air par la vitesse de dépôt, cette prévision est basée sur la surface du sol plutôt que sur la surface totale dans le couvert végétal. Les indices de surfaces foliaires sont d'environ 0,5 pour les prairies naturelles, jusqu'à 3 pour les prairies irriguées et fertilisées (Knight, 1973).

En ce qui concerne la végétation, le dépôt sec d'I₂ est fonction de l'espèce de plante et de son état physiologique. A titre d'exemple, Heinemann and Vogt (1980) ont observé une vitesse de dépôt sec d'I₂ sur le trèfle qui était au moins le double de celle sur l'herbe, probablement en raison des différences des propriétés de surface, dont l'angle des feuilles. La même observation est faite par Tschiersch et al. (2009) lors de l'étude du dépôt sec d'I₂ sur six espèces de légumes feuilles (épinards, laitue, endive, chou, chou frisé) en concluant qu'il y avait une grande variabilité inter-espèce, où l'indice de surface foliaire n'est pas nécessairement déterminant. Le transfert d'I₂ dans la végétation dépend du fait que les stomates présents à la surface des feuilles sont ouverts ou fermés, c'est-à-dire ouverts le jour et fermés la nuit (Bennett and Hill, 1975). Markee Jr (1971) a démontré que la sorption d'I₂ par l'herbe était environ 2,5 fois plus important quand les stomates étaient pleinement ouverts que quand ils étaient fermés. Dans certaines expériences de terrain, la sorption d'I₂ par les stomates est d'environ 60 % tandis que 40 % d'I₂ est absorbé à la surface.

Certains auteurs suggèrent que la vitesse de dépôt d'I₂ est constante pour chaque type de surface mais qu'elle varie suivant les saisons de l'année (été et hiver) et l'heure du jour (jour et nuit). Les vitesses de dépôt maximales (V_{dmax}) qu'ils proposent pour le sol et la végétation sont présentées Tableau I.8. Pour les zones forestières ou semi-forestières, V_d est supposée proportionnelle à l'indice de surface foliaire. Par conséquent, pour chaque type de surface foliaire, $V_d = V_{dmax} \times \frac{LAI}{LAI_{max}}$, où LAI est l'indice de surface foliaire au moment du dépôt et LAI_{max} est l'indice de surface foliaire à la période où le feuillage est pleinement développé (d'après Müller and Pröhl (1993), cité par Baklanov and Sørensen (2001)).

Tableau I.8 : Vitesses de dépôt sec d'I₂ sur divers types de surfaces (d'après Müller and Pröhl (1993), cité par Baklanov and Sørensen (2001)).

Type de surface	V _d (cm.s ⁻¹)
Sol	0,3
Herbe	0,15
Arbres	5
Autres plantes	2

I.5.3.3 Influence des paramètres météorologiques

- Influence de l'humidité relative

Barry and Chamberlain (1964) ont trouvé que la rétention d'I₂ à la surface des feuilles par absorption augmente avec l'humidité atmosphérique. D'autres études réalisées par Tschiersch et al. (2009) ont montré que le dépôt sec d'I₂ sur des surfaces humides (herbe, trèfle) était supérieur d'un facteur 2 au dépôt sur les surfaces sèches. Une étude du dépôt d'I₂ réalisée sur des feuilles de haricot pour de larges gammes d'humidité, de température et de luminosité a montré que la résistance stomatique contrôle l'absorption d'I₂ pour les humidités inférieures à 40 % tandis que lorsque l'humidité s'élève à 80 %, le taux d'absorption croit d'un ordre de grandeur, sans doute via l'absorption cuticulaire (Garland and Cox, 1984). Dans ce cas, le dépôt n'est collecté que sur la surface supérieure, et est fonction de la structure de la canopée.

- Influence de la turbulence atmosphérique

A l'égard des vitesses de dépôt sec de SO₂ mesurées sur l'herbe et la neige dans des conditions neutres plus élevées que dans des conditions stables (Whelpdale and Shaw, 1974), Bunch (1968) déduit qu'il y a des indications suivant lesquelles le dépôt sec des gaz y compris celui d'I₂ serait fonction de la stabilité atmosphérique. Concernant I₂, ces hypothèses ont été confirmées à partir des expériences réalisées en laboratoire (environnement intérieur ou chambre climatique), où Karunakara et al. (2018) ont trouvé des vitesses de dépôt sec comprises entre 5×10^{-4} et $3,3 \times 10^{-3}$ cm.s⁻¹ à partir d'émission d'¹²⁷I sous forme I₂ (Figure I.8) sur de l'herbe tandis que sur

des feuilles d'haricot Singhal et al. (2004) ont trouvé des vitesses de dépôt sec d' $^{131}\text{I}_2$ de $5,4 \times 10^{-5} \text{ cm.s}^{-1}$.



Figure 1.8 : (a) Chambre environnementale (ou chambre climatique) avec de l'herbe, (b) herbe exposée à une concentration d' ^{127}I sous forme I_2 (d'après Karunakara et al. (2018)).

Ces valeurs sont de plusieurs ordres de grandeur plus faibles que les vitesses de dépôt sec d' I_2 trouvées dans l'environnement extérieur ($0,02\text{-}26 \text{ cm.s}^{-1}$) (Sehmel, 1980). Ces différences résultent du fait que dans l'environnement extérieur les dépôts sont contrôlés par la turbulence atmosphérique.

La vitesse de frottement du vent est un paramètre météorologique important qui affecte la vitesse de dépôt sec d' I_2 parce qu'il permet de décrire le profil de la vitesse de vent au-dessus des différentes surfaces (Sehmel, 1980). Des expériences réalisées par Chamberlain (1960) ont montré que les vitesses de dépôt d'iode étaient fonction de la vitesse de frottement du vent. Ces expériences ont été réalisées sur un terrain dont la végétation était principalement composée d'un mélange d'herbes et d'espèces à feuilles larges telles que le pissenlit et le trèfle. La moyenne des vitesses de frottement du vent était de $0,4 \text{ cm.s}^{-1}$ (à 6 m). Au cours de ces expériences de l' $^{127}\text{I}_2$ et d' $^{131}\text{I}_2$ ont été libérés à partir de 50 mg d' ^{127}I et 30 mc d' ^{131}I , respectivement. L'iode était libéré à 50 cm au-dessus du sol au vent d'un certains nombres d'échantillons disposés en deux

arcs, un à 50 m et l'autre à 100 m du point d'émission. D'autres échantillons étaient placés les uns près des autres, au centre du champ, à 50 m du point d'émission. Pour des conditions moyennes, les résultats des vitesses de dépôt d'iode mesurées sur l'herbe sont : expériences sur le terrain (^{131}I), $V_d = 1,5 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$; analyse des données de retombées (^{131}I), $V_d = 0,5 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$; analyse des mesures d' ^{127}I , $V_d = 0,16 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ (Chamberlain, 1953, 1960 ; Sehmel, 1980). Sur la période de novembre-septembre 1961, l'auteur estime que la vitesse de dépôt d' I_2 à la vitesse de frottement moyenne ($0,4 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$) serait de $1 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$. Cependant, sans certitude l'auteur mentionne qu'une proportion importante d'iode provenant des retombées des essais nucléaires serait sous forme particulaire.

Sur la base des résultats de la surveillance de la radioactivité dans l'environnement, à l'ingénierie du cycle du combustible nucléaire par les laboratoires de l'Agence Japonaise de l'Energie Atomique suite à l'accident nucléaire de Fukushima Dai-ichi, les vitesses de dépôt d' ^{131}I au sol ont été déterminées. Elles varient en fonction des rapports des formes gazeuses et particulaires. Lorsque les rapports ^{131}I gazeux/ ^{131}I particulaire étaient de 2,6 et 1,2, les vitesses de dépôt sec d' ^{131}I étaient de $0,26 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ et $0,57 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$, respectivement. Les vitesses V_d étaient également fonction des conditions météorologiques dont la vitesse de frottement du vent (Takeyasu and Sumiya, 2014).

La vitesse de dépôt sec d' I_2 sur la végétation, mesurée par des expériences sur le terrain au centre de recherche nucléaire de Julich (Allemagne) peut être décrite par une équation semi-empirique comme proportionnelle à la vitesse de frottement du vent. Sur les surfaces d'herbe, la valeur moyenne calculée sur la période de pâturage a été estimée à $2 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$.

En somme, sur la base des vitesses de dépôt sec d' I_2 présentées dans cette revue, celles mesurées sur l'herbe dans l'environnement extérieur sont comprises entre $0,02$ et $26 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ correspondant à une dispersion des données sur trois ordres de grandeur, sans qu'aucune paramétrisation en fonction des variables météorologiques (vitesse de frottement, flux de chaleur sensible,...) et des propriétés de surface de l'herbe (résistance stomatique, LAI,...) ne soit effectuée, tandis qu'une V_d de $1 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ est

utilisée dans la plupart des modèles pour calculer le dépôt sec d'I₂. Ces valeurs montrent que le choix de 1 cm.s⁻¹ comme V_d dans les modèles peut entraîner des incertitudes allant de 10⁻¹ à 10 cm.s⁻¹.

Afin de réduire ces incertitudes dans les modèles, les mécanismes de dépôt sec d'I₂ tenant compte des propriétés de surface de l'herbe doivent être connus pour différentes conditions météorologiques.

1.6 Conclusion

L'introduction sur les sources d'émission d'iode dans l'environnement et les notions sur son comportement, dont les mécanismes et processus incluant plusieurs compartiments (milieu marin, atmosphère, sol et végétation) et leurs interactions a permis de montrer la complexité du cycle biogéochimique de l'iode. L'¹²⁷I est principalement retrouvé dans le milieu marin sous forme d'iodates (IO₃⁻) et d'iodures (I⁻). Sa volatilisation du milieu marin et son transport dans l'atmosphère est la source principale de l'iode stable dans le milieu terrestre. Il a été montré que les rejets accidentels et chroniques étaient les principales sources d'iode radioactif dans l'environnement.

Les échanges entre l'atmosphère et les surfaces sont favorisés par la turbulence atmosphérique. La compréhension de cette dernière notion présentant la couche limite atmosphérique et surtout la couche de surface (couche à flux constant) est essentielle pour comprendre ces échanges. Lors de ces échanges, le dépôt par temps sec de l'iode est caractérisé par une vitesse de dépôt sec. La description des processus de dépôt sec a permis d'identifier l'ensemble des paramètres (paramètres météorologiques, propriétés de surface du couvert végétal, ...) susceptibles d'influencer les vitesses de dépôt sec d'iode.

Enfin, une revue présentant les vitesses de dépôt sec d'I₂ (0,02-26 cm.s⁻¹) a montré des différences de ces dernières par rapport à la valeur utilisée dans la plupart des modèles (1 cm.s⁻¹), allant jusqu'à deux ordres de grandeur sans qu'une paramétrisation en fonction des paramètres météorologiques (vitesse de frottement du vent, flux de

chaleur sensible, température, humidité, ...) ou des propriétés de surface de l'herbe (résistance stomatique, indice de surface foliaire, ...) ne soit effectuée.

CHAPITRE II : DETERMINATION EXPERIMENTALE DE LA VITESSE DE DEPOT SEC DE L'IODE ELEMENTAIRE GAZEUX

II.1 Introduction

Ce chapitre est consacré à la mise au point de la méthode de mesure de la vitesse de dépôt sec de l'iode moléculaire gazeux dans l'environnement. Il est composé de quatre parties ; la première traite la technique d'émission d'iode dans l'environnement, la quantification des concentrations d'iode émis dans l'air et sur les surfaces et la détermination des vitesses de dépôt correspondantes. La Figure II.1 illustre la position du dispositif expérimental d'émission d'I₂ par rapport aux échantillons de prélèvement.

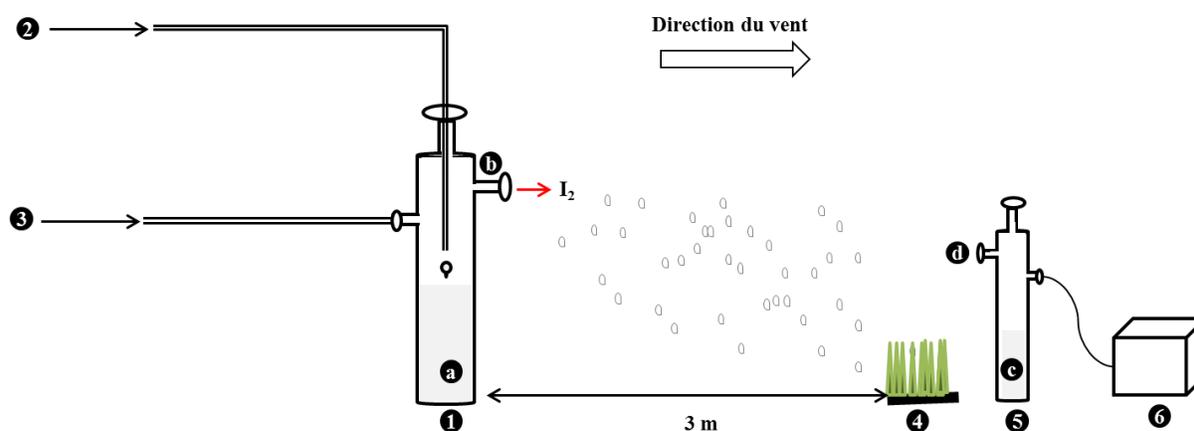


Figure II.1 : Représentation schématique de l'émission d'iode stable dans l'atmosphère à l'aide du dispositif expérimental d'émission d'I₂. 1 : flacon générateur d'iode contenant un mélange d'acide et d'oxydant (a), et équipé d'un filtre à la sortie du générateur (b) ; 2 : voie d'injection d'iodure goutte à goutte ; 3 : voie d'injection d'air à l'aide d'une bouteille d'air comprimé ; 4 : échantillon d'herbe ; 5 : flacon de piégeage d'I₂ équipé d'un filtre à l'entrée (d) et contenant 100 ml de NaOH (0,5 N) (c) ; 6 : pompe d'aspiration d'air à 2 L.min⁻¹.

La deuxième partie est consacrée à l'analyse à l'échelle du couvert végétal, déterminée par la mesure de l'indice de surface foliaire. La troisième partie traite l'acquisition des

données micrométéorologiques. L'acquisition de l'ensemble des données est réalisée sur trois campagnes de mesures. La première étant une campagne de mise au point du protocole d'émission d'iode dans l'atmosphère et de quantification des vitesses de dépôt d'iode. Elle a été réalisée en juillet 2018 (MIOSEC 1). Les deux autres campagnes ont été réalisées en fin septembre 2018 (MIOSEC 2) et en juin 2019 (MIOSEC 3).

II.2 Mise au point de la méthodologie

II.2.1 Calcul des vitesses de dépôt sec de l'iode élémentaire gazeux

La méthode de calcul des flux de dépôt sec est l'une des techniques de détermination des vitesses de dépôt sec d'un gaz. Le flux de dépôt sec (Équation II.1) d'un gaz est calculé en rapportant la concentration moyenne du gaz déposé sur la surface évaluée par unité de temps. La concentration moyenne du gaz déposé étant la moyenne des valeurs instantanées de la quantité de gaz déposé, la moyenne doit être évaluée sur une durée suffisante afin d'incorporer toutes les échelles de variation contribuant au flux et obtenir une estimation stable et représentative des conditions micrométéorologiques. Pour cela, la durée ne doit pas excéder 1 h. La vitesse de dépôt sec du gaz est ainsi calculée en faisant le rapport du flux de dépôt sec du gaz à la concentration atmosphérique moyenne du gaz au-dessus de la surface.

Si $\overline{C_d}$ ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}$) est la concentration moyenne d'iode déposé par unité de surface d'herbe sur un intervalle de temps t (s), correspondant au temps d'émission d'iode dans l'atmosphère, $\overline{C_z}$ ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) est la concentration atmosphérique moyenne à la hauteur (z) à laquelle l'air est prélevé au-dessus des surfaces d'herbe, la vitesse de dépôt sec de l'iode sur l'herbe (V_d) est calculée suivant l'Équation II.2.

$$F = -\overline{C_d}/t \quad \text{Équation II.1}$$

F est le flux de dépôt sec de l'iode ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$). Conventionnellement, lorsqu'un gaz émis dans l'atmosphère est déposé sur les surfaces, on parle de flux de dépôt et un signe négatif est attribué à F , contrairement à l'émission du gaz des surfaces vers l'atmosphère au cours duquel un signe positif est attribué à F (Seinfeld and Pandis, 2016).

$$V_d = -F/\overline{C_z} \quad \text{Équation II.2}$$

La détermination des vitesses de dépôt sec (Équation II.2) de l'iode sur l'herbe ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) nécessite donc la mesure des concentrations atmosphériques d'iode et des

concentrations d'iode déposé sur les surfaces étudiées. Pour cela, un protocole expérimental permettant d'émettre de l'iode sous forme élémentaire gazeuse (I_2) dans l'environnement et de déterminer les concentrations d'iode dans l'atmosphère et les concentrations d'iode déposé sur les surfaces artificielles et naturelles au voisinage immédiat a été établi.

Les produits issus de l'écosystème prairial étant une composante de la chaîne alimentaire de l'homme via l'élevage, pour évaluer l'impact de l'iode dans ce milieu suite à un rejet chronique ou accidentel, l'herbe a été utilisée pour collecter l' I_2 déposé. Cependant, l'analyse des échantillons d'herbe nécessite une étape physico-chimique pour extraire l' I_2 déposé de l'herbe, par conséquent un temps de traitement long. Dans le but de valider la présence du dépôt d' I_2 avant le traitement des échantillons d'herbe, le verre est utilisé comme substrat en raison de la facilité d'extraction d' I_2 pour son analyse rapide. Les vitesses de dépôt mesurées sur le verre ne sont donc que représentatives de la présence d' I_2 , mais ne correspondent pas à celles qu'on trouverait sur l'herbe, à cause de la rugosité de surface de celle-ci qui est différente de celle du verre. En plus, la composante naturelle n'est pas passive vis-à-vis des espèces chimiques (Lindberg et Lovett, 1982).

II.2.2 Emission d'iode stable (^{127}I) sous forme I_2 dans l'atmosphère

Un protocole consistant à émettre de l'iode (^{127}I) dans l'atmosphère à l'aide d'un générateur d'iode est réalisé. Pour cela, deux types de générateurs d'iode sont testés.

II.2.2.1 Emission d'iode dans l'atmosphère à l'aide d'un générateur d'iode (Model 500 Dynacalibrator)

II.2.2.1.1 Principe de fonctionnement

Le dispositif de génération d'iode sous forme de traces utilisé (Figure II.2) est constitué de deux chambres de perméation séparées avec des systèmes de contrôle de température indépendants réglable de 30°C à 110°C. Les chambres de perméation peuvent être utilisées ensemble ou indépendamment pour combiner des concentrations de composants traces. Des électrovannes distinctes permettent de commuter les débits du support du débit de dilution vers un orifice de ventilation.



Figure II.2 : Générateur d'iode (Model 500 Dynacalibrator).

Pour générer l'iode, deux tubes de perméation contenant chacun 10 g d'iode stable (^{127}I) sont introduits dans chacune des chambres de perméation. La température de chaque chambre est réglée à 100°C et surveillée sur le panneau avant, entraînant ainsi la libération de l'iode sous forme élémentaire gazeux (I_2) à un débit de $7,46 \mu\text{g}\cdot\text{min}^{-1}$. Le système contient trois systèmes de régulation de gaz : deux transporteurs et un système de dilution. Le gaz de dilution est distribué par une vanne réglable et un débitmètre. Une bouteille d'air comprimé est utilisée comme gaz transporteur de l'iode généré dans la chambre de perméation pour entraîner l'iode à la sortie du générateur et le libérer dans l'environnement. Grâce à un filtre et un épurateur contenant du charbon, des composés comme le dioxyde de soufre et autres composés soufrés sont éliminés. Le régulateur de pression différentielle et le limiteur de débit du gaz porteur permettent de fournir un débit d'air porteur stable à la chambre de perméation. Cette différence de pression est maintenue à 3,2 psi. Le débit de dilution est réglable de 1 à 20 litres par minute.

Les tubes de perméation d'iode sont accompagnés d'une mention de température. La température de la chambre de perméation est réglée pour être compatible à la température indiquée dans les tubes de perméation. Si la température de la chambre

dépasse la valeur définie par l'interrupteur de limite de température, le chauffage s'arrête automatiquement. Le débit d'air dans le four est de 153 ml.min⁻¹.

II.2.2.1.2 Validation de la méthode d'émission d'iode

Concernant la validation de la technique d'émission d'iode, deux flacons contenant chacun 100 ml de NaOH (0,5 N) sont placés l'un après l'autre à la sortie du générateur pour collecter l'iode émis (Figure II.3).

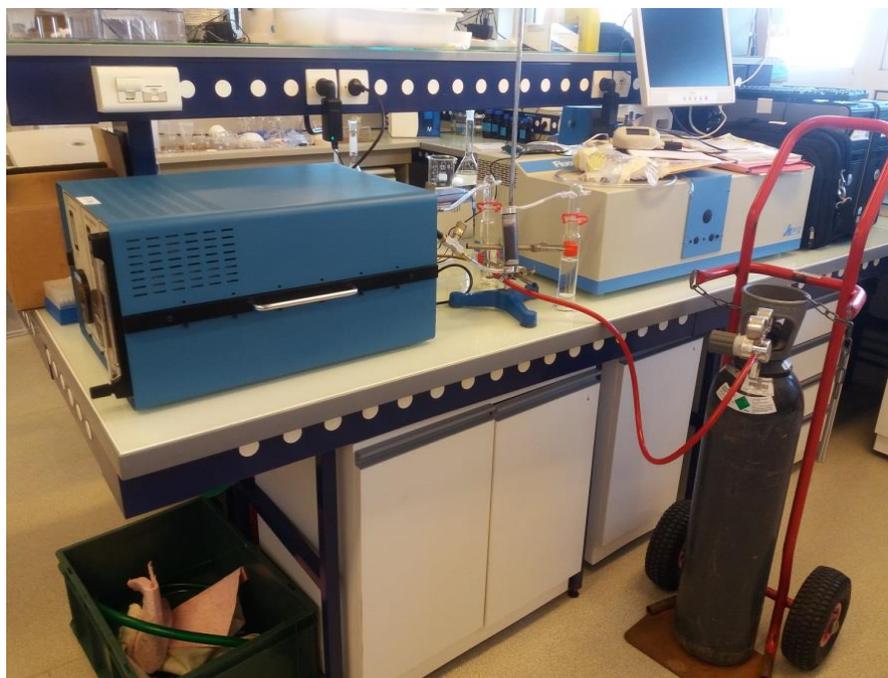
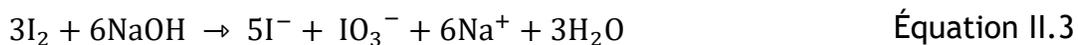


Figure II.3 : Validation du protocole d'émission d'iode à l'aide du générateur d'iode (Model 500 Dynacalibrator).

A l'intérieur des flacons, l'iode émis sous forme gazeuse I₂ réagit avec le NaOH suivant l'Équation II.3.



Sachant que l'iode doit être suffisamment émis pour pouvoir être mesuré dans l'environnement, plusieurs débits sont testés. Les concentrations d'iode en fonction du temps d'émission d'I₂ et du débit du gaz porteur sont présentées Tableau II.1.

Tableau II.1 : Comparaison des concentrations d'iode mesurées à la sortie du générateur en fonction du débit du gaz porteur.

Temps d'émission (min)	Débit du gaz porteur (L.min ⁻¹)	Concentration d'iode dans le flacon 1 (µg.L ⁻¹)	Concentration d'iode dans le flacon 2 (µg.L ⁻¹)	Masse totale d'iode émis (µg)
30	0,5	115,5	< 2,5	11,6
30	1,0	447,0	< 2,5	44,7
30	1,5	776,0	< 2,5	77,6
60	2,0	4560,0	< 2,5	456,0
30	2,0	1956,0	< 2,5	195,6
30	1,5	684,0	< 2,5	68,4
30	1,5	800,0	< 2,5	80,0
30	2,0	2068,0	< 2,5	206,8
60	2,0	4658,0	< 2,5	465,8

Les concentrations d'iode mesurées dans les différents flacons montrent que parmi les débits de gaz porteurs choisis, 2 L.min⁻¹ est le débit adapté qui permet de libérer le plus d'iode dans l'atmosphère. Ce débit a donc été défini pour les différentes campagnes expérimentales.

II.2.2.1.3 Disposition des échantillons au cours de l'émission d'iode dans l'atmosphère

Le générateur d'iode (Model 500 Dynacalibrator) a été utilisé lors de la campagne de mise au point du protocole d'émission de l'iode dans l'atmosphère (MIOSEC 1), et de mesure des concentrations d'I₂ émis dans l'air et sur les divers couverts. Les supports utilisés pour collecter l'iode déposé sont des éprouvettes d'herbe naturelle et de verre, faisant chacune 16 cm × 16 cm de dimension.

L'iode est rejeté dans l'atmosphère au moyen du dispositif d'émission d'iode à raison de 2 L.min⁻¹ pendant 1 heure. La mesure des concentrations atmosphériques d'iode dans les échantillons des trois premières expériences a montré les limites du générateur d'iode. En effet, les concentrations d'iode atmosphérique dans ces échantillons sont inférieures à la limite de détection de l'iode (< 2,5 µg.L⁻¹) par la technique

colorimétrique de dosage d'iode utilisée, ce qui a conduit à émettre l'iode le long d'un canal afin de réduire la dispersion de l'iode et donc d'augmenter sa concentration atmosphérique. Ce dernier est constitué de deux plaques en bois disposés horizontalement suivant la direction du vent. Les collecteurs d'iode déposés sont placés entre les 2 plaques, à trois mètres de la sortie du générateur d'iode. Les plaques de bois sont percées pour permettre d'introduire des tubes de prélèvements d'air, à environ 5 cm au-dessus des éprouvettes. Ces tubes sont directement connectés à des flacons de prélèvement d'air contenant 100 ml de NaOH (0,5 N). La disposition des préleveurs d'iode est illustrée Figure II.4.

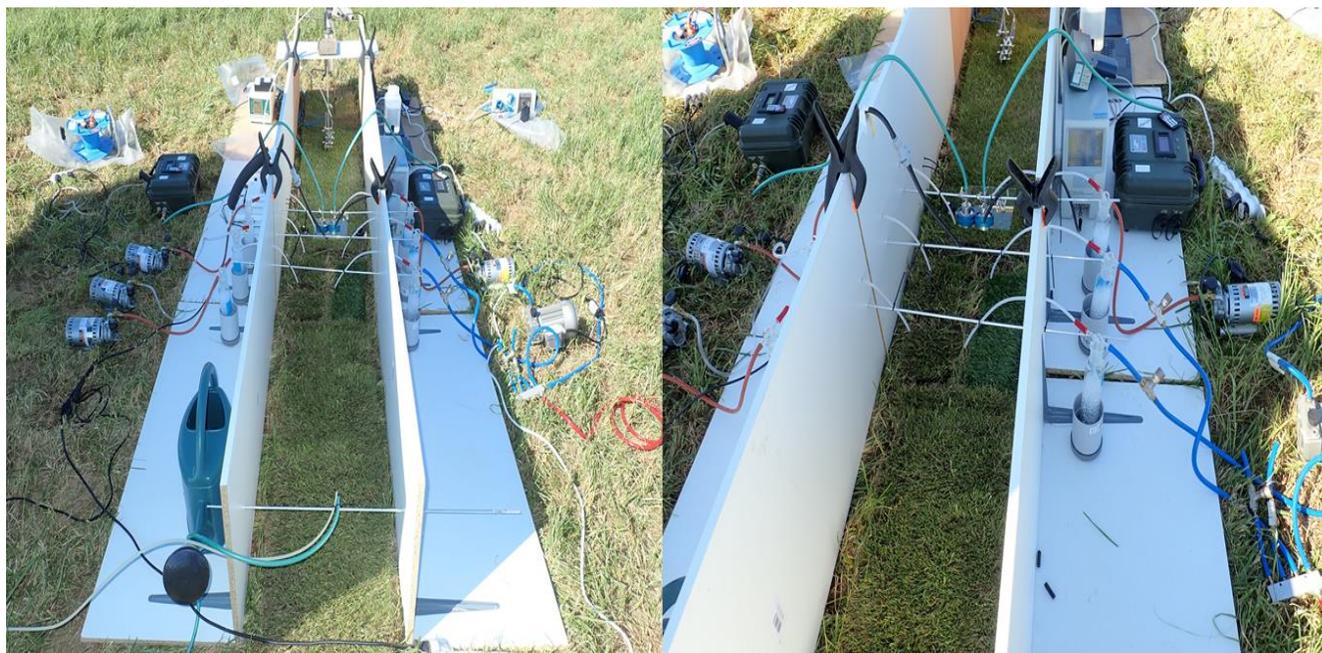


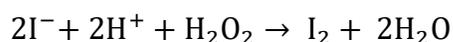
Figure II.4 : Émission d'iode dans l'atmosphère à l'aide du générateur d'iode (Model 500 Dynacalibrator).

Bien qu'en ayant canalisé les émissions d'iode, à cause de l'encombrement entraîné par le canal, les mesures des paramètres environnementaux tels que la vitesse du vent à l'intérieur du canal se sont révélées non satisfaisantes car fortement variable. Par conséquent, un autre dispositif d'émission d'iode a été conçu au laboratoire.

II.2.2.2 Émission d'iode dans l'atmosphère à l'aide du dispositif expérimental d'émission d'iode

II.2.2.2.1 Principe de fonctionnement

Un générateur expérimental d'iode capable d'émettre des quantités suffisantes d'iode a été développé afin d'éviter de canaliser les rejets atmosphériques d'I₂. En milieu acide et en présence d'oxydant, l'iode sous forme I⁻ est oxydé en I₂ suivant le diagramme de Pourbaix E-pH de l'iode. Partant de ce principe, 20 ml d'une solution d'iodure de potassium (KI) à 25 g.L⁻¹ est ajouté dans un flacon barboteur contenant un mélange de 100 ml d'acide sulfurique (H₂SO₄) à 10 % (volume d'acide/volume d'eau ultrapure) et 100 ml d'eau oxygénée à 35 %. A l'aide d'une burette équipée d'un dispositif automatique, l'iodure est ajouté goutte à goutte. Le dispositif d'ajout des gouttes d'iode est réglable afin de pouvoir adapter le débit d'ajout en fonction de la durée d'émission d'I₂. Pratiquement, une goutte ajoutée équivaut à 0,2 ml environ, ce qui change est donc le temps qui s'écoule entre la tombée de la première et la seconde goutte. A chaque fois qu'une goutte d'iodure tombe dans le mélange, de l'iode sous forme I₂ est produit en solution suivant le diagramme potentiel E-pH de l'iode (Figure II.5). Le flacon de bullage contenant le mélange dispose d'une entrée et d'une sortie d'air. Ainsi, à travers l'orifice d'entrée d'air, une bouteille d'air est connectée pour entrainer l'iode produit en solution vers l'extérieur à travers l'orifice de sortie d'air du flacon à raison de 2 L.min⁻¹. La réaction d'oxydation de l'iodure en I₂ dans le générateur d'iode est donnée dans l'Équation II.4.



Équation II.4

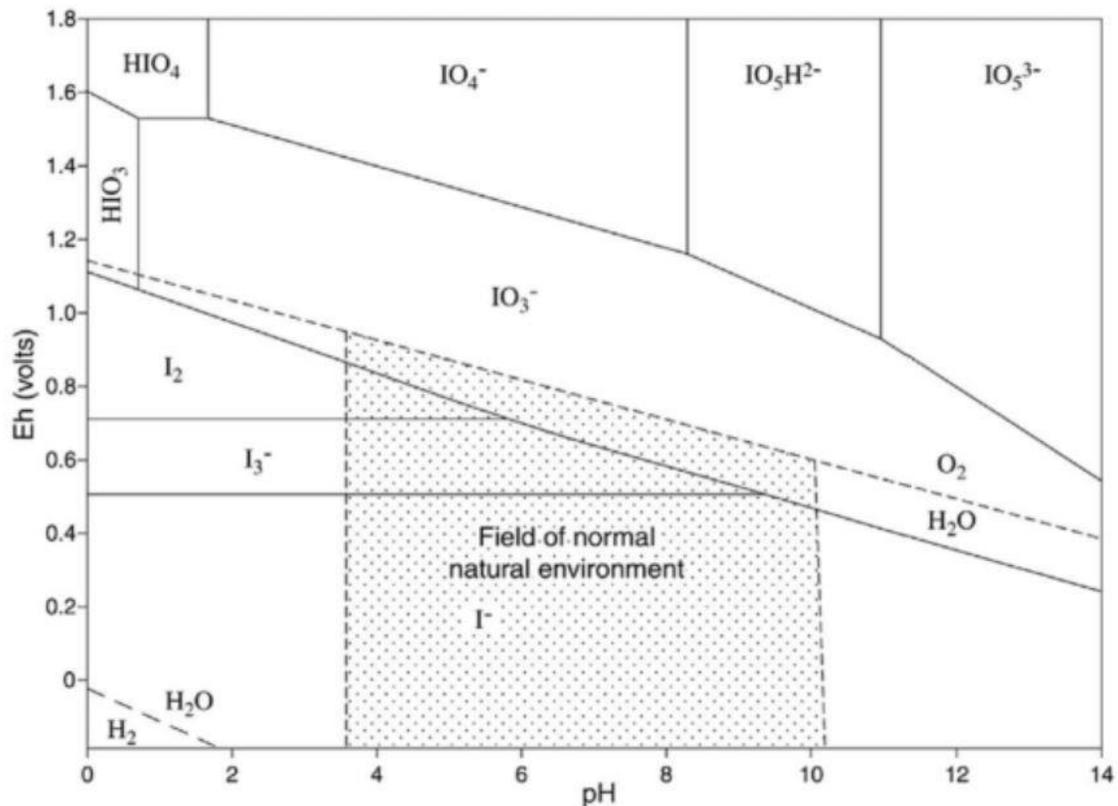


Figure II.5 : Diagramme potentiel E-pH pour l'iode dans l'eau à 25°C (Van Muylder and Pourbaix (1966), cité par Fuge and Johnson (2015)).

II.2.2.2.2 Validation de la méthode d'émission d'iode

Les concentrations d'iode à la sortie du générateur sont évaluées en connectant deux flacons l'un après l'autre. Ces flacons contiennent chacun 100 ml de NaOH (0,5 N). Dans le cas où la totalité de l'iode n'est pas piégé dans le premier flacon, l'excédent est retenu dans le second. L'iode est entraîné dans le flacon à l'aide d'une bouteille d'air connecté à l'entrée du flacon à raison de 2 L.min⁻¹. L'iode s'échange avec le NaOH suivant l'Équation II.3. La concentration d'iode mesurée dans le premier flacon pour une durée de 30 minutes d'émission à 2 L.min⁻¹ est de 472,4 mg.L⁻¹ tandis qu'elle est inférieure à 2,5 µg.L⁻¹ (limite de détection) dans le second flacon. La Figure II.6 présente le dispositif expérimental d'émission d'I₂.

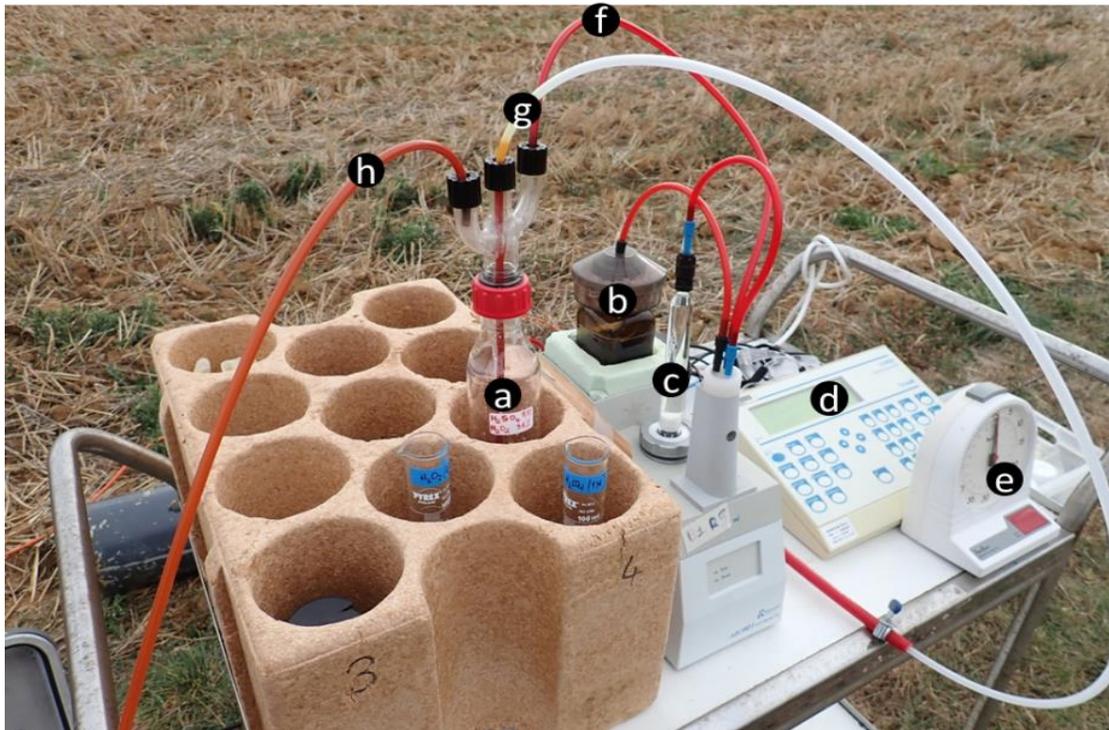


Figure II.6 : Dispositif expérimental d'émission d'iode. a : flacon contenant l'acide (H_2SO_4) et l'oxydant (H_2O_2) ; b : flacon de stockage d'iodure sous forme de KI ; c : pipette de remplissage de 20 ml de KI ; d : unité de réglage du débit d'injection de KI ; e : chronomètre ; f : voie injection d'iode dans le flacon ; g : voie d'injection d'air dans le flacon ; h : voie de sortie d'iode sous forme I_2 .

L'émission d'iode dure 30 minutes. Toutes les 5 minutes, l'émission d' I_2 est arrêtée et les deux flacons connectés à la sortie du générateur d'iode sont remplacés par deux autres. Cette opération est répétée six fois, correspondant à la durée totale de l'émission (30 minutes). Sur l'ensemble des essais réalisés, la totalité de l'iode est mesuré dans les premiers flacons tandis que dans les seconds, elle est inférieure à la limite de détection ($< 2,5 \mu g.L^{-1}$), ce qui permet de valider le protocole de piégeage de l'iode dans le NaOH (0,5 N).

L'homogénéité de l'émission d'iode au cours du temps est évaluée en comparant les concentrations d'iode dans les flacons prélevés toutes les 5 minutes. La valeur moyenne trouvée dans les flacons prélevés tous les 5 minutes est de $83,5 \text{ mg.L}^{-1}$ avec un coefficient de variation de 6 %. Ces concentrations d'iode étant identiques, l'émission

d'iode par le générateur expérimental est homogène durant les 30 minutes d'émission, ce qui permet de valider son utilisation (Tableau II.2).

Tableau II.2 : Comparaison des concentrations d'iode mesurées à la sortie du dispositif expérimental d'émission d'I₂.

Temps d'émission (min)	Concentration d'iode dans le flacon 1 ($\times 10^3 \mu\text{g.L}^{-1}$)	Concentration d'iode dans le flacon 2 ($\mu\text{g.L}^{-1}$)	Masse totale d'iode émis (mg)
30	472,4	< 2,5	47,2
5	73,8	< 2,5	7,4
5	81,5	< 2,5	8,1
5	84,4	< 2,5	8,4
5	90,8	< 2,5	9,1
5	80,6	< 2,5	8,1
5	89,7	< 2,5	9,0

II.2.2.2.3 Disposition des échantillons au cours de l'émission d'iode dans l'atmosphère

L'iode est rejeté dans l'environnement à l'aide du dispositif expérimental d'émission d'iode durant les campagnes MIOSEC 2 et 3. L'iode atmosphérique est prélevé dans des flacons barboteurs contenant chacun 100 ml de NaOH (0,5 N). L'herbe est utilisée pour récolter l'iode déposé sur la surface. A la différence des émissions atmosphériques d'I₂ lors de la campagne de mise au point (MIOSEC 1), les rejets d'I₂ ne sont pas canalisés évitant tout biais d'interprétation durant les campagnes MIOSEC 2 et 3. La disposition du dispositif d'émission d'I₂ vis-à-vis des échantillons au cours des émissions d'I₂ est présentée Figure II.7.

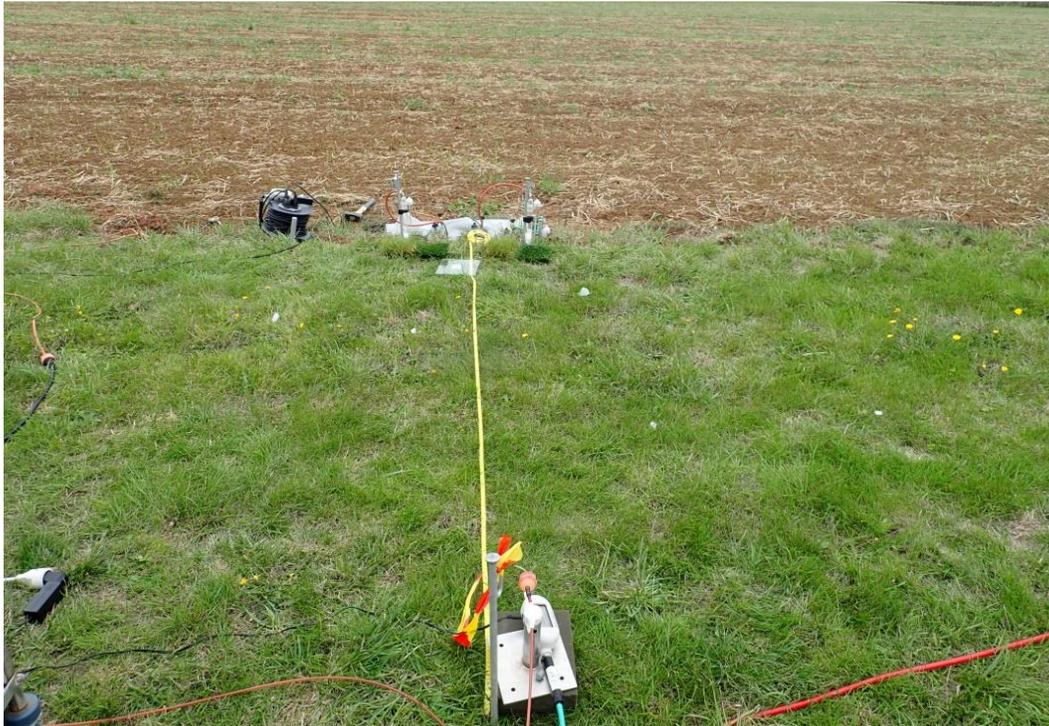


Figure II.7 : Émission d'iode dans l'atmosphère à l'aide du dispositif expérimental d'émission d'iode.

La Figure II.8 présente la disposition des échantillons lors des émissions d'iode dans l'atmosphère.

Dans tous les cas, afin de déterminer des niveaux ambiants ou bruits de fond, des échantillons témoins sont placés à 50 m de la sortie du générateur, du côté opposé à la direction du vent. Ces témoins sont constitués d'un flacon contenant 100 ml de NaOH (0,5 N) et d'une éprouvette d'herbe. Ils servent à quantifier l'iode naturel dans l'atmosphère et sur les éprouvettes d'herbe.

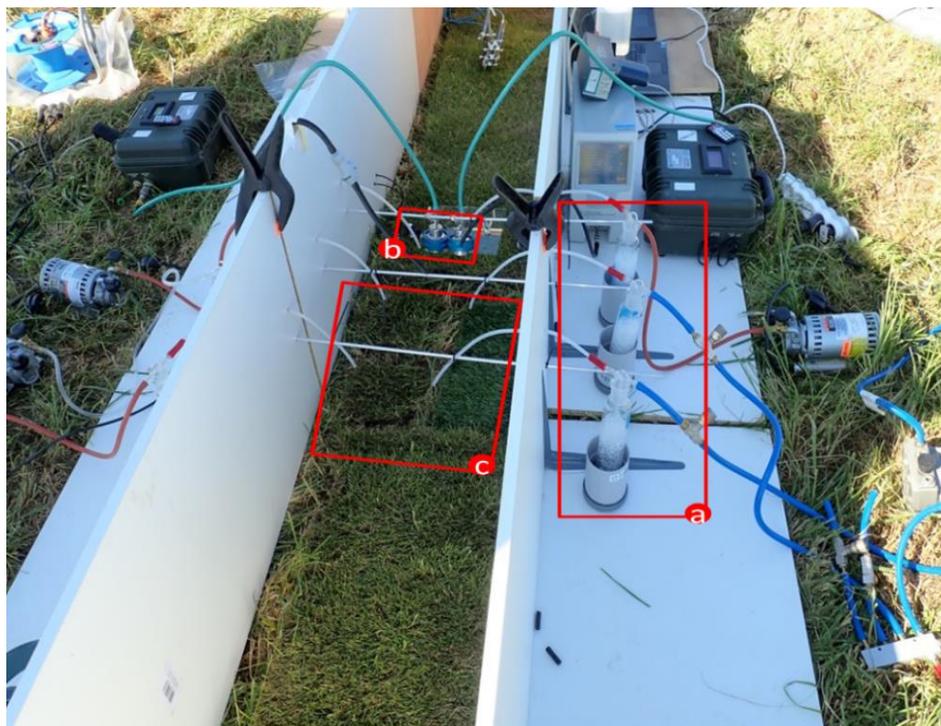


Figure II.8 : Disposition des échantillons : au cours de la campagne MIOSEC 1 (image d'en haut) et au cours des campagnes MIOSEC 2 et 3 (image d'en bas). (a) : flacon contenant 100 ml de NaOH (0,5 N) ; (b) : filtre placé au-dessus des éprouvettes d'herbe et à l'entrée du flacon ; (c) : éprouvettes d'herbe.

II.2.3 Prélèvement de l'iode dans l'environnement

II.2.3.1 Iode atmosphérique

Au cours de l'émission, une partie de l'iode émis sous forme élémentaire gazeux (I_2) est susceptible de se transformer par nucléation ou en réagissant avec les aérosols atmosphériques pour former des aérosols d'iode. De ce fait, le dispositif de prélèvement de l'iode atmosphérique permet à la fois le prélèvement d' I_2 et le prélèvement des aérosols d'iode. A l'issue de chaque expérience, les échantillons sont collectés et directement acheminés au laboratoire installé dans les locaux de l'INRAE de Lusignan où certains sont traités et d'autres conditionnés pour un traitement ultérieur à l'IRSN de Cherbourg.

- Iode élémentaire gazeux (I_2)

A trois mètres de la sortie de l'émetteur d'iode et suivant la direction du vent, deux flacons contenant chacun 100 ml de NaOH (0,5 N) sont utilisés pour prélever l'iode atmosphérique. Les flacons disposent d'une entrée et d'une sortie d'air. Une pompe pneumatique est connectée à la sortie du flacon pour prélever l'air à 2 L.min⁻¹. L'iode émis sous forme I_2 est transporté dans l'air qui passe à travers les flacons contenant le NaOH (0,5 N).

- Iode particulaire

Des filtres en cellulose (0,45 μ m) sont utilisés pour prélever l'iode sous forme d'aérosol dans le cas où il y aurait la nucléation de l'iode au cours de l'émission. Un filtre est placé à la sortie du générateur et deux autres entre le point d'émission et les flacons de prélèvement. Un filtre est également disposé à l'entrée de chacun des flacons de prélèvement.

II.2.3.2 Iode déposé sur les couverts

Des éprouvettes d'herbe de 16 cm x 16 cm de dimension sont placées à environ 5 cm, à côtés des flacons de prélèvements d'air, pour collecter l'iode déposé. Chaque expérience étant réalisée sur une durée de 30 minutes à 1 heure et sachant que la demi-vie d'élimination de l'iode stable sur l'herbe pendant la saison de croissance de l'herbe

est de 13 jours (Whitehead, 1984b), la revolatilisation de l'iode à partir de l'herbe est négligeable sur cette période courte. Par conséquent, la revolatilisation de l'iode à partir de l'herbe n'est pas prise en compte.

II.2.4 Traitement des échantillons

II.2.4.1 Traitement des échantillons atmosphériques

A l'issue de chaque expérience, les échantillons liquides et les filtres sont collectés et directement acheminés au laboratoire installé dans les locaux de l'INRAE à Lusignan où ils sont traités. La soude contenue dans les flacons est filtrée. Les filtres sont sortis de leur support et repris avec 100 ml de NaOH (0,5 N). Après agitation vigoureuse, les solutions de NaOH sont filtrées. Les concentrations d'iode dans les échantillons atmosphériques sont mesurées par colorimétrie.

II.2.4.2 Traitement des échantillons collecteurs d'I₂ en surface

Les éprouvettes de verre et d'herbe sont collectées dans des bacs en plastique et acheminées directement au laboratoire installé dans les locaux de l'INRAE à Lusignan après chaque expérience où elles sont conditionnées.

Dans un premier temps l'herbe est coupée de façon à récupérer la quasi-totalité des brins d'herbe. L'herbe est ensuite pesée et conditionnée dans un flacon contenant 150 ml de NaOH (5 N) (Figure II.9).



Figure II.9 : Flacon de conditionnement des échantillons d'herbe.

A la fin des campagnes de mesure, qui durent entre 6 et 12 jours, les échantillons d'herbe sont acheminés au laboratoire de l'IRSN à Cherbourg-en-Cotentin (Laboratoire

de Radioécologie de Cherbourg-Octeville, LRC) où ils sont traités. Pour séparer l'iode de l'herbe, une méthodologie de traitement physique et chimique de l'herbe est développée. Les flacons contenant la soude et l'herbe sont d'abord vidés dans des creusets en porcelaine. L'ensemble est calciné à 400°C pour détruire la matière organique et extraire l'iode présent sous toutes ses formes.

Le Tableau II.3 présente le cycle de calcination des échantillons d'herbe. Pour une meilleure efficacité la calcination de l'herbe est faite progressivement avec des paliers à 100, 200 et 400°C. Une sonde mesurant l'évolution de la température dans le four est reliée à un dispositif permettant d'enregistrer les données.

Tableau II.3 : Programme de température du four pour la calcination de l'herbe à 400°C.

Température (°C)	25-100	100-100	100-200	200-200	200-400	400-400	400-25
Durée (min)	75	120	100	120	200	120	375

La température augmente dans le four à raison de 1°C.min⁻¹. La température est maintenue 120 min à 100°C pour permettre l'évaporation de l'eau de la solution de NaOH afin d'éviter le débordement de cette dernière dans le creuset et par conséquent, d'éviter la perte des échantillons d'herbe. Ensuite, la calcination est maintenue à 200°C et à 400°C dans le four afin de permettre la calcination proprement dite de l'herbe.

A la sortie du four, les échantillons présentés Figure II.10 sont repris avec 150 ml d'eau ultrapure Milli-Q (18,2 MΩ cm à 25°C).



Figure II.10 : Echantillons d'herbe après calcination au four à 400° C.

Ces échantillons constitués de NaOH cristallisé et d'herbe calcinée sont dissous et l'ensemble est filtré. La Figure II.11 présente le dispositif de filtration utilisé.



Figure II.11 : Dispositif de filtration utilisé.

L'iode est récupéré dans le filtrat sous forme d'iodure. L'iode est ensuite purifié par extraction liquide-liquide. Pour cela, 25 ml de triméthyl benzène sont ajoutés au filtrat (phase aqueuse) dans un premier temps. Ensuite, l'iodure est oxydé en I_2 suivant le diagramme E-pH de l'iode dans l'eau. 100 ml de H_2SO_4 (30 %) est ajoutée pour ajuster le pH à 2 et 50 ml de H_2O_2 (35 %) pour oxyder l'iodure en I_2 suivant l'Équation II.4. Le mélange est agité vigoureusement pour permettre la volatilisation d' I_2 et son piégeage dans le triméthyl benzène. Après avoir laissé le mélange au repos jusqu'à la séparation

des phases, la phase aqueuse est séparée de la phase contenant le triméthyl benzène. 25 ml de triméthyl benzène sont de nouveau ajoutés à la phase aqueuse pour une deuxième extraction. La phase aqueuse est éliminée et les phases organiques sont rassemblées et lavées avec de l'eau ultrapure jusqu'à ce que le pH de cette dernière soit neutre. 100 ml de NaOH (0,5 N) sont ajoutés à la phase contenant le triméthyl benzène pour extraire l'iode sous forme d'iodure et d'iodate (extraction en retour) suivant l'Équation II.3. Les concentrations d'iode dans les échantillons de NaOH sont mesurées par colorimétrie. Elles sont exprimées en $\mu\text{g.L}^{-1}$. Connaissant la masse des témoins et des échantillons d'herbe ainsi que leurs surfaces, les résultats sont exprimés en $\mu\text{g.m}^{-2}$. La Figure II.12 schématise le protocole de traitement physique et chimique des échantillons d'herbe.

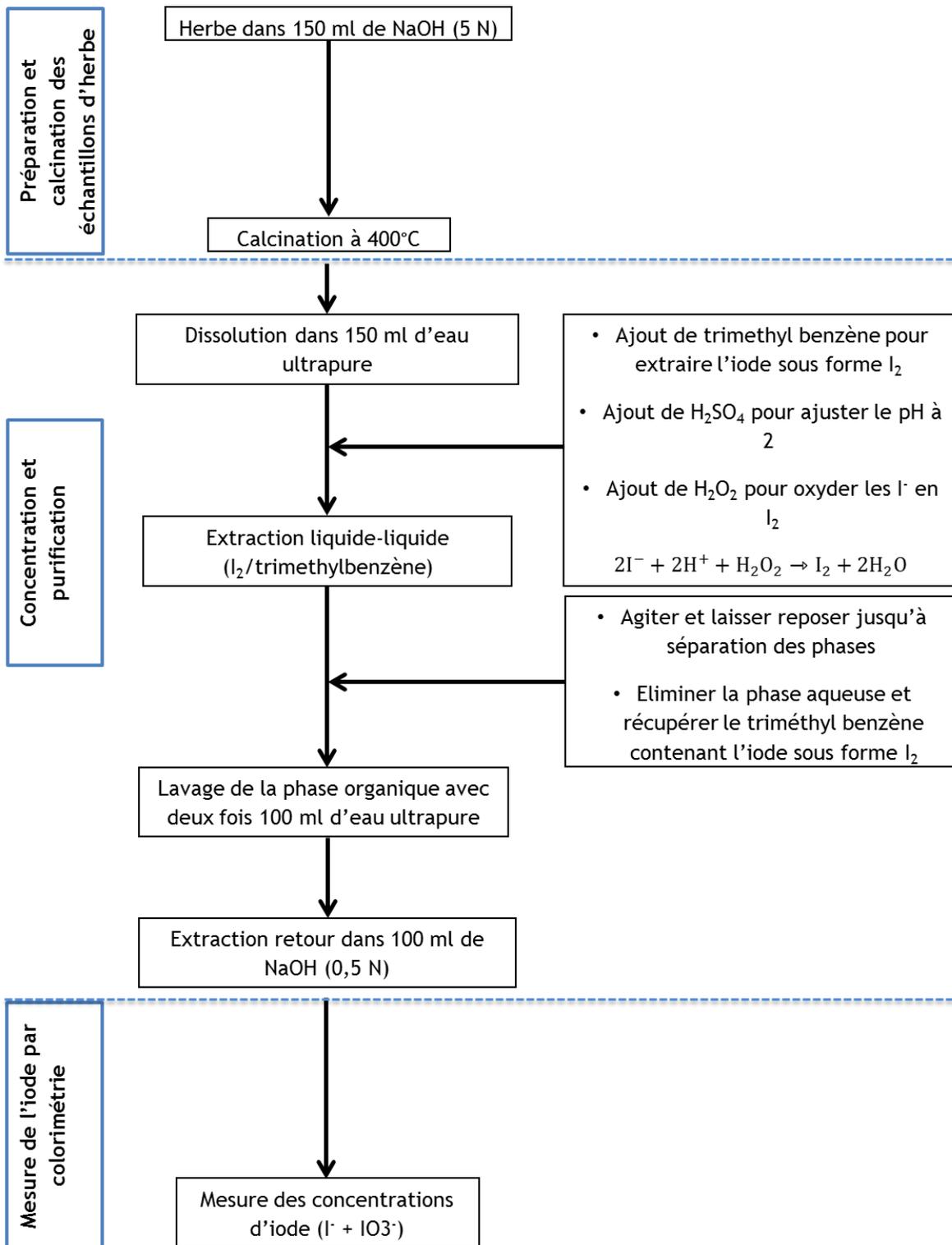


Figure II.12 : Représentation schématique du protocole de traitement physique et chimique des échantillons d'herbe.

Pour déterminer le rendement d'extraction d'iode déposé sur les éprouvettes d'herbe, un protocole a été établi. Ce dernier consiste à ajouter 5 ml de KI (1 g.L^{-1}) à 20 g d'herbe fraîche préalablement placée dans un creuset en porcelaine (Figure II.13).



Figure II.13 : Ajout d'iode sous forme de KI à 20 g d'herbe placée dans un creuset.

Après évaporation des 5 ml à l'air ambiant, 150 ml de NaOH (5 N) sont ajoutés dans le creuset. L'ensemble est calciné à 400°C et l'iode ajouté est séparé de l'herbe en suivant le même protocole de traitement des échantillons d'herbe (Figure II.12). Parallèlement, un témoin d'herbe est réalisé en suivant les mêmes étapes que les essais, en remplaçant l'iodure par 5 ml d'eau ultrapure. La Figure II.14 présente l'extraction liquide-liquide pour la séparation de l'iode ajouté de l'herbe. Sur l'illustration à gauche (herbe sans ajout d'iode), la phase contenant le triméthyl benzène (ou phase organique) n'est pas colorée en raison des faibles quantités d'iode comparativement à l'image à droite (iode ajouté à l'herbe) où on voit clairement une coloration rouge de la phase organique.

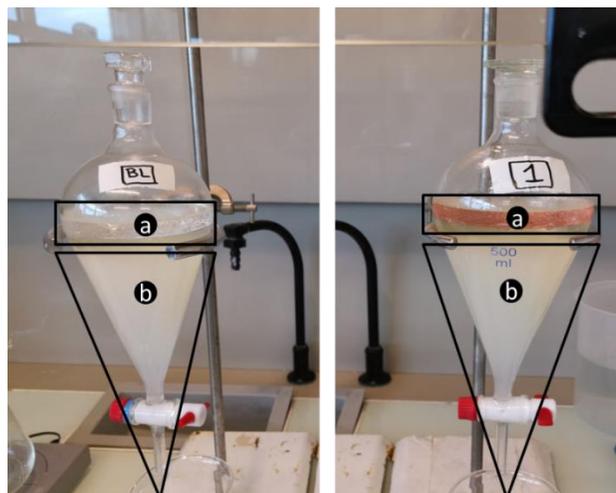


Figure II.14 : Dispositif d'extraction liquide-liquide utilisé pour la séparation de l'iode de l'herbe. a est la phase contenant le triméthyl benzène et b est la phase aqueuse. A gauche : extraction de l'iode du témoin d'herbe (bruit de fond). A droite : extraction de l'iode ajouté de herbe avec une couleur rouge (a), correspondant au piégeage de l'iode.

Ainsi, ce protocole est appliqué à 12 essais et un témoin. Les concentrations d'iode dans les échantillons d'essais ($C_{\text{éch}}$) sont mesurées par colorimétrie et sont exprimées en $\mu\text{g.L}^{-1}$. La concentration d'iode mesurée dans le témoin d'herbe ($C_{\text{témoin}}$) est de $11,8 \mu\text{g.L}^{-1}$. L'iode dans le témoin d'herbe (bruit de fond d'iode ou iode naturellement présent dans l'herbe) est soustrait des échantillons d'essais. Le rendement d'extraction d'iode ajouté à l'herbe est calculé en rapportant la concentration d'iode dans les échantillons d'essais à la concentration d'iode attendue (C_{attendue}) ou concentration d'iode initialement ajoutée à l'herbe. Il est exprimé en pourcentage, et est calculé suivant l'Équation II.5.

$$\text{Rendement d'extraction (\%)} = \frac{(C_{\text{éch}} - C_{\text{témoin}})}{C_{\text{attendue}}} \times 100 \quad \text{Équation II.5}$$

Sur les 12 échantillons d'essais réalisés, le rendement d'extraction moyenne de l'iode est de 57,0 % avec un écart-type rapporté à la moyenne ou coefficient de variation (RSD, Relative Standard Deviation en anglais) de 6,4 %.

II.2.5 Mesure colorimétrique de l'iode

Une technique de dosage de l'iode par colorimétrie est utilisée pour déterminer les concentrations d'iode dans la soude 0,5 N. Elle est basée sur la technique de Sandell and Kolthoff (1937) ; l'iode sous forme d'iodure ou d'iodates catalyse la réaction entre les ions cériums et les ions arséniques. L'absorption est mesurée par spectrophotométrie UV-visible (Safas, UVlc1) à 415 nm. Cette dernière est inversement proportionnelle aux concentrations d'iode. Les concentrations d'iode mesurées sont exprimées en $\mu\text{g.L}^{-1}$ et la limite de détection de l'iode dans le NaOH (0,5 N) est de $2,5 \mu\text{g.L}^{-1}$. Dans cette technique, il a été trouvé que la présence des nitrites ou des sulfites perturbe la mesure colorimétrique de l'iode. En raison de ces interférences, H_2O_2 a été utilisée en tant que oxydant lors de l'extraction de l'iode de l'herbe en lieu et place des nitrites.

II.3 Mesures des variables environnementales

II.3.1 Analyse à l'échelle du couvert végétal, mesure de l'indice de surface foliaire (LAI)

Des mesures de l'indice de surface foliaire ont été réalisées sur des éprouvettes d'herbe (16 cm \times 16 cm) sur le site de l'INRAE à Lusignan, du 26 juin au 04 juillet 2018.

II.3.1.1 Définition

L'indice de surface foliaire (ou « Leaf Area Index » en anglais) est un des paramètres les plus importants permettant de suivre la croissance végétale et l'architecture d'une plante. Il exprime le rapport de la demi-surface foliaire totale par unité de surface au sol horizontale ($\text{m}^2.\text{m}^{-2}$ sol) (Chen and Black, 1992 ; Lang, 1991). C'est une dimension physique sans unité. C'est un paramètre important pour l'écophysiologie permettant une meilleure évaluation des processus comme la photosynthèse et l'évapotranspiration. Agissant comme zone de transition entre la plante et l'atmosphère, la plupart des processus d'échanges de gaz entre la plante et l'atmosphère, ont lieu à la surface des feuilles.

II.3.1.2 Mesure de la LAI

Il existe plusieurs techniques de détermination de la LAI dont des méthodes directes et indirectes (Gower et al., 1999 ; Norman and Campbell, 1989).

Les méthodes directes sont précises et permettent donc la validation d'autres méthodes. Parmi elles, il y a les méthodes gravimétriques. Ces dernières consistent à déterminer la masse sèche et la surface foliaire d'une seule des feuilles et les rapporter à toute la quantité de feuillage.

Les méthodes indirectes sont des techniques de terrain ne nécessitant pas de retrait de la biomasse. Bien qu'elles soient source d'erreur lorsqu'un paramètre n'est pas mesuré directement, ces méthodes sont devenues populaires et scientifiquement acceptées en raison de leur rapidité et leur simplicité. La mesure est basée sur l'atténuation par le feuillage du rayonnement solaire donc de la densité de feuillage.

La méthode indirecte est utilisée pour mesurer la LAI sur des éprouvettes d'herbe au cours des expériences de terrain à l'aide d'un LAI-mètre (Licor, LAI-200) prêté par l'INRAE de Lusignan. La Figure II.15 illustre le dispositif utilisé pour la mesure de la LAI. Le LAI-200 possède deux capteurs optiques, un premier capteur mesure des rayonnements selon différents angles en absence de feuillage et le second en présence de feuillage, les rayonnements précédemment mesurés sont atténués selon la densité de feuillage. Le coefficient d'atténuation est calculé selon la loi de Bee Lambert. La transmission est proportionnelle à la longueur du trajet optique, à la densité et à la déclinaison des feuilles (Danner et al., 2015 ; Gower et al., 1999).



Figure II.15 : LAI-mètre pour la mesure de la LAI (Li-Cor, LAI-2000).

II.3.2 Mesures des variables météorologiques

En plus de l'émission d'iode dans l'environnement, des équipements permettant l'acquisition continue des données météorologiques sont installés sur le site de l'INRAE à Lusignan. Des données comme la pression atmosphérique, le rayonnement solaire global, l'humidité relative, le point de rosée et l'intensité des précipitations sont stockés automatiquement dans un terminal d'enregistrement (station météorologique, WatchDog 2000 series). Les capteurs de la station météorologiques sont placés à 1,5 m au-dessus du sol et permettent l'acquisition des données à une fréquence de 30 minutes. La Figure II.16 présente le dispositif utilisé pour la mesure de ces paramètres.



Figure II.16 : Station météorologique (WatchDog 2000 series) implantée à 1,5 m au-dessus du sol au niveau du site de l'INRAE à Lusignan.

La précision de mesure de la station météorologique est donnée dans le Tableau II.4.

Tableau II.4 : Précision de mesure de la station météorologique (Watchdog series 2000) utilisée au niveau du site de l'INRAE à Lusignan.

Paramètre étudié (unité)	Gamme de mesure	Précision
Pression atmosphérique (mmHg)	660 à 810	± 1,3
Humidité relative (%)	10 à 90	à 25 : ± 3% sinon : ± 5%
Rayonnement solaire global (W.m ⁻²)	0 à 1250	± 5%
Précipitations (mm)	0,2	± 3%
Point de Rosée (°C)	-73 à + 60	± 2

La température, la direction et la vitesse du vent sont obtenues à partir d'un anémomètre ultrasonique. Pour acquérir ces données, les anémomètres ultrasoniques sont placés à 0,5, 1,5 et 6 m au-dessus du sol.

Le Tableau II.5 présente la précision de mesure de l'anémomètre ultrasonique utilisé durant les campagnes de mesures.

Tableau II.5 : Précision de mesure de l'anémomètre ultrasonique (Young, Model 81000) utilisée au niveau du site de l'INRAE à Lusignan.

Paramètre étudié	Gamme de mesure	Résolution	Précision
Direction du vent (°)	0 à 360	0,1	± 2
Vitesse du vent (m.s ⁻¹)	0 à 40	0,01	± 0,05
Température (°C)	-50 à +50	0,01	± 2

L'anémomètre ultrasonique dispose de sondes acoustiques qui sont à la fois émettrices et réceptrices. Ces sondes permettent ainsi de mesurer selon trois axes de façon

instantanée et à haute fréquence (20 Hz) le temps écoulé entre la transmission et la réception du signal propagé par rapport à la vitesse et au sens du vent.

Ces anémomètres ont été placés à ces différentes hauteurs pour des besoins de comparaison afin de déterminer s'il y a une couche à flux constant. Seules les données de l'anémomètre ultrasonique placé à 0,5 m de hauteur par rapport au sol sont utilisées pour les calculs impliquant les données météorologiques ou pour l'interprétation des résultats. La disposition des anémomètres ultrasoniques durant les différentes campagnes de mesures est présentée Figure II.17.



Figure II.17 : Anémomètre ultrasonique (Young, Model 81000) monté sur le site de l'INRAE à Lusignan. A gauche : disposition de l'anémomètre dans le canal lors de la campagne expérimentale de mise au point (à 0,1 m au-dessus du sol) (campagne MIOSEC 1). A droite : disposition de l'anémomètre dans l'environnement (0,5 m au-dessus du sol) (campagne MIOSEC 2 et 3).

Enfin, les données acquises aux moments des émissions atmosphériques d'iode à l'aide de l'anémomètre ultrasonique et de la station météorologique placés à 0,5 m et 1,5 m de hauteur par rapport au sol, respectivement, sont utilisés pour l'interprétation des

vitesse de dépôt mesurées et pour le calcul des V_d à l'aide du modèle de dépôt sec d'iode.

II.4 Conclusion

La validation de la méthode de détermination de la vitesse de dépôt sec d' I_2 basée sur des émissions d'iode stable (^{127}I) sous forme I_2 dans l'air au-dessus des éprouvettes d'herbe implique la validation de l'ensemble des étapes impliquées dans sa détermination. Les expériences réalisées à partir du dispositif expérimental d'émission d' I_2 ont montré que les concentrations d' I_2 mesurées dans des flacons placés à la sortie du dispositif étaient homogènes. Ce protocole a également permis de valider la méthode de mesure de l' ^{127}I dans l'air. Les tests réalisés sur des éprouvettes d'herbe ont permis de définir la procédure d'extraction de l'iode de l'herbe. Le rendement d'extraction trouvée était de 57,0 % avec un coefficient de variation de 6,4 %. Ces différentes étapes ont permis de valider la méthode de détermination de la vitesse de dépôt sec d' I_2 sur l'herbe.

CHAPITRE III : MODELE DE DEPOT SEC D'IODE

III.1 Introduction

Cette partie est réservée tout d'abord à la description du modèle de dépôt sec d'I₂ basé sur l'analogie électrique dans laquelle le transport de l'iode de l'atmosphère vers la surface est régi par trois résistances. La première correspond à la résistance au transport d'I₂ dans l'atmosphère (ou résistance aérodynamique). La résistance quasi-laminaire intervient au niveau de la couche au voisinage immédiat de la surface (à environ 1 mm) où elle s'oppose au transport d'I₂. Le dépôt d'I₂ ne se réalisera qu'au niveau de la surface où il est impacté par la résistance de surface.

La deuxième partie est consacrée à la détermination des paramètres d'entrée du modèle tenant compte non seulement des propriétés physiques et chimiques de l'iode, des paramètres météorologiques mais également des propriétés de surface de l'herbe.

III.2 Description

Au cours de son transport dans l'atmosphère, une quantité importante du gaz dans l'air se dépose à la surface de la Terre, y compris l'eau, le sol et la végétation. Des facteurs tels que le niveau de turbulence atmosphérique, les propriétés chimiques du gaz et la nature de la surface elle-même sont reconnus comme étant les principaux paramètres qui contrôlent ce dernier. Le processus de dépôt d'un gaz vers la surface végétale peut être divisé en trois étapes. Dans un premier temps, le gaz est transporté de la couche de surface atmosphérique jusqu'au voisinage immédiat de la surface végétale (couche d'air stagnant juste à côté de la surface) par diffusion turbulente. Le mécanisme de transfert est la turbulence de la couche superficielle. C'est la composante aérodynamique du transfert. Ensuite, le gaz diffuse à travers la sous-couche moléculaire (appelée couche quasi-laminaire), jusqu'à la surface végétale elle-même. Cette dernière couche est de l'ordre du millimètre. Finalement, le gaz est absorbé à la surface végétale par des processus chimiques et biologiques. La quantité de gaz absorbé au niveau de la surface est conditionnée par la solubilité ou l'absorption du gaz diffusant. En partant de ce principe, plusieurs formulations permettant de modéliser les vitesses de dépôt sec d'un gaz ont été définies parmi lesquelles, le modèle « grande

feuille » (appelé « Big-Leaf », en anglais). Le modèle « Big-Leaf » fait analogie à la résistance électrique, dans laquelle le transport du matériau vers la surface est supposé être régi par trois résistances en série : la résistance aérodynamique R_a , la résistance de la couche quasi-laminaire R_b (bien que cette appellation ne soit pas forcément correcte, parce qu'un flux laminaire ne peut s'établir sur une surface irrégulière et aérodynamiquement rugueuse) et la résistance de surface ou de la canopée R_c (le terme « canopée » désigne la canopée végétale). R_c englobe à la fois la résistance au niveau de la surface de la feuille représentée par la résistance stomatique (R_{st}), la résistance du mésophylle (R_m) et la résistance causée par l'interaction physico-chimique entre le gaz et la surface, appelée, résistance non stomatique (R_{ns}). Cette dernière composante est une résultante de la résistance aérodynamique de canopée (R_{ac}), la résistance du sol (R_g) et la résistance cuticulaire (R_{cut}).

La vitesse de dépôt sec d'un gaz est donc définie comme étant l'inverse de la résistance totale, qui est considérée comme la somme des résistances des divers composants du système (air, surface végétale et surface du sol). L'expression de vitesse de dépôt sec d'un gaz (V_d) a été formulée par Seinfeld (1985) (Équation III.1).

$$V_d = \frac{1}{R_a + R_b + R_c} \quad \text{Équation III.1}$$

Bien que le modèle « Big-Leaf » prenne en compte plusieurs composantes de la vitesse de dépôt sec d'un gaz et principalement la résistance au niveau de la surface de la feuille, l'application du modèle à tous les gaz n'est pas systématique parce que nécessitant plusieurs propriétés physico-chimiques dont la diffusivité moléculaire, la solubilité et la réactivité, spécifiques à chaque gaz. Certains paramètres peuvent être calculés sur la base des données existantes sur des gaz tels que l'ozone (O_3) ou encore le dioxyde de soufre (SO_2). Dans l'analogie à la résistance électrique, les différentes résistances en série et en parallèle impliquées dans le processus de dépôt sec d'un gaz sont présentées Figure III.1.

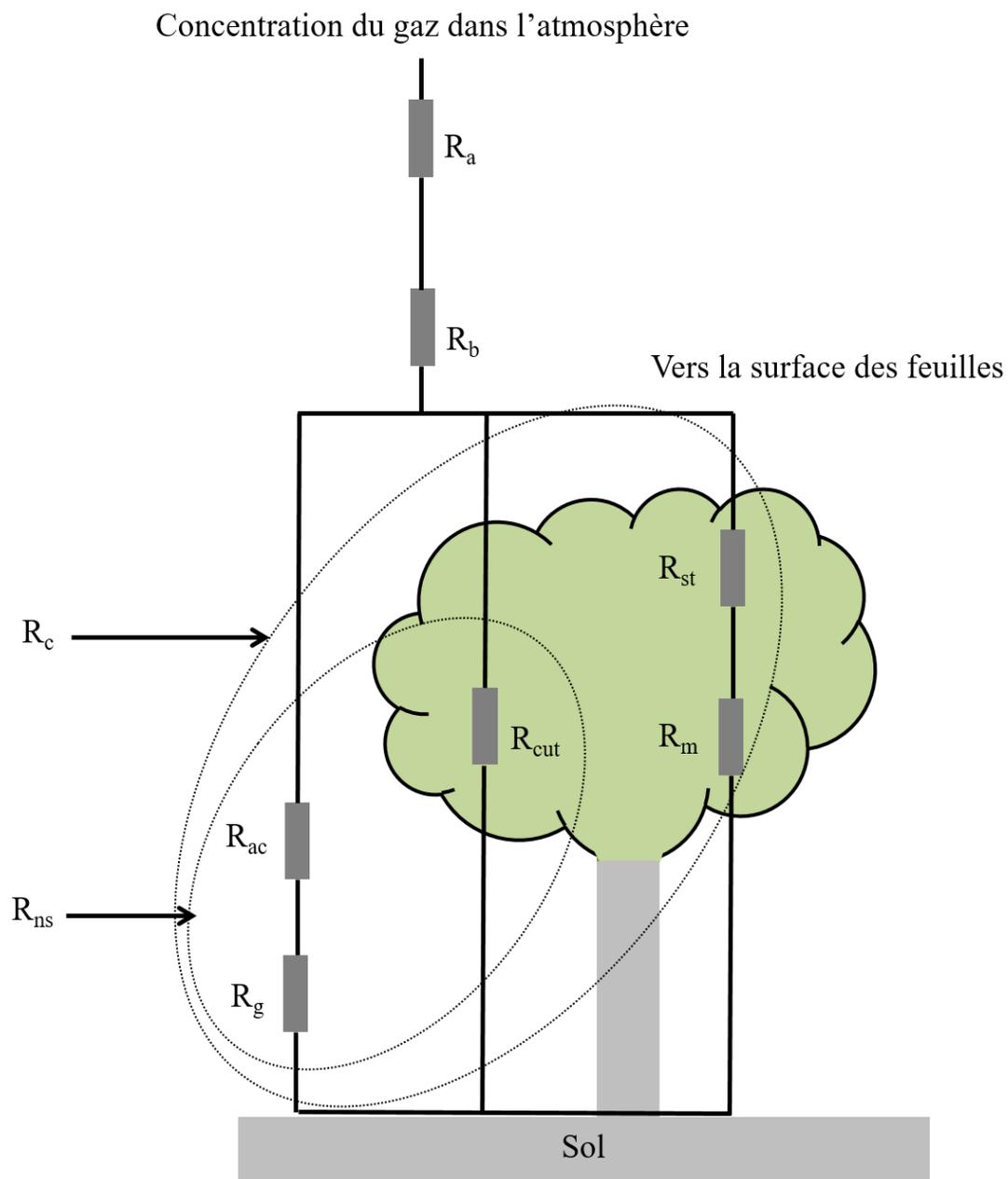


Figure III.1 : Schéma d'analogie des résistances au dépôt sec d'un gaz (Zhang et al., 2003b).

III.3 Détermination des variables d'entrées du modèle

III.3.1 Résistance aérodynamique

La résistance aérodynamique est la résistance au transport turbulent de matière à travers la couche de surface atmosphérique. Elle est commune à tous les gaz. Etant donné que le transport turbulent est le mécanisme permettant le transport de matière de l'atmosphère à la surface végétale, la résistance aérodynamique dépend principalement de l'intensité de la turbulence, donc de la stabilité atmosphérique et de la longueur de rugosité de surface. L'intensité de la turbulence peut être évaluée à partir des mesures micrométéorologiques dont la vitesse du vent, la température, le rayonnement solaire global et de la longueur de rugosité de surface. En effet, la résistance aérodynamique diminue avec l'augmentation de la rugosité des surfaces et la diminution de la stabilité. Au cours de la journée, l'intensité de la turbulence est généralement grande sur une couche raisonnablement épaisse (c'est-à-dire la couche bien mélangée), occasionnant un dépôt de matière plus important. Pendant la nuit, une stratification stable de l'atmosphère près de la surface réduit souvent l'intensité et l'étendue verticale de la turbulence, diminuant efficacement le dépôt sec global. En somme, la résistance aérodynamique fait référence à la composante aérodynamique du transfert régie par la microturbulence et correspond donc à la résistance au transfert vertical vers les surfaces au voisinage immédiat du gaz à travers la couche de surface atmosphérique. La limite inférieure de la couche de surface atmosphérique est la longueur de rugosité. Parmi les paramètres micrométéorologiques qui influencent la résistance aérodynamique, la vitesse de frottement du vent et la stabilité atmosphérique sont les plus importants. L'expression de R_a est définie Équation III.2 (Padro et al., 1991).

$$R_a = \frac{1}{k u_*} \left[0,74 \ln \left(\frac{z}{z_0} \right) - \Psi_H \right] \quad \text{Équation III.2}$$

Avec,

$$\Psi_H = \begin{cases} -4,7 \frac{z}{L} & 0 < \frac{z}{L} < 1 \text{ (condition stable)} \\ 2 * 0,74 \ln \left[\frac{(1+y)}{2} \right], \quad y = \left(1 - 9 \frac{z}{L} \right)^{\frac{1}{2}} & -1 < \frac{z}{L} < 0 \text{ (condition instable)} \end{cases}$$

En condition neutre ($z/L = 0$), $\Psi_H = 1$ (Seinfeld, 1985). Où k est la constante de Von Karman ($k = 0,4$) ; z est la hauteur de référence à laquelle la vitesse de dépôt est évaluée (hauteur de prélèvement d'air à partir du sol) ; z_0 est la longueur de rugosité ; Ψ_H est la fonction de correction de stabilité pour la chaleur et L est la longueur de Monin-Obukhov.

III.3.2 Résistance quasi-laminaire

La couche quasi-laminaire ne correspond pas à une couche limite laminaire au sens classique. Elle est plutôt la couche qui fait suite à toutes les autres couches et qui est en contact direct avec la surface. La profondeur de cette couche n'est pas stable et varie en fonction des contraintes de cisaillement turbulentes adjacentes à la surface ou aux éléments de surface. En effet elle ne peut exister que par intermittence sur des surfaces telles que les feuilles des plantes, qui sont souvent en mouvement continu. Son existence dépend donc de la régularité et de la forme de la surface ou des éléments de surface, et dans une certaine mesure de la variabilité de la turbulence près de la surface. La résistance quasi-laminaire est la résistance au transfert de matière au niveau de cette dernière couche vers la surface. Cette résistance est due à la diffusion moléculaire dans la sous-couche mince près d'une surface rugueuse plate. Elle varie donc selon les espèces chimiques diffusantes (D_i), la variabilité structurale de la végétation et la vitesse de frottement du vent. Elle est relativement insensible à la longueur de rugosité du couvert et diminue avec l'augmentation de la vitesse du vent. Des résistances plus faibles et donc des taux de dépôt plus élevés sont attendus sur les forêts que sur les herbes courtes. De plus, des résistances plus faibles sont attendues

dans des conditions instables que dans des conditions stables et neutres (Équation III.3). L'expression de la résistance quasi-laminaire a été définie par Padro et al. (1991).

$$R_b = \frac{z}{k u_*} \left(\frac{v}{D_i} \right)^{\frac{2}{3}} \quad \text{Équation III.3}$$

Avec,

$$D_i = \frac{k_B T C_u}{6\pi \mu D_p}$$

Où v est la viscosité cinématique de l'air ($v = 1,5 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) ; D_i est la diffusivité moléculaire de l'espèce chimique (i) dans l'air ; K_B est la constante de Boltzman ($K_B = 1,38 \times 10^{-23} \text{ K} \cdot \text{J}^{-1}$) ; T est la température (K) ; C_u est la facteur de correction de Cunningham pour les petites particules ou les molécules de diamètre inférieur à $1 \mu\text{m}$; μ est le coefficient de viscosité dynamique de l'air ($\mu = 1,8 \times 10^{-5} \text{ kg} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$) ; D_p est le diamètre de la molécule de gaz étudié. Le diamètre d'une molécule d'iode (I_2) est de $2,8 \times 10^{-10} \text{ m}$ (Forsythe, 1956).

La correction de Cunningham (Équation III.4) est définie par Seinfeld (1985).

$$C_u = 1 + \frac{\lambda}{D_p} (2,54 + 0,8 \exp\left(-\frac{0,55 D_p}{\lambda}\right)) \quad \text{Équation III.4}$$

λ est le libre parcours moyen d'une molécule. A pression et à température ambiante : $\lambda = 6,98 \times 10^{-8} \text{ m}$.

III.3.3 Résistance de surface

La résistance de surface est la résistance totale au transfert du gaz au niveau de la surface et du substrat. La résistance de surface fait référence à la résistance au niveau de la feuille. Elle englobe la résistance stomatique, la fraction de blocage stomatique (W_{st}) et la résistance du mésophylle. La résistance du substrat est la résistance de l'ensemble du système air-feuille-sol, dont la résistance aérodynamique dans la canopée (résistance aérodynamique d'une feuille à une autre), la résistance de la cuticule au niveau de la feuille et la résistance du sol. Ces différentes résistances

sont regroupées sous le nom de résistance non stomatique. L'expression permettant la détermination de R_c (Équation III.5) est donnée par Zhang et al. (2002b) :

$$\frac{1}{R_c} = \frac{1 - W_{st}}{R_{st} + R_m} + \frac{1}{R_{ns}} \quad \text{Équation III.5}$$

Ces résistances sont exprimées en $s.m^{-1}$ à l'exception de W_{st} qui est sans unité.

III.3.3.1 Résistance stomatique

La résistance stomatique est la résistance à l'ouverture des stomates au niveau de la feuille. Les stomates sont les orifices présents sur l'épiderme des feuilles d'une plante. Ils sont constitués par les cellules de garde et permettent la régulation des échanges gazeux entre les feuilles et l'atmosphère. L'ouverture des pores stomataux est essentielle pour les échanges de CO_2 et O_2 dans les feuilles pour la photosynthèse. En échange, les plantes perdent 95 % de leur eau par transpiration dans l'atmosphère. Les cellules de garde contrôlent donc l'apport de CO_2 et la perte d'eau qui sont indispensables à la croissance et la physiologie de la plante entière. Une augmentation transitoire de 10 à 15°C au-dessus de la température ambiante est généralement considérée comme un choc thermique ou un stress thermique, qui affecte négativement la croissance des plantes, la photosynthèse, la respiration, la relation avec l'eau et la stabilité des membranes des plantes (Wahid et al. 2007). Dans l'obscurité, des concentrations élevées de CO_2 résultant de la respiration stimulent la fermeture des stomates. D'autres facteurs environnementaux tels que l'humidité, la température et l'intensité de la lumière affectent l'ouverture et la fermeture des stomates. L'humidité de surface joue également un rôle important. Un composé hygroscopique est plus facilement absorbé qu'un composé hydrophobe.

En somme, la résistance stomatique est la résistance à la diffusion de matière à travers les stomates. L'efficacité de diffusion d'un gaz à travers les stomates dépend des propriétés physiques et chimiques du gaz diffusant et des facteurs biologiques tels que l'ouverture et la fermeture des stomates et la résistance stomatique associée. La résistance stomatique des feuilles dépend des facteurs tels que le type, l'âge et l'état de la plante, ce dernier aspect étant influencé par la disponibilité de l'eau, le niveau

de rayonnement solaire, la température de l'air et la concentration de CO₂ dans l'air mais aussi des autres polluants ou gaz tel que l'iode. Les paramètres influençant directement la résistance stomatique sont :

- Les propriétés du couvert végétal, y compris le potentiel hydrique de la plante, la longueur de rugosité et l'indice de surface foliaire. Pour rappel, la LAI est la demi-surface foliaire totale par unité de surface du sol (m⁻².m⁻² de sol) ;
- Les propriétés physiques et chimiques du gaz, y compris la solubilité et la diffusivité moléculaire ;
- Les conditions météorologiques, notamment le déficit de pression de vapeur, la température et le rayonnement solaire.

La résistance stomatique est calculée (Équation III.6) en utilisant une formule empirique développé par Wesely (1989) :

$$R_{st} = r_i \{1 + [200(SR + 0,1)^{-1}]^2\} \{400[T_s(40 - T_s)]^{-1}\} \quad \text{Équation III.6}$$

Où SR est le rayonnement solaire global (W.m⁻²) ; T_s est la température de l'air (°C) compris entre 0 et 40°C et r_i (s.m⁻¹) est la résistance stomatique minimale pour la vapeur d'eau. r_i varie selon le type de couvert végétal et la saison. Selon le type d'utilisation des terres, comme les terrains urbains, forêts ou les prairies, Wesely (1989) a défini les valeurs de r_i pour différentes types de surfaces qui sont présentées Tableau III.1.

Tableau III.1 : Résistance stomatique minimale^a (r_i) pour le calcul de la résistance stomatique.

		Type d'utilisation des terres ^b										
Résistance stomatique minimale		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Catégorie saisonnière 1 : milieu de l'été avec une végétation luxuriante												
r_i		9999	60	120	70	130	100	9999	9999	80	100	150
Catégorie saisonnière 2 : automne avec des terres cultivées												
r_i		9999	9999	9999	9999	250	500	9999	9999	9999	9999	9999
Catégorie saisonnière 3 : fin de l'automne après gel, sans neige												
r_i		9999	9999	9999	9999	250	500	9999	9999	9999	9999	9999
Catégorie saisonnière 4 : hiver, neige au sol et congélation												
r_i		9999	9999	9999	9999	400	800	9999	9999	9999	9999	9999
Catégorie 5 : Printemps de transition, végétation partiellement verte												
r_i		9999	120	240	140	250	190	9999	9999	160	200	300

^aLes valeurs 9999 de r_i indiquent qu'il n'y a pas d'échange air-surface via cette voie de résistance. ^b(1) terrain urbain, (2) terre agricole, (3) pâturages et arbustes, (4) forêt à feuilles caduques, (5) forêt de conifères, (6) forêt mixte, y compris les zones humides, (7) eau fraîche et salée, (8) terres stériles, principalement désertiques, (9) zone humide non boisée, (10) terres agricoles mixtes et (11) des zones rocheuses ouvertes avec des arbustes à faible croissance.

Dans certaines conditions environnementales, les stomates peuvent être plus ou moins bloqués. Ce paramètre est représenté par la fraction de blocage stomatique présentée Équation III.7. Pour une canopée sèche, W_{st} est toujours égale à 0. Une valeur autre que 0 n'est attribuée à W_{st} uniquement lorsque la canopée est humide et que le rayonnement solaire global est relativement fort ($> 200 \text{ W.m}^{-2}$). En cas de rosée, la surface est considérée humide (Zhang et al., 2003b).

$$W_{st} = \begin{cases} 0 & SR < 200 \text{ (W.m}^{-2}\text{)} \\ \frac{SR - 200}{800} & 200 < SR < 600 \text{ (W.m}^{-2}\text{)} \\ 0,5 & SR > 600 \text{ (W.m}^{-2}\text{)} \end{cases} \quad \text{Équation III.7}$$

Les données sont ensuite subdivisées en différentes conditions de surface définies comme suit :

- Canopée sèche : $T_s - CW > 0^\circ\text{C}$
- Rosée : $T_s - CW \leq 0^\circ$

T_s et CW sont respectivement la température de l'air ($^\circ\text{C}$) et la température du point de rosée ($^\circ\text{C}$). Plus la différence $T_s - CW$ tend vers 0, plus la probabilité que la canopée soit couverte par la rosée est grande. A l'exception des périodes d'émissions d'iode dans l'atmosphère, les éprouvettes d'herbe sont conservées à l'abri, dans un hangar. En plus, sur l'ensemble des campagnes, $T_s - CW$ est supérieure à 0. Par conséquent, les surfaces d'herbe ont été toutes considérées comme étant sèches.

III.3.3.2 Résistance du mésophylle

La résistance du mésophylle est la résistance à la diffusion du gaz dans le mésophylle, l'empêchant d'atteindre les chloroplastes (Davi, 2004). Elle dépend spécifiquement de l'espèce chimique. La connaissance de R_m est limitée. Cependant, Wesely (1989) a défini une relation permettant de déterminer R_m d'une espèce chimique en fonction de la constante effective de Henry de cette dernière. L'utilisation de cette relation est limitée par le fait que la constante effective de Henry n'est pas connue pour toutes les espèces chimiques. De ce fait, Zhang et al. (2002b) suggèrent que pour les espèces chimiques à solubilité relativement limitée et à très faible pouvoir oxydant, une valeur de 100 est attribuée à R_m . Pour toutes les autres espèces chimiques, une valeur de 0 est attribuée à R_m . Compte tenu de la faible solubilité de l'iode sous forme I_2 dans l'eau et de son pouvoir oxydant élevé (Carpenter, 2003), une valeur de 0 est attribuée à R_m .

III.3.3.3 Résistance non stomatique

La résistance non stomatique est la résistance à la diffusion du gaz à travers la feuille. Elle est calculée suivant l'Équation III.8. Comme son nom l'indique, elle n'est pas contrôlée par l'ouverture ou la fermeture des stomates. Elle a lieu au niveau de la cuticule d'une plante. Étant donné que l'absorption stomatique ne se produit que de jour pour la plupart des types de couvert, il est important de déterminer la part absorbée par plante lorsque les stomates sont fermés. L'absorption non stomatique est affectée par les conditions météorologiques, telles que la vitesse de frottement du vent, l'humidité relative et l'humidité de la canopée, ainsi que des facteurs biologiques, tels que le type de végétation, l'indice de surface foliaire et la période de croissance de la plante. R_{ns} est composée de la résistance aérodynamique au niveau de la feuille, de la résistance cuticulaire et la résistance du sol. Son expression (Équation III.8) est donnée par Zhang et al. (2002a) :

$$\frac{1}{R_{ns}} = \frac{1}{R_{ac} + R_g} + \frac{1}{R_{cut}} \quad \text{Équation III.8}$$

La résistance aérodynamique de canopée ne dépend pas de l'espèce chimique diffusante. Elle est conditionnée par les conditions environnementales, dont la vitesse de frottement du vent et la LAI. L'expression de la résistance aérodynamique de canopée (Équation III.9) est définie par Zhang et al. (2002a) :

$$R_{ac} = \frac{R_{ac0} \times LAI^{1/4}}{u_*^2} \quad \text{Équation III.9}$$

R_{ac0} ($s \cdot m^{-1}$) est la valeur de référence de la résistance aérodynamique de canopée. R_{ac} n'étant pas dépendante de l'espèce chimique, la valeur de R_{ac0} pour la prairie ($R_{ac0} = 50 s \cdot m^{-1}$) définie lors de la paramétrisation de la résistance non stomatique pour O_3 (Zhang et al., 2002a) et pour le SO_2 est utilisée.

Contrairement à R_{ac} , la résistance cuticulaire (R_{cut}) et la résistance du sol (R_g) sont dépendantes de l'espèce chimique. La résistance cuticulaire est la résistance à la diffusion gazeuse au niveau de l'épiderme foliaire. Les valeurs de R_g et R_{cut} sont connues

pour O₃ et pour le SO₂. Pour tous les autres gaz, Zhang et al. (2002b) ont défini une formule permettant de calculer R_g et R_{cut} suivant l'Équation III.10.

$$\frac{1}{R_x(i)} = \frac{\alpha(i)}{R_x(\text{SO}_2)} + \frac{\beta(i)}{R_x(\text{O}_3)} \quad \text{Équation III.10}$$

Où R_x est la résistance du sol (R_g) ou la résistance à la cuticule (R_{cut}) ; i représente l'espèce chimique ; α et β sont deux facteurs basés sur la solubilité et la réactivité oxydo-réductrice de l'espèce chimique (Zhang et al., 2002b). α et β sont calculés sur des considérations physique et chimiques basées sur la solubilité aqueuse et le pouvoir oxydant aqueux. Les constantes effectives de Henry qui combinent à la fois, pression de vapeur, solubilité et dissociation dans l'eau, peuvent servir de mesure de la solubilité aqueuse. Le SO₂ et l'O₃ étant les deux espèces chimiques de référence, α = 1 et β = 0 est fixé pour le SO₂ et α = 0 et β = 1 pour O₃. Cependant, l'utilisation de la solubilité aqueuse comme substitut de réactivité doit être abordée avec prudence, car le gaz étudié peut générer une large gamme de réactions semi-redox pouvant conduire à des vitesses de dépôt différentes par rapport à celles qui sont directement mesurées (c'est le cas de l'oxyde d'azote par exemple) (Zhang et al., 2003b). Par conséquent, le calcul de R_g et de R_{cut} à partir des vitesses de dépôt mesurées demeurent la meilleure alternative.

Dans le cas de l'iode sous forme I₂ étudié ici, R_{cut} est calculée à partir des vitesses de dépôt d'I₂ mesurées sur l'herbe.

L'expression de R_{cut} est définie par Zhang et al. (2002a). R_{cut} dépend du type de couvert végétal (terre agricole, forêt, pâturage, etc.). Pour divers composés chimiques, R_{cut} est différent selon que la canopée soit sèche (Équation III.11) ou mouillée (rosée ou pluie) (Équation III.12) :

Pour une canopée sèche,

$$R_{\text{cut}} = \frac{R_{\text{cutd0}}}{e^{0,03 \times \text{RH}} \times \text{LAI}^{1/4} \times u_*} \quad \text{Équation III.11}$$

Pour une canopée humide,

$$R_{\text{cut}} = \frac{R_{\text{cutw0}}}{\text{LAI}^{1/2} \times u_*} \quad \text{Équation III.12}$$

Où R_{cutd0} et R_{cutw0} représentent les valeurs de référence de R_{cut} (s.m^{-1}) pour une canopée sèche et une canopée humide, respectivement et RH est l'humidité relative (%).

L'Équation III.13 et l'Équation III.14 résultent de l'intégration des expressions de R_{ac} et R_{cut} dans l'Équation III.8.

Pour une canopée sèche,

$$\frac{1}{R_{\text{ns}}} = \frac{1}{R_{\text{ac0}} u_*^{-2} \text{LAI}^{0,25} + R_{\text{g0}}} + \frac{1}{R_{\text{cutd0}} e^{(-0,03 \text{ RH})} \text{LAI}^{-0,25} u_*^{-1}} \quad \text{Équation III.13}$$

Pour une canopée humide (rosée ou pluie),

$$\frac{1}{R_{\text{ns}}} = \frac{1}{R_{\text{ac0}} u_*^{-2} \text{LAI}^{0,25} + R_{\text{g0}}} + \frac{1}{R_{\text{cutw0}} \text{LAI}^{-0,5} u_*^{-1}} \quad \text{Équation III.14}$$

Le calcul de R_{cut} nécessite donc la connaissance de R_{g0} pour l_2 . D'une part les études réalisées lors de la paramétrisation de la résistance non stomatique sur l'herbe pour O_3 et SO_2 ont montré que R_{ns} était beaucoup plus dépendante de R_{cut} que de R_{g} . D'autre part Brandt et al. (2002) ont suggéré que R_c d' l_2 est identique de celle de SO_2 . Par conséquent la valeur de R_{g0} pour le SO_2 correspondant à celle d'une surface prairiale ($R_{\text{g0}} = 100 \text{ s.m}^{-1}$) (Zhang et al., 2003a) a donc été attribuée à l_2 .

III.4 Conclusion

Le modèle de dépôt sec d' l_2 basé sur l'analogie électrique dans laquelle la vitesse de dépôt sec d'un gaz est régie par trois résistances (résistance aérodynamique, résistance quasi-laminaire et résistance de surface) a été décrit.

L'ensemble des paramètres d'entrée du modèle ont été défini. Les paramètres communs à l'ensemble des gaz ont été rappelés tandis que ceux spécifiques à l'iode ont été

déterminés à partir des vitesses de dépôt sec d'I₂ mesurées lors des campagnes MIOSEC 2 et 3, des propriétés physiques et chimiques de l'iode (diffusivité moléculaire, solubilité, ...), des paramètres météorologiques (vitesse de frottement du vent, humidité relative, température, rayonnement solaire global,...) et des propriétés de surface de l'herbe (résistance stomatique, indice de surface foliaire,...).

CHAPITRE IV : RESULTATS DES CAMPAGNES MIOSEC 1, 2 ET 3

IV.1 Introduction

Ce chapitre détaille l'application *in situ* de la méthode décrite et validée au cours du chapitre II. Il s'organise en trois grandes parties.

La première présente les trois campagnes de mesures réalisées entre juillet 2018 et juin 2019. Il s'agit d'un inventaire des données permettant l'analyse la plus complète possible, c'est-à-dire : les données météorologiques, les données inhérentes à la concentration atmosphérique d'I₂ et au flux de dépôt sec d'I₂ ainsi que les évolutions des vitesses de dépôt sec correspondantes.

La deuxième partie est consacrée à l'étude de l'influence des variables météorologiques sur les vitesses de dépôt sec d'I₂.

Enfin, la troisième est réservée à la comparaison des mesures aux vitesses de dépôt issues du modèle réalisé à partir des données météorologiques et des données spécifiques au couvert végétal, toutes acquises lors des émissions atmosphériques d'I₂.

Trois campagnes de mesures ont été réalisées pour l'acquisition de l'ensemble des données. La première est une campagne de mise au point. Elle est réalisée en juillet 2018 (MIOSEC 1). Les deux autres campagnes de mesure ont été réalisées en fin septembre 2018 (MIOSEC 2) et juin 2019 (MIOSEC 3).

Toutes ces campagnes ont eu lieu sur un site de l'Institut National de Recherche pour l'Agriculture, l'Alimentation et l'Environnement (INRAE) (latitude : 46°25'10''N, longitude : 0°07'3''E) à Lusignan (environ 30 km de Poitiers). Ce site a été choisi en raison de l'homogénéité du couvert végétal. En effet, il est composé principalement de l'herbe de prairie composée de *Lolium pérenne* et de *Dactylis glomerata*. A n'importe quel point du site sur un rayon de 100 m, approximativement, l'herbe de la prairie était haute (h) de 0,05 m avec une rugosité moyenne de 0,01 m. La hauteur de rugosité donnée est une approximation basée sur le profil de vent ($d = 0$) mesuré à 0,5 m ($z_0/h = 0,2$).



Figure IV.1 : Localisation du site expérimental de l'INRAE, à Lusignan (France).

Dans l'optique d'obtenir des valeurs de vitesses de dépôt sur l'herbe pour différentes paramètres turbulents, une stratégie d'enchaînement des campagnes de mesures a été mise en place. Le but étant que les trois campagnes forment un ensemble cohérent et logique. Ainsi la campagne MIOSEC 1 correspond à la première mise en place de la méthode, utilisant un générateur d'iode (Model 500 Dynacalibrator) avec des faibles émissions d'iode dans l'atmosphère conduisant à la canalisation des rejets atmosphériques d'I₂. La campagne MIOSEC 2 (fin septembre) est réalisée suite à la conception d'un générateur expérimental d'iode capable d'émettre des concentrations atmosphériques d'I₂ suffisamment élevées pour être mesurées sans que les rejets d'I₂ ne soient canalisés. Pour l'obtention de conditions climatiques différentes, la campagne MIOSEC 3 est réalisée en juin 2019.

Le Tableau IV.1 présente la description des objectifs visés durant les trois campagnes de mesure.

Tableau IV.1 : Recapitulatif de la description des objectifs visés durant les trois campagnes de mesure.

Nom	Date début	Date fin	Objectifs
MIOSEC 1	26/06/2018	04/07/2018	Mise au point, rejets d'I ₂ canalisés
MIOSEC 2	18/09/2018	27/09/2018	Rejets d'I ₂ non canalisés
MIOSEC 3	04/06/2019	07/06/2019	Conditions climatiques différentes de MIOSEC 2

Les éprouvettes d'herbe utilisées pour récolter l'I₂ déposé sont de type ray-grass de 16 cm × 16 cm de dimension. Au cours des trois campagnes de mesure, l'herbe des éprouvettes était haute de 0,05 m. Sachant que la durée de chaque campagne de mesure est comprise entre 6 et 9 jours, les éprouvettes d'herbe sont quasiment identiques. De ce fait, la mesure de l'indice de surface foliaire n'a été réalisée qu'au cours de la campagne de mise au point (MIOSEC 1).

Pour présenter les résultats, l'ensemble des expériences étant réalisées sur le même site expérimental, la description des équipements utilisés ainsi que la disposition des échantillons sont rappelées. Ensuite, vient l'évolution des conditions météorologiques et des vitesses de dépôt durant les campagnes de mesures. L'influence des différents paramètres météorologiques sur les vitesses de dépôt est également présentée. Les résultats du modèle sont ensuite présentés et confrontés aux valeurs mesurées. Cette partie se termine par l'utilisation du modèle afin de mieux comprendre le lien entre les différents paramètres météorologiques et les vitesses de dépôt.

IV.2 Résultats des mesures

Les vitesses de dépôt sec présentées dans cette partie sont celles mesurées sur les éprouvettes d'herbe.

IV.2.1 Campagne MIOSEC 1

IV.2.1.1 Site de mesure et dispositif expérimental

Réalisée en juin 2018, cette campagne a consisté à mettre au point un protocole d'émission d'iode sous forme I_2 dans l'atmosphère et de quantifier les vitesses de dépôt correspondantes sur des éprouvettes d'herbe et de verre. Pour émettre I_2 dans l'atmosphère, un générateur d'iode a été utilisé. En raison des difficultés liées aux mesures des concentrations atmosphériques d' I_2 émis, les émissions ont été canalisées. Les mesures ont eu lieu sur un site de l'Institut National de Recherche Agronomique (INRAE) à Lusignan (à environ 30 km de Poitiers). Ce site a été choisi en raison de l'homogénéité du couvert végétal. En effet, il est composé principalement de l'herbe de prairie composée de *Lolium pérenne* et de *Dactylis glomerata*. A n'importe quel point du site sur un rayon de 100 m, la hauteur de l'herbe (h) était de 0,05 avec une rugosité moyenne (z_0) de 0,01 m. La hauteur de rugosité donnée est une approximation basée sur le profil de vent ($d = 0$) mesuré à 6 m ($z_0/h = 0,2$).

L'illustration de la canalisation des émissions d' I_2 au cours de cette campagne est présentée Figure IV.2. En plus de l'anémomètre ultrasonique monté dans le canal à 10 cm de hauteur par rapport au sol, un autre anémomètre ultrasonique est disposé à 6 m au-dessus du sol à environ 50 m de la canalisation.

La station météorologique permettant d'acquérir le rayonnement solaire global, l'humidité relative et le point de rosée, montée à 1,5 m au-dessus du sol est présentée Figure IV.3.

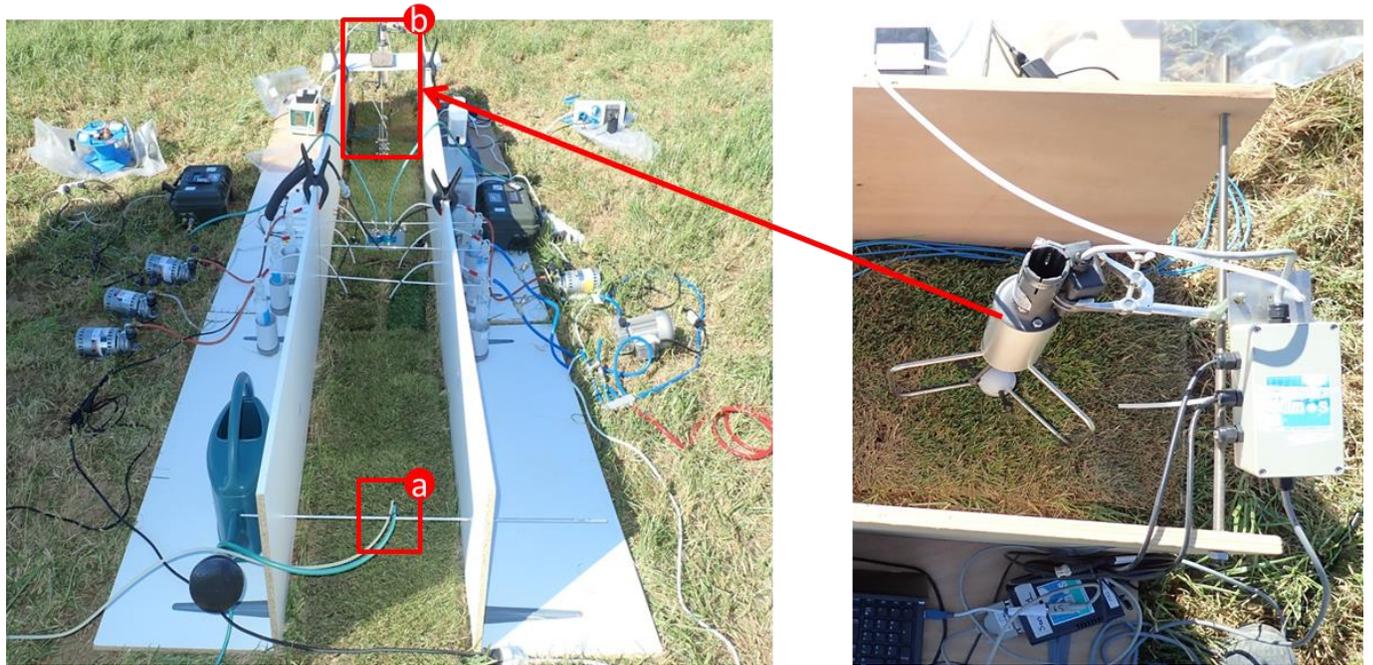


Figure IV.2 : Émission d'iode à l'intérieur de la canalisation lors de la campagne MIOSEC 1 (image à gauche). (a) : disposition de l'orifice de sortie du générateur d'iode (Dynacalibrator, Model 500) ; (b) : disposition de l'anémomètre ultrasonique à l'intérieur de la canalisation. Aggrandissement de l'image (b) montrant l'anémomètre ultrasonique (image à droite).



Figure IV.3 : Disposition de la station météorologique monté à 1,5 m au-dessus du sol lors de la campagne MIOSEC 1.

Les mesures de l'indice de surface foliaire ont été réalisées à l'aide du LAI-mètre dont le mode de fonctionnement a été décrit précédemment.

Les échantillons de prélèvement d'iode dans l'air et sur les surfaces sont disposés à l'intérieur du canal. Cette disposition est représentée Figure IV.4.

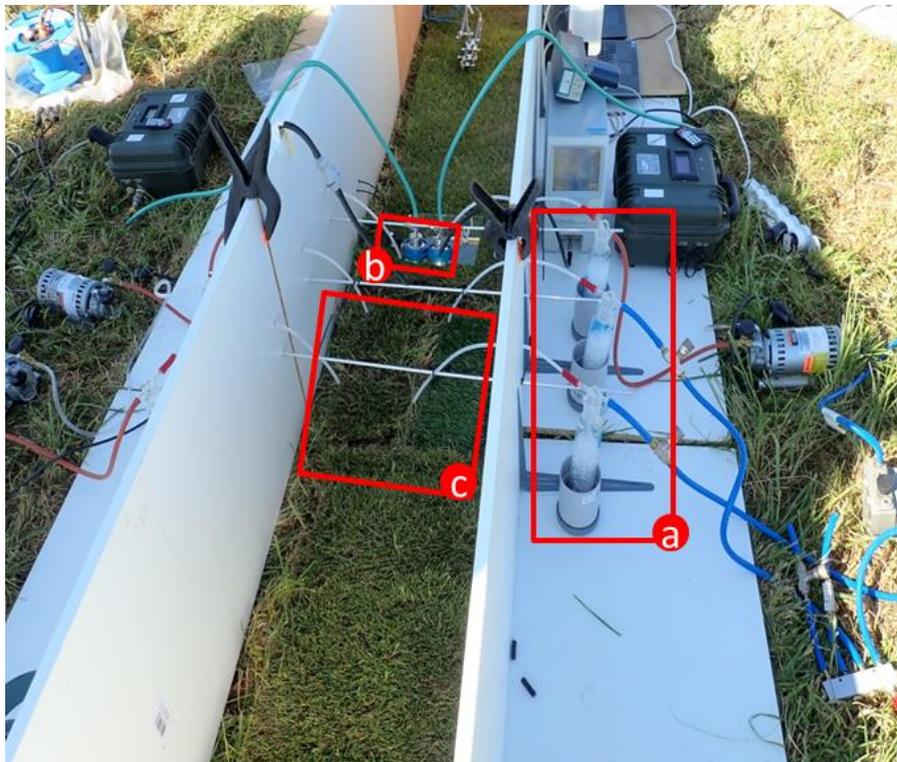


Figure IV.4 : Dispositions des échantillons à l'intérieur de la canalisation lors de la campagne MIOSEC 1. (a) : prélèvement d'iode gazeux dans l'air (flacons) ; (b) : prélèvement d'iode particulaire (filtres) ; (c) : prélèvement d'iode déposé (éprovettes d'herbe).

IV.2.1.2 Conditions météorologiques durant la campagne

Dans le canal, pas assez stationnaire, car trop encombrant. Les conditions d'acquisition des données météorologiques relatives aux paramètres turbulents sont donc différentes de celles mesurées en atmosphère libre. Par conséquent, les données météorologiques n'ont pas été présentées ici.

IV.2.1.3 Evolution journalière de la vitesse de dépôt sec de l'iode

Pour donner une vision globale de l'évolution de la vitesse de dépôt sec de l'iode au cours de toute la campagne, les résultats des mesures des concentrations d'iode dans l'atmosphère et sur l'herbe, et les vitesses de dépôt correspondantes sont présentés Tableau IV.2. Les difficultés liées aux émissions d'I₂ dans l'atmosphère rendent complexe la quantification d'I₂ déposé sur les éprouvettes de collection. Les vitesses de dépôt mesurées sur l'herbe varient entre $0,12 \pm 0,01 \text{ cm.s}^{-1}$ et $0,58 \pm 0,04 \text{ cm.s}^{-1}$. Elles sont présentées Tableau IV.2. L'incertitude au niveau de la vitesse de dépôt correspond au coefficient de variation sur le rendement d'extraction de l'I₂ déposé sur l'herbe.

Tableau IV.2 : Vitesse de dépôt sec d'iode sur l'herbe naturelle durant la campagne MIOSEC 1.

Date heure fin	Temps d'émission (minutes)	Concentration atmosphérique d'I ₂ ($\mu\text{g.m}^{-3}$)	Flux de dépôt sec d'I ₂ ($\mu\text{g.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$)	Vitesse de dépôt sec d'I ₂ (cm.s^{-1})
28/06/2018 12:26	60	1,20	$(7 \pm 0,44) \times 10^{-3}$	$0,58 \pm 0,04$
28/06/2018 15:35	60	1,56	$(2 \pm 0,14) \times 10^{-3}$	$0,14 \pm 0,01$
29/06/2018 08:20	60	2,54	$(3 \pm 0,19) \times 10^{-3}$	$0,12 \pm 0,01$
29/06/2018 11:30	60	1,82	$(9 \pm 0,55) \times 10^{-3}$	$0,47 \pm 0,03$
30/06/2018 09:43	60	1,96	$(5 \pm 0,29) \times 10^{-3}$	$0,24 \pm 0,02$
04/07/2018 08:18	60	1,63	$(9 \pm 0,59) \times 10^{-3}$	$0,56 \pm 0,04$
04/07/2018 10:43	60	1,26	$(3 \pm 0,17) \times 10^{-3}$	$0,21 \pm 0,01$
04/07/2018 13:36	60	1,46	$(5 \pm 0,29) \times 10^{-3}$	$0,31 \pm 0,02$

La Figure IV.5 présente l'évolution au cours du temps des vitesses de dépôt d'I₂ sur l'herbe. En effet, la valeur moyenne mesurée est de $0,33 \text{ cm.s}^{-1}$ tandis que la valeur médiane est de $0,27 \text{ cm.s}^{-1}$. On peut constater qu'il y a moins d'un facteur 5 de différence entre la valeur minimale mesurée et la valeur maximale, et les valeurs trouvées ne sont pas variables suivant la période de la journée (matin, pleine journée ou soir) au cours de laquelle les mesures sont effectuées, probablement en raison des conditions météorologiques semblables à l'intérieur de la canalisation.

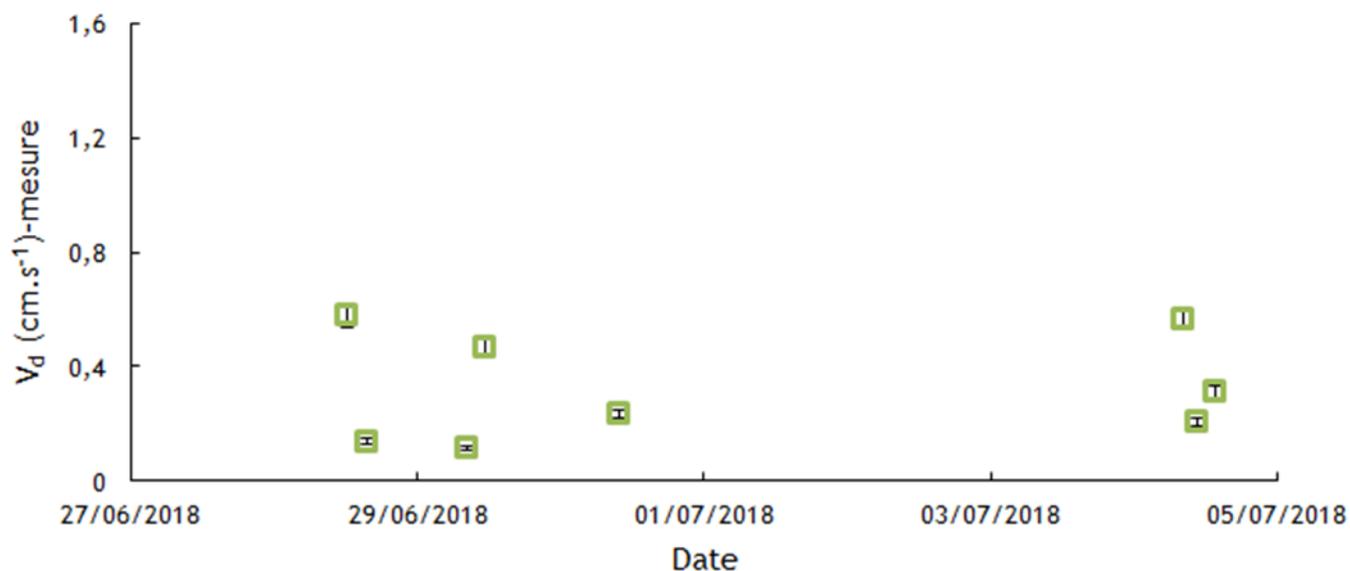


Figure IV.5 : Evolution au cours du temps des vitesses de dépôt d'I₂ sur l'herbe (rectangles verts) durant la campagne MIOSEC 1. Les barres noires sur les rectangles correspondent au coefficient de variation en pourcentage (RSD = 6,44 %) sur le rendement d'extraction d'I₂.

En raison des difficultés rencontrées lors des émissions d'I₂ mais aussi de la modification de l'écoulement d'air et de la stabilité atmosphérique à l'intérieur du canal, l'évolution des vitesses de dépôt d'I₂ en fonction des paramètres météorologiques n'a pas été évaluée. Pour ces différentes raisons, étant donné que le modèle de dépôt d'I₂ nécessite les données météorologiques mesurées dans le canal, le calcul des V_d à partir de ces dernières n'a pas été effectué.

IV.2.2 Campagne MIOSEC 2

IV.2.2.1 Site de mesure et dispositif expérimental

A l'exception du site d'expérimentation, de la hauteur de l'herbe de la prairie et de la longueur de rugosité moyenne (0,01 m) (approximation basée sur le profil du vent à 0,5 m, $d = 0$) qui sont identiques, cette campagne est différente de celle réalisée précédemment.

D'abord, elle est réalisée en septembre 2018, autrement dit dans des conditions météorologiques différentes.

La position des émissions d'iode et des anémomètres ultrasoniques durant cette campagne est présentée Figure IV.6.

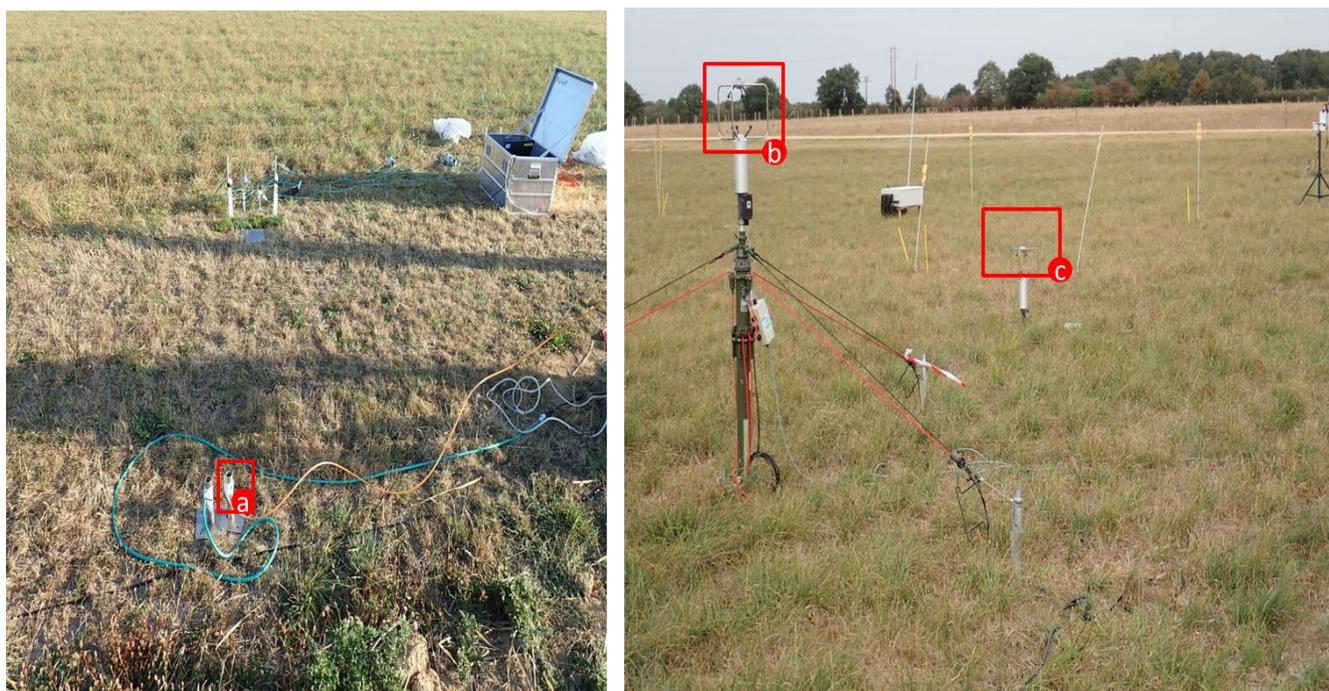


Figure IV.6 : Disposition du générateur expérimental d'émission d'iode et des anémomètres ultrasoniques lors de la campagne MIOSEC 2. L'image à gauche montre la disposition de l'orifice de sortie du générateur d'iode (a) vis-à-vis des échantillons de prélèvement et celle à droite montre la disposition des anémomètres ultrasoniques montés à 1,5 m (b) et à 0,5 m (c) de hauteur par rapport au sol.

La grande différence se situe au niveau des émissions d'I₂. Elles sont réalisées à l'aide d'un autre générateur d'I₂ avec un débit plus important comparativement au générateur utilisé durant la campagne précédente. De ce fait, les rejets d'iode n'ont pas été canalisés, c'est-à-dire qu'ils ont été réalisés en atmosphère, sans perturbation de la turbulence.

Un autre anémomètre ultrasonique a été monté à 6 m au-dessus du sol. La station météorologique est positionnée de manière identique à celle de la campagne précédente (Figure IV.3). Les éprouvettes d'herbe étant identiques à celles utilisées lors de la campagne MIOSEC 1, les mesures de la LAI n'ont pas été réalisées au cours de cette campagne. Les échantillons d'herbe sont directement exposés aux émissions atmosphériques d'iode. Leur disposition est présentée Figure IV.7.

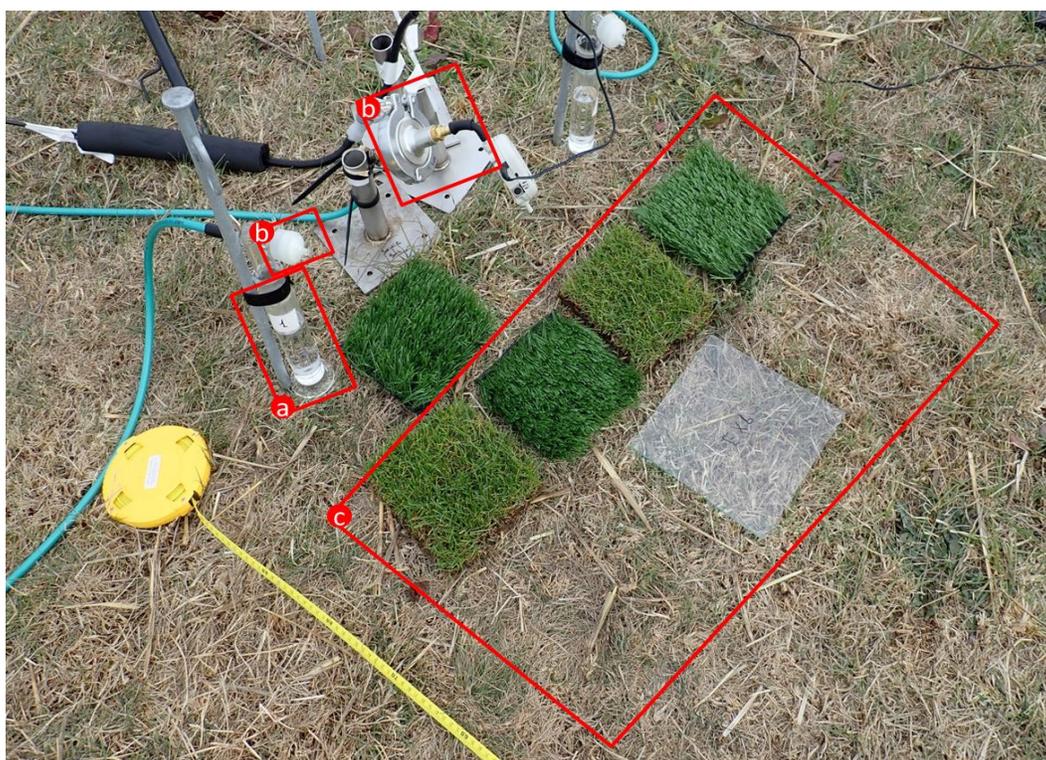


Figure IV.7 : Disposition des échantillons lors de la campagne MIOSEC 2. Disposition des préleveurs d'iode gazeux dans l'air (a) et particulaire (b) et des collecteurs (éprouvettes d'herbe) d'I₂ déposé.

IV.2.2.2 Condition météorologique durant la campagne

Durant cette campagne, les principaux paramètres météorologiques sont moyennés sur 30 minutes en raison de la durée des émissions d'iode durant chaque expérience. La Figure IV.8 et la Figure IV.9 présentent l'ensemble des paramètres météorologiques acquis durant la campagne à l'aide de l'anémomètre ultrasonique.

Le flux de chaleur sensible H (W.m^{-2}) marque une forte augmentation le jour avec des valeurs maximales variant autour de 130 à 200 W.m^{-2} du 19 au 27 septembre et un maximum durant la journée du 24 septembre (275 W.m^{-2}) marquant un très fort ensoleillement. Sur l'ensemble de la campagne, le flux de chaleur sensible est fort le jour. Il est faible durant la nuit voir parfois négatif.

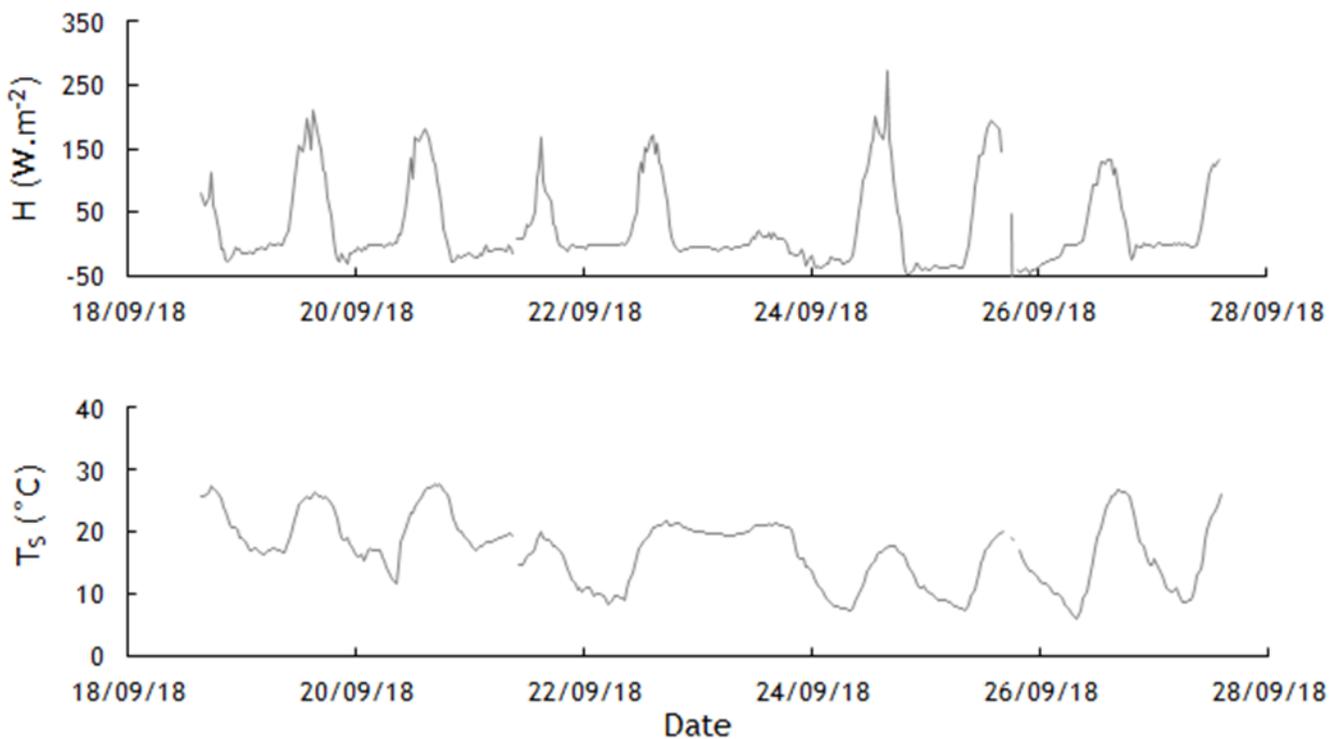


Figure IV.8 : Evolution des principaux paramètres météorologiques durant la campagne MIOSEC 2 (anémomètre ultrasonique placé à 0,5 m au-dessus du sol) : température et flux de chaleur sensible.

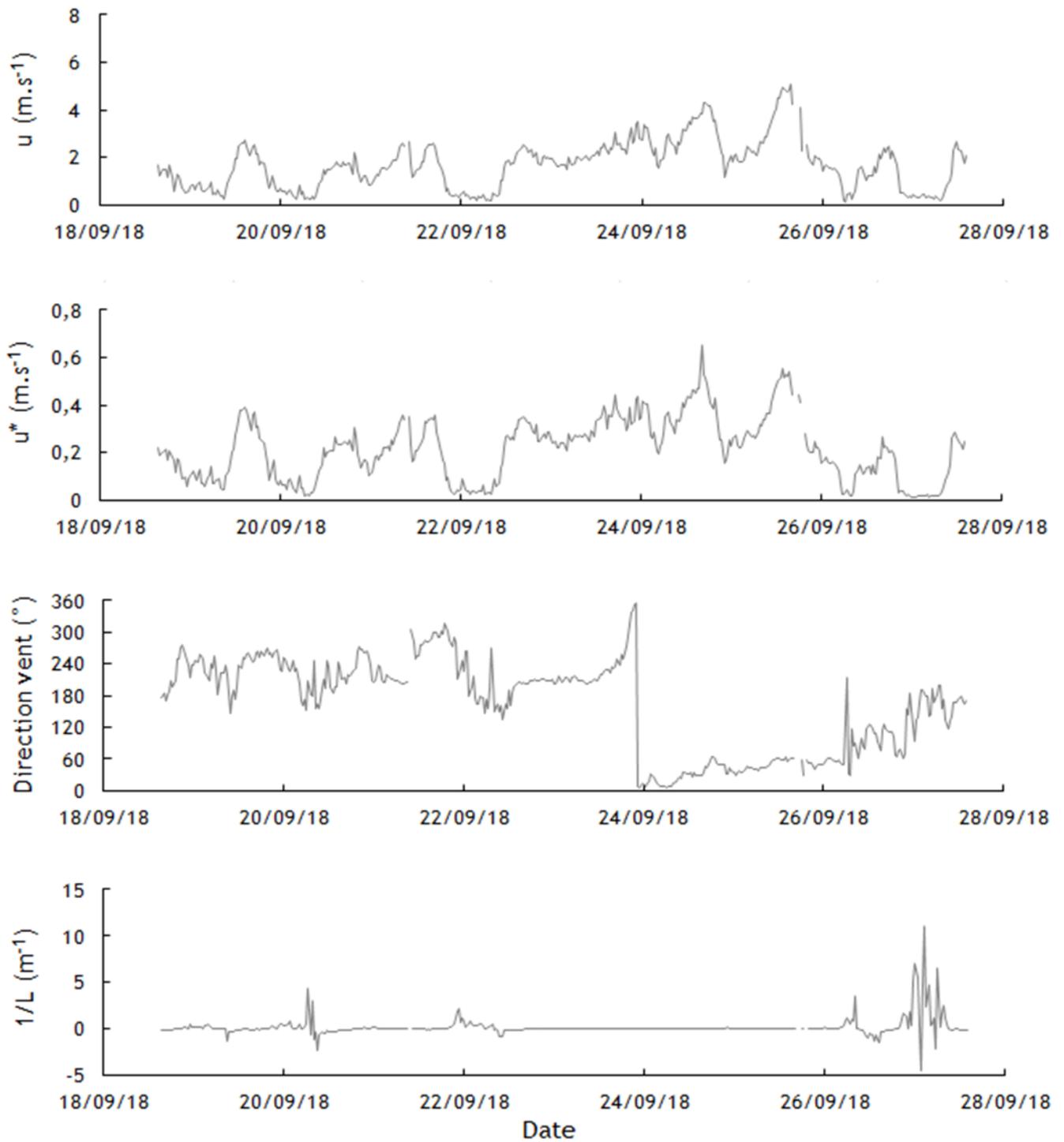


Figure IV.9 : Evolution des principaux paramètres météorologiques durant la campagne MIOSEC 2 (anémomètre ultrasonique placé à 0,5 m au-dessus du sol) : stabilité atmosphérique, direction, vitesse et vitesse de frottement du vent.

Etant liée à l'évolution du flux de chaleur sensible, la température T_s ($^{\circ}\text{C}$) est conditionnée par le levé et le coucher du soleil. Elle varie entre 6 et 27°C avec des maximums atteints le jour et des minimums la nuit et le matin. Les journées du 18, 19, 20, 26 et 27 ont été les plus chaudes (20 à 27°C) alors que la température est au tour de 15 à 20°C les autres journées.

Les vitesses moyennes du vent u ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) atteignent des valeurs de $5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Les valeurs minimales sont de l'ordre de $0,15 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Les fortes vitesses de vent sont mesurées le jour (2 à $5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$) contrairement à la nuit ($0,15$ à $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$). Les vitesses de vent sont plus faibles les journées du 19 au 22, 26 et 27 juillet (2 à $3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$). Le cycle jour-nuit est bien observable. Les vitesses de frottement du vent u^* ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) observent logiquement une évolution similaire à celle de la vitesse du vent, avec des valeurs comprises entre $0,01$ et $0,65 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Le vent est dirigé Sud-Ouest du 18 au 23 septembre. Il passe ensuite au Nord-Est à partir du 23 septembre nuit jusqu'au 26 septembre nuit pour finir au Sud-Est.

Concernant la stabilité atmosphérique $1/L$ (m^{-1}), la Figure IV.10 permet de distinguer les épisodes d'instabilité ($1/L < -0,02$) le jour et de stabilité ($1/L > 0,02$) la nuit. Même s'il arrive qu'un front d'air vienne perturber l'établissement de cette alternance (par exemple la nuit du 27 septembre).

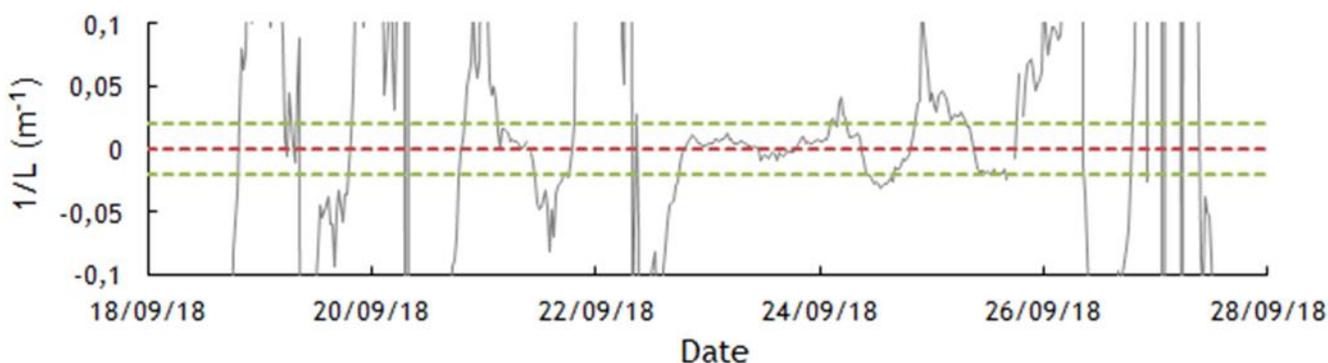


Figure IV.10 : Evolution de la stabilité atmosphérique durant la campagne MIOSEC 2.

Les valeurs de $1/L$ au voisinage de 0 (pointillés rouges) correspondent à celles des conditions neutres ($-0,02 < 1/L < 0,02$). Elles sont encadrées par des pointillés verts.

A l'exception de la journée du 23 septembre, les épisodes neutres apparaissent principalement lors des périodes de transition, c'est-à-dire aux levés et aux couchés du soleil. Les conditions neutres sont : $-0,02 < 1/L < 0,02$. Ces bornes sont représentées par les pointillés verts.

Les principaux paramètres météorologiques dont le flux de chaleur sensible, la température, la vitesse de frottement du vent, l'inverse de la longueur de Monin-Obukhov, acquis durant les émissions d'iode sont présentés Tableau IV.3. Ces valeurs montrent que les émissions d'iode sont réalisées aussi bien durant les épisodes de vent fort que pendant les épisodes de vent faible mais aussi durant des épisodes d'ensoleillement (températures et flux de chaleur sensible élevés) et des épisodes partiellement nuageux (températures et flux de chaleur sensible faibles). Concernant la stabilité atmosphérique, ces émissions ont lieu dans des conditions d'instabilité atmosphérique ($1/L < -0,02 \text{ m}^{-1}$). Les rares épisodes neutres observés correspondent à des périodes de début ou de fin de transition du cycle jour-nuit.

La Figure IV.11 présente l'évolution journalière du rayonnement solaire global SR (W.m^{-2}), de l'humidité relative HR (%) et du point de rosée CW ($^{\circ}\text{C}$). L'évolution du rayonnement solaire global durant la campagne est superposable avec celle du flux de chaleur sensible. Les journées sont partiellement ensoleillées avec des maximums autour de 800 W.m^{-2} . Observant le cycle jour-nuit, ces valeurs décroissent progressivement le soir pour s'annuler la nuit. Marqué par un maximum de 811 W.m^{-2} , la journée du 29 septembre est légèrement plus ensoleillée que les autres journées. La journée du 23 septembre est essentiellement nuageuse avec des maximums compris entre 90 et 180 W.m^{-2} . L'humidité relative de l'air est moins élevée les journées (25 à 50 %) que les nuits (80 à 97 %), correspondant ainsi au cycle d'évolution journalière caractérisé par un air plus sec le jour que la nuit. Le point de rosée ne suit aucune évolution particulière. Les valeurs du point de rosée sont comprises -2 et 19°C . Les valeurs négatives sont observées la nuit du 25 septembre. Une différence de plus de 5°C entre le point de la température de l'air et le point de rosée signifie que les surfaces sont sèches alors que l'inverse signifie que la présence de nuage est probable.

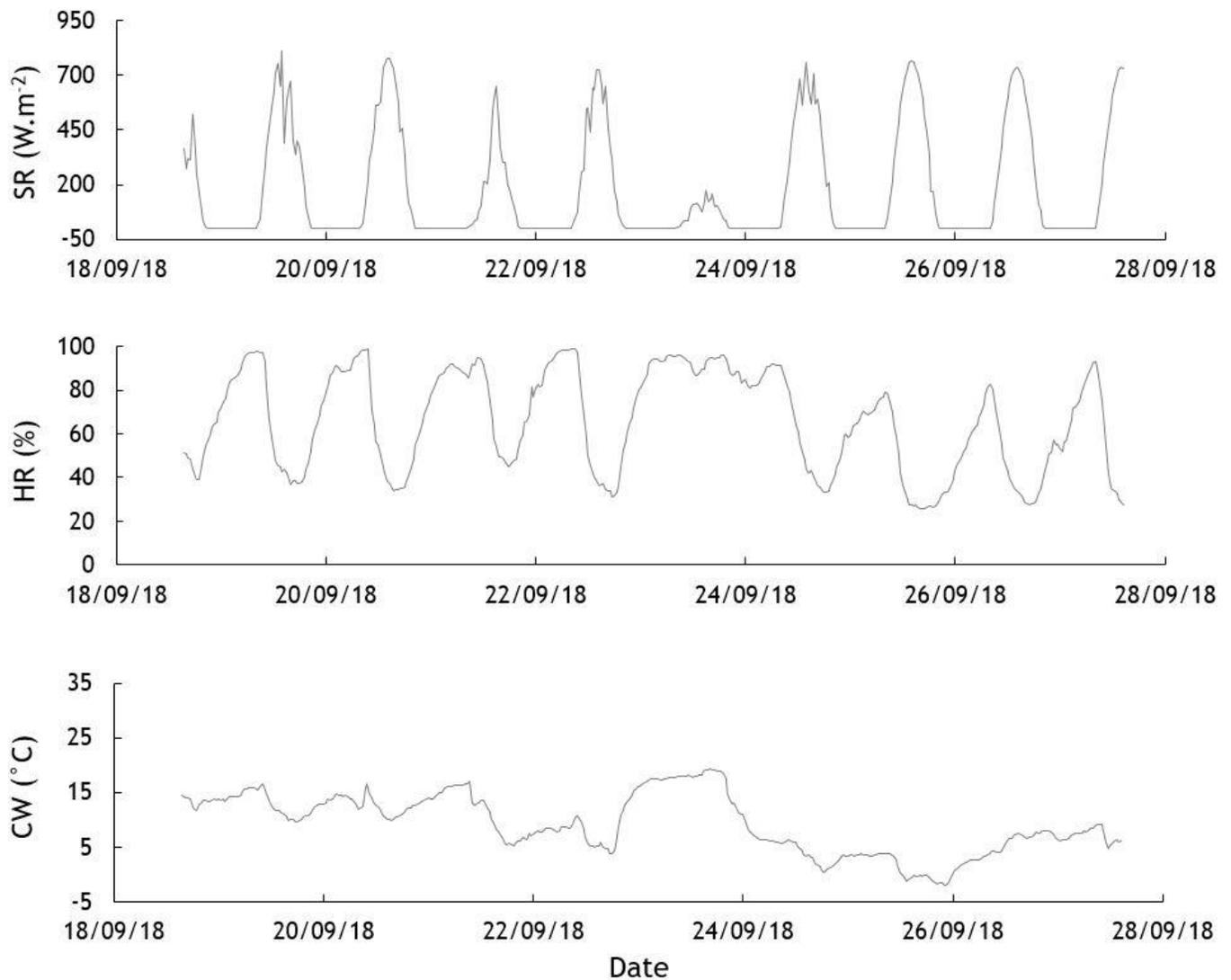


Figure IV.11 : Evolution des principaux paramètres météorologiques durant la campagne MIOSEC 2 (station météorologique placé à 1,5 m au-dessus du sol) : rayonnement solaire global, humidité relative et point de rosée.

Les principaux paramètres météorologiques acquis aux moments des émissions d'I₂ durant cette campagne à l'aide de l'anémomètre ultrasonique et de la station météorologique sont présentés Tableau IV.3 et Tableau IV.4, respectivement. Ces valeurs montrent que les rejets d'I₂ ont lieu dans des conditions de stabilité atmosphérique instables bien qu'il y ait quelques conditions neutres. En plus de cela, les émissions d'I₂ ont lieu aussi bien en période d'ensoleillement qu'en période

partiellement nuageuse. Il est également observable que ces derniers ont lieu pendant des épisodes de fortes et de faibles humidités relatives.

Tableau IV.3 : Principaux paramètres acquis à l'aide de l'anémomètre ultrasonique aux moments des émissions d'iode durant la campagne MIOSEC 2.

Date heure fin	T _s (°C)	H (W.m ⁻²)	u* (m.s ⁻¹)	1/L (m ⁻¹)	Stabilité atmosphérique
19/09/2018 10:32	21	75	0,16	-0,268	Instable
19/09/2018 15:00	26	211	0,37	-0,059	Instable
20/09/2018 09:30	18	14	0,07	-0,584	Instable
20/09/2018 14:32	27	181	0,26	-0,145	Instable
20/09/2018 17:30	28	84	0,24	-0,089	Instable
21/09/2018 15:00	20	169	0,33	-0,069	Instable
21/09/2018 18:30	17	9	0,22	-0,012	Neutre
22/09/2018 09:30	12	9	0,05	-0,826	Instable
22/09/2018 17:00	22	83	0,35	-0,029	Instable
24/09/2018 10:30	12	71	0,36	-0,022	Instable
24/09/2018 16:30	18	165	0,53	-0,016	Neutre
25/09/2018 09:30	10	27	0,36	-0,008	Neutre
26/09/2018 10:00	12	38	0,15	-0,169	Instable
27/09/2018 10:30	19	45	0,26	-0,038	Instable

Tableau IV.4 : Principaux paramètres acquis à l'aide de la station météorologique aux moments des émissions d'iode durant la campagne MIOSEC 2.

Date heure fin	SR (W.m ⁻²)	HR (%)	CW (°C)
19/09/2018 10:32	426	71	15
19/09/2018 15:00	798	39	11
20/09/2018 09:30	286	97	17
20/09/2018 14:32	782	36	10
20/09/2018 17:30	386	36	11
21/09/2018 15:00	653	47	8
21/09/2018 18:30	115	47	6
22/09/2018 09:30	119	95	11
22/09/2018 17:00	475	31	4
24/09/2018 10:30	433	71	6
24/09/2018 16:30	542	37	2
25/09/2018 09:30	272	66	4
26/09/2018 10:00	340	57	4
27/09/2018 10:30	435	45	6

IV.2.2.3 Evolution journalière de la vitesse de dépôt sec de l'iode

Le Tableau IV.5 présente les résultats des vitesses de dépôt mesurées sur l'herbe. Elles sont comprises entre 0,02 et 0,49 cm.s⁻¹ avec une valeur moyenne de 0,18 cm.s⁻¹. Les faibles vitesses de dépôt ($V_d < 0,24$ cm.s⁻¹) sont observées du 19 septembre au 22 septembre matin et le 26 septembre matin.

Tableau IV.5 : Vitesses de dépôt mesurée sur l'herbe au cours de la campagne MIOSEC 2.

Date heure fin	Temps d'émission (minutes)	Concentration atmosphérique d'I ₂ (µg.m ⁻³)	Flux de dépôt sec d'I ₂ (µg.m ⁻² .s ⁻¹)	Vitesse de dépôt sec d'I ₂ (cm.s ⁻¹)
19/09/2018 10:32	30	110,6	0,078 ± 0,005	0,07 ± 0,01
19/09/2018 15:00	30	29,7	0,076 ± 0,005	0,25 ± 0,02
20/09/2018 09:30	30	18,4	0,010 ± 0,001	0,06 ± 0,01
20/09/2018 14:32	30	48,7	0,063 ± 0,004	0,13 ± 0,01
20/09/2018 17:30	30	30,9	0,039 ± 0,003	0,13 ± 0,01
21/09/2018 15:00	30	46,5	0,046 ± 0,003	0,10 ± 0,01
21/09/2018 18:30	30	116,7	0,024 ± 0,002	0,02 ± 0,00
22/09/2018 09:30	30	117,6	0,081 ± 0,005	0,07 ± 0,01
22/09/2018 17:00	30	15,2	0,042 ± 0,003	0,28 ± 0,02
24/09/2018 10:30	30	20,9	0,058 ± 0,004	0,28 ± 0,02
24/09/2018 16:30	30	16,1	0,079 ± 0,005	0,49 ± 0,03
25/09/2018 09:30	30	4,7	0,012 ± 0,001	0,25 ± 0,02
26/09/2018 10:00	30	4,9	0,002 ± 0,0001	0,04 ± 0,00
27/09/2018 10:30	30	132,9	0,399 ± 0,026	0,30 ± 0,02

De façon générale, ces vitesses de dépôt sont trouvées les matins et les soirs à plus de 85 %, elles correspondent au début et la fin du cycle jour-nuit. Cependant, les fortes vitesses de dépôt ($V_d > 0,24 \text{ cm.s}^{-1}$) n'observent pas cette distinction du cycle jour-nuit et permettent d'affirmer que de fortes vitesses de dépôt peuvent aussi bien être observées le matin que la journée ou le soir. L'évolution au cours du temps des vitesses de dépôt au cours de la campagne MIOSEC 2 est présentée Figure IV.12.

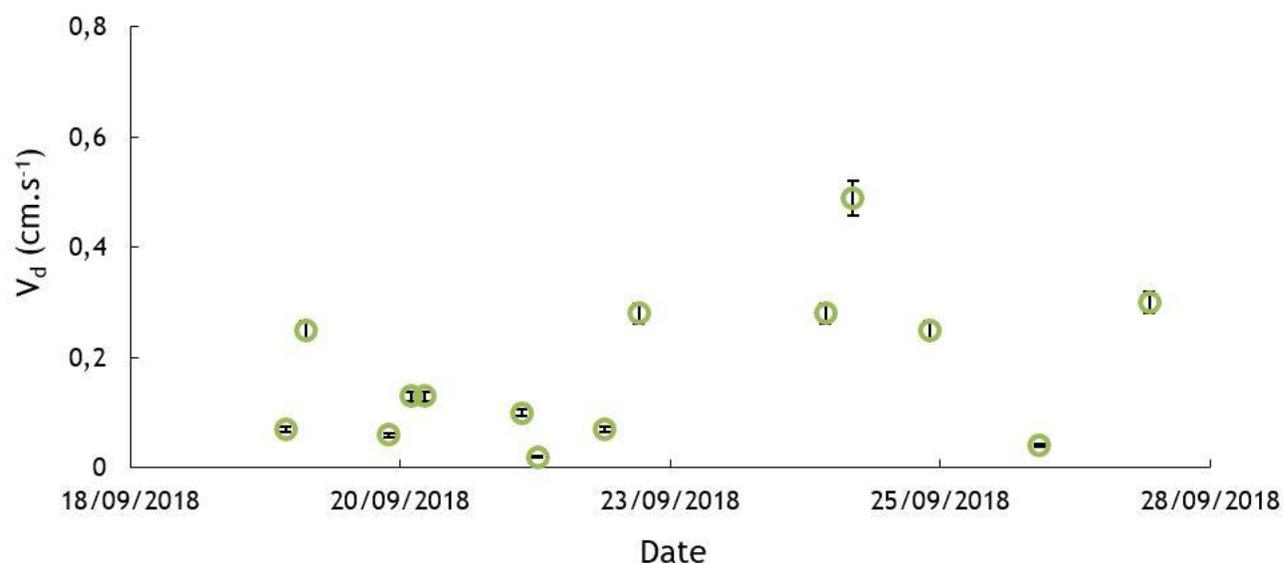


Figure IV.12 : Evolution au cours du temps des vitesses de dépôt sec d'I₂ sur l'herbe (cercles verts) durant la campagne MIOSEC 2. Les barres noires sur les cercles correspondent au coefficient de variation en pourcentage (RSD = 6,44 %) sur le rendement d'extraction d'I₂.

Il en résulte de toutes ces constatations qu'il existe des paramètres non encore identifiés qui influenceraient les vitesses de dépôt d'I₂. L'influence de ces différents paramètres sera mise en évidence par le suivi de l'évolution des V_d en fonction de ces derniers.

IV.2.3 Campagne MIOSEC 3

IV.2.3.1 Site de mesure et dispositif expérimental

Les mesures ont été réalisées sur le même site que celui des deux campagnes précédentes et l'herbe de la prairie avait la même hauteur. Les émissions atmosphériques d'iode ainsi que la disposition des équipements de mesure (anémomètres ultrasoniques, station météorologique) et des échantillons (préleveurs d'iode gazeux et d'iode particulaire, collecteurs d'iode déposé) sont identiques à celles de la campagne MIOSEC 2. Suivant cette même logique, les mesures de la LAI n'ont pas été réalisées au cours de cette campagne.

IV.2.3.2 Conditions météorologiques durant la campagne

Les Figure IV.13 et Figure IV.14 regroupent les paramètres micrométéorologiques moyennés sur 30 minutes, permettant une description précise de l'évolution de la turbulence atmosphérique durant la campagne. Ils sont acquis à l'aide de l'anémomètre ultrasonique. De façon générale, le cycle jour-nuit est moins distinguable que lors des campagnes précédentes.

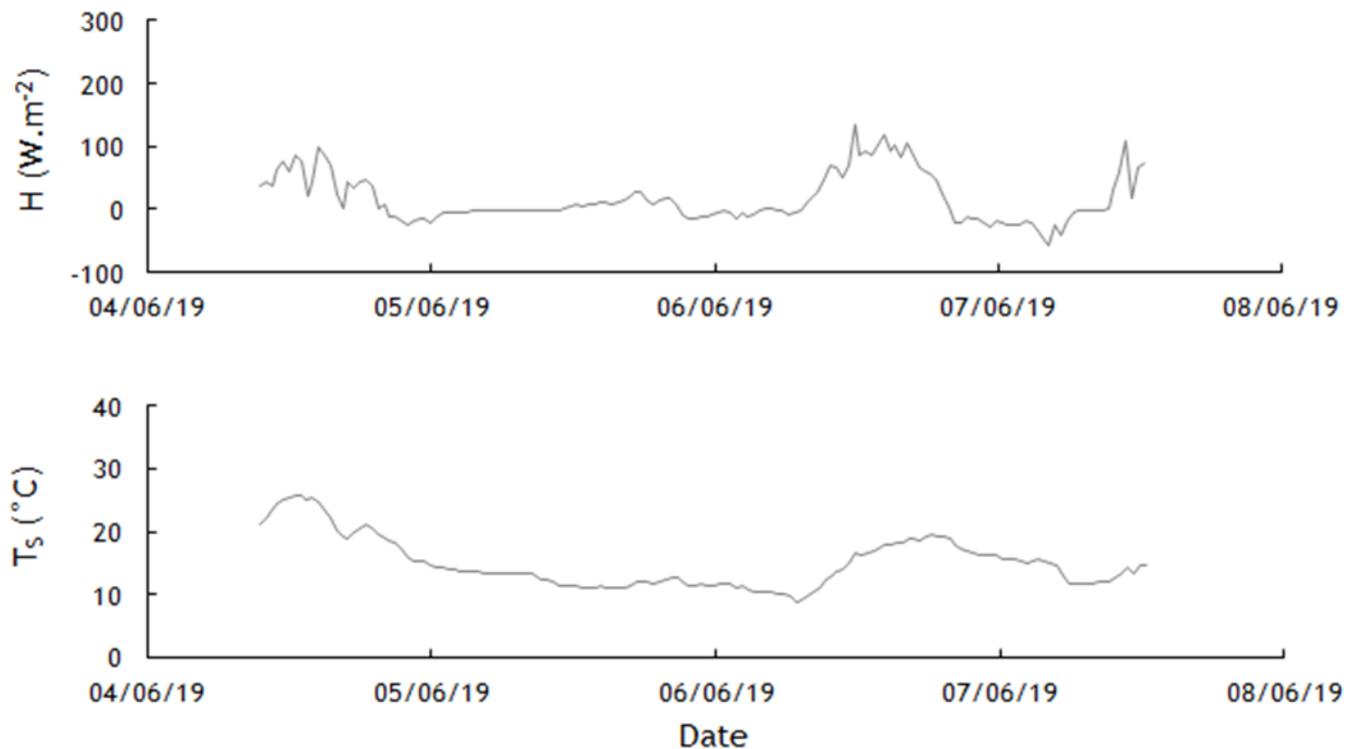


Figure IV.13 : Evolution des principaux paramètres météorologiques durant la campagne MIOSEC 3 (anémomètre ultrasonique placé à 0,5 m au-dessus du sol) : température et flux de chaleur sensible.

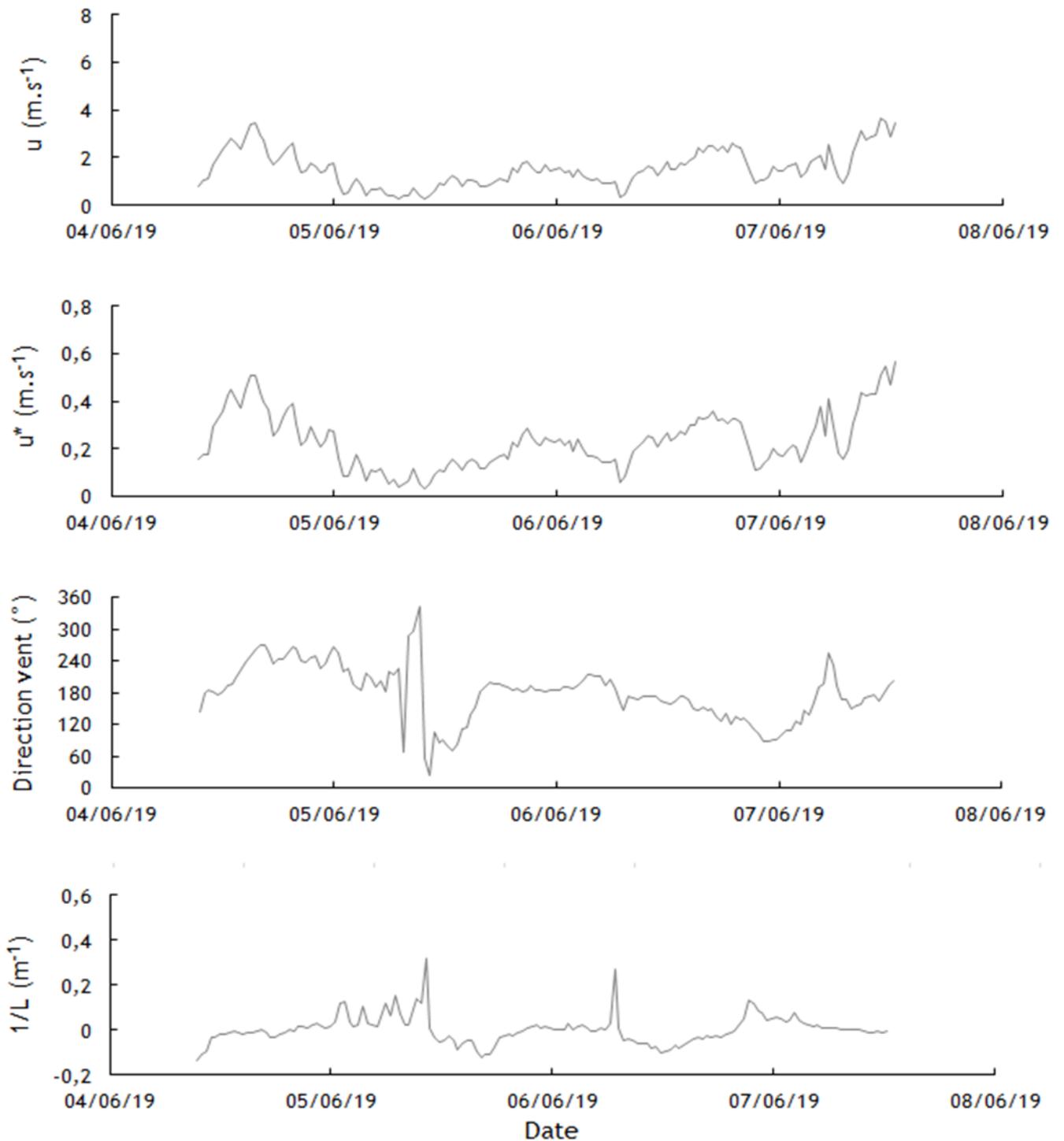


Figure IV.14 : Evolution des principaux paramètres météorologiques durant la campagne MIOSEC 3 (anémomètre ultrasonique placé à 0,5 m au-dessus du sol) : stabilité atmosphérique, direction, vitesse et vitesse de frottement du vent.

Le cycle du flux de chaleur sensible est classique, c'est-à-dire lié au rayonnement solaire, avec un pic en journée et des minima nocturnes. Les valeurs maximales journalières sont atteintes la journée du 4 juin et les journées du 6 et du 7 juin et s'étendent de 100 à 134 W.m⁻², correspondant à des journées faiblement ensoleillées. Les minima nocturnes sont proches de quelques W.m⁻² ou faiblement négatifs. Toutes fois, la journée du 5 juin est marquée par une couverture nuageuse importante, avec des flux de chaleurs maximales variant entre 10 et 28 W.m⁻². L'évolution de la température étant liée à celle du flux de chaleur sensible, les températures maximales sont atteintes les journées et s'étendent de 10 à 26 °C à l'exception de la journée du 5 juin au cours de laquelle la température maximale atteinte est de 12°C. D'ailleurs les températures de la nuit du 5 juin dont les maximums sont au tour de 14°C sont plus marquées de celles de la journée.

Avec des valeurs maximales diurnes et des valeurs minimales nocturnes, les vitesses de vent maximales sont atteintes les journées du 4 et 6 juin. Variant entre 2 et 3,5 m.s⁻¹, ces valeurs sont moins marquées que celles des campagnes précédentes. Tandis que les valeurs minimales nocturnes atteignent 0,3 à 1,8 m.s⁻¹, la valeur maximale de la journée du 5 juin varie au tour de 1,5 m.s⁻¹. La vitesse de frottement du vent est liée à l'évolution de la vitesse du vent avec des maximums diurnes (0,4 à 0,6 m.s⁻¹) et des minimums nocturnes (0,1 à 0,3 m.s⁻¹). De ce fait, son évolution est identique à celle de la vitesse du vent.

La direction du vent n'a pas arrêté de changer durant cette campagne. Elle est passée du Sud-Est au Sud-Ouest le 4 juin avant de passer au Nord-Est la matinée du 5 juin. Le vent est ensuite passé du Nord-Est au Nord-Ouest. Ce brusque changement n'a duré que quelques heures avant de se stabiliser entre le Sud-Ouest et le Sud-Est jusqu'au 7 juin.

Le paramètre $1/L$ définissant la stabilité atmosphérique est disposé de sorte que seuls les épisodes de très forte stabilité ou instabilité peuvent être identifiés. La Figure IV.15 présente une autre échelle mieux adaptée afin d'identifier les conditions neutres ($-0,02 < 1/L < 0,02$).

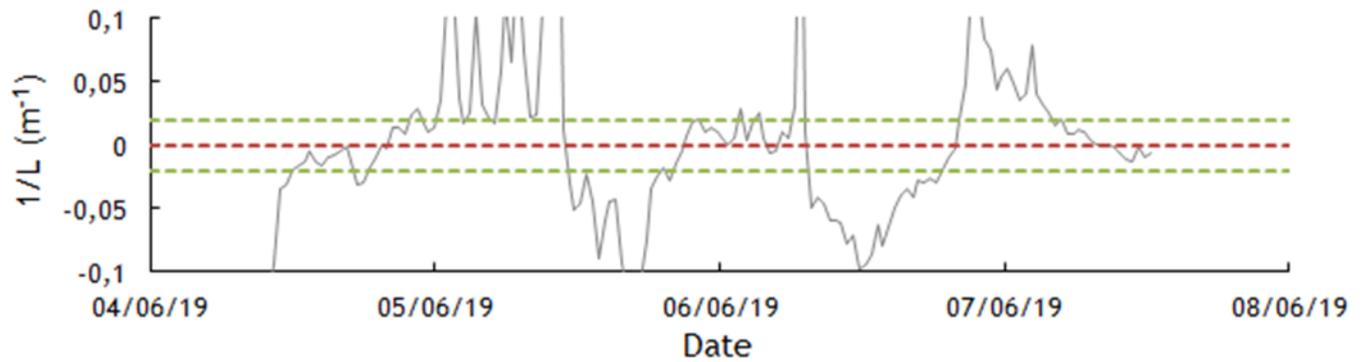


Figure IV.15 : Evolution de la stabilité atmosphérique durant la campagne MIOSEC 3.

Les valeurs de $1/L$ au voisinage de 0 (pointillés rouges) correspondent à celles des conditions neutres ($-0,02 < 1/L < 0,02$). Elles sont encadrées par des pointillés verts.

Les périodes instables ($1/L < -0,02$) sont observées la journée et les périodes stables ($1/L > 0,02$) la nuit. Les épisodes neutres sont observés durant les périodes de transition du cycle jour-nuit à l'exception de la journée du 4 juin et la nuit du 6 juin.

La Figure IV.16 présente les autres paramètres météorologiques enregistrés au moyen de la station météorologique. Le rayonnement solaire global confirme l'observation faite au niveau de l'évolution du flux de chaleur sensible avec des maximums diurnes et des minimums nocturnes. On remarque des perturbations sous forme d'un profil plus dentelé de l'évolution de l'ensoleillement global. Des pics de l'ordre 800 à 975 W.m^{-2} sont observés les journées du 4 et 6 juin tandis que la journée du 5 juin est marquée par une couverture nuageuse (maximum entre 150 et 200 W.m^{-2}).

De façon générale, les fortes humidités de l'air (80 à 98%) sont observées les nuits à l'exception de la journée du 5 juin (valeurs supérieures à 90%) particulièrement humide. Les autres journées sont moins humides (40 à 60%). Quant au point de rosée, les valeurs maximales et minimales ne suivent pas l'évolution journalière des paramètres météorologiques. Son évolution journalière permet de renseigner si les surfaces sont sèches ou mouillées.

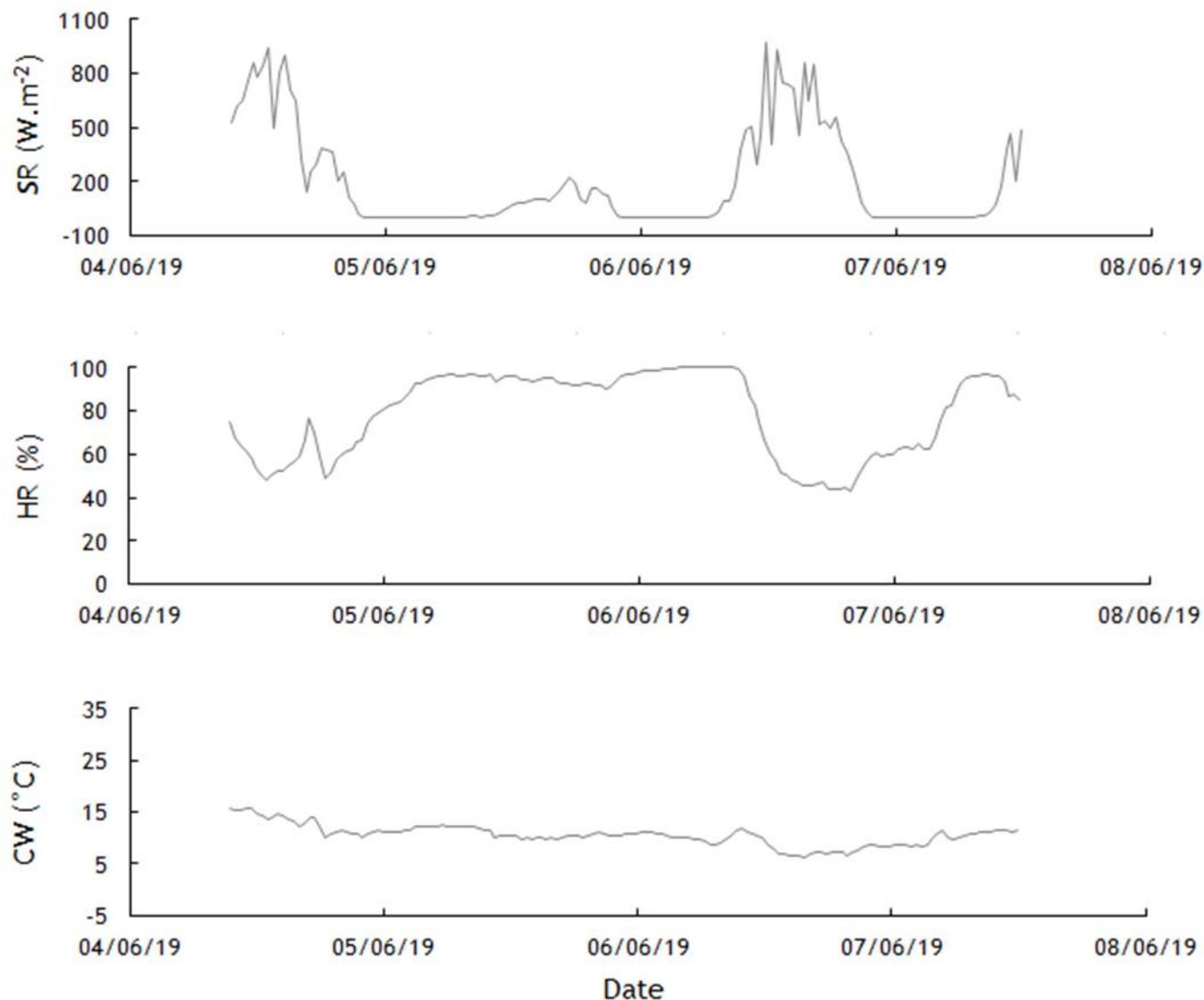


Figure IV.16 : Evolution des principaux paramètres météorologiques durant la campagne MIOSEC 3 (station météorologique placé à 1,5 m au-dessus du sol) : rayonnement solaire global, humidité relative et point de rosée.

Les Tableau IV.6 et Tableau IV.7 présentent respectivement, les principaux paramètres météorologiques acquis à l'aide de l'anémomètre ultrasonique et de la station météorologique lors des rejets atmosphériques d'I₂.

Tableau IV.6 : Principaux paramètres acquis à l'aide de l'anémomètre ultrasonique aux moments des émissions d'iode durant la campagne MIOSEC 3.

Date heure fin	T _s (°C)	H (W.m ⁻²)	u* (m.s ⁻¹)	1/L (m ⁻¹)	Stabilité atmosphérique
04/06/2019 16:05	20	47	0,47	-0,005	Neutre
04/06/2019 17:32	19	39	0,31	-0,018	Neutre
06/06/2019 07:35	9	6	0,12	0,027	Stable
06/06/2019 10:30	13	59	0,23	-0,068	Instable
06/06/2019 12:30	16	89	0,24	-0,09	Instable
06/06/2019 16:03	19	94	0,33	-0,038	Instable
07/06/2019 09:55	12	17	0,43	-0,001	Neutre
07/06/2019 10:47	14	83	0,47	-0,011	Neutre

Tableau IV.7 : Principaux paramètres acquis à l'aide de la station météorologique aux moments des émissions d'iode durant la campagne MIOSEC 3.

Date heure fin	SR (W.m ⁻²)	HR (%)	CW (°C)
04/06/2019 16:05	327	59	12
04/06/2019 17:32	297	70	14
06/06/2019 07:35	62	100	9
06/06/2019 10:30	397	85	11
06/06/2019 12:30	670	59	8
06/06/2019 16:03	749	46	7
07/06/2019 09:55	174	96	11
07/06/2019 10:47	468	87	12

Les résultats montrent que les émissions d'I₂ dans l'air ont eu lieu dans toutes les conditions de stabilité atmosphérique (stable, neutre et instable) avec des conditions neutres et instables dominantes. Comparativement à la campagne précédente, les vents et l'humidité relative étaient plus importants lors des émissions d'I₂.

IV.2.3.3 Evolution journalière de la vitesse de dépôt sec de l'iode

Au cours de cette campagne, les vitesses de dépôt sec mesurées sur l'herbe sont présentées Tableau IV.8.

Tableau IV.8 : Vitesse de dépôt sec de l'iode sur l'herbe durant MIOSEC 3.

Date heure fin	Temps d'émission (minutes)	Concentration atmosphérique d'I ₂ (µg.m ⁻³)	Flux de dépôt sec d'I ₂ (µg.m ⁻² .s ⁻¹)	Vitesse de dépôt sec d'I ₂ (cm.s ⁻¹)
04/06/2019 16:05	30	11,8	0,147 ± 0,009	1,25 ± 0,08
04/06/2019 17:32	30	8,8	0,077 ± 0,005	0,87 ± 0,06
06/06/2019 07:35	30	44,6	0,214 ± 0,014	0,48 ± 0,03
06/06/2019 10:30	30	13,2	0,097 ± 0,006	0,73 ± 0,05
06/06/2019 12:30	30	18,9	0,131 ± 0,008	0,69 ± 0,04
06/06/2019 16:03	30	12,3	0,078 ± 0,005	0,63 ± 0,04
07/06/2019 09:55	30	28,2	0,324 ± 0,021	1,15 ± 0,07
07/06/2019 10:47	30	15,3	0,169 ± 0,011	1,10 ± 0,07

La valeur maximale observée sur l'herbe est de 1,25 cm.s⁻¹ et celle minimale est de 0,48 cm.s⁻¹. La particularité de cette campagne est que les écarts entre les vitesses de dépôt observées n'atteignent pas un facteur trois.

Sur l'ensemble de la campagne, la vitesse de dépôt sec minimale est observée le 6 juin. Bien que le nombre de données soient limitées, il est évident que la moyenne des vitesses de dépôt observées le 6 juin sont inférieures à celles des autres journées. Rappelons que la journée du 6 juin est particulièrement caractérisée par des vents plus faibles que les journées du 4 et 7 juin. La Figure IV.17 représente l'évolution au cours du temps des vitesses de dépôt durant cette campagne.

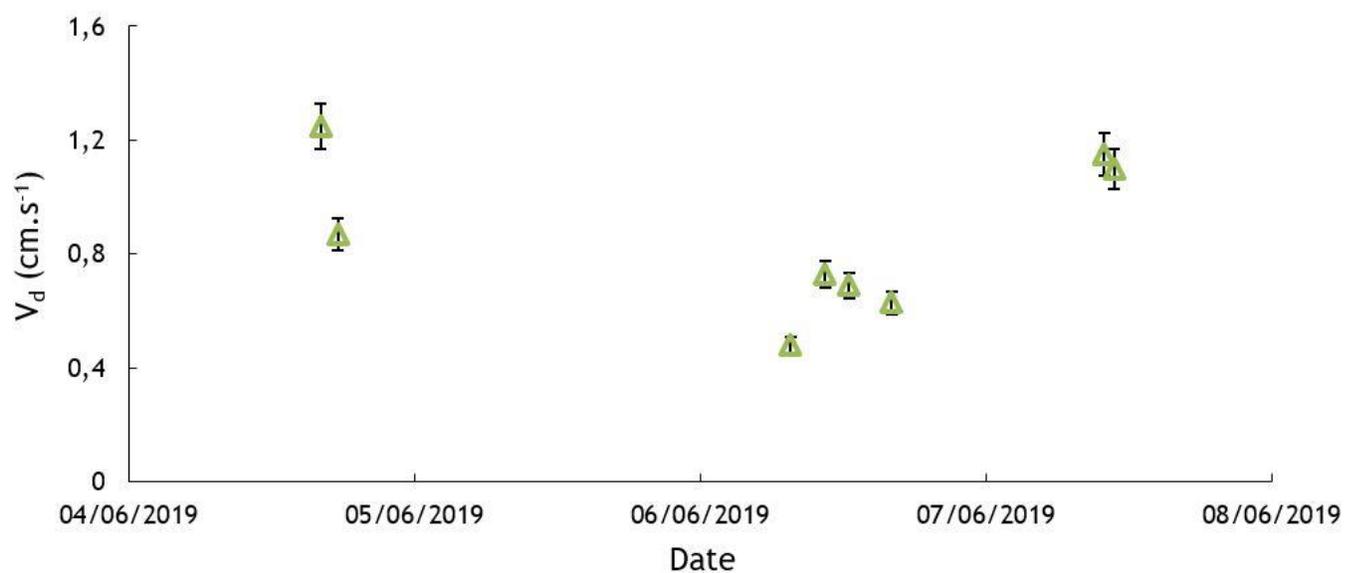


Figure IV.17 : Evolution au cours du temps de la vitesse de dépôt sec d'I₂ sur l'herbe (triangles verts) durant la campagne MIOSEC 3. Les barres noires sur les triangles correspondent au coefficient de variation en pourcentage (RSD = 6,44 %) sur le rendement d'extraction d'I₂.

IV.3 Influence des paramètres météorologiques sur les vitesses de dépôt

Dans ce paragraphe on s'intéressera au lien entre les principaux paramètres météorologiques et les vitesses de dépôt sec issues des campagnes MIOSEC 2 et 3. Sur les représentations graphiques les barres noires sur les cercles, triangles et rectangles correspondent au coefficient de variation en pourcentage sur le rendement d'extraction d'I₂ (RSD = 6,44 %).

IV.3.1 Paramètres météorologiques (u^* , H, SR, Ts et HR) influençant la vitesse de dépôt sec d'I₂

- Influence de la vitesse de frottement du vent

Les Figure IV.18 et Figure IV.19 présentent l'évolution au cours du temps de la vitesse de dépôt sec d'I₂ et de la vitesse de frottement du vent obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3, respectivement. Les résultats montrent que pour les mêmes vitesses de frottement du vent, les V_d de la campagne MIOSEC 3 sont plus élevées que celles de la campagne MIOSEC 2.

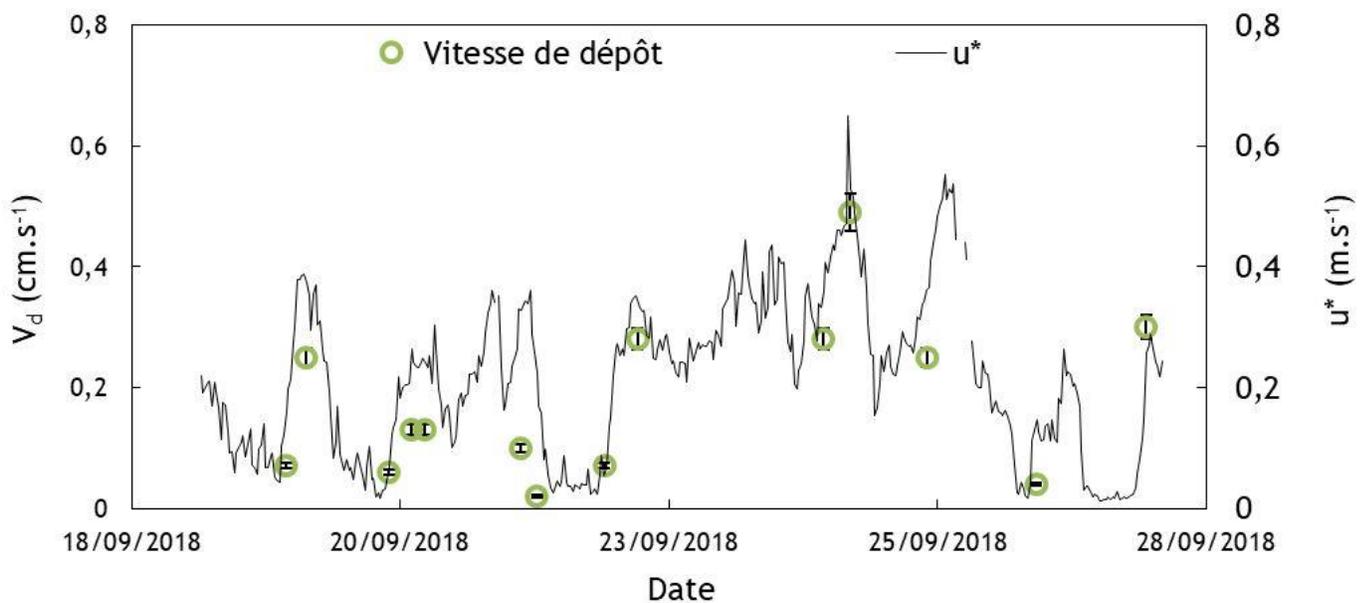


Figure IV.18 : Évolution journalière de la vitesse de dépôt sec d'I₂ et de la vitesse de frottement du vent obtenues durant la campagne MIOSEC 2.

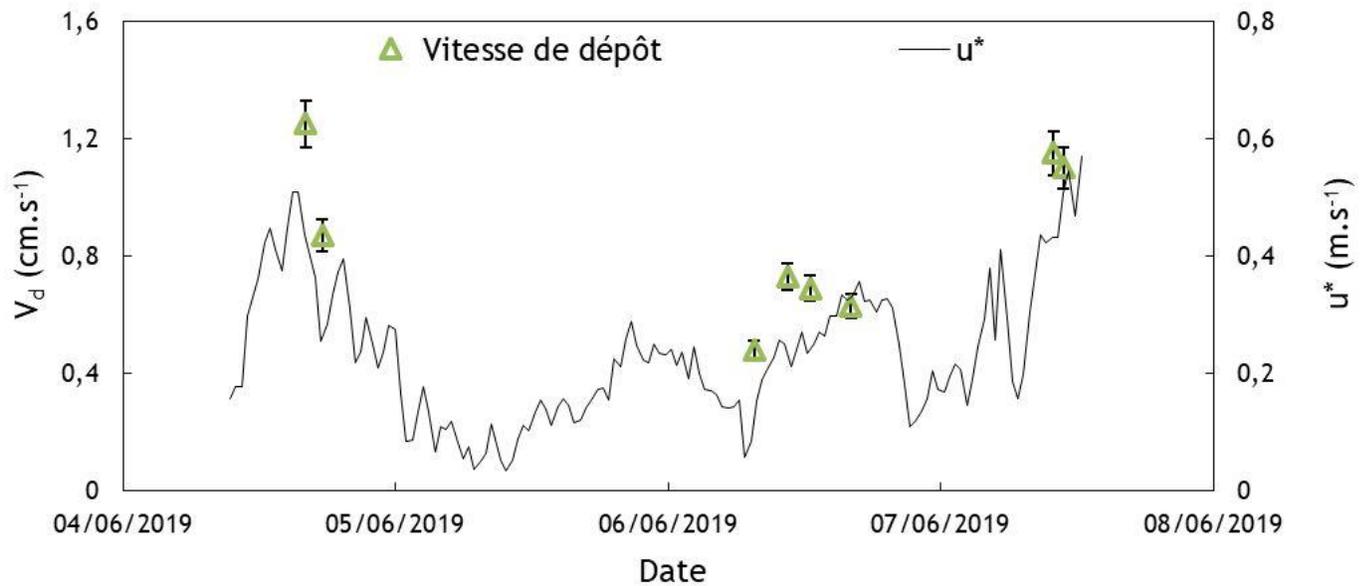


Figure IV.19 : Évolution journalière de la vitesse de dépôt sec d'I₂ et de la vitesse de frottement du vent obtenues durant la campagne MIOSEC 3.

À partir de cette observation, l'ensemble des V_d obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3 est confronté à la vitesse de frottement du vent (Figure IV.20).

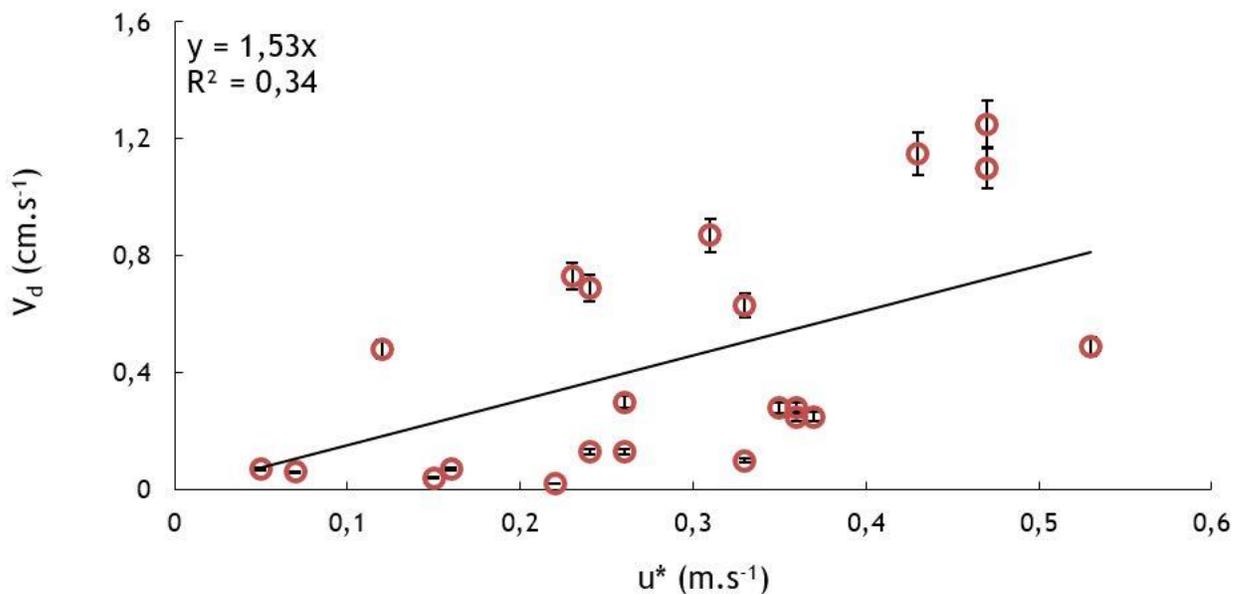


Figure IV.20 : Influence de u^* sur les V_d obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3.

Cette confrontation montre que V_d augmente avec l'augmentation de u^* . Il semble donc que la vitesse de frottement du vent ait une influence sur les vitesses de dépôt sec d'I₂.

Cette évolution peut s'expliquer par le fait que l'augmentation du paramètre u^* accroît le mélange turbulent et par conséquent le dépôt. La dispersion des données montre cependant qu'en plus de la turbulence mécanique, il existe d'autres facteurs qui influeraient les V_d .

- Influence du flux de chaleur sensible et du rayonnement solaire global

Les Figure IV.21 et Figure IV.22 regroupent les confrontations de l'ensemble des V_d avec H et SR , respectivement. On peut observer que le flux de chaleur sensible ne semble pas avoir un impact direct sur les vitesses de dépôt sec d' I_2 . Le rayonnement solaire global étant superposable au flux de chaleur sensible, le fait que V_d ne soit pas directement influencée par SR est justifié.

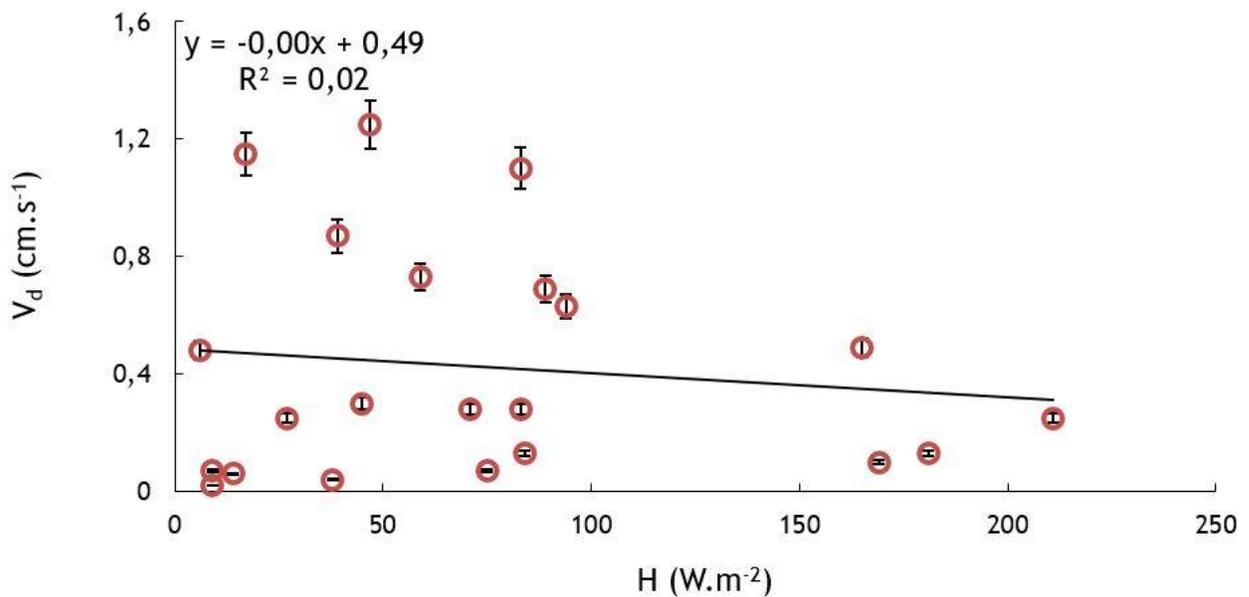


Figure IV.21 : Influence de H sur les V_d obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3.

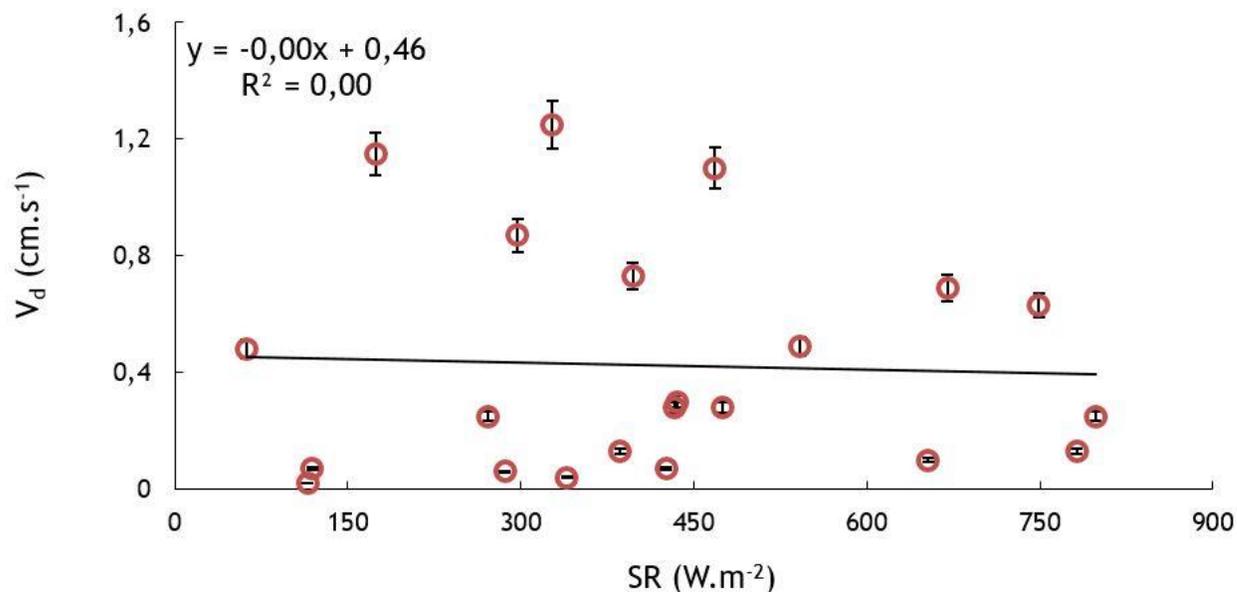


Figure IV.22 : Influence de SR sur les V_d obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3.

- Influence de la température

La même analyse est faite en confrontant les V_d avec la température. La Figure IV.23 présente l'influence de la température vis-à-vis de la vitesse de dépôt sec d'I₂.

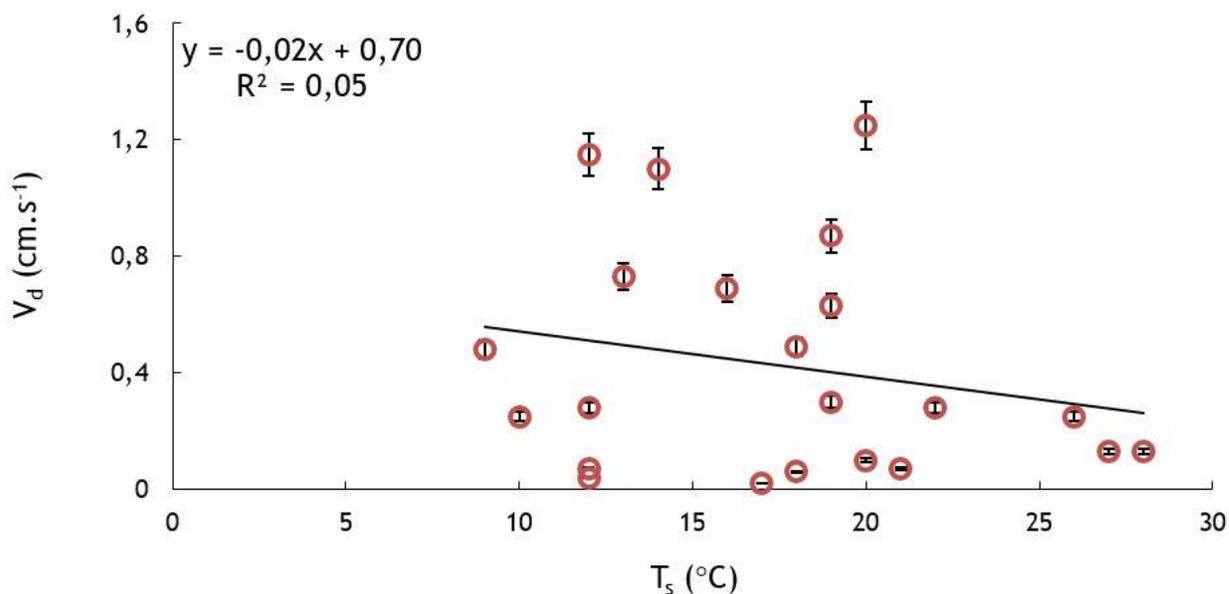


Figure IV.23 : Influence de T_s sur les V_d obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3.

On peut observer à travers cette confrontation que la vitesse de dépôt sec d'I₂ n'est pas directement liée à la température.

- Influence de l'humidité relative

L'impact direct de l'humidité relative vis-à-vis des vitesses de dépôt sec d'I₂ a également été évalué. La Figure IV.24 présente la confrontation des V_d avec l'humidité relative.

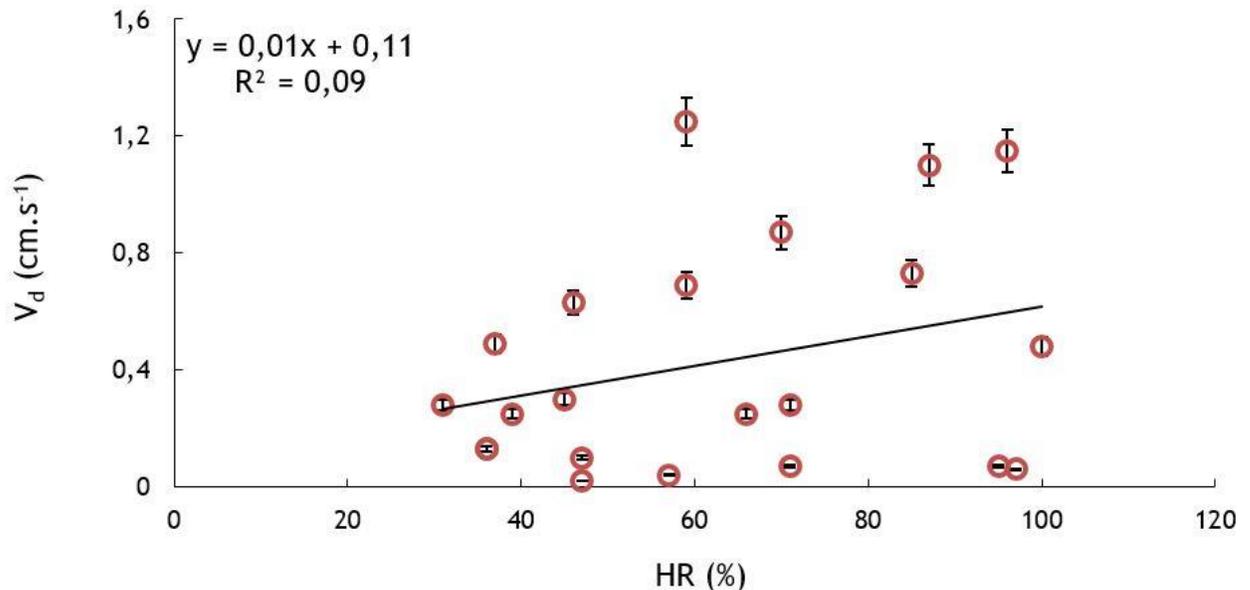


Figure IV.24 : Influence de HR sur les V_d obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3.

À partir de cette observation, on peut déduire que la vitesse de dépôt sec d'I₂ n'est pas directement liée à l'humidité relative.

IV.3.2 Paramètres météorologiques (H, SR, T_s et H) influençant le rapport entre la vitesse de dépôt sec d'I₂ et la vitesse de frottement du vent

Il a été confirmé que la vitesse de dépôt sec d'I₂ augmentait en même temps que la vitesse de frottement du vent. Toutefois la forte dispersion observée sur la Figure IV.25 entre les V_d obtenues lors de la campagne MIOSEC 2 et celle de la campagne MIOSEC 3 ne permet pas de conclure de manière définitive de l'inexistence d'un impact des autres paramètres météorologiques (H, SR, T_s et HR) sur les vitesses de dépôt sec d'I₂.

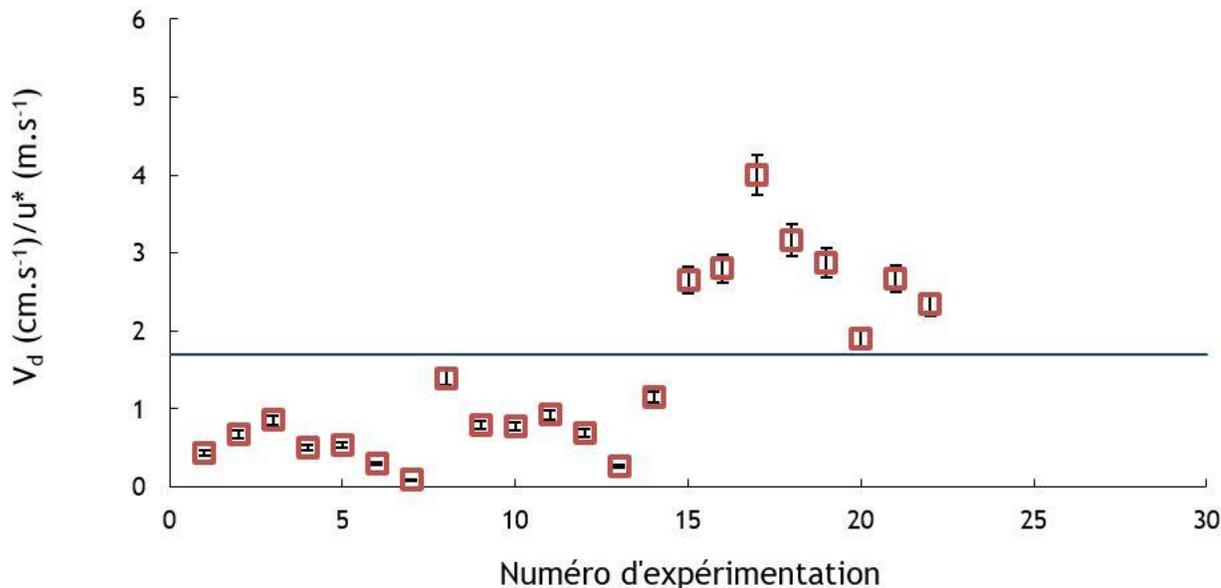


Figure IV.25 : Rapports V_d/u^* mesurés lors des campagnes MIOSEC 2 et 3. La ligne bleue sépare les données obtenues lors de la campagne MIOSEC 2 (en-dessous de la ligne bleue) de celles de la campagne MIOSEC 3 (au-dessus de la ligne bleue).

Pour renforcer ces observations, l'influence de H , SR , T_s et HR sur le rapport V_d/u^* est étudiée.

- **Influence du flux de chaleur sensible et du rayonnement solaire global sur le rapport V_d/u^***

Les Figure IV.26 et Figure IV.27 présentent l'influence de H et SR sur le rapport V_d/u^* , respectivement. À travers ces différentes observations, on peut déduire que le rapport V_d/u^* en fonction du flux de chaleur sensible et du rayonnement solaire global est quasiment constant.

En ce qui concerne le flux de chaleur sensible, ces résultats correspondent aux observations faites sur les particules ultrafines (de l'ordre du nanomètre) par Pellerin (2017) où l'influence de la turbulence thermique (représentée par H) trouvée était négligeable devant la turbulence mécanique (représentée par u^*).

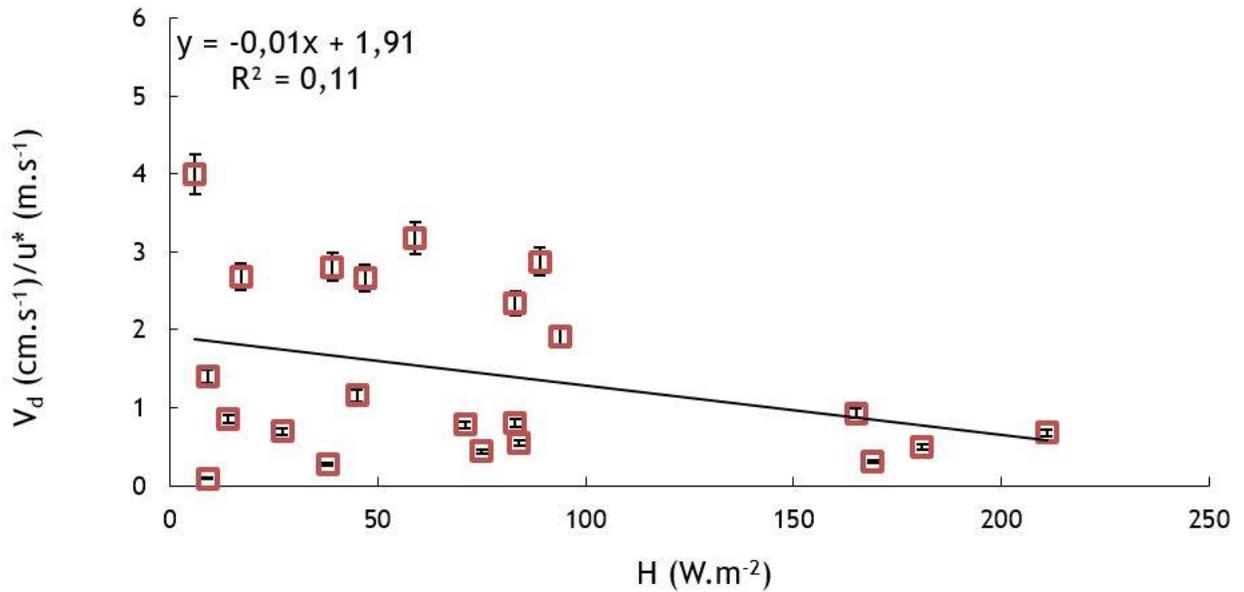


Figure IV.26 : Influence du flux de chaleur sensible sur le rapport V_d/u^* .

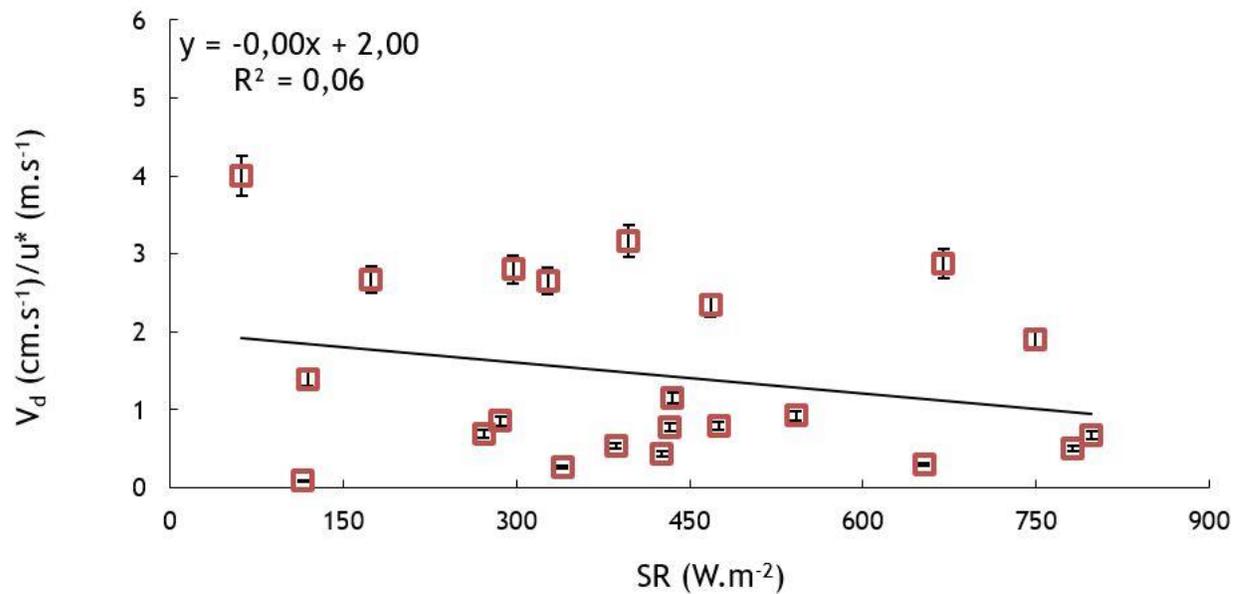


Figure IV.27 : Influence du rayonnement solaire global sur le rapport V_d/u^* .

- Influence de la température sur le rapport V_d/u^*

Sur la Figure IV.28, on peut constater à partir de la corrélation trouvée ($R^2 = 0,18$) que le lien entre le rapport V_d/u^* et la température n'est pas significatif même s'il y a une légère tendance suivant laquelle le rapport V_d/u^* diminuerait avec l'augmentation de la température.

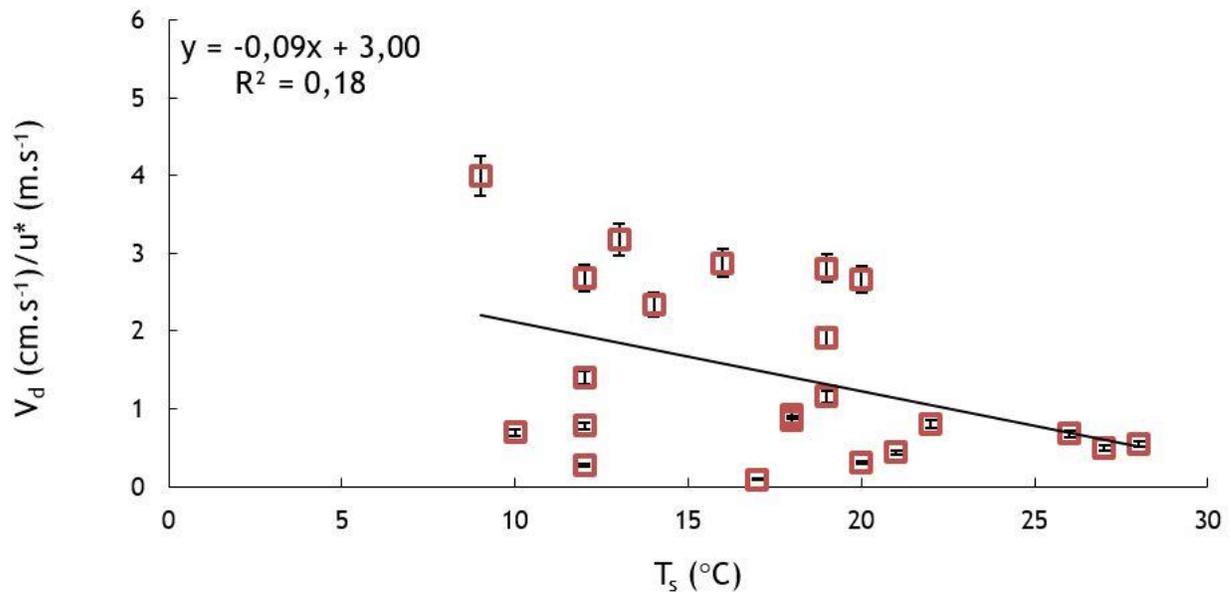


Figure IV.28 : Influence de la température sur le rapport V_d/u^* .

- Influence de l'humidité relative sur le rapport V_d/u^*

Le lien trouvé en traçant la droite de régression linéaire entre V_d/u^* et l'humidité relative ($R^2 = 0,31$) s'explique par la présence d'un film d'eau à la surface de l'herbe qui contribuerait positivement à la rétention d' I_2 en favorisant son absorption au niveau de cette dernière. La Figure IV.29 présente l'impact de l'humidité relative vis-à-vis du rapport V_d/u^* . Cette relation trouvée entre V_d/u^* et l'humidité relative démontre que bien que l'humidité de la surface végétale soit favorable à l'absorption d' I_2 en surface, le transport d' I_2 au niveau de cette dernière est une étape primordiale pour le dépôt d' I_2 parce qu'un impact de HR sur V_d n'est pas directement trouvée sans la normalisation de V_d par u^* .

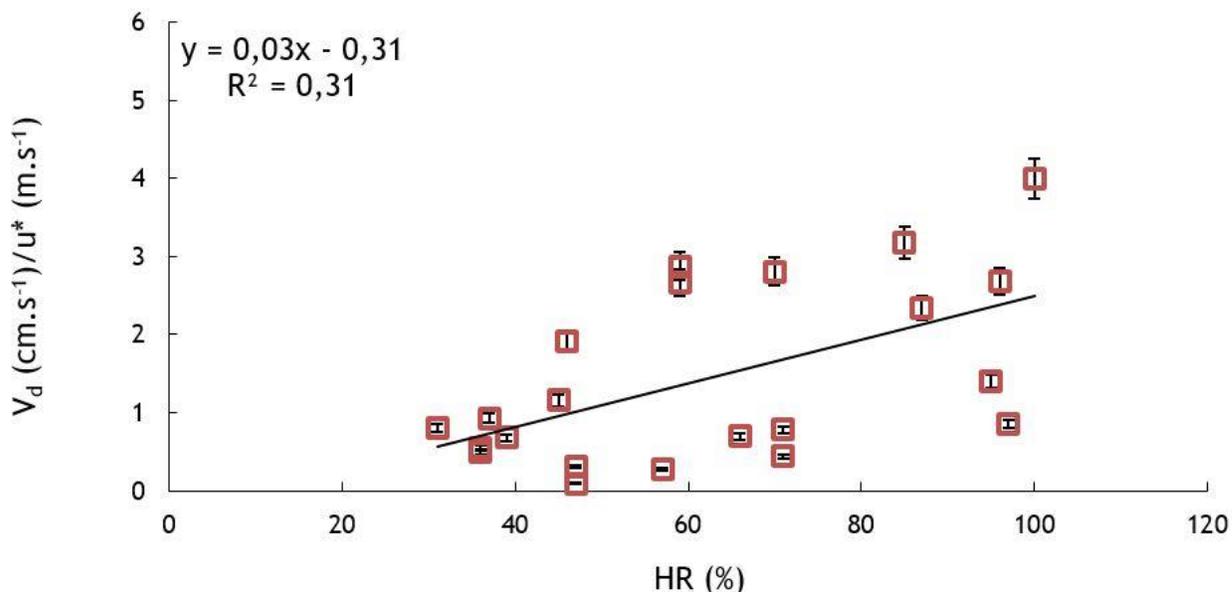


Figure IV.29 : Influence de l'humidité relative sur le rapport V_d/u^* .

Les valeurs de HR mesurées lors de la campagne MIOSEC 3 (valeur médiane = 78 %) sont plus élevées que celles de la campagne MIOSEC 2 (valeur médiane = 47 %). Cette observation pourrait expliquer les valeurs plus élevées obtenues lors de la campagne MIOSEC 3 par rapport à celles de la campagne MIOSEC 2. Barry and Chamberlain (1964) ont montré que le dépôt sec d'I₂ sur des feuilles augmentaient avec l'humidité atmosphérique. D'après Heinemann and Vogt (1980), le dépôt sec d'I₂ sur des surfaces humides (trèfle, herbe) s'est avéré supérieur d'un facteur 2 au dépôt sur les surfaces sèches. Dans une étude de dépôt d'I₂ sur des feuilles de haricot pour des gammes d'humidité, de température et de luminosité, Garland and Cox (1984) ont montré que pour les humidités inférieures à 40 %, c'est la résistance stomatique qui contrôle l'absorption de l'iode, mais que cette absorption croît d'un ordre de grandeur quand l'humidité relative s'élève à 80 %, sans doute via l'absorption cuticulaire.

IV.4 Confrontation des résultats du modèle avec les résultats des mesures

Dans ce paragraphe sont présentés les résultats du modèle de dépôt sec d'I₂, la confrontation des résultats du modèle avec les mesures obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3 et l'utilisation du modèle pour déterminer le lien entre les variables météorologiques et les V_d mesurées.

IV.4.1 Paramètres d'entrée du modèle

Les paramètres d'entrée utilisés pour calculer les V_d sont ceux présentés lors de l'adaptation du modèle de dépôt sec des gaz à l'iode. La valeur de référence de la résistance cuticulaire (R_{cutd0}) a été calculée à partir des vitesses de dépôt sec d'I₂ mesurées lors des campagnes MIOSEC 2 et 3. En effet, les V_d mesurées lors de ces deux campagnes étaient comprises entre 0,02 et 1,25 cm.s⁻¹. R_a et R_b étant calculées à partir des données de u* et de 1/L mesurées lors de ces deux campagnes, les valeurs de R_c sont déterminées à partir des V_d précédentes. Ensuite, les valeurs de R_{st} sont calculées en utilisant les valeurs de la résistance stomatique minimale (r_i). Les valeurs de r_i utilisées dans ce cas sont 9999 s.m⁻¹ et 120 s.m⁻¹ correspondant aux valeurs de r_i prises pour une surface prairiale en automne (campagne MIOSEC 2) et en été (campagne MIOSEC 3), respectivement. Les surfaces d'herbe étant sèches durant ces deux campagnes, W_{st} = 0 est utilisée dans les calculs. Les valeurs de R_{ac} ont été calculées à partir des données de u* et de LAI mesurées lors des campagnes MIOSEC 2 et 3.

Les valeurs de R_{st}, W_{st}, R_{ac} et R_{g0} étant connues, R_{ns} et R_{cut} sont ensuite déterminées. Les surfaces d'herbe étant considérées comme sèches, les valeurs de R_{cutd0} sont enfin calculées. Le Tableau IV.9 présente les valeurs de R_{cutd0} trouvées.

Tableau IV.9 : Résistance R_{cutd0} (s.m⁻¹) calculée pour I₂. N est le nombre de mesures pris en compte.

Paramètres	Moyenne	Médiane	N
V _d (m.s ⁻¹)	4,26 × 10 ⁻³	2,80 × 10 ⁻³	22
R _c (s.m ⁻¹)	470	324	18
R _{cutd0} (s.m ⁻¹)	2932	1857	18

Dans tous les cas, les données météorologiques utilisées dans les calculs sont celles déterminées à l'aide de l'anémomètre ultrasonique et de la station météorologique lors des rejets atmosphériques d'I₂. Etant donné que chaque campagne de mesure a duré entre 6 et 9 jours, la croissance de l'herbe des éprouvettes n'a pas été constatée. Par conséquent, la valeur de la LAI utilisée est la valeur moyenne de la LAI mesurée.

Enfin, la valeur médiane de R_{cutd0} (1857 s.m⁻¹) est utilisée comme donnée d'entrée du modèle de dépôt sec d'I₂. Les différents paramètres et variables du modèle utilisés pour calculer les vitesses de dépôt sec d'I₂ sont présentées Tableau IV.10. Les valeurs de r_i sont utilisées suivant la période de l'année au cours laquelle les mesures sont effectuées : ^(a)automne et hiver (fin septembre à fin février), ^(b)printemps (début mars à fin mai), ^(c)été (début juin à début septembre).

Tableau IV.10 : Recapitulatif des différents paramètres et variables utilisés pour calculer la vitesse de dépôt d'I₂.

Abréviation	Signification	Valeur	Unités	Références
k	constante de Von Karman	0,40	-	Seinfeld (1985)
k _B	constante de Boltzman	$1,38 \times 10^{-23}$	J.K ⁻¹	Padro et al. (1991)
v	viscosité cinématique de l'air	$1,50 \times 10^{-5}$	m ² .s ⁻¹	Padro et al. (1991)
μ	viscosité dynamique de l'air	$1,80 \times 10^{-5}$	m ² .s ⁻¹	Padro et al. (1991)
Cu	correction de Cunningham pour une molécule d'I ₂	833,17	Kg.m ⁻¹ .s ⁻¹	valeur calculée
D _p	diamètre d'une molécule d'I ₂	$2,80 \times 10^{-10}$	m	Forsythe (1956)

Tableau IV.10 : (suite).

Abréviation	Signification	Valeur	Unités	Références
λ	déplacement moyen d'une molécule d'air à 20 °C et 101325 Pa	$6,98 \times 10^{-8}$	m	Seinfeld (1985)
LAI	indice de surface foliaire	1,50	-	données expérimentales
z_0	hauteur de rugosité de l'herbe	0,01	m	herbe de la prairie
z	hauteur de prélèvement d'air	0,26	m	donnée expérimentale
R_{ac0}	valeur de référence de la résistance aérodynamique dans la canopée pour l'herbe	50	$s.m^{-1}$	Zhang et al. (2003a)
R_{g0}	valeur de référence de la résistance du sol pour le SO ₂	100	$s.m^{-1}$	Zhang et al. (2003a)
R_{cutd0}	valeur de référence de la résistance cuticulaire	1857	$s.m^{-1}$	données expérimentales
r_i	résistance stomatique minimale pour l'herbe en fonction de la saison de l'année (automne ^(a) , hiver ^(a) , printemps ^(b) et été ^(c))	9999 ^(a) 240 ^(b) 120 ^(c)	$s.m^{-1}$	Wesely (1989)

IV.4.2 Résultats du modèle

Durant la campagne MIOSEC 2, les vitesses de dépôt modélisées en utilisant les données météorologiques acquises durant les périodes d'émissions atmosphériques d'I₂ sont présentées Tableau IV.11. Ces valeurs mesurées sont comprises entre 0,05 et 0,43 cm.s⁻¹ avec une valeur moyenne de 0,20 cm.s⁻¹.

Tableau IV.11 : Vitesses de dépôt modélisées à l'aide des données météorologiques acquises durant la campagne MIOSEC 2 ($W_{st} = 0$, $R_m = 0$).

Date heure	R _a (s.m ⁻¹)	R _b (s.m ⁻¹)	R _{st} (s.m ⁻¹)	R _{ns} (s.m ⁻¹)	R _c (s.m ⁻¹)	V _d (cm.s ⁻¹)
19/09/2018 10:32	35	2	12232	803	754	0,13
19/09/2018 15:00	16	1	11678	371	360	0,27
20/09/2018 09:30	74	5	15036	1172	1087	0,09
20/09/2018 14:32	22	1	12140	647	615	0,16
20/09/2018 17:30	24	2	15098	733	699	0,14
21/09/2018 15:00	18	1	10937	408	393	0,24
21/09/2018 18:30	16	2	41114	746	732	0,13
22/09/2018 09:30	98	8	45471	1785	1718	0,05
22/09/2018 17:00	17	1	11890	427	412	0,23
24/09/2018 10:30	17	1	14442	270	265	0,35
24/09/2018 16:30	7	1	11475	231	227	0,43
25/09/2018 09:30	10	1	20535	290	286	0,34
26/09/2018 10:00	38	3	16020	1130	1056	0,09
27/09/2018 10:30	23	1	12142	593	565	0,17

L'évolution journalière des vitesses de dépôt est présentée Figure IV.30. Elle montre que les vitesses de dépôt maximales (0,34 à 0,43 cm.s⁻¹) sont obtenues les 24 et 25 septembre tandis que les plus faibles vitesses de dépôt (0,05 à 0,27 cm.s⁻¹) sont obtenues les autres journées. Rappelons que les journées du 24 et 25 septembre sont principalement caractérisées par des vents plus forts que ceux des autres journées.

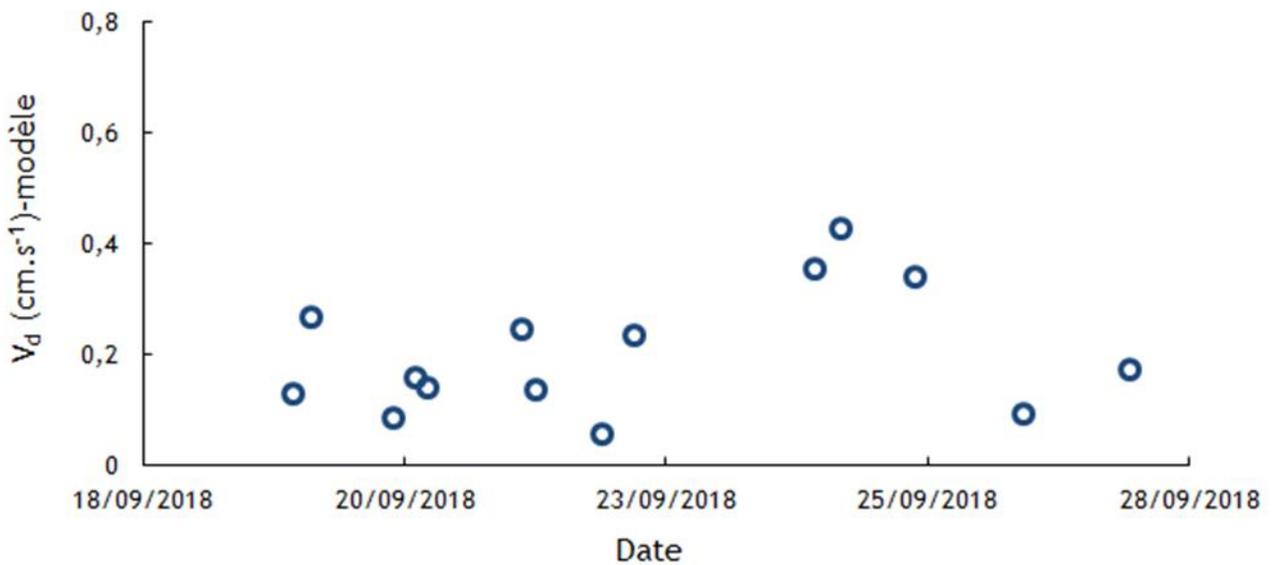


Figure IV.30 : Evolution au cours du temps de la vitesse de dépôt sec d'I₂ calculée à l'aide du modèle lors de la campagne MIOSEC 2.

Concernant les données obtenues lors de la campagne MIOSEC 3, les vitesses de dépôt calculées à l'aide du modèle sont présentées Tableau IV.12

Tableau IV.12 : Vitesses de dépôt modélisées à l'aide des données météorologiques acquises durant la campagne MIOSEC 3 ($W_{st} = 0$, $R_m = 0$).

Date heure	R_a (s.m ⁻¹)	R_b (s.m ⁻¹)	R_{st} (s.m ⁻¹)	R_{ns} (s.m ⁻¹)	R_c (s.m ⁻¹)	V_d (cm.s ⁻¹)
04/06/2019 16:05	8	1	165	222	95	0,97
04/06/2019 17:32	11	1	175	335	115	0,78
06/06/2019 07:35	51	3	1957	592	454	0,20
06/06/2019 10:30	26	2	171	381	118	0,69
06/06/2019 12:30	24	2	136	561	110	0,74
06/06/2019 16:03	18	1	129	412	98	0,85
07/06/2019 09:55	8	1	331	141	99	0,92
07/06/2019 10:47	8	1	156	150	76	1,18

Elles sont plus élevées que celles de la campagne MIOSEC 2. La valeur minimale obtenue est de $0,20 \text{ cm.s}^{-1}$ tandis que la valeur maximale est de $1,18 \text{ cm.s}^{-1}$ avec une valeur moyenne de $0,79 \text{ cm.s}^{-1}$.

La Figure IV.31 présente l'évolution au cours du temps des vitesses de dépôt calculées à l'aide du modèle de dépôt sec d'I₂.

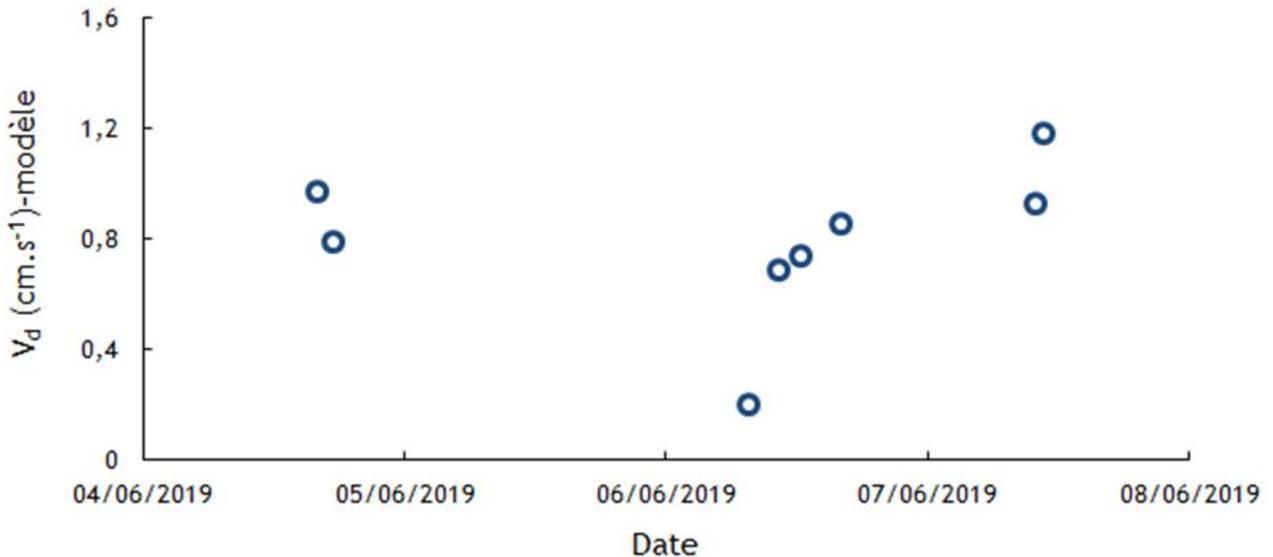


Figure IV.31 : Evolution au cours du temps de la vitesse de dépôt sec d'I₂ calculée à l'aide du modèle lors de la campagne MIOSEC 3.

La vitesse de dépôt minimale est obtenue le 6 juin matin tandis que les V_d les plus élevées sont obtenues les autres journées. Les écarts entre ces V_d n'atteignent pas un ordre de grandeur. Sur l'ensemble des données de MIOSEC 2 et 3, la valeur moyenne calculée est de $0,42 \text{ cm.s}^{-1}$ tandis que la valeur médiane est de $0,25 \text{ cm.s}^{-1}$. En ce qui concerne les résistances calculées, les résultats montrent que la résistance de surface (R_c) composée de la résistance stomatique (R_{st}) et de la résistance non stomatique (R_{ns}) est plus élevée que la résistance aérodynamique (R_a) et la résistance quasi-laminaire (R_b). Etant donné que V_d est calculée en faisant l'inverse de la somme de R_a, R_b et R_c, par conséquent les vitesses de dépôt calculées sont principalement liées à R_c.

IV.4.3 Comparaison modèle-mesure

La confrontation des vitesses de dépôt calculées et des valeurs expérimentales est une étape importante qui permet d'apprécier les paramètres d'entrée du modèle. En confrontant les résultats du modèle avec les vitesses de dépôt mesurées (Figure IV.32), une corrélation $R^2 = 0,88$ est trouvée.

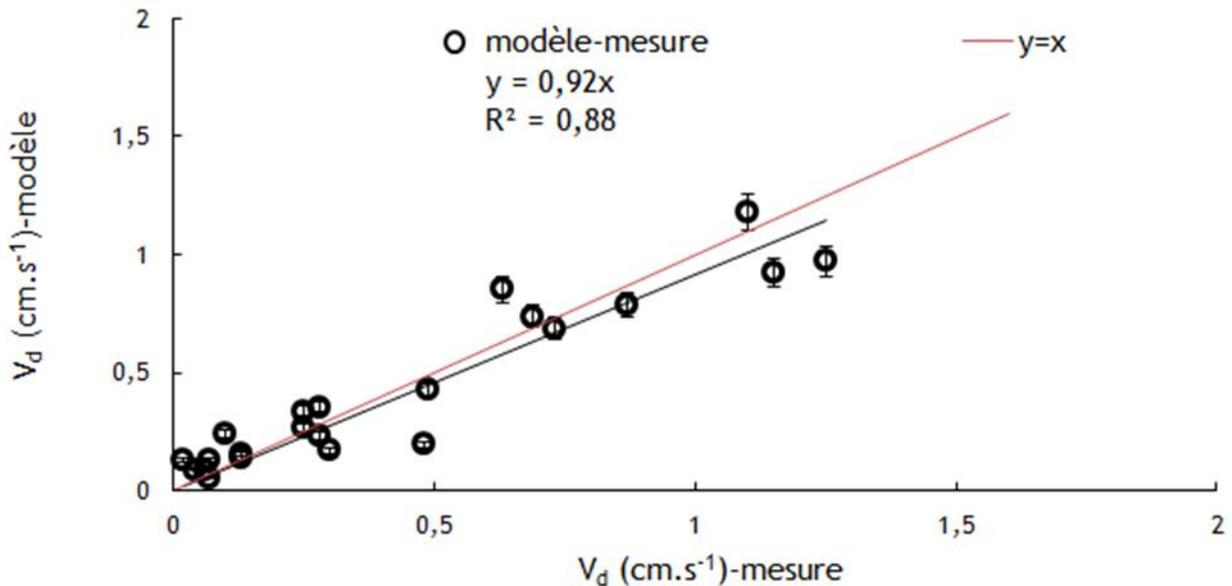


Figure IV.32 : Confrontation des résultats du modèle avec les résultats des mesures obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3. Les barres sur les cercles noirs correspondent au coefficient de variation en pourcentage sur le rendement d'extraction d' I_2 (RSD = 6,44 %). La droite rouge représente la corrélation idéale entre le modèle et la mesure.

En ce qui concerne les résultats obtenus lors de la campagne MIOSEC 2, il est trouvé que plus de la moitié des valeurs du modèle sont supérieures de plus d'un facteur 2, en moyenne, aux vitesses de dépôt mesurées. Cette surestimation des données du modèle serait principalement due à la valeur relativement élevée (9999 s.m^{-1}) attribuée à la résistance stomatique minimale conduisant à des valeurs de R_{st} négligeables en comparaison aux valeurs de R_{ns} .

Etant donné que cette résistance minimale est fixée à 120 s.m^{-1} pour les données issues de la campagne MIOSEC 3, les écarts entre les valeurs du modèle et les mesures sont

moins élevés (moins de 25 % de différence, en moyenne, entre les données du modèle et les mesures).

De façon globale, les prédictions du modèle reproduisent les valeurs mesurées et plus de la moitié des valeurs du modèle reproduisent les mesures avec moins de 25 % de différences entre les mesures et le modèle.

Ensuite, la valeur du paramètre $R_{\text{cutd}0}$ est ajustée de 1857 s.m^{-1} à 1300 s.m^{-1} pour que le modèle reproduise exactement les mesures. Une nouvelle confrontation des données du modèle avec les mesures après cet ajustement de la valeur de $R_{\text{cutd}0}$ permet de trouver la même corrélation ($R^2 = 0,88$) avec moins d'incertitudes sur l'ensemble des données. La Figure IV.33 présente la confrontation des données du modèle après ajustement de $R_{\text{cutd}0}$ avec les mesures.

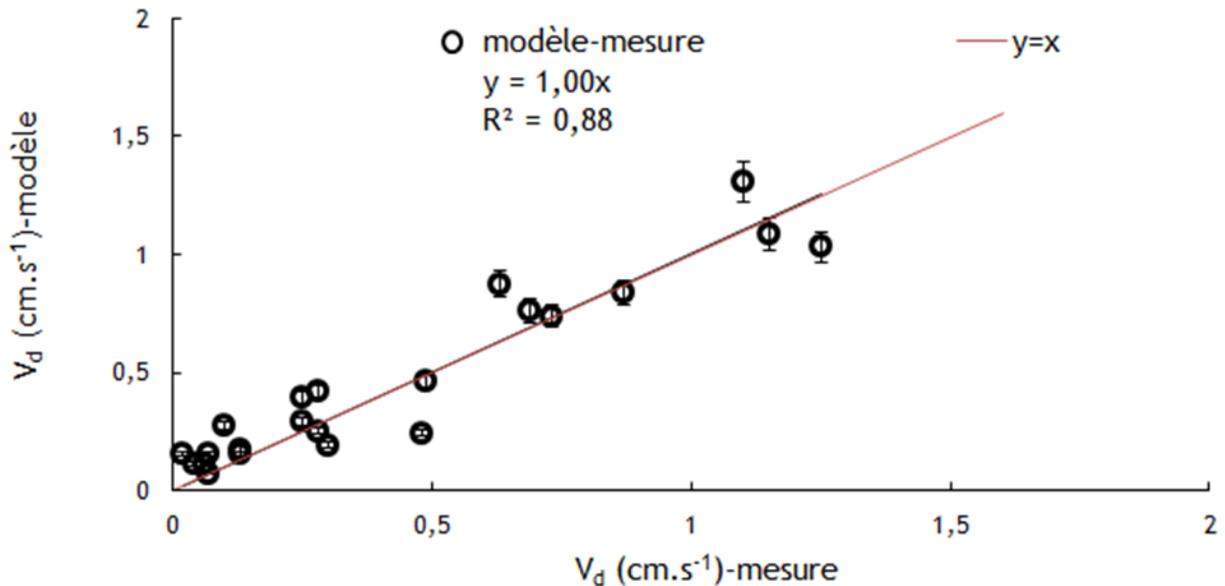


Figure IV.33 : Confrontation des résultats du modèle avec les résultats des mesures après ajustement de $R_{\text{cutd}0}$. Les barres sur les cercles correspondent au coefficient de variation sur le rendement d'extraction d' l_2 en pourcentage. La droite rouge représente la corrélation idéale entre le modèle et la mesure.

En conclusion, le modèle reproduit les valeurs mesurées avec moins de 25 % de différence pour plus de la moitié des données du modèle et les V_d mesurées. Cependant, qu'il s'agisse des V_d calculées à l'aide du modèle ou des valeurs, mesurées, les données

de la campagne MIOSEC 3 sont plus élevées d'environ un facteur 3, en moyenne, que celles de la campagne MIOSEC 2. De cet état de fait, étant donné que la rugosité de surface de l'herbe et la réactivité chimique de l'herbe vis-à-vis de l'iode sont différentes de celles du verre, l'étude de l'influence des paramètres météorologiques sur les V_d permettrait de mieux comprendre ces différences.

IV.4.4 Utilisation du modèle de dépôt sec d'I₂ pour étudier l'influence des variables météorologiques sur V_d .

Étant donné que l'ensemble des paramètres du modèle est qualifié par la confrontation des valeurs du modèle avec les résultats des mesures, dans ce paragraphe les résistances calculées à partir du modèle sont utilisées pour expliciter le lien entre les V_d et les paramètres météorologiques.

Pour étudier l'influence des paramètres météorologiques sur les V_d mesurées en utilisant le modèle, les résistances de surface ont été calculées à partir des V_d mesurées lors des campagnes MIOSEC 2 et 3. Les valeurs de R_c calculées sont présentées Tableau IV.13. Étant donné que V_d représente l'inverse de la somme de R_a , R_b et R_c , le modèle est utilisé pour calculer R_a et R_b en utilisant les données météorologiques u^* et z/L mesurées lors des rejets atmosphériques d'I₂.

Tableau IV.13 : Résistances de surface obtenues à partir des vitesses de dépôt mesurées durant les campagnes MIOSEC 2 et 3.

Date heure	V_d (cm.s ⁻¹)	R_c (s.m ⁻¹)
19/09/2018 10:32	0,07	1391
19/09/2018 15:00	0,25	383
20/09/2018 09:30	0,06	1588
20/09/2018 14:32	0,13	746
20/09/2018 17:30	0,13	743
21/09/2018 15:00	0,10	981
21/09/2018 18:30	0,02	4982
22/09/2018 09:30	0,07	1323
22/09/2018 17:00	0,28	339
24/09/2018 10:30	0,28	339
24/09/2018 16:30	0,49	197
25/09/2018 09:30	0,25	389
26/09/2018 10:00	0,04	2459
27/09/2018 10:30	0,30	309
04/06/2019 16:05	1,25	72
04/06/2019 17:32	0,87	102
06/06/2019 07:35	0,48	154
06/06/2019 10:30	0,73	110
06/06/2019 12:30	0,69	119
06/06/2019 16:03	0,63	140
07/06/2019 09:55	1,15	78
07/06/2019 10:47	1,10	83

Les résultats présentés sur les Figure IV.34 et Figure IV.35 correspondent à ceux obtenus lors des campagnes MIOSEC 2 et 3, respectivement. Ils montrent des valeurs de R_a et de R_b négligeables devant celles de R_c .

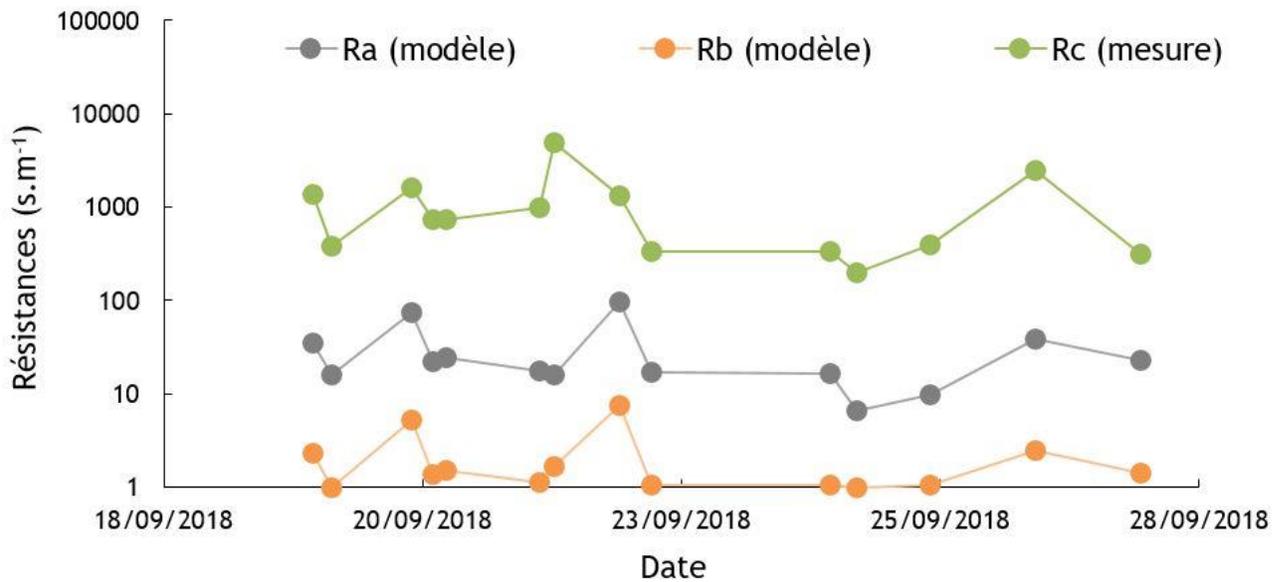


Figure IV.34 : Résistances R_a et R_b calculées à l'aide du modèle et R_c mesurées à partir des V_d issues de la campagne MIOSEC 2.

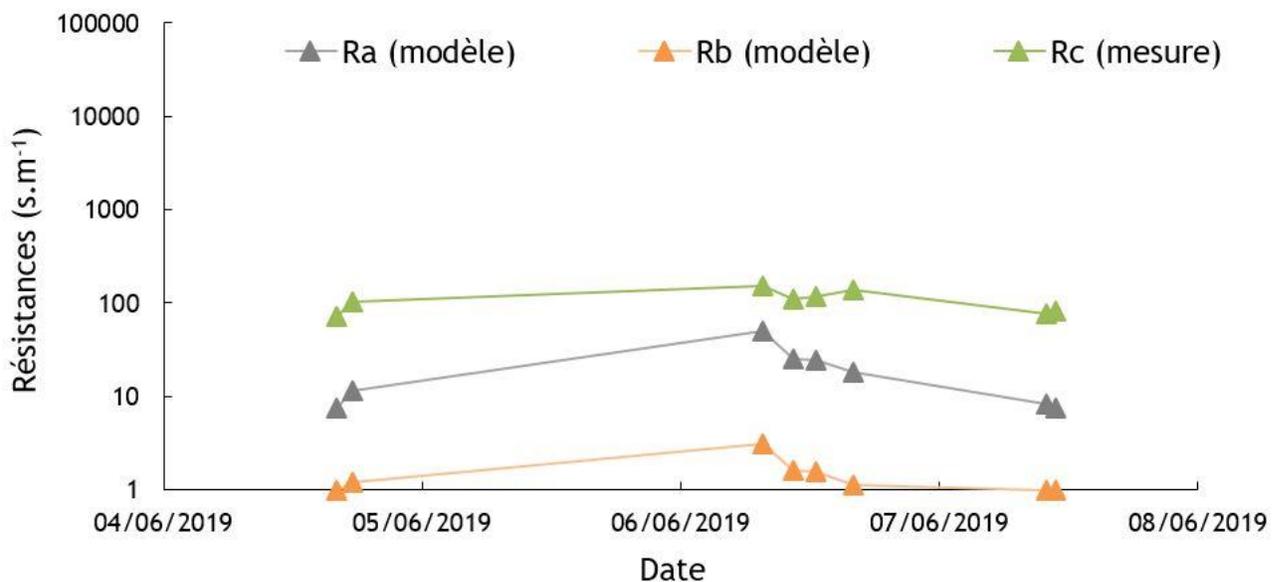


Figure IV.35 : Résistances R_a et R_b calculées à l'aide du modèle et R_c mesurées à partir des V_d issues de la campagne MIOSEC 3.

La conséquence de ces résultats est que le dépôt sec d' I_2 est lié principalement à la résistance de surface qui est elle-même fonction de la résistance stomatique et de la résistance non stomatique. En raison de cette prédominance de R_c dans la détermination

de V_d , il est important de déterminer le lien entre R_c et les paramètres météorologiques pour mieux comprendre l'influence de ces derniers.

Les données présentées Tableau IV.11 et Tableau IV.12 montrent des valeurs de R_c beaucoup plus liées à la résistance non stomatique qu'à la résistance stomatique. R_{ns} dépend elle-même de l'indice de surface foliaire, de l'humidité relative et de la vitesse de frottement du vent. Les campagnes ayant été réalisées sur de courtes périodes (6 à 12 jours), la LAI n'a pas évolué et par conséquent R_{ns} n'est plus liée qu'à l'humidité relative et à la vitesse de frottement du vent.

Les Figure IV.36 et Figure IV.37 représentent l'évolution de R_c en fonction de u^* et HR, respectivement.

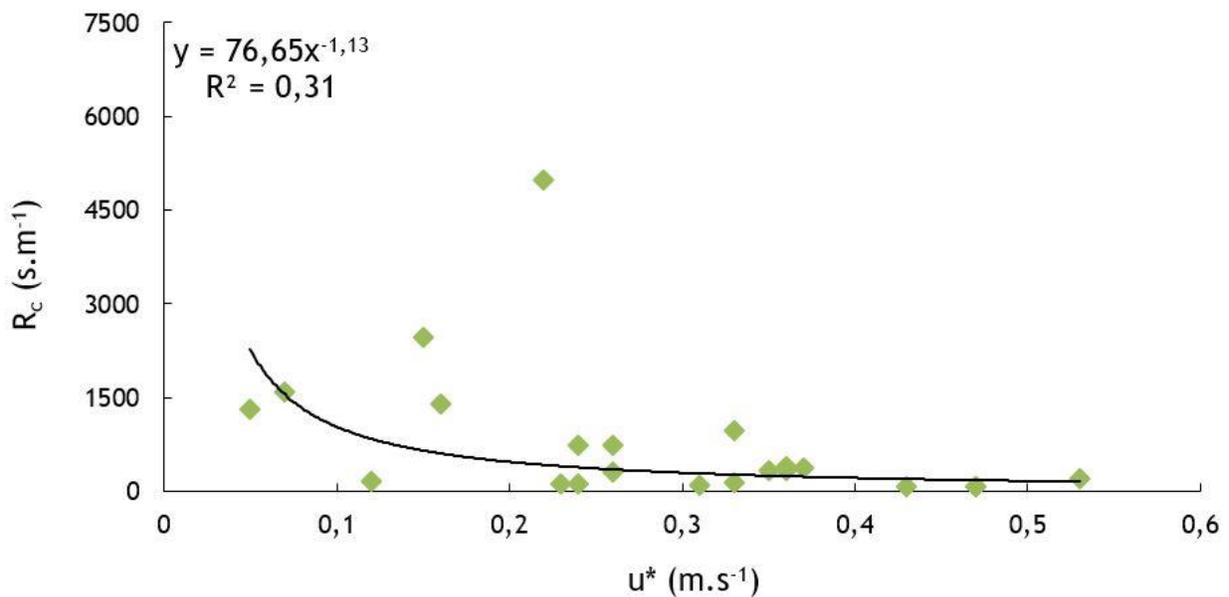


Figure IV.36 : Influence de la vitesse de frottement sur R_c .

La corrélation présentée sur la Figure IV.36 ($R^2 = 0,31$) montre l'existence d'un lien entre R_c et la vitesse de frottement du vent. D'ailleurs des simulations du modèle ont montré que des variations de $\pm 10\%$ des valeurs de u^* entraîneraient une variation moyenne des V_d de $\pm 10\%$.

Par contre, la corrélation présentée sur la Figure IV.37 ($R^2 = 0,01$) montre un faible degré de significativité qui conduit à déduire que R_c mesurée n'est pas directement liée à l'humidité relative. Des simulations du modèle ont pourtant montré que des variations

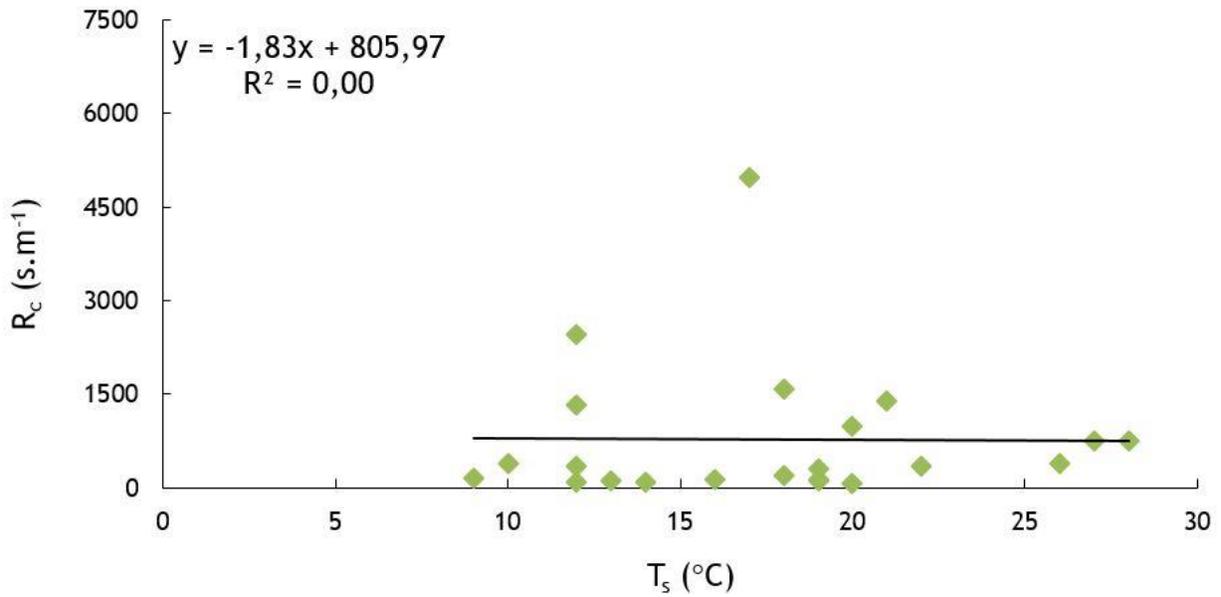


Figure IV.38 : Influence de la température sur R_c .

Afin d'expliquer les raisons de la non influence de ces paramètres sur V_d , les données du modèle sont utilisées.

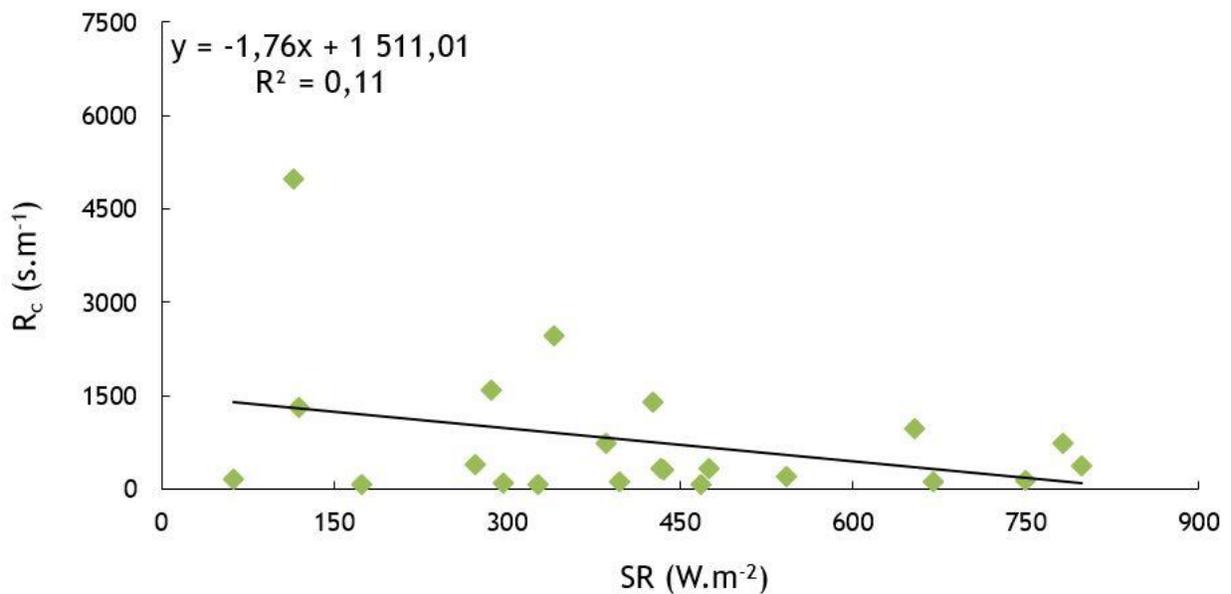


Figure IV.39 : Influence de l'ensoleillement global sur R_c .

En effet, dans le modèle, la température et le l'ensoleillement global interviennent dans le calcul de la résistance stomatique. Lors de la campagne MIOSEC 2, les valeurs de R_{st} calculées sont plus élevées que celles de R_{ns} (Tableau IV.11). Ces valeurs plus

élevées de R_{st} font que dans le calcul de V_d l'ouverture des stomates durant cette campagne est négligeable par comparaison à la résistance non stomatique et c'est ce qui fait que R_c n'est pas directement liée à la température et à l'ensoleillement global alors que durant la campagne MIOSEC 3, les valeurs de R_{st} sont beaucoup plus faibles et plus proches de celles de R_{ns} . Par conséquent l'ouverture des stomates n'est pas négligeable dans ce dernier cas et R_c est liée à la température et à l'ensoleillement global.

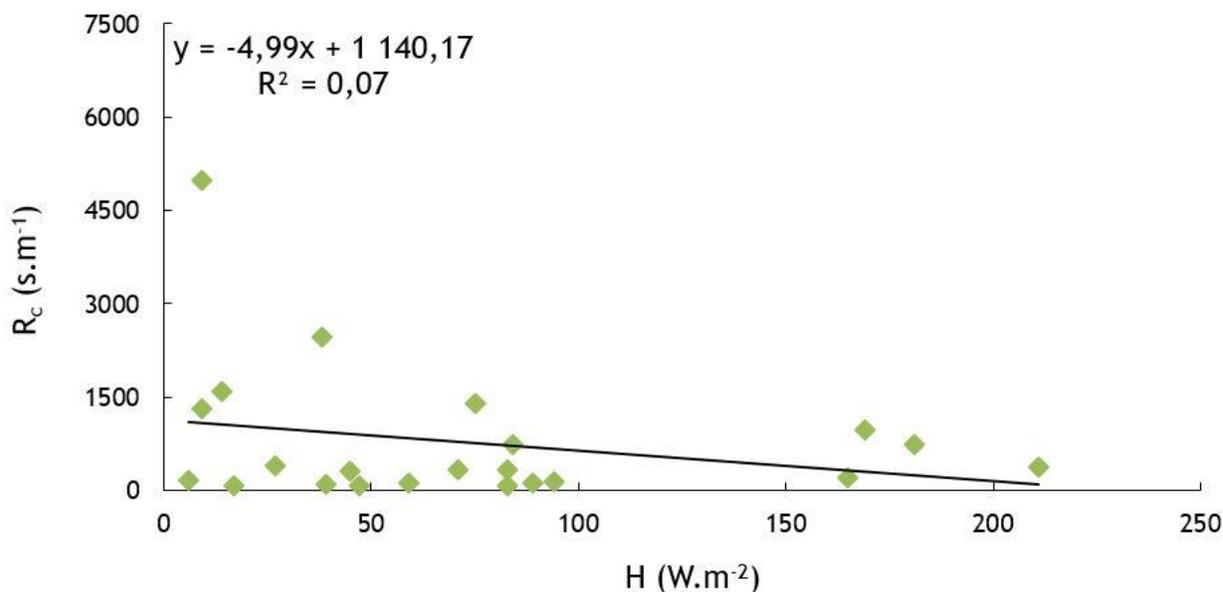


Figure IV.40 : Influence du flux de chaleur sensible sur R_c .

Les faibles valeurs de R_{st} traduisent des stomates plus ouverts et donc des R_c plus faibles ou des V_d plus élevées. De ce fait, les R_c calculées lors de la campagne MIOSEC 3 sont liées à la température et à l'ensoleillement global alors que celles trouvées lors de la campagne MIOSEC 2 ne le sont pas, mais comme les valeurs mesurées lors de la campagne MIOSEC 2 ($N = 14$) représentent plus de la moitié de l'ensemble des données ($N = 22$), globalement la température et le rayonnement solaire global n'influencent pas la résistance de surface et par conséquent les V_d . Des simulations réalisées à l'aide du modèle ont d'ailleurs montré que des variations de $\pm 10\%$ de la température et de l'ensoleillement global entraîneraient une variation moyenne de moins de $\pm 1\%$ des vitesses de dépôt. Le flux de chaleur sensible étant superposable à l'ensoleillement global, l'inexistence d'un lien entre R_c et le flux de chaleur sensible est justifiée.

La différence trouvée entre le rapport V_d/u^* obtenu lors de la campagne MIOSEC 2 et celui de la campagne MIOSEC 3 lors de l'étude de l'influence des paramètres météorologiques sur le rapport entre la vitesse de dépôt sec d' I_2 et la vitesse de frottement du vent peut s'expliquer par deux raisons principales. Etant donné que le lien entre V_d et la résistance non stomatique existe aussi bien pour les données obtenues lors de la campagne MIOSEC 2 que celles de la campagne MIOSEC 3, la première raison peut s'expliquer par les différences entre les valeurs de HR mesurées au cours des deux campagnes. En effet, les valeurs de HR mesurées lors de la campagne MIOSEC 3 (valeur médiane = 78 %) sont plus élevées que celles de la campagne MIOSEC 2 (valeur médiane = 47 %). Les valeurs de HR plus élevées lors de la campagne MIOSEC 3 sont une des raisons des V_d plus élevées lors de cette campagne par comparaison à celles de la campagne MIOSEC 2. La deuxième raison est due par le fait que les valeurs de R_{st} sont plus élevées au cours de la campagne MIOSEC 2, occasionnant ainsi des vitesses de dépôt liées principalement à la résistance non stomatique, et donc à la vitesse de frottement du vent et à l'humidité relative alors que les valeurs de R_{st} sont plus faibles au cours de la campagne MIOSEC 3, et donc les V_d en plus d'être liées à u^* et à RH, sont également liées à R_{st} .

Les résultats issus de la confrontation de R_c du modèle avec les paramètres météorologiques sont présentés ANNEXE I. L'observation faite sur ces résultats est identique à celle trouvée lors de la confrontation des paramètres météorologiques avec R_c et par conséquent les V_d mesurées.

En somme, parmi les paramètres météorologiques étudiés dans cette partie (u^* , HR, T_s , SR et H), seuls la vitesse de frottement du vent et l'humidité relative influencent l'ensemble des V_d . Cette observation peut expliquer la tendance suivant laquelle V_d/u^* diminuerait avec l'augmentation de la température, de l'ensoleillement global et du flux de chaleur sensible parce que les valeurs élevées de ces paramètres météorologiques sont mesurées durant les périodes de faibles HR tandis que les faibles valeurs de T_s , SR et H sont mesurées durant les périodes de forte humidité relative.

IV.5 Confrontation des résultats obtenus lors des campagnes MIOSEC 2 et 3 avec les données de la littérature

Dans ce paragraphe les V_d obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3 sont comparées aux vitesses de dépôt d'I₂ sur l'herbe présentées dans la littérature et les raisons des différences trouvées entre les valeurs sont expliquées.

Le récapitulatif des V_d obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3 est représenté Tableau IV.14. Les vitesses de dépôt d'I₂ mesurées lors de ces campagnes varient entre 0,02 et 1,25 cm.s⁻¹. En effet, les V_d mesurées dans cette étude sont dans la gamme des vitesses de dépôt sec d'I₂ mesurées sur l'herbe dans l'environnement extérieur (0,02-26 cm.s⁻¹) présentées dans la littérature.

Tableau IV.14 : Récapitulatif des V_d obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3.

	V_d mesure (cm.s ⁻¹)	V_d modèle (cm.s ⁻¹)
gamme	0,02-1,25	0,05-1,18
valeur moyenne	0,43	0,42
valeur médiane	0,28	0,25
nombre de données	22	22

On peut bien observer que les données de la littérature sont dispersées sur plus de trois ordres de grandeurs. Toutefois, la dispersion des données est significativement réduite pour les V_d acquises lors de la campagne MIOSEC 3 (0,48-1,25 cm.s⁻¹) et limitée à 1 ordre de grandeur lors de la campagne MIOSEC 2 (0,02-0,49 cm.s⁻¹). Plusieurs facteurs peuvent expliquer les raisons de ces dispersions. D'une part les résultats trouvés dans cette étude ont montré que les vitesses de dépôt sec d'I₂ peuvent être différentes suivant la saison de l'année (automne, hiver, printemps ou été) au cours de laquelle elles sont évaluées. Des mesures d'¹²⁷I₂ réalisées sur l'herbe ont permis de trouver une V_d de 0,16 cm.s⁻¹ (Chamberlain and Chadwick, 1966b) similaire à la la valeur moyenne des vitesses de dépôt obtenue dans cette étude lors de la campagne MIOSEC 2 (0,18 cm.s⁻¹), correspondant à la saison d'automne. D'autre part, la V_d trouvée suite à des mesures d'¹³¹I₂ sur l'herbe par Chamberlain and Chadwick (1966b) était 1,8 cm.s⁻¹.

La plupart des auteurs suggèrent d'ailleurs de prendre 1 cm.s^{-1} comme vitesse de dépôt sec d' I_2 même si Heinemann and Vogt (1980) suggèrent 2 cm.s^{-1} . La valeur moyenne des vitesses de dépôt mesurées dans cette étude lors de la campagne MIOSEC 3 ($0,86 \text{ cm.s}^{-1}$) est similaire à la valeur suggérée dans les autres études (1 cm.s^{-1}). D'après le modèle réalisé dans cette étude, les vitesses de dépôt sec d' I_2 dépendent de la résistance de surface qui regroupe la résistance non stomatique et la résistance stomatique. Le modèle a montré que la R_{ns} est liée principalement à la vitesse de frottement du vent et à l'humidité relative. Par conséquent, R_{ns} ne varie que très faiblement au cours des différentes saisons de l'année. Le modèle a également montré que R_{st} est plus élevé en automne (campagne MIOSEC 2), période de l'année au cours de laquelle l'ouverture des stomates est négligeable comparativement aux mesures réalisées en été (campagne MIOSEC 3) où l'ouverture des stomates est plus importante. La valeur moyenne de la résistance de surface mesurée lors de la campagne MIOSEC 2 est de 1155 s.m^{-1} . Celle mesurée lors de la campagne MIOSEC 3 est de 107 s.m^{-1} tandis que la valeur moyenne de l'ensemble des deux campagnes est de 774 s.m^{-1} . Si on se réfère à Chamberlain and Chadwick (1966b) qui ont suggéré de prendre $R_c = 500 \text{ s.m}^{-1}$ dans la détermination du dépôt sec d' $^{131}I_2$, alors les vitesses de dépôt d' I_2 seraient considérées comme non évolutives au cours des différentes saisons de l'année, ce qui serait en contradiction avec nos constatations.

En somme, il est montré que suivant la période de l'année au cours de laquelle les mesures sont effectuées, les vitesses de dépôt d' I_2 sur l'herbe peuvent être plus ou moins fluctuantes. Les résultats de la campagne MIOSEC 2 montrent qu'elles sont plus faibles en période d'automne, période de l'année au cours de laquelle les stomates ne sont que partiellement ouverts et par conséquent, le dépôt d' I_2 est principalement lié à la vitesse de frottement du vent et la présence d'un film d'eau à la surface de la couverture végétale. Par ailleurs, les vitesses de dépôt obtenues lors de la campagne MIOSEC 3 montrent des V_d plus élevées d'environ un facteur trois lorsqu'elles sont mesurées en été que lorsqu'elles sont mesurées en automne en raison de l'ouverture plus importante des stomates en été qu'en automne.

IV.6 Conclusion

Une méthodologie expérimentale basée sur des émissions d'iode sous forme I_2 dans l'atmosphère en l'absence de pluie, au milieu d'une prairie a été appliquée afin de déterminer les vitesses de dépôt sec d' I_2 . Les valeurs mesurées au cours de la campagne MIOSEC 2 sont comprises entre 0,02 et 0,49 $cm.s^{-1}$ avec une valeur moyenne de 0,18 $cm.s^{-1}$, soit sur une gamme couvrant un ordre de grandeur. Les vitesses de dépôt mesurées lors de la campagne MIOSEC 3 sont toutefois moins dispersées. Elles sont comprises entre 0,48 et 1,25 $cm.s^{-1}$.

A la suite de ces expériences, un modèle de dépôt sec d'iode a été adapté. Ce modèle est basé sur le principe de dépôt sec des gaz. Les variables d'entrée du modèle ont été les caractéristiques micrométéorologiques de la couche de surface atmosphérique, les propriétés physico-chimiques de l'iode et les propriétés de surface de l'herbe, tous mesurés lors des rejets atmosphériques d' I_2 . Sur l'ensemble des données, les vitesses de dépôt issues du modèle sont comprises entre 0,05 et 1,18 $cm.s^{-1}$.

En comparant ces données aux valeurs mesurées, la droite de régression linéaire obtenue montre un coefficient de corrélation très significatif ($R^2 = 0,88$) lorsque les unes sont portées en fonction des autres. De façon globale, les données du modèle sont surestimées de plus de 50 % par rapport aux mesures. Toutefois, elles sont comparables aux vitesses de dépôt mesurées avec plus du tiers des données présentant moins de 25 % de différence avec les mesures. Par conséquent, cette étude permet de qualifier les paramètres d'entrée du modèle.

Les résultats ont montré que les variations entre les vitesses de dépôt sont principalement dues aux variations des vitesses de frottement du vent et de l'humidité relative mesurées aux moments des expériences. À l'aide du modèle il a été montré que les vitesses de dépôt ont évolué au cours des différentes saisons de l'année. Les vitesses de dépôt sont plus élevées en été, période durant laquelle l'ouverture des stomates est maximale. Dans ce cas, Les vitesses de dépôt sont liées à la fois à la vitesse de frottement du vent, à l'humidité relative et à l'ouverture des stomates. Elles sont toutefois moins élevées en automne, période correspondant à une ouverture des

stomates négligeable par comparaison à la résistance non stomatique. Par conséquent, les valeurs mesurées lors de cette période sont essentiellement liées à la vitesse de frottement du vent et à l'humidité relative.

Les résultats obtenus dans cette étude sont dans la gamme des vitesses de dépôt sec d'I₂ rapportées dans la littérature pour les expériences réalisées dans les mêmes conditions. Elles sont toutefois différentes de celles obtenues lors d'expériences menées dans des chambres expérimentales (chambres climatiques) où il n'y a pas de turbulence atmosphérique.

Le modèle développé dans cette étude sera testé dans des conditions météorologiques différentes sur des rejets d'iode radioactif (¹²⁹I) sous forme gazeuse.

CHAPITRE V : VALIDATION DU MODELE DE DEPOT SEC D'IODE A LA PTILH

Ce chapitre est consacré à la validation du modèle de dépôt sec d'iode (^{127}I) développé en comparant les résultats du modèle avec les mesures des transferts d'iode radioactif (^{129}I) sur l'herbe. Il est composé de deux grandes parties.

La première traite la méthodologie utilisée pour mesurer la concentration d'iode radioactif (^{129}I) rejeté par l'usine Orano La Hague dans l'environnement et pour déterminer les concentrations d' ^{129}I déposé à l'aide du modèle de dépôt sec d' I_2 . Les prélèvements d' ^{129}I dans l'air sont effectués tous les 15 jours. L' ^{129}I déposé est récolté tous les 30 jours à l'aide de deux lysimètres équipés d'un système d'arrosage automatique et d'un capteur de pluie permettant ainsi la fermeture automatique du toit en cas de pluie. L' ^{129}I est mesuré au niveau de la PTILH (Plateforme Technique IRSN La Hague) sous forme gazeuse et particulaire. La conversion gaz-particules dans l'air étant susceptible d'être influencée par la présence des gaz tels que l'ozone (O_3), les oxydes d'azote (NO_x) et le dioxyde de soufre (SO_2), les concentrations dans l'air de ces derniers ont été acquises au niveau de la PTILH. Elle traite enfin, la procédure de détermination des concentrations d' ^{129}I gazeux et particulaire déposé sur l'herbe à partir des vitesses de dépôt sec d' ^{129}I gazeux et particulaire calculées respectivement à l'aide du modèle de dépôt sec d' I_2 développé précédemment et des paramètres d'entrée du modèle de dépôt sec des aérosols.

La deuxième partie présente les données météorologiques, les données des gaz (O_3 , NO_x , NO , NO_2 et SO_2) dans l'air ainsi que les résultats des concentrations d' ^{129}I mesuré dans l'air et sur l'herbe des lysimètres. Elle présente également les résultats des concentrations d' ^{129}I gazeux et particulaire dans l'herbe, calculées respectivement à l'aide des modèles de dépôt sec d' ^{129}I gazeux et particulaire. Pour cela, les évolutions des vitesses de dépôt d' ^{129}I gazeux et particulaire sont également présentées. Enfin, pour valider le modèle de dépôt sec d' I_2 , les concentrations totales d' ^{129}I (gazeux et particulaire) calculées sont comparées aux concentrations totales d' ^{129}I (gazeux et particulaire) mesurées dans l'herbe.

L'ensemble des mesures est effectué à la plateforme technique IRSN La Hague située à environ 2 km de l'usine Orano La Hague. Ce choix est justifié par la volonté d'utilisation du modèle de dépôt sec d'I₂ dans des conditions météorologiques différentes de celles des campagnes de mesures réalisées sur le site de l'INRAE à Lusignan.

V.1 Méthodologie générale

V.1.1 Description du site expérimental de mesure

L'usine de retraitement du combustible nucléaire Orano La Hague (Lat. 49° 40' 40'' N, Long. 1° 52' 40'' W) est située dans la région du Cotentin, à environ 300 km à l'ouest de Paris. Au cours de son fonctionnement, l'usine libère dans l'atmosphère principalement du tritium (^3H), du carbone 14 (^{14}C), du krypton 85 (^{85}Kr) et de l'iode (^{129}I) (GERMAIN et al., 2004). Les concentrations d' ^{129}I dans l'air et celles dans l'herbe ont été mesurées à la plateforme technique IRSN La Hague (PTILH). La PTILH (Lat. 49° 41' 42'' N, Long. 1° 52' 24'' W) est une plateforme de l'IRSN située sous les vents dominants du sud-ouest, à environ 2 km de l'usine Orano La Hague (Figure V.1) et est donc fréquemment exposée aux émissions atmosphériques de cette dernière.

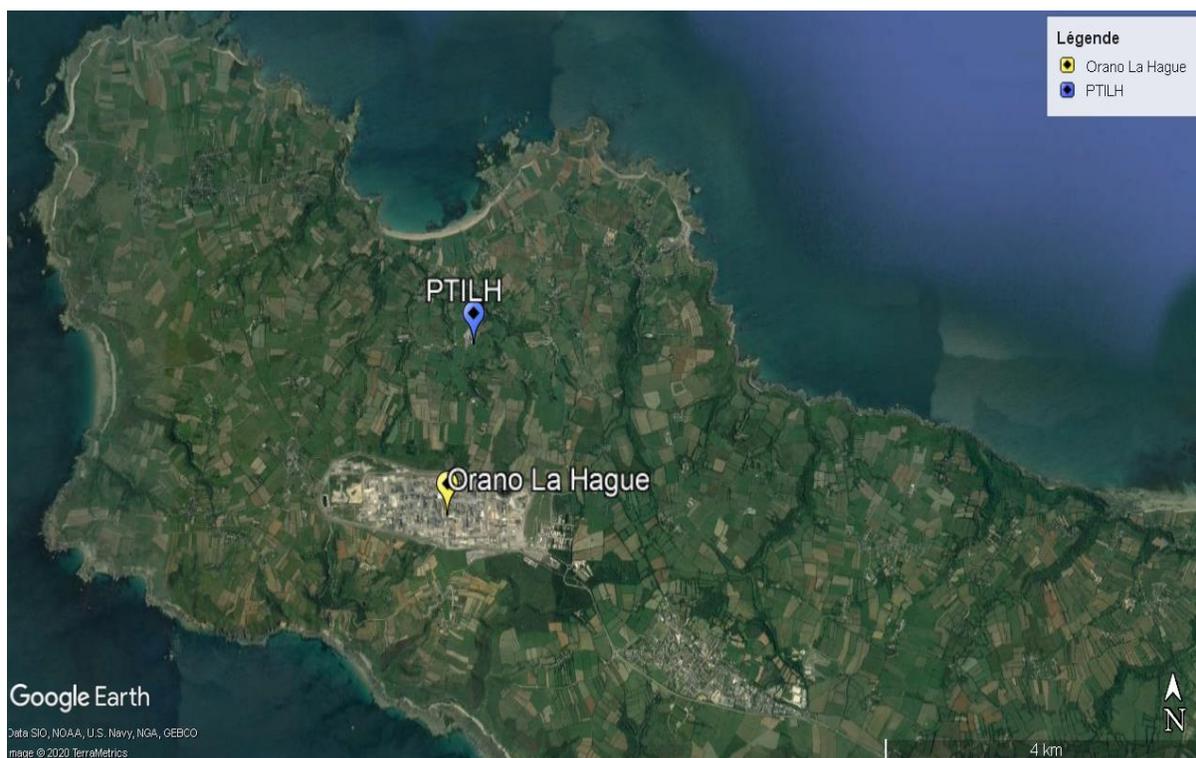


Figure V.1 : Présentation de l'émissaire de rejet (usine Orano La Hague) et du site expérimental de mesure d' ^{129}I (PTILH).

La PTILH est équipée de deux lysimètres, des systèmes de prélèvement d'air dont un préleveur d'air à haut volume (High Volume Sampler, HIVOL) et des systèmes

d'acquisition des données météorologiques (anémomètre ultrasonique, station météo, etc.).

V.1.2 Mesure des concentrations d'¹²⁹I dans l'air et dans l'herbe

V.1.2.1 Prélèvement d'¹²⁹I dans l'air

V.1.2.1.1 Prélèvement d'¹²⁹I particulaire

Le préleveur d'air à haut débit (High Volume Sampler, HIVOL) implanté sur la plateforme expérimentale de l'IRSN permet le prélèvement des aérosols atmosphériques. Il permet donc le prélèvement d'¹²⁹I sous forme particulaire. Le système est équipé d'une pompe permettant de prélever l'air à un débit compris entre 20 et 80 m³.h⁻¹ à travers un filtre pour collecter les aérosols atmosphériques. Pour prélever l'¹²⁹I particulaire, le débit est fixé à 60 m³.h⁻¹ et deux filtres sont superposés l'un sur l'autre. L'air épuré des aérosols atmosphériques est entraîné à l'extérieur du système via la sortie du préleveur d'air. Le prélèvement est maintenu dans le temps, de façon à ce que les filtres soient recueillis tous les 9 à 21 jours et en moyenne tous les 15 jours, correspondant à un débit moyen d'air prélevé de 21600 m³. Cette durée de prélèvement est cadrée pour prévenir la chute du débit de prélèvement. Le dispositif de prélèvement des aérosols d'¹²⁹I est représenté Figure V.2.

Tous les 15 jours, les filtres sont collectés et remplacés par deux nouveaux autres pour commencer une nouvelle séquence de collecte. Les filtres collectés sont séparés, pliés et placés dans des sacs en vinyle. Ils sont acheminés le même jour au laboratoire et sont conditionnés dans des géométries de comptage b17 (Figure V.3).



Figure V.2 : Dispositif de prélèvement d'air à haut débit ($60 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$). A gauche : dispositif de prélèvement d'air sur filtres. A droite : agrandissement de la zone de contenance des filtres pour la collecte des aérosols atmosphériques.

La concentration d' ^{129}I dans chaque filtre est ensuite mesurée par spectrométrie gamma. La concentration totale d' ^{129}I particulaire est calculée en faisant la somme des activités d' ^{129}I dans chaque filtre. Les résultats sont exprimés en $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$.

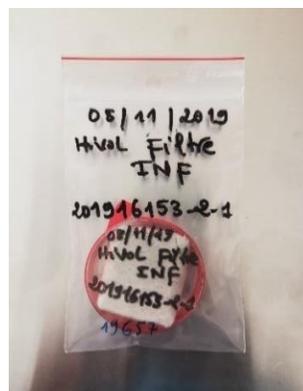


Figure V.3 : Conditionnement du filtre dans une géométrie de comptage b17.

Bien que validé et référencé comme système de prélèvement des aérosols atmosphériques, le débit de prélèvement étant relativement élevé ($60 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$), une

expérience supplémentaire est rajoutée pour étudier la volatilisation de l'¹²⁹I particulaire prélevé sur les filtres. En effet, l'usine Orano La Hague rejette de l'¹²⁹I à chaque cycle de traitement du combustible nucléaire appelé « cycle de cisailage ». Un cycle de cisailage n'est pas continu et dure environ 30 minutes. Deux cycles de cisailage sont espacés de 15 minutes, durant lesquelles l'¹²⁹I n'est pas rejeté, correspondant au changement de combustible nucléaire. Il faut que l'usine soit en fonctionnement et que le vent porte vers la plateforme technique IRSN La Hague pour prélever d'¹²⁹I. Les rejets de l'usine Orano La Hague porte sur la PTILH lorsque le vent a pour origine 200°. De ce fait, il est possible de prélever de l'¹²⁹I particulaire rejeté par l'usine sur filtres à la PTILH pendant plusieurs heures et ne plus rien prélever à cause d'un changement de la direction du vent pendant un long moment ou tout simplement d'un arrêt de fonctionnement de l'usine. L'objectif de cette expérience consiste donc à vérifier que l'¹²⁹I particulaire prélevé sur les filtres au début du prélèvement, lorsque le vent portait sur la PTILH n'est pas volatilisé au cours de la période durant laquelle le vent ne porte pas vers la PTILH. Pour cela, des prélèvements d'¹²⁹I particulaire sont réalisés sur filtre à proximité (à environ 100 m) de l'usine Orano La Hague qui rejette de façon concomitante le ⁸⁵Kr et l'¹²⁹I. La mesure de l'activité du ⁸⁵Kr toutes les secondes permet de suivre le panache. Les prélèvements d'¹²⁹I particulaires sont réalisés sur filtres par un système de prélèvement d'air à haut débit le 26 juin 2019 de 11 h 00 à 12 h 15, en raison de 71 m³.h⁻¹, soit un volume total de 105 m³. Les échantillons sont acheminés au laboratoire où ils sont conditionnés dans des géométries de comptage b60. L'activité d'¹²⁹I particulaire est mesurée par spectrométrie gamma. Au LRC, ces filtres sont déconditionnés et dépliés afin d'effectuer un nouveau prélèvement. Ce dernier est réalisé à l'aide du même préleveur d'air à un débit de 69 m³.h⁻¹, du 15 au 24 juillet 2019, soit un débit total de 13725 m³.h⁻¹. Un prélèvement parallèle est réalisé sur filtre au moyen d'un deuxième préleveur d'air à haut volume pour servir de témoin (bruit de fond d'¹²⁹I particulaire au LRC), à raison de 73 m³.h⁻¹, soit un débit total d'air prélevé de 14420 m³.h⁻¹. A la fin des prélèvements, les filtres sont repliés et reconditionnés dans des géométries de comptage b60. Les échantillons sont mesurés par spectrométrie gamma. Pour déterminer le taux de volatilisation d'¹²⁹I particulaire, l'activité d'¹²⁹I mesuré dans le filtre témoin est soustraite de l'activité d'¹²⁹I mesurée au LRC. Le taux de volatilisation

de l'¹²⁹I particulaire est déterminé en rapportant l'activité d'¹²⁹I particulaire prélevé au LRC à l'activité d'¹²⁹I prélevé sous le panache de l'usine Orano La Hague (taux de volatilisation calculé à partir des valeurs extrêmes < 10 %).

Les résultats de cette expérience sont présentés Tableau V.1. Ils ont permis de montrer que l'¹²⁹I particulaire prélevé sur filtre en début de prélèvement n'est pas volatilisé au cours du temps.

Tableau V.1 : Activité de l'¹²⁹I mesuré au LRC suite à la reprise d'un filtre ayant prélevé sous le panache de l'usine Orano La Hague : détermination du taux de volatilisation de l'¹²⁹I particulaire.

Date	Localisation	Commentaires	Volume d'air (m ³)	Activité d' ¹²⁹ I (mBq)
26/06/2019	à 100 m de l'usine Orano La Hague	Prélèvement d'air sur filtre, utilisation du ⁸⁵ Kr pour suivre le panache de l'usine	105	9,4 ± 4,2
du 15/07/2019 au 24/07/2019	LRC	reprise du filtre ayant prélevé sous le panache de l'usine nouveau prélèvement sur ce filtre au LRC	13725	12,0 ± 5,0
du 15/07/2019 au 24/07/2019	LRC	prélèvement d'air sur filtre témoin (bruit de fond d' ¹²⁹ I particulaire au LRC)	14420	3,4 ± 1,3

V.1.2.1.2 Prélèvement d'¹²⁹I gazeux

Pour prélever l'¹²⁹I gazeux (inorganique et/ou organique) dans l'air, une colonne de charbon actif imprégné de triéthylène diamine (TEDA) a été rattachée après les filtres, à la sortie du préleveur d'air (Figure V.4).

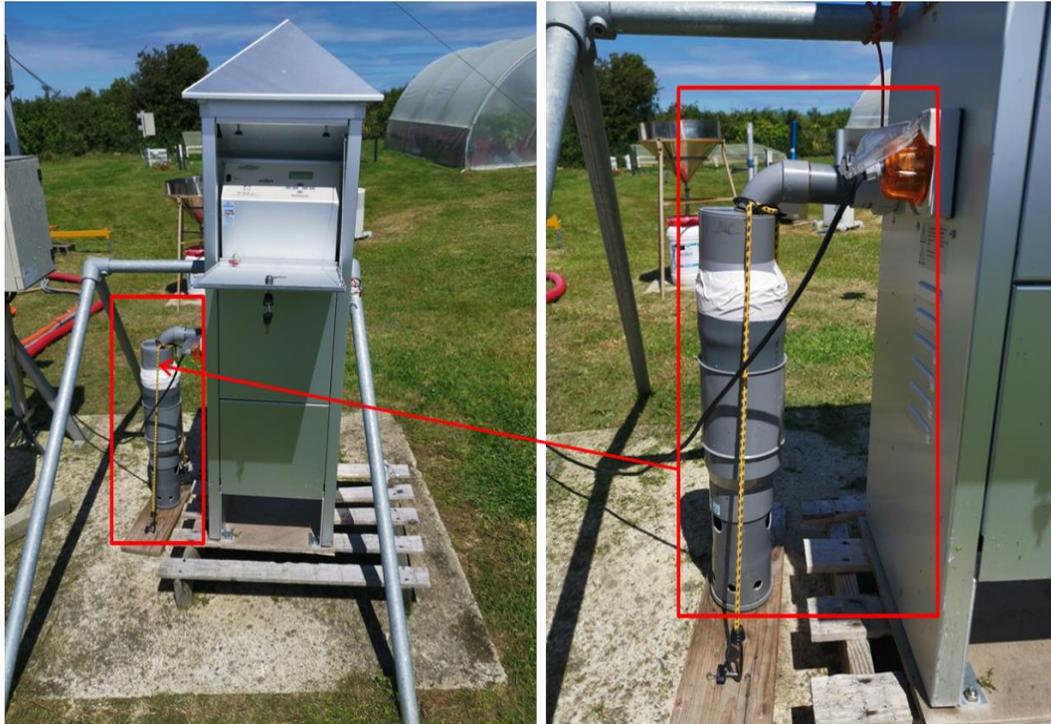


Figure V.4 : A gauche : dispositif de prélèvement d'air à haut débit ($60 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$). A droite : agrandissement de la colonne contenant le charbon actif imprégné au TEDA pour la collecte d' ^{129}I gazeux.

Le triéthylène diamine est un ammonium quaternaire utilisé pour l'imprégnation du charbon actif afin de prélever l'iode sous forme I_2 , ICH_3 et HOI (Jubin, 1979).

Le piégeage d' ^{129}I gazeux est fait sous forme de cascade. L'iode associé aux aérosols atmosphériques est retenu sur les filtres. L'air contenant l' ^{129}I gazeux passe ensuite à travers la colonne de charbon actif imprégné de TEDA. La colonne de charbon est constituée de trois niveaux. Chaque niveau est rempli d'environ 45 g de charbon actif imprégné de TEDA. Lorsque l'air est entraîné au niveau de cette colonne, une partie d' ^{129}I est piégée dans le premier niveau. L' ^{129}I n'ayant pas été piégé dans ce dernier est collecté dans le deuxième et troisième niveau. L'illustration de la colonne de charbon actif pour le piégeage d' ^{129}I gazeux est représentée Figure V.5.

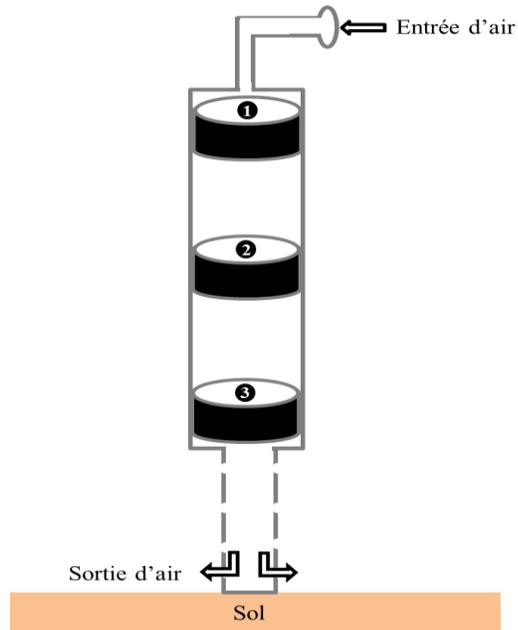


Figure V.5 : Représentation schématique de la colonne de piégeage d' ^{129}I gazeux : 1, 2 et 3 correspondent aux trois niveaux de charbon actif imprégné de TEDA.

Le prélèvement est maintenu dans le temps de tel sorte que les échantillons de charbon soient collectés au même moment que les filtres, soit en moyenne tous les 15 jours. Collectés à la fin de chaque prélèvement, les échantillons de charbon sont remplacés par un nouveau charbon actif pour commencer une nouvelle séquence de collecte. Les échantillons de charbon sont collectés séparément et placés dans des sacs en vinyle pour être acheminés le même jour au laboratoire.

Conditionnés dans des géométries de comptage b60 (Figure V.6), la concentration d' ^{129}I dans chaque niveau de la colonne de charbon est mesurée par spectrométrie gamma. Le volume moyen d'air collecté et le poids de charbon contenu dans chaque niveau de la colonne et dans chaque géométrie de comptage étant connus, la concentration totale d' ^{129}I gazeux est calculée en faisant la somme des activités d' ^{129}I dans chaque niveau de la colonne de charbon. Les résultats sont exprimés en Bq.m^{-3} .



Figure V.6 : Conditionnement du charbon actif dopé de TEDA dans une géométrie de comptage b60.

Il est possible que l' ^{129}I gazeux prélevé dans l'air soit sous forme élémentaire gazeux I_2 , sous forme organique (ICH_3 par exemple) ou sous forme d'acide hypoiodéux (HIO). Pour différencier ces différentes formes chimiques, une expérience supplémentaire est rajoutée. Cette dernière a consisté à prélever l' ^{129}I dans du charbon actif imprégné de TEDA et dans du charbon actif non imprégné. En effet, le charbon actif imprégné de TEDA permet de prélever à la fois l' ^{129}I gazeux sous forme I_2 , sous forme ICH_3 (Qi-dong and Sui-yuang, 1985) mais aussi sous forme HIO tandis que lorsque le charbon actif n'est imprégné de rien, les prélèvements d' ICH_3 et de HIO sont médiocres. Les mécanismes de piégeage de l'iode sous forme I_2 , ICH_3 et HIO peuvent être présentés :

- **Prélèvement d' ^{129}I sous forme I_2**

Le piégeage d'iode sous forme I_2 peut se faire sur du charbon actif même lorsque que ce dernier n'est pas imprégné de TEDA. L'adsorption physique d' I_2 est le principal mécanisme de piégeage d' I_2 à cause de la grande surface du charbon actif (800 à 1000 $\text{m}^2.\text{g}^{-1}$) et la structure de ses pores. Il peut y avoir aussi de la chimisorption à cause de la présence sur le charbon actif de différents groupes fonctionnels, phénoliques et autres groupes hydroxyles pouvant créer des liaisons chimiques avec I_2 (Jubin, 1979).

- Prélèvement d'¹²⁹I sous forme ICH₃

L'adsorption simultanée de la vapeur d'eau de l'air par le charbon actif altère considérablement le piégeage d'ICH₃. Cette altération est négligeable lorsque l'humidité relative est faible (< 5 %) tandis qu'au-delà de 30 % d'humidité de l'air, l'absorption d'ICH₃ par le charbon actif est négligeable (Choi et al., 1997 ; Jubin, 1979). Ainsi, pour obtenir un piégeage efficace d'ICH₃ à une humidité relative élevée comme dans certains cas de conditions environnementales, des solutions qui consistent à imprégner le charbon actif de différents composés dont le TEDA et le KI ont été adoptées. Parmi ces solutions, le piégeage d'ICH₃ par le charbon actif imprégné de TEDA est la méthode la plus efficace. La concentration de TEDA en surface est généralement comprise en 0,5 et 5 % en masse (Jubin, 1979 ; Park et al., 1993). Le piégeage d'ICH₃ par le charbon actif à la fois imprégné de TEDA et de KI est encore plus efficace que celle des deux éléments individuellement pris. Le Mécanisme de piégeage d'ICH₃ par le charbon actif imprégné de TEDA se fait d'abord par adsorption physique suivi d'une chimisorption. Ainsi, un sel d'ammonium quaternaire lié au carbone est formé par liaison chimique de TEDA avec l'ICH₃ (Freeman et al., 1985 ; Jubin, 1979 ; Kim, 1989).

- Prélèvement d'¹²⁹I sous forme HOI

Des études ont rapportées que le prélèvement d'iode sous forme HOI était plus difficile que celui d'ICH₃ et que parmi les prélèvements sur charbon actif, seuls ceux réalisés avec du charbon actif imprégné étaient efficaces. Le charbon actif imprégné de TEDA était plus efficace que les autres sorbants.

Ainsi, des prélèvements d'¹²⁹I gazeux sont réalisés sur deux périodes à l'aide d'un système (AS 3000) qui permet de réaliser un échantillonnage de l'iode sur filtres et sur des cartouches de charbon actif. De la même manière que le système de prélèvement à haut débit, l'AS 3000 à l'aide d'une pompe, fait passer de l'air à travers le charbon actif où l'¹²⁹I gazeux est ensuite piégé. La seule différence réside sur son débit de prélèvement relativement bas (0,6-3 m³.h⁻¹) par rapport au HIVOL (jusqu'à 80 m³.h⁻¹). En raison de ce débit de prélèvement bas, des émissions faibles d'¹²⁹I par l'usine Orano La Hague et de la limite de détection d'¹²⁹I par spectrométrie gamma, les cartouches de charbon dans l'AS 3000 sont collectés tous les 30 jours. Du 05 juillet 2019 au 12 août

2019 deux filtres de la même nature que ceux utilisés dans le HIVOL sont placés l'un sur l'autre au niveau de la face d'entrée d'air de l'AS 3000 pour collecter l'¹²⁹I particulaire à un débit de 1,8 m³.h⁻¹. Les deux filtres sont suivis de deux cartouches de charbon actif pour prélever l'¹²⁹I gazeux. La cartouche placée juste après les filtres contient du charbon actif imprégné de TEDA tandis que la seconde contient uniquement du charbon actif.

La même expérience est répétée sur une autre période de même durée, en utilisant de nouvelles cartouches de charbon actif et en inversant l'ordre de disposition de ces dernières. En effet, au cours du prélèvement d'¹²⁹I gazeux réalisé du 1^{er} octobre 2019 au 1^{er} novembre 2019, la cartouche placée juste après les filtres ne contenait que du charbon actif tandis que la seconde cartouche était remplie de charbon actif imprégné de TEDA. L'illustration de la cartouche de prélèvement d'¹²⁹I gazeux dans l'AS 3000 est présentée Figure V.7.



Figure V.7 : Cartouche placée dans l'AS 3000 pour le prélèvement d'¹²⁹I gazeux.

A la fin du prélèvement, les échantillons sont placés dans des sacs en vinyle. Une fois au laboratoire, elles sont ouvertes et vidées de leur contenu pour homogénéiser le charbon. Dans les deux cas de figures, la totalité de l'¹²⁹I est mesurée dans la première cartouche. Par conséquent, l'¹²⁹I gazeux mesuré dans l'air à la plateforme technique IRSN-La Hague est sous forme inorganique et probablement sous forme I₂.

V.1.2.2 Prélèvement d' ^{129}I dans l'herbe

L' ^{129}I est collecté sur l'herbe des deux lysimètres implantés à la plateforme technique de l'IRSN-La Hague. Ces derniers sont représentés Figure V.8. Chaque lysimètre présente une surface de 1 m^2 au sol correspondant à un bac étanche de 25 cm de profondeur.

Chaque bac est rempli de sol de même nature que celui de la PTILH. Les lysimètres sont alimentés à leur base en eau de façon automatique, via une pompe et un réservoir externe contenant 1000 L d'eau, en raison $50\text{ ml}\cdot\text{min}^{-1}$ pendant 30 minutes (soit 1,5 L d'eau), tous les deux jours. Ils sont protégés par un toit amovible muni d'un capteur d'humidité permettant une fermeture automatique en cas de pluie. Les bacs sont ouverts au sommet pour permettre l'échange entre l'air et l'herbe.



Figure V.8 : Présentation des lysimètres à toit découvrant par temps sec avec un système de fermeture automatique en cas de pluie, placés à la plateforme technique IRSN La Hague.

Du 09 octobre 2018 au 10 décembre 2019, un prélèvement des parties aériennes de l'herbe (brins d'herbe) est réalisé à fréquence mensuelle au niveau des deux lysimètres de manière à récupérer le maximum de masse. L'herbe coupée est placée dans un sac en vinyle. Les échantillons sont transportés au LRC le même jour. L'herbe

est disposée dans des plateaux en aluminium et pesée. Dans les cas où les étuves ne sont pas directement disponibles, les échantillons d'herbe une fois pesée, sont conservés dans une chambre froide à 4 °C. L'herbe est séchée dans des étuves à 40 °C. Après l'étape de séchage, l'herbe est pesée à nouveau et broyée. Les échantillons sont conditionnés dans des géométries de comptage b60 (Figure V.9). La masse d'herbe dans la géométrie b60 est déterminé et la concentration d' ^{129}I est mesurée par spectrométrie gamma. La masse totale de l'herbe et la surface totale des deux lysimètres (2 m²) étant connues, la concentration totale d' ^{129}I sous toutes ses formes (gazeuses et particulaires) déposé sur l'herbe est exprimée en Bq.m⁻².



Figure V.9 : Herbe broyée après séchage à 40 °C et son conditionnement. A gauche : herbe broyée après séchage à 40 °C. A droite : conditionnement de l'herbe broyée dans une géométrie de comptage b60.

V.1.2.3 Mesure par spectrométrie gamma de l' ^{129}I dans les échantillons

La spectrométrie gamma est une technique rapide, non destructive qui la plupart du temps ne nécessite pas de réaliser une radiochimie sur l'échantillon. En effet, lors de la mesure d'un échantillon, les photons γ émis par l'échantillon vont interagir avec le matériau du détecteur en déposant toute ou partie de leur énergie. Ces rayonnements peuvent interagir principalement par trois effet : l'effet photoélectrique, l'effet Compton et la création de paire e^+/e^- .

V.1.2.3.1 Chaîne de spectrométrie avec système anti-cosmique

La chaîne de spectrométrie gamma utilisée pour mesurer les échantillons d' ^{129}I est composée de :

- un détecteur HpGe (High-Purity Germanium) coaxial type P avec contact Lithium ultra mince (2 KeV à 3 MeV) avec une efficacité nominale (1,33 MeV) de 50 %. L'intervalle minimal entre deux impulsions est de 50 ns.
- un système électronique constitué de :
 - un préamplificateur 113 pour photomultiplicateur couplé à un détecteur NaI(Tl) ;
 - un amplificateur rapide à filtre 579 et à haute résolution 572A ;
 - un convertisseur temps-amplitude 567 ;
 - un convertisseur ASPEC-927 analogique/numérique de 16384 canaux sur 0-10 V.
- un système anti-cosmique constitué d'un château de plomb parallélépipédique de dimension (300 mm × 300 mm × 360 mm). La paroi de plomb est épaisse 150 mm et recouverte de 2 mm de cuivre.

Si l'échantillon contient des émetteurs γ en quantité importante, leurs photons γ qui interagissent par effet Compton engendreront un fond sur une partie du spectre. Le système anti-cosmique est employé pour limiter le fond engendré par ces derniers.

V.1.2.3.2 Étalonnage en rendement

Pour évaluer l'activité d'un échantillon, à partir du nombre d'évènements net, un étalonnage est nécessaire pour chaque géométrie de comptage utilisée parce que le coefficient d'étalonnage tient compte de la réponse de la chaîne électronique et de deux sous-ensembles : le rendement intrinsèque du détecteur et le rendement géométrique. La Figure V.10 présente un exemple de courbe d'étalonnage en énergie pour la géométrie 60 ml utilisée au LRC.

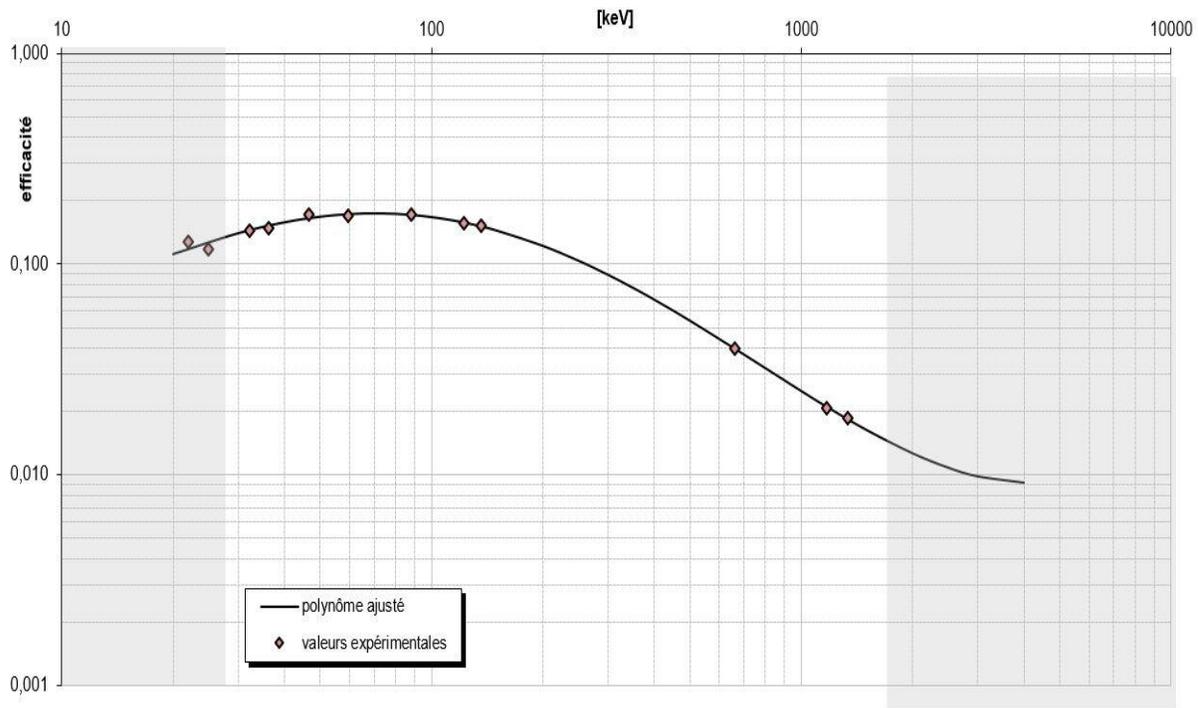


Figure V.10 : Exemple de courbe d'étalonnage en rendement pour la géométrie 60 ml en fonction de l'énergie [KeV] du spectromètre gamma utilisée au LRC.

Cette courbe est réalisée à partir des sources étalons fournies par le Laboratoire des Etalons et Intercomparaisons de l'IRSN (PRP-ENV/STEME/LEI). Les sources sont choisies de telles sortes qu'elles puissent couvrir toute la gamme en énergie utilisée pour les mesures (2 à 3000 KeV). Une solution multi- γ raccordée aux étalons primaires est diluée et mélangée à une résine équivalente eau de densité $1,14 \text{ g.cm}^{-3}$. La géométrie de comptage 60 ml est remplie de ce mélange. La courbe d'étalonnage est réalisée à partir des pics d'absorption totale présents dans le spectre de mesure. Le même étalonnage est réalisé pour la géométrie de comptage 17 ml à partir d'un mélange des mêmes étalons primaires.

Les mesures réalisées sur les matrices d'herbe, de charbon actif et de filtres n'ont pas montré la présence de composés qui atténueraient l'activité de l' ^{129}I . Par conséquent, l'évaluation de l'auto-atténuation par l'échantillon n'a pas été prise en compte.

V.1.2.3.3 Mesure des échantillons

Lorsqu'un échantillon est placé en contact du détecteur, les signaux fournis par ce dernier sont analysés par la chaîne électronique associée. Un spectre est fourni à la suite de cette analyse. Ce dernier est proportionnel à l'énergie déposée par le radionucléide donc à l'activité de ce dernier. La Figure V.11 présente un exemple de spectre d' ^{129}I obtenu après plusieurs jours de comptage d'un échantillon de charbon actif qui a prélevé à la plateforme technique IRSN La Hague.

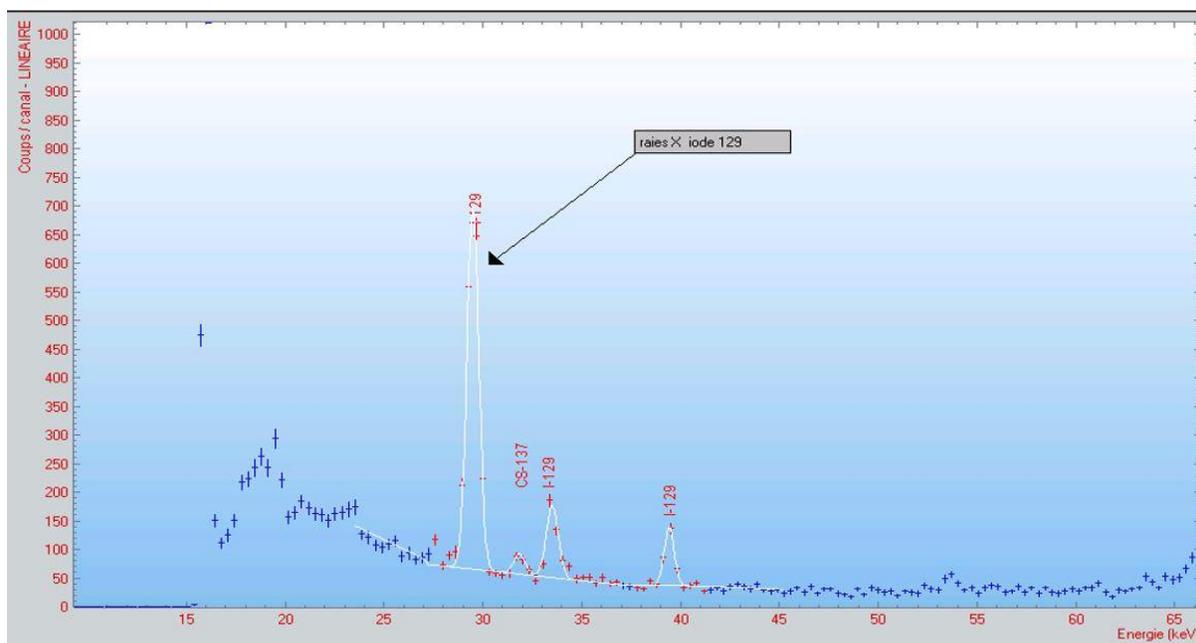


Figure V.11 : Principales composantes d'un spectre (nombre de coups en fonction de l'énergie) d' ^{129}I dans un échantillon de charbon actif (géométrie b60).

V.1.2.3.4 Seuil de décision et incertitudes de mesure

Pour un échantillon de filtre conditionnée dans une géométrie de comptage 17 ml, après un temps de comptage de 64 heures, le seuil de décision était de 2,4 mBq par échantillon tandis qu'après un comptage pendant 91 heures d'un autre échantillon de filtre conditionné dans la même géométrie, le seuil de décision a été estimé à 1,9 mBq par échantillon.

Pour l'ensemble des mesures réalisées, les incertitudes sont données pour un facteur d'élargissement de 2 ($k = 2$).

Dans le cas où le nombre d'évènements net dans le pic est supérieur au seuil de décision, l'activité de l'¹²⁹I est donnée sous la forme $A \pm uA$ où uA est l'incertitude associée à l'activité A . Dans le cas contraire, le signal est considéré comme non significatif, le résultat est déclaré inférieur à la limite de détection (LD) sous la forme $< LD$.

V.1.3 Reconstitution des concentrations d'¹²⁹I dans l'air à partir des données du ⁸⁵Kr

En raison des faibles émissions d'¹²⁹I par l'usine Orano La Hague et de la limite de détection du spectromètre gamma utilisé, les prélèvements d'air sont intégrés sur 15 jours afin de pouvoir mesurer l'activité d'¹²⁹I. Cependant, le fonctionnement du modèle nécessite des données d'¹²⁹I sur des pas de temps ne dépassant pas l'heure. En effet, l'¹²⁹I et le ⁸⁵Kr sont rejetés de façon concomitante et proportionnelle par l'usine Orano La Hague. La mesure de l'activité du ⁸⁵Kr à haute fréquence (seconde) au niveau de la plateforme technique IRSN La Hague permet donc de reconstruire les concentrations d'¹²⁹I mesurées au niveau de la PTILH sur des pas de temps de 30 minutes. L'activité du ⁸⁵Kr est mesurée à la PTILH en utilisant un compteur proportionnel (LB111, Berthold).

Les rejets d'¹²⁹I et de ⁸⁵Kr impactent la PTILH lorsqu'au niveau de cette dernière le vent a pour origine entre 200 et 220°. Ainsi, les concentrations d'¹²⁹I gazeux et particulaire dans l'air peuvent être estimées à des pas de temps de 30 minutes à partir de trois paramètres : l'activité dans l'air du ⁸⁵Kr mesuré à haute fréquence, la direction du vent et les activités du ⁸⁵Kr et de l'¹²⁹I gazeux et particulaire mesurées tous les 15 jours.

V.1.4 Acquisition des données environnementales

En plus des deux lysimètres et des équipements de prélèvement d'air, la plateforme technique IRSN La Hague dispose d'appareillages permettant l'acquisition en continue des données météorologiques et des analyseurs des gaz (O₃, NO_x, NO, NO₂ et SO₂) dans l'air. Les données sont acquises du 9 octobre 2018 au 10 décembre 2019 à une fréquence de 30 minutes.

V.1.4.1 Mesure des paramètres météorologiques

L'acquisition des données météorologiques est réalisée à la PTILH pour produire les vitesses de dépôt sec d'¹²⁹I à partir du modèle de dépôt sec d'I₂ et du modèle de

dépôt sec des aérosols. Des données météorologiques telles que le rayonnement solaire global, l'humidité relative et le point de rosée sont enregistrées automatiquement dans un terminal (station météorologique, WatchDog 2000 series). Les capteurs de la station météorologique sont placés à 1,5 m au-dessus du sol et permettent l'acquisition des données à une fréquence de 30 minutes.

Au même moment, la température, le flux de chaleur sensible, la longueur de Monin-Obukhov, la vitesse, la vitesse de frottement et la direction du vent sont acquis toutes les 30 minutes à l'aide de l'anémomètre ultrasonique (Model Young) monté à la PTILH à 6 m au-dessus du sol.

V.1.4.2 Mesure des gaz (O_3 , NO_x , NO , NO_2 et SO_2) dans l'air

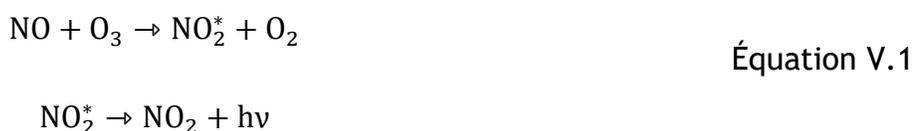
La plateforme technique IRSN La Hague est équipée de trois analyseurs de gaz. Alors que l'un permet de mesurer l'ozone (O_3), les deux autres permettent d'acquérir les concentrations atmosphériques du dioxyde de soufre (SO_2) et des oxydes d'azote (NO , NO_2 et NO_x).

L'analyseur d'ozone permet d'effectuer des mesures d' O_3 dans la gamme de 0,2 ppb à 10 ppm. Son fonctionnement repose sur le principe de la photométrie UV qui consiste à mesurer la lumière UV absorbée par les molécules d'ozone. En effet, un échantillon passe à travers un épurateur d'ozone rechargeable pour mesurer le signal de référence. Au même moment, l'échantillon d'air prélevé passe directement dans la chambre de mesure afin de quantifier le signal de mesure. Les deux signaux sont détectés par une photodiode. La concentration d'ozone est ainsi déduite par application de la loi de Beer-Lambert.

Le SO_2 est analysé à l'aide d'un autre dispositif fonctionnant sur le principe de la fluorescence UV. L'échantillon d'air contenant le SO_2 passe à travers une source émettrice d'un rayonnement UV. L'absorption de ce rayonnement UV par les molécules de SO_2 conduit à leur passage temporaire vers un état électronique excité. Le retour à l'état fondamental des molécules de SO_2 se traduit par l'émission d'un rayonnement de fluorescence, mesuré par un photomultiplicateur. L'intensité du rayonnement mesuré est proportionnelle à la concentration du SO_2 . Etant donné que les échantillons d'air

contiennent des composés autre que le SO₂, l'analyseur dispose d'un obturateur optique et d'un filtre à hydrocarbures permettant l'élimination de ces interférents. Il dispose de deux programmes ajustables permettant ainsi de mesurer le SO₂ sur une gamme de 0-20 ppm ou 0-1 ppm.

L'analyseur des oxydes d'azotes (NO/NO_x et NO₂) est basé sur le principe la chimiluminescence. Un échantillon de prélèvement d'air peut contenir à la fois de l'ozone (O₃) et le monoxyde d'azote (NO). La réaction entre ces composés conduit à l'émission de photons (lumière). Elle est la base des détecteurs chimiluminescence dans lesquels les photons produits sont détectés par un tube photomultiplicateur. La concentration des molécules NO est proportionnelle à l'intensité du signal mesuré. Ce dispositif est également équipé de deux modes de programmation permettant des mesures sur une gamme de 0-1 ppm ou 0-10 ppm. La réaction entre les molécules NO et O₃ est donnée Équation V.1.



Les caractéristiques des différents analyseurs sont présentés Tableau V.2.

Tableau V.2 : Caractéristiques des analyseurs de la pollution environnementale.

Analyseurs	Gamme de mesure (ppm)	Limite de détection (2σ) (ppb)	Débit d'air (L.min ⁻¹)
Ozone (O ₃)	0 à 10	0,2	1,00
Dioxyde de soufre (SO ₂)	0 à 1 / 0 à 20	< 0,4	0,33
Oxydes d'azote (NO-NO _x /NO ₂)	0 à 1 / 0 à 10	< 0,2	0,66

V.1.5 Utilisation des modèles de dépôt sec d'iode

V.1.5.1 Calcul des vitesses de dépôt sec d'¹²⁹I gazeux et particulaire

Cette partie du travail consiste à produire les vitesses de dépôt sec d'¹²⁹I à partir des modèles existants et des données météorologiques acquises à la plateforme technique IRSN La Hague. Pour cela, le modèle de dépôt sec d'iode développé dans cette étude et le modèle de dépôt sec des particules développé par Damay (2010a) sont utilisés, respectivement pour déterminer les vitesses de dépôt sec d'¹²⁹I gazeux et particulaire.

V.1.5.1.1 Détermination des vitesses d'¹²⁹I gazeux à partir du modèle de dépôt sec d'¹²⁷I

Rappelons que les paramètres d'entrée du modèle de dépôt sec d'iode ont été validé par la confrontation des résultats du modèle avec les mesures réalisées à partir des émissions d'iode stable (¹²⁷I) dans l'atmosphère pendant un délai très court (30 minutes). Pour déterminer les vitesses de dépôt sec d'¹²⁷I, les mesures des concentrations d'¹²⁷I dans l'air et des concentrations d'¹²⁷I déposé sur des échantillons d'herbe ont été réalisées à une distance de 3 m par rapport à la source d'émission d'¹²⁷I. Il convient donc de tester les paramètres d'entrée de ce modèle aux rejets d'¹²⁹I à la plateforme technique IRSN La Hague, donc dans des conditions météorologiques différentes. Les paramètres d'entrée du modèle utilisés pour calculer les vitesses de dépôt sec d'¹²⁹I gazeux sont ceux présentés dans le chapitre III.

V.1.5.1.2 Détermination des vitesses de dépôt sec d'¹²⁹I particulaire

L'¹²⁹I rejeté par l'usine Orano La Hague est présent dans l'atmosphère sous forme gazeuse et sous forme liée aux aérosols atmosphériques. Etant donné que le modèle de dépôt sec d'¹²⁷I gazeux ne permet de prédire que le dépôt sec de la fraction gazeuse d'¹²⁹I, il convient ici de déterminer la contribution d'¹²⁹I particulaire au dépôt sec d'¹²⁹I total (gazeux et particulaires) sur l'herbe. Pour cela, le modèle de dépôt sec des aérosols atmosphériques sur l'herbe défini par Damay (2010a) est utilisé. Dans cette étude, l'auteur a montré à travers des expériences réalisées au-dessus de l'herbe que les vitesses de dépôt sec des particules sont fonction du diamètre aérodynamique (D_p) des particules. Pour une même taille de particule donnée, il a montré que les vitesses

de dépôt sont influencées par la vitesse de frottement du vent (Équation V.2) d'une part. D'autre part, il a trouvé que les rapports V_d/u^* augmentaient significativement avec l'instabilité atmosphérique (Équation V.3) pour une même taille de particules donnée (Figure V.12).

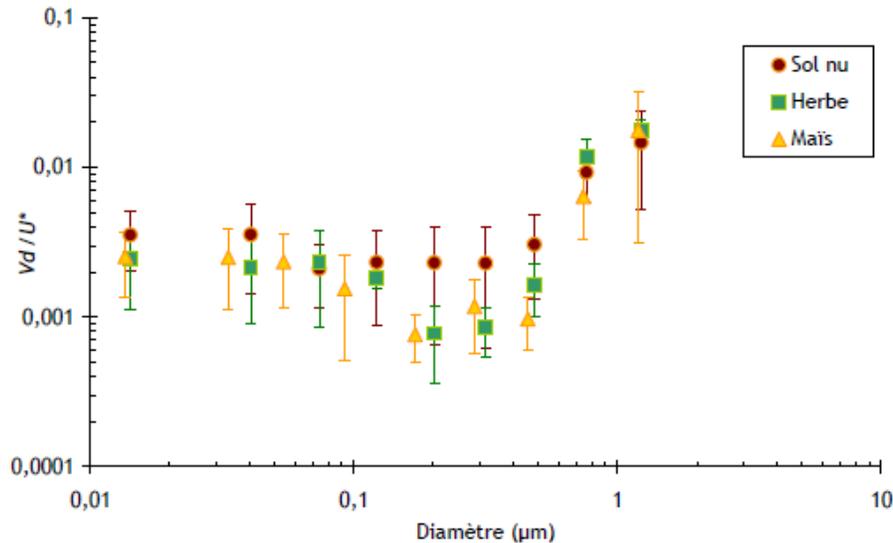


Figure V.12 : Vitesse de dépôt sec normalisée à la vitesse de frottement du vent en fonction du diamètre des particules, pour les conditions atmosphériques neutres et stables (Damay, 2010a).

A partir de cette conclusion, il a formulé :

Pour les conditions neutres et stables,

$$\frac{V_d}{u_*} = A \quad \text{Équation V.2}$$

Pour les conditions instables,

$$\frac{V_d}{u_*} = A \left(1 + \left(\frac{B}{L} \right)^{2/3} \right) \quad \text{Équation V.3}$$

Où V_d est la vitesse de dépôt sec des particules ($m \cdot s^{-1}$) ; u^* est la vitesse de frottement du vent ($m \cdot s^{-1}$) ; A est la valeur moyenne du rapport entre la vitesse de dépôt et la vitesse de frottement du vent durant les épisodes stables et neutres et B est déterminé par la méthode des moindres carrés. Dans le cadre des expériences menées au-dessus

de l'herbe, les valeurs de A et de B trouvées pour la paramétrisation de V_d/u^* sont données Tableau V.3. Etant donné que la vitesse de dépôt sec des particules est fonction de la taille des particules, pour déterminer les vitesses de dépôt d' ^{129}I particulaire, la connaissance de la taille des aérosols d' ^{129}I mesuré à la PTILH est nécessaire. Par exemple, Masson et al. (2019) ont trouvé que le diamètre aérodynamique médian de l' ^{129}I est compris entre 0,2 et 0,4 μm .

Tableau V.3 : Valeurs de A et de B en fonction du diamètre aérodynamique des particules (D_p) pour la paramétrisation de V_d/u^* (Damay, 2010a).

Étage	D_p (μm)	A	Nombre de valeurs en conditions stables et neutres	B (m)	Nombre de valeurs en conditions instables
1	$1,4 \times 10^{-2}$	$2,5 \times 10^{-3}$	15	-30,4	41
2	$4,06 \times 10^{-2}$	$2,1 \times 10^{-3}$	15	-12,3	35
3	$7,38 \times 10^{-2}$	$2,3 \times 10^{-3}$	9	-8,2	44
4	$1,22 \times 10^{-1}$	$1,8 \times 10^{-3}$	3	-5,4	15
5	$2,02 \times 10^{-1}$	$7,8 \times 10^{-4}$	5	-36,2	12
6	$3,16 \times 10^{-1}$	$8,5 \times 10^{-4}$	13	-11,5	12
7	$4,84 \times 10^{-1}$	$1,6 \times 10^{-3}$	10	-11	6
8	$7,62 \times 10^{-1}$	$1,2 \times 10^{-2}$	3	-15,3*	<u>(1)</u>
9	1,23	$1,8 \times 10^{-2}$	3	-15,3*	<u>(0)</u>

Dans le cadre du programme de surveillance de la radioactivité dans l'environnement, des mesures des niveaux d' ^{129}I sont réalisées à la plateforme technique IRSN La Hague par l'IRSN depuis 2014 par Connan et al. (2019) (Rapport IRSN). Afin de déterminer l' ^{129}I particulaire par classe granulométrique, des prélèvements d'air sont réalisés entre le 07 février 2018 et le 06 avril 2018 sur des impacteurs moyen débit. Pour cela, 8 impacteurs de type HIVOL à 5 étages et fonctionnant à $67 \text{ m}^3.\text{h}^{-1}$ sont utilisés. Les 8 impacteurs sont utilisés pour augmenter le volume d'air prélevé simultanément (soit $8 \times 67 = 536 \text{ m}^3.\text{h}^{-1}$). Pour maximiser les chances de détection, les prélèvements n'ont été réalisés que lorsque les prévisions météorologiques étaient favorables au passage du panache sur le site. De ce fait, le prélèvement complet est

constitué de plusieurs épisodes de prélèvements discontinus. Sur les impacteurs, des bandelettes en quartz sont utilisés comme supports d'impaction des aérosols d'¹²⁹I. Dans chaque impacteur, un filtre total en quartz était placé après les bandelettes. Chaque filtre était pesé avant et après séchage pour déterminer la masse d'aérosol impactée. A l'issue de chaque prélèvement, les filtres correspondant à un même étage d'impaction sont regroupés. Ainsi, 6 échantillons (filtres) étaient constitués pour couvrir les tailles dans les gammes présentées Tableau V.4. Les filtres sont ensuite conditionnés dans des géométries de comptage 17 ml (Figure V.3).

Tableau V.4 : Seuils de coupures des différents étages d'impaction (impacteur Tisch, series 230).

étage	taille de particules (µm)
1	> 7,2
2	3,0 - 7,2
3	1,5 - 3,0
4	0,95 - 1,50
5	0,49 - 0,95
total	< 0,49

Acheminés au laboratoire de métrologie de la radioactivité dans l'environnement (IRSN/LMRE), à Paris, ils sont mesurés par spectrométrie gamma et les résultats sont exprimés en µBq.m⁻³.

De ces résultats, on peut conclure que l'accumulation d'¹²⁹I est dans le mode fin comme le résultat de la conversion gaz-particules. Les concentrations d'¹²⁹I particulaire en fonction de la taille des aérosols sont présentées Tableau V.5.

Ces résultats ont montré que plus 80 % des aérosols d'¹²⁹I prélevés ont une taille inférieure à 3 µm. Parmi ces aérosols de taille comprise entre 0 et 3 µm, plus de 65 % ont une taille inférieure ou égale à 0,49 µm.

Tableau V.5 : Concentration d'¹²⁹I particulaire (μBq.m⁻³) en fonction de la taille des aérosols.

taille des aérosols (μm)	¹²⁹ I particulaire (μBq.m ⁻³)	¹²⁹ I particulaire/total (%)
filtre total (< 0,49)	2,2 ± 0,31	54
0,49 - 0,95	0,53 ± 0,14	13
0,95 - 1,50	0,34 ± 0,10	8
1,5 - 3,0	0,30 ± 0,13	7
3,0 - 7,2	0,35 ± 0,12	9
> 7,2	0,34 ± 0,10	8
total	4,09 ± 0,90	

Etant donné qu'il n'y avait pas de diamètre de coupure plus bas pour estimer de façon plus précise le diamètre médian associé à la fraction d'aérosol la plus fine, le diamètre médian est fixé à 0,49 μm. Par ailleurs ce diamètre correspond au mode accumulation en surface de l'aérosol atmosphérique (Figure V.13).

À partir de cette conclusion, parmi les classes de particules présentées Tableau V.3, 0,49 μm correspond à celle de l'étage 7. Les paramètres A et B de cette classe de particules sont donc utilisés dans le modèle pour déterminer les vitesses de dépôt sec d'¹²⁹I particulaire à partir des rapports de V_d/u^* .

Les valeurs de la vitesse de frottement du vent et de la stabilité atmosphérique étant préalablement déterminées à l'aide de l'anémomètre ultrasonique installé à la plateforme technique IRSN La Hague, à une fréquence de 30 minutes, les vitesses de dépôt sec d'¹²⁹I particulaire sont calculées sur des pas de temps de 30 minutes.

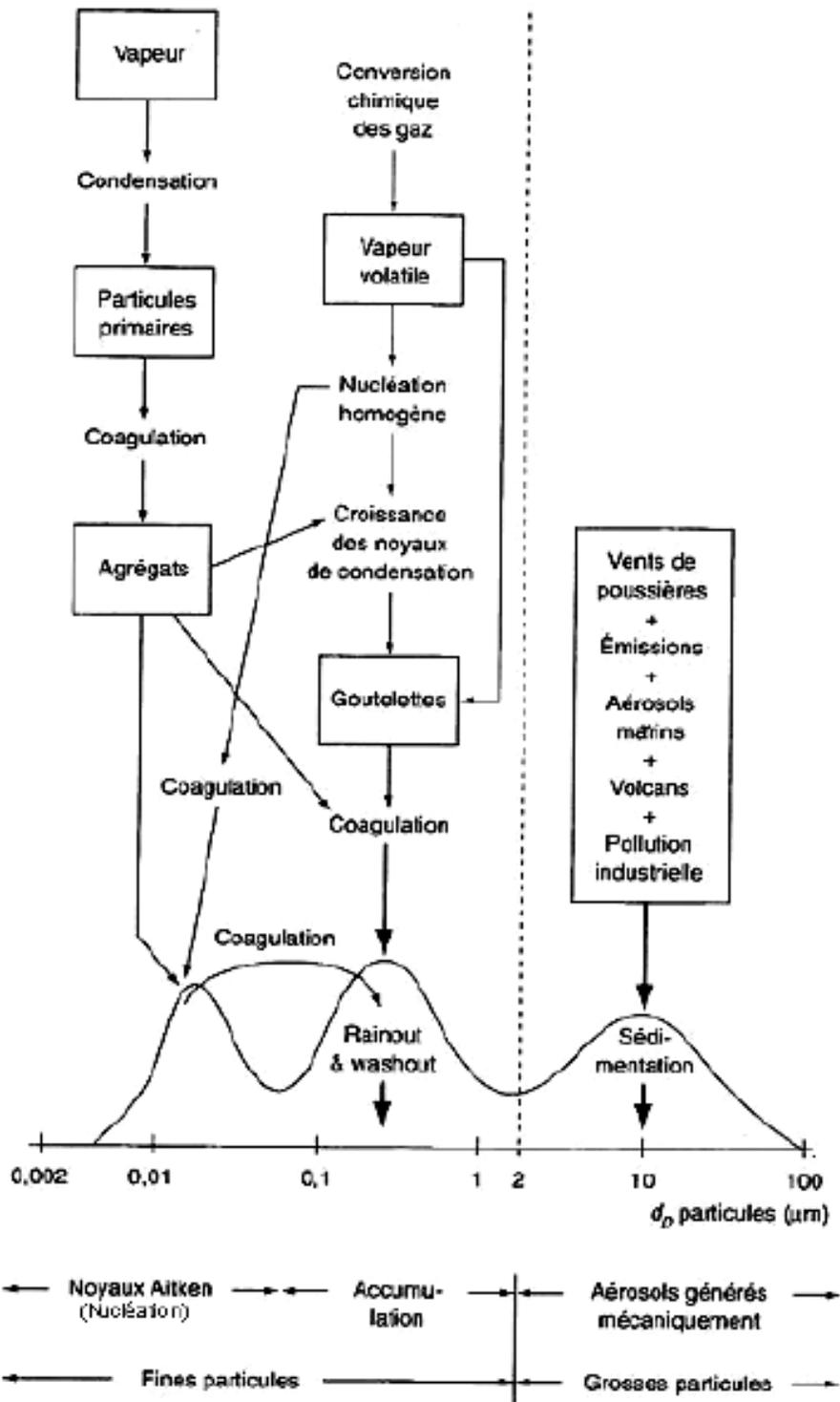


Figure V.13 : Formation de l'aérosol atmosphérique (Whitby and Sverdrup (1980), cité dans Renoux and Boulaud (1998)).

V.1.5.2 Détermination des concentrations d'¹²⁹I déposé sur l'herbe

A partir des vitesses de dépôt d'¹²⁹I gazeux $V_d \text{ gaz}$ ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$), calculées sur des pas de temps de 30 minutes à l'aide du modèle de dépôt sec d'¹²⁷I, les concentrations d'¹²⁹I gazeux D_{gaz} ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$) déposé sur l'herbe sont déterminées (Équation V.5). Pour cela, les concentrations atmosphériques d'¹²⁹I gazeux $C_z \text{ gaz}$ ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) recalculées sur des pas de temps de 30 minutes t (s) à l'aide des données du ⁸⁵Kr sont utilisées afin de calculer les flux de dépôt sec d'¹²⁹I gazeux F_{gaz} ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) suivant l'Équation V.4.

$$F_{\text{gaz}} = -C_z \text{ gaz} \times V_d \text{ gaz} \quad \text{Équation V.4}$$

$$D_{\text{gaz}} = -F_{\text{gaz}} \times t \quad \text{Équation V.5}$$

Les concentrations d'¹²⁹I particulaire déposé sur l'herbe $D_{\text{particules}}$ ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$) sont calculées suivant l'Équation V.7 de manière identique à celles de l'¹²⁹I gazeux en utilisant les vitesses de dépôt d'¹²⁹I particulaire $V_d \text{ particule}$ ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) et les concentrations d'¹²⁹I particulaire $C_z \text{ particules}$ ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) recalculées sur des pas de temps de 30 minutes t (s) à partir des données du ⁸⁵Kr (Équation V.6).

$$F_{\text{particules}} = -C_z \text{ particules} \times V_d \text{ particules} \quad \text{Équation V.6}$$

$$D_{\text{particules}} = -F_{\text{particules}} \times t \quad \text{Équation V.7}$$

Enfin, les concentrations d'¹²⁹I total (gaz et particules) déposé sur l'herbe sont calculées suivant l'Équation V.8 en sommant les concentrations d'¹²⁹I gazeux et les concentrations d'¹²⁹I particulaire déposé sur l'herbe sur la toute la période comprise entre la mise en place de l'herbe à la plateforme technique IRSN La Hague et sa coupe.

$$D_{\text{total (gaz et particules)}} = \sum_{t=0}^n D_{\text{gaz}} + D_{\text{particules}} \quad \text{Équation V.8}$$

V.2 Résultats

V.2.1 Résultats des mesures réalisées à la PTILH

V.2.1.1 Evolution de la concentration des gaz (O_3 , NO_x , NO , NO_2 et SO_2) dans l'air et des paramètres météorologiques

V.2.1.1.1 Evolution de la concentration des gaz dans l'air

L'analyse des gaz mesurés à la plateforme technique IRSN La Hague permet de suivre l'évolution au cours du temps de la concentration de l'ozone, des oxydes d'azote et du dioxyde de soufre.

L'évolution des concentrations d'ozone au cours du temps est présentée Figure V.14. Ces résultats montrent des concentrations fluctuantes entre 2 et 64 ppm. Les valeurs maximales sont atteintes la journée tandis que les valeurs minimales sont mesurées durant les matinées et les nuits.

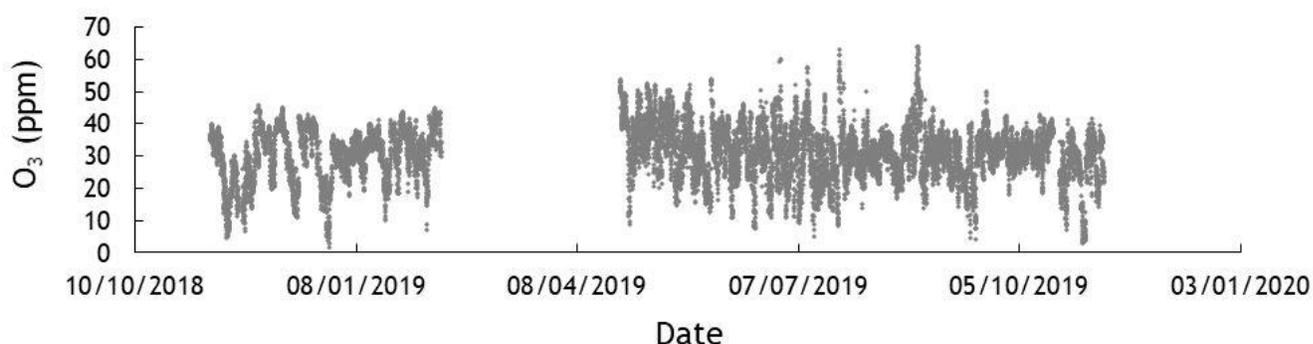


Figure V.14 : Evolution au cours du temps de la concentration d' O_3 à la plateforme technique IRSN La Hague.

On constate une légère variation des concentrations d' O_3 suivant les saisons de l'année. En effet, les maximums atteints en juin, juillet et août sont proches de 60 ppm alors qu'ils sont rapprochés de 40 ppm durant les autres mois.

La Figure V.15 présente l'évolution au cours du temps des oxydes d'azote (NO_x , NO et NO_2) à la plateforme technique IRSN La Hague. Cette évolution ne montre pas une tendance particulière selon les saisons de l'année. En effet les valeurs maximales sont aussi bien trouvées en été que durant les autres saisons de l'année. Bien que les

concentrations des NO_x soient plus élevées que celles de NO , leurs évolutions sont quasi-identiques. Les maximums des NO_x varient entre 10 et 15 ppm avec la présence de deux pics marqués en décembre 2018 et en juillet 2019 correspondant à 60 ppm et 45 ppm, respectivement.

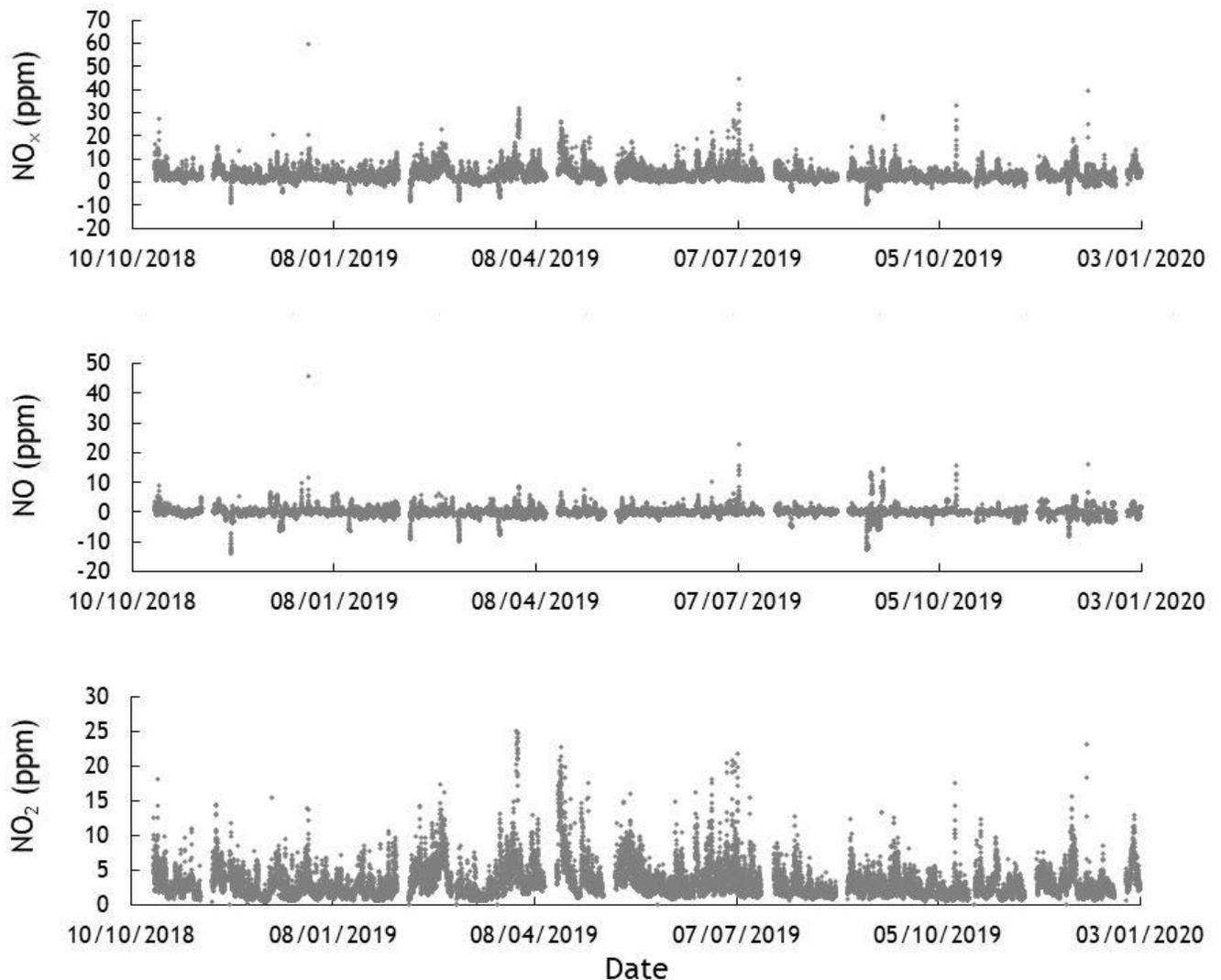


Figure V.15 : Evolution au cours du temps de la concentration des gaz (NO_x , NO et NO_2) dans l'air à la plateforme technique IRSN La Hague.

Quant aux valeurs de NO , les maximums sont proches de 15 ppm avec deux pics marqués à 45 ppm et 23 ppm, correspondant aux mêmes périodes d'observation que les NO_x . Les concentrations de NO_2 sont comprises entre 0 ppm et 25 ppm.

L'évolution des valeurs du dioxyde de soufre (SO_2) au cours du temps est présentée Figure V.16. De novembre 2018 à avril 2019, les maximums mesurés varient entre 2 et 8 ppm tandis qu'ils sont proches 1 ppm les autres mois de l'année.

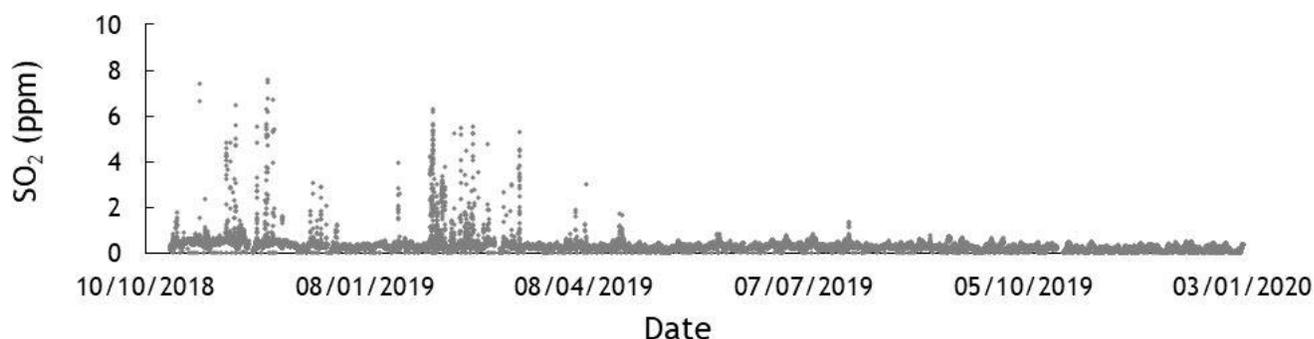


Figure V.16 : Evolution au cours du temps de la concentration de SO_2 à la plateforme technique IRSN La Hague.

V.2.1.1.2 Evolution des paramètres météorologiques

La Figure V.19 et la Figure V.20 présentent les données météorologiques acquises à l'aide de l'anémomètre ultrasonique au niveau de la plateforme technique IRSN La Hague.

Globalement, les vitesses de vent mesurées à la plateforme technique IRSN La Hague entre octobre 2018 et décembre 2019 sont comprises entre 2 et 9 m.s^{-1} à plus de 75 %. Tandis que les vitesses de vent supérieures à 9 m.s^{-1} ne représentent que 6 % des vitesses, celles inférieures à 2 m.s^{-1} représentent 18 % de l'ensemble des données. La rose des vents enregistrés au niveau de la PTILH est présentée Figure V.17. Cependant, l'évolution de la température, du flux de chaleur sensible et du rayonnement solaire global a montré que les mesures réalisées à la PTILH sont effectuées dans conditions de température et d'ensoleillement moins élevés sachant que les valeurs maximales de H, SR et T_s mesurées sont respectivement 349 W.m^{-2} , 1038 W.m^{-2} et 27 °C.

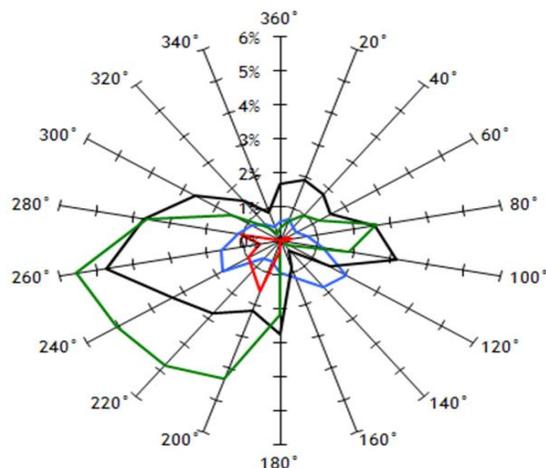


Figure V.17 : Rose de vents enregistrés au niveau de la plateforme tenchique IRSN La Hague, de octobre 2018 à décembre 2019. La vitesse du vent est représentée par un code de couleur : bleu pour les vitesses de vent inférieures à 2 m.s^{-1} , noir pour les vitesses de vent comprises entre 2 et 5 m.s^{-1} , vert pour les vitesses de vent comprises entre 5 et 9 m.s^{-1} , rouge pour les vitesses de vent supérieures à 9 m.s^{-1} .

En comparaison aux données météorologiques acquises au cours des campagnes de mesure réalisées sur le site de l'INRAE à Lusignan, globalement les vitesses de vent (valeur moyenne = $4,65 \text{ m.s}^{-1}$ et valeur médiane = $4,36 \text{ m.s}^{-1}$) et de frottement du vent (valeur moyenne = $0,54 \text{ m.s}^{-1}$ et valeur médiane = $0,52 \text{ m.s}^{-1}$) sont plus élevées. Les valeurs de u et u^* minimales sont respectivement, $0,22 \text{ m.s}^{-1}$ et $0,01 \text{ s.m}^{-1}$ tandis que les valeurs maximales sont $15,52 \text{ s.m}^{-1}$ et $1,75 \text{ s.m}^{-1}$.

Pour plus de la moitié des données, les origines des orientations de vent sont comprises entre 200 et 280° . Etant donné que les rejets d' ^{129}I n'impactent la PTILH que lorsque le vent au niveau de cette dernière a une origine comprise entre 200 et 220° , l'exposition de la plateforme entre octobre 2018 et décembre 2019 au panache de l'usine est de moins de 20 %. La fréquence des directions de vent au niveau de la PTILH est présentée Figure V.18.

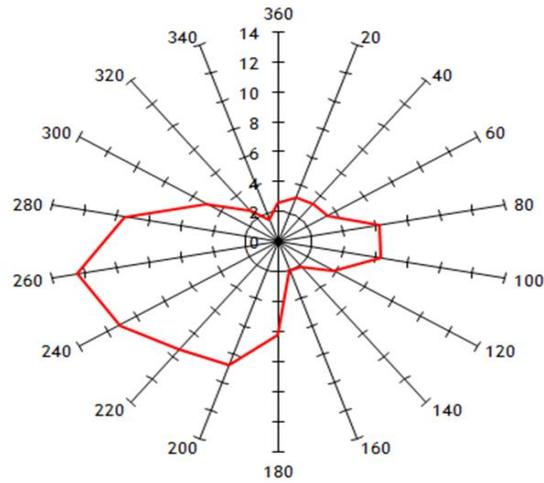


Figure V.18 : Fréquence (%) des directions de vent (°) (courbe rouge) reportée sur une rose de vent.

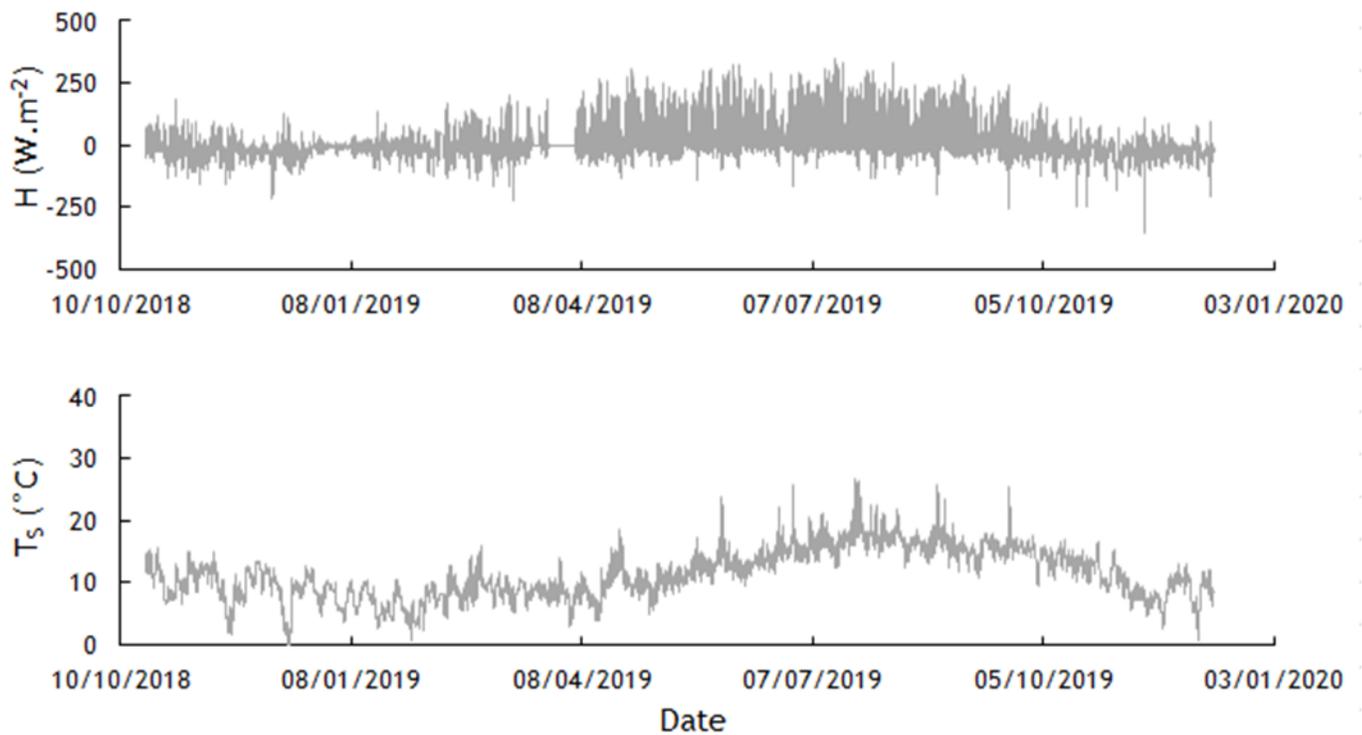


Figure V.19 : Evolution des principaux paramètres météorologiques mesurés toutes les 30 minutes (anémomètre ultrasonique placé à la PTILH à 6 m au-dessus du sol) : température et flux de chaleur sensible.

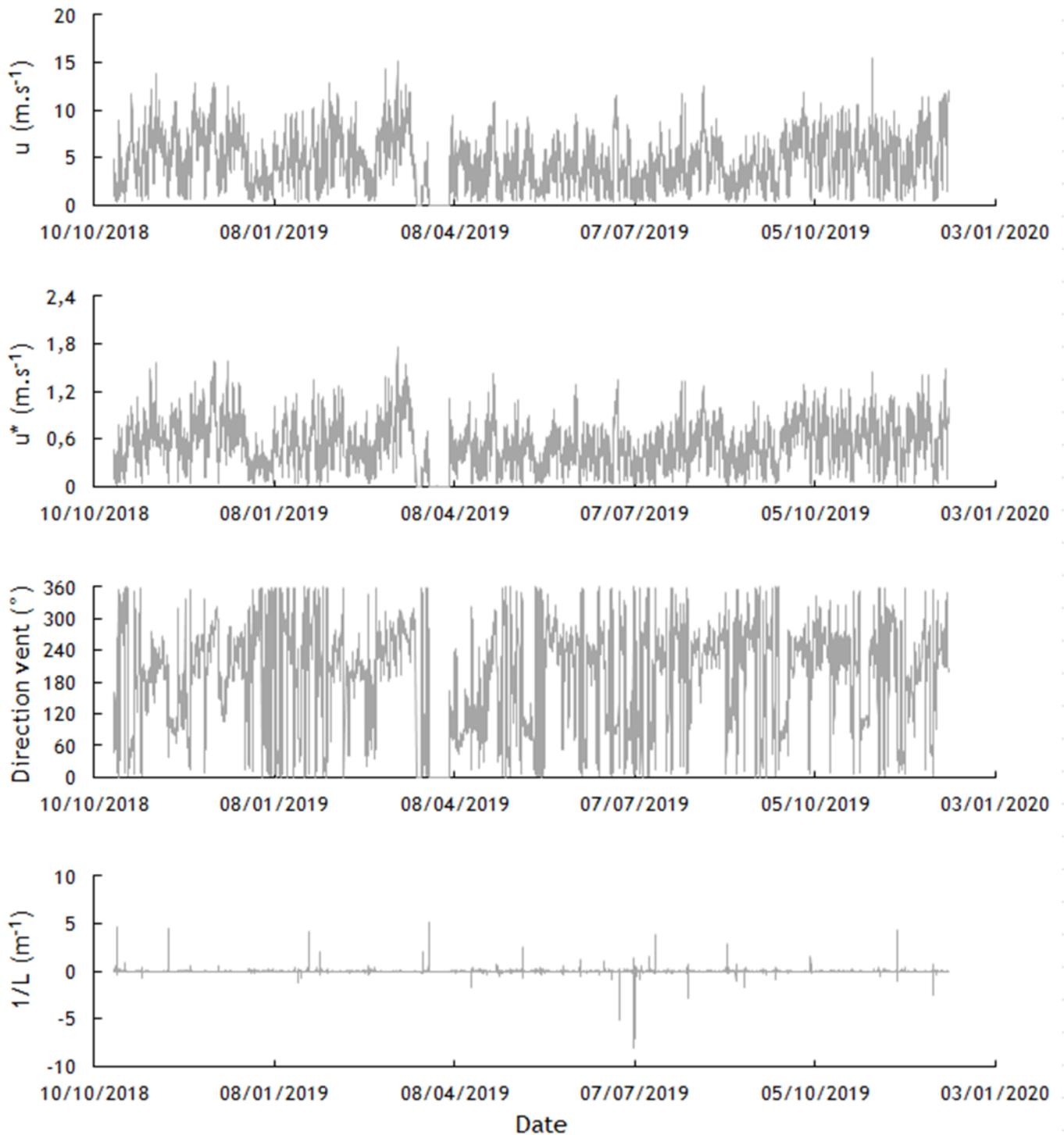


Figure V.20 : Evolution des principaux paramètres météorologiques mesurés toutes les 30 minutes (anémomètre ultrasonique placé à la PTILH à 6 m au-dessus du sol) : stabilité atmosphérique, direction, vitesse et vitesse de frottement du vent.

L'ensemble des données météorologiques acquises à l'aide de la station météorologique est présenté Figure V.21.

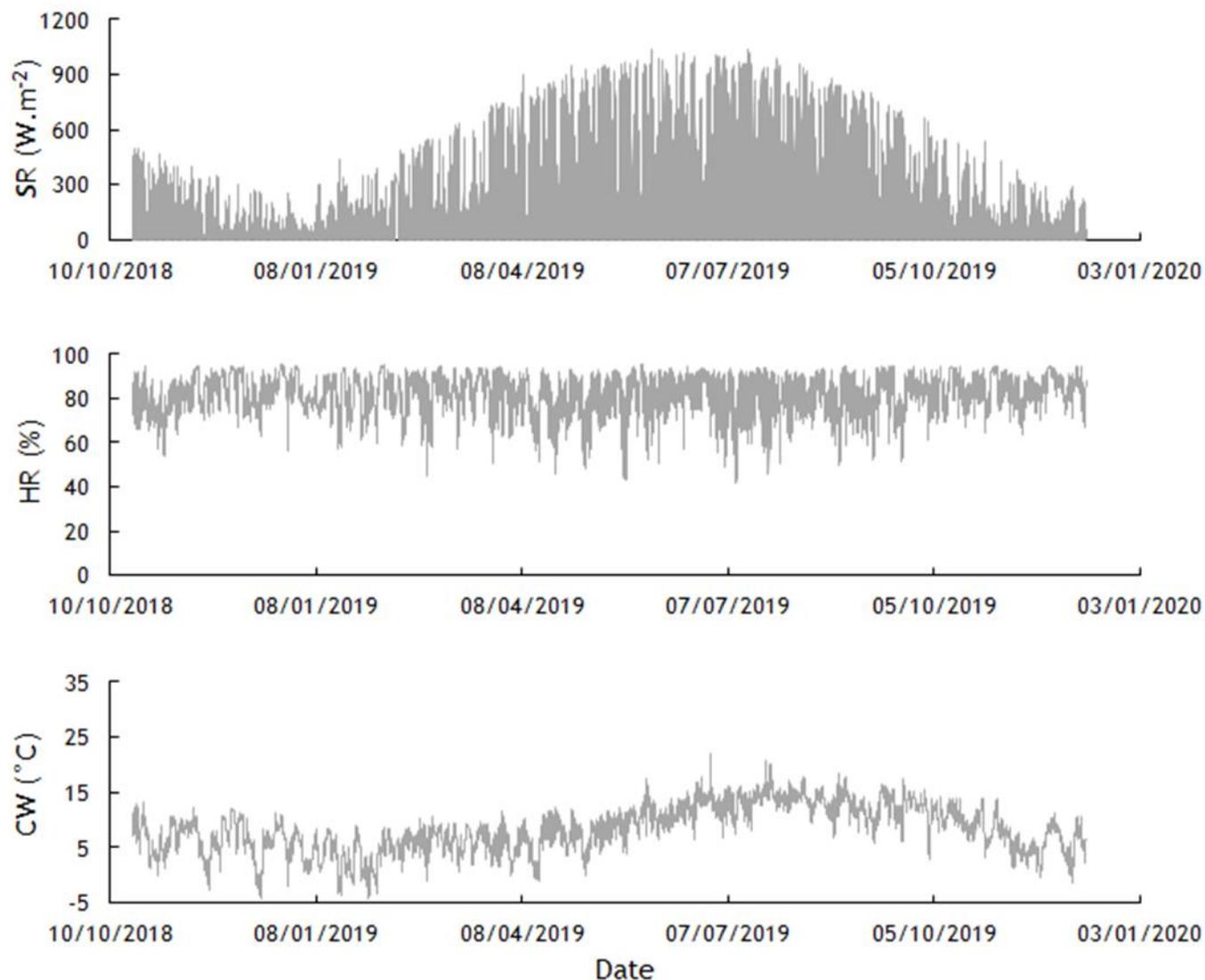


Figure V.21 : Evolution des principaux paramètres météorologiques mesurés toutes les 30 minutes (station météorologique placé à la PTILH à 1,5 m au-dessus du sol) : rayonnement solaire global, humidité relative et point de rosée.

En ce qui concerne l'humidité relative, la valeur minimale mesurée est de 42 % tandis que celle maximale est de 95 %. Il est important de mentionner que les mesures sont réalisées dans des conditions d'humidité plus élevée (valeur moyenne = 82 % et valeur médiane = 83 %) que celles de campagnes de mesure d'¹²⁷I₂.

V.2.1.2 Concentrations d'¹²⁹I mesuré dans l'air et sur l'herbe à la plateforme technique IRSN La Hague

V.2.1.2.1 Concentration d'¹²⁹I mesuré dans l'air

Les concentrations d'¹²⁹I mesuré à la plateforme technique IRSN La Hague, à 2 km de l'usine Orano La Hague sont très variées (ANNEXE II). Les données d'¹²⁹I gazeux sont comprises entre $5,0 \times 10^{-6}$ et $1,1 \times 10^{-4}$ Bq.m⁻³ tandis que celles d'¹²⁹I particulaire varient entre $8,4 \times 10^{-7}$ et $2,7 \times 10^{-5}$ Bq.m⁻³. L'évolution des concentrations d'¹²⁹I gazeux et d'¹²⁹I particulaire est présentée Figure V.22 et Figure V.23, respectivement.

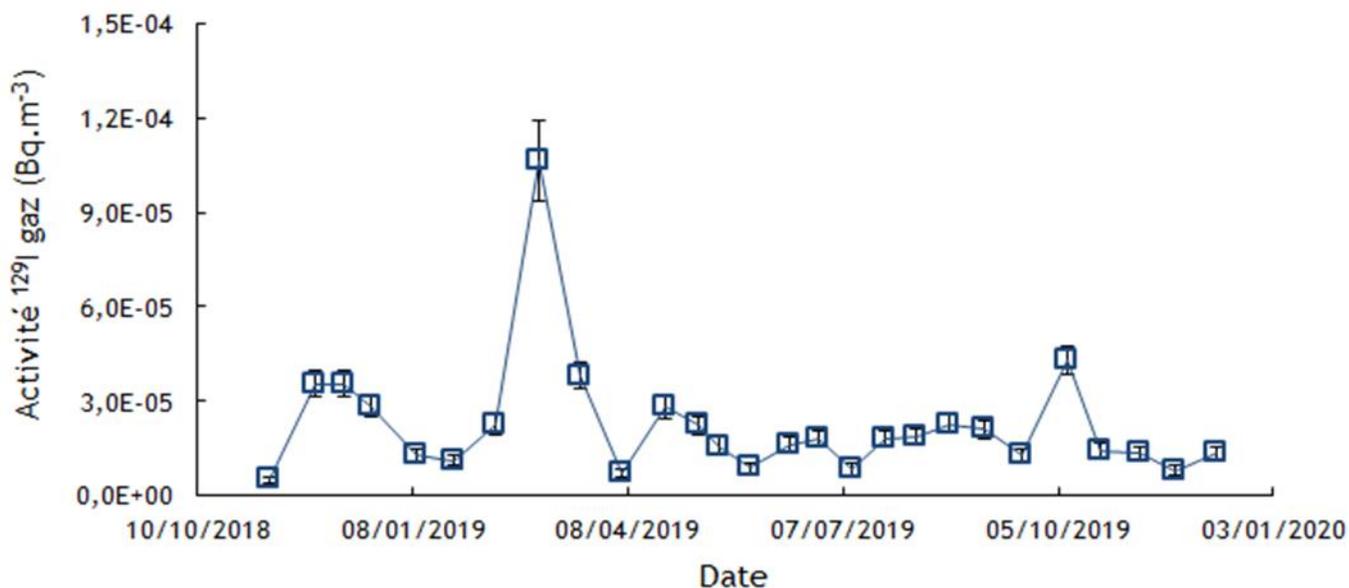


Figure V.22 : Evolution des concentrations d'¹²⁹I gazeux mesuré tous les 15 jours à la plateforme technique IRSN La Hague (rectangles bleus). Les barres noires sur les rectangles correspondent aux incertitudes de mesures.

La Figure V.24 présente l'évolution au cours du temps des rapports entre l'activité d'¹²⁹I gazeux et l'activité totale d'¹²⁹I mesuré à la PTILH. Au cours de cette évolution, la partition d'¹²⁹I gazeux par rapport à l'activité totale d'¹²⁹I varie au cours du temps. Les valeurs sont comprises entre $78 \% \pm 30 \%$ et $97 \% \pm 23 \%$.

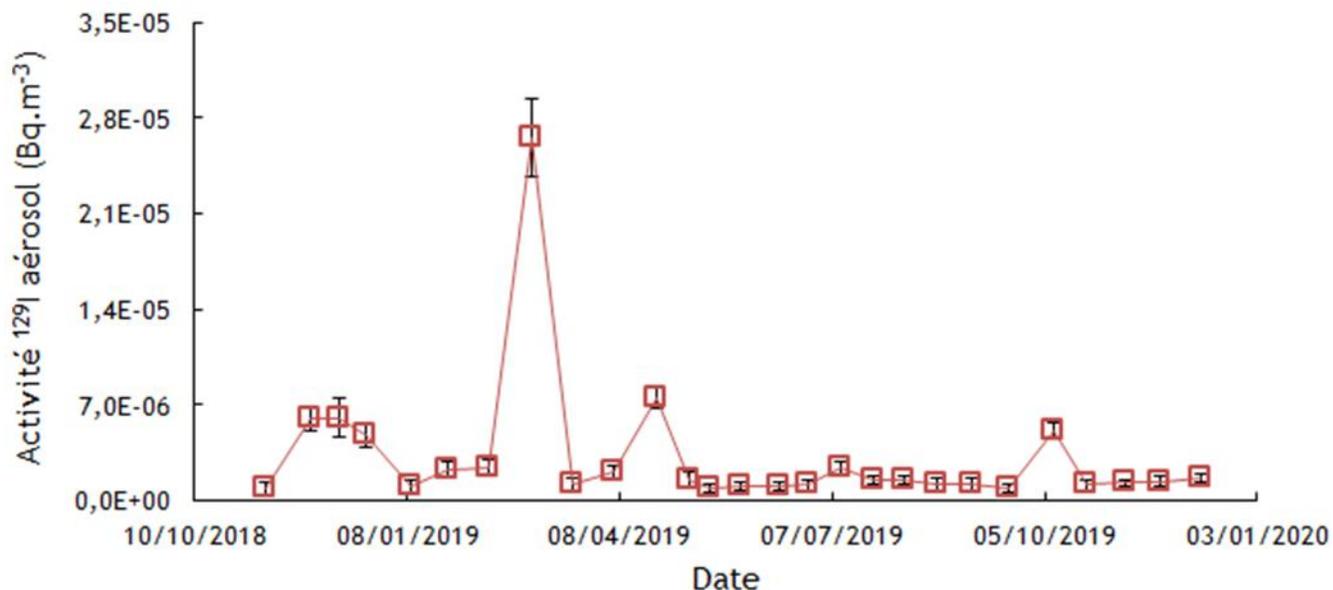


Figure V.23 : Evolution des concentrations d' ^{129}I particulaire mesuré tous les 15 jours à la plateforme technique IRSN La Hague (rectangles rouges). Les barres noires sur les rectangles correspondent aux incertitudes de mesures.

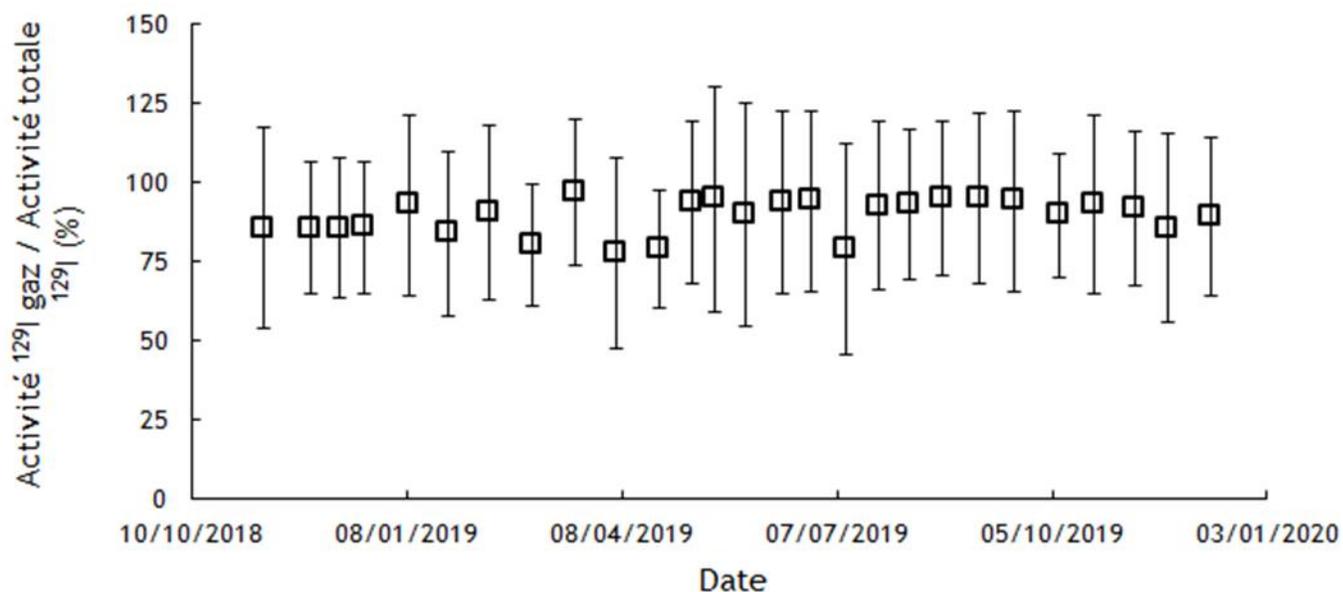


Figure V.24 : Evolution des rapports ^{129}I aérosol / ^{129}I gaz (rectangles noirs) à la plateforme technique IRSN La Hague. Les barres noires sur les rectangles correspondent aux incertitudes de mesures.

On peut constater à travers cette évolution que la fraction d' ^{129}I particulaire est très variable au niveau de la plateforme technique IRSN La Hague (3-22 %).

En somme, cette évolution permet de montrer que l' ^{129}I mesuré à la PTILH est principalement sous forme gazeuse (I_2) à environ 90 % et que la fraction aérosol ne représente en moyenne que 10 % de l'activité totale d' ^{129}I dans l'air.

Les concentrations d' ^{129}I gazeux et particulaire dans l'air ont été estimées à des pas de temps de 30 minutes à partir de trois paramètres : l'activité dans l'air du ^{85}Kr mesuré à haute fréquence, la direction du vent et les activités du ^{85}Kr et de l' ^{129}I gazeux et particulaire mesurées tous les 15 jours. Les activités moyennes de ^{85}Kr mesurées tous les 15 jours sont comprises entre 0 et $8082 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$. Les valeurs 0 correspondent aux périodes durant lesquelles l'usine Orano La Hague n'a pas cisailé. L'évolution au cours du temps de l'activité du Krypton-85 est présentée Figure V.25.

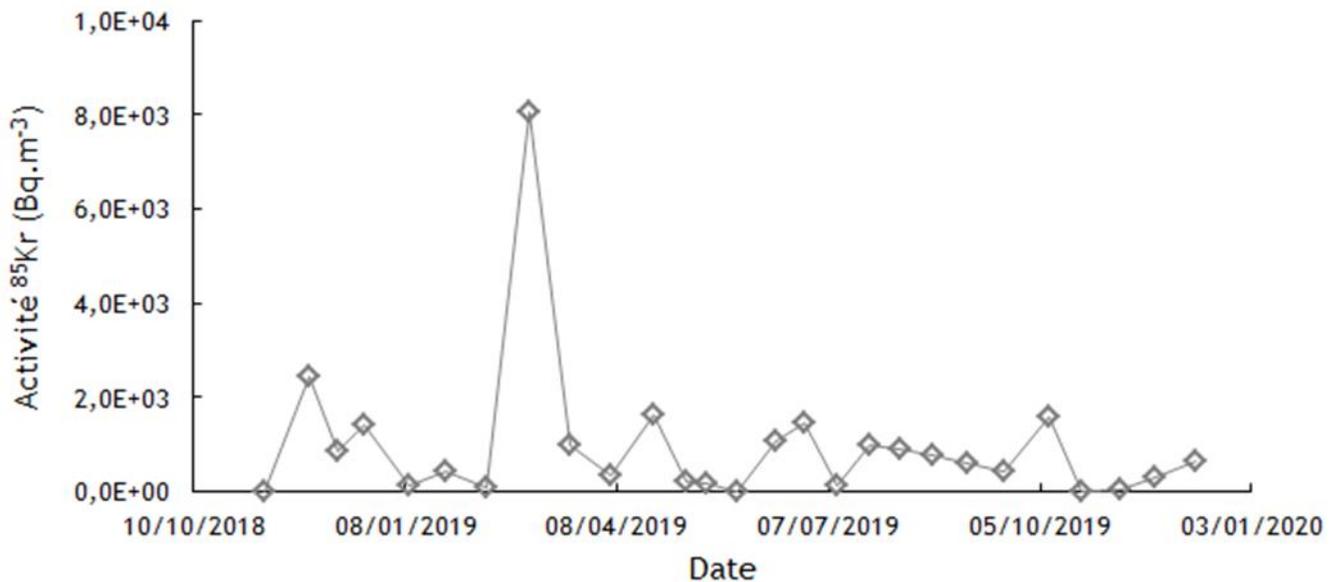


Figure V.25 : Evolution de l'activité du ^{85}Kr à la plateforme technique IRSN La Hague (losanges gris).

Etant mesuré de façon concomitante avec l' ^{129}I , le suivi de l'évolution de ces activités montre que les concentrations d' ^{129}I gazeux et d' ^{129}I particulaire corrélient avec celles du ^{85}Kr . L'évolution des concentrations d' ^{129}I gazeux et d' ^{129}I particulaire en fonction du ^{85}Kr est présentée Figure V.26 et Figure V.27, respectivement, avec des corrélations respectives de $R^2 = 0,87$ et $R^2 = 0,90$.

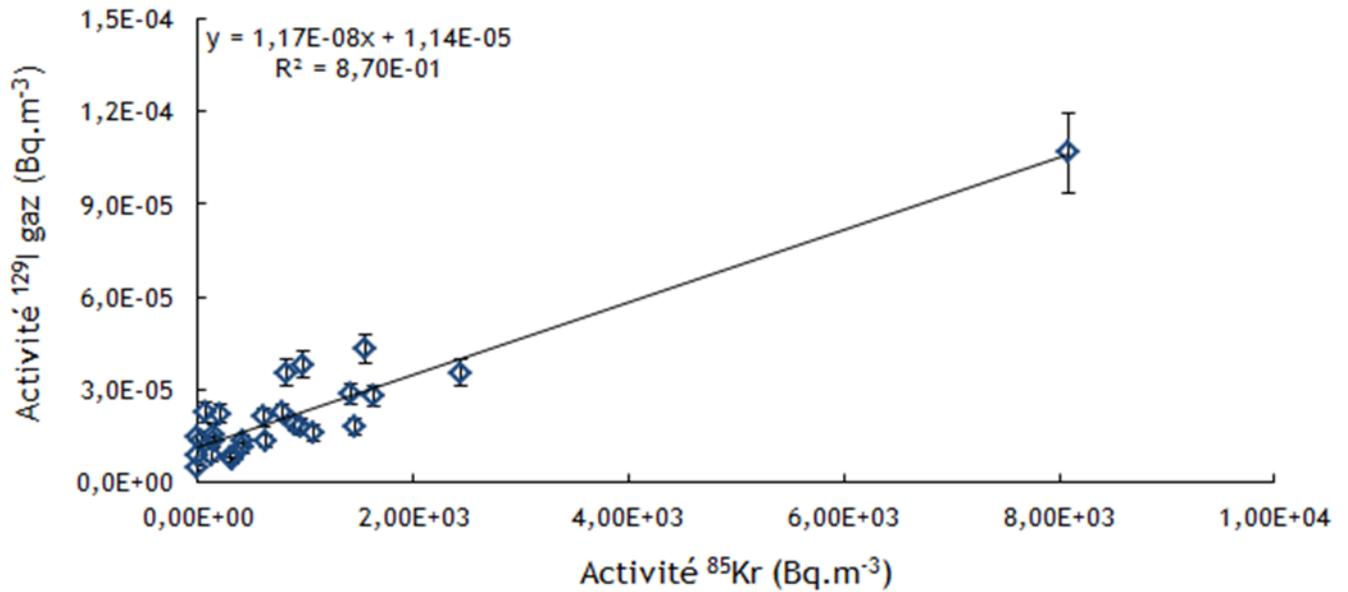


Figure V.26 : Evolution de l'activité d' ^{129}I gazeux en fonction du ^{85}Kr à la plateforme technique IRSN La Hague (losanges bleus). Les barres noires sur les losanges correspondent aux incertitudes de mesures.

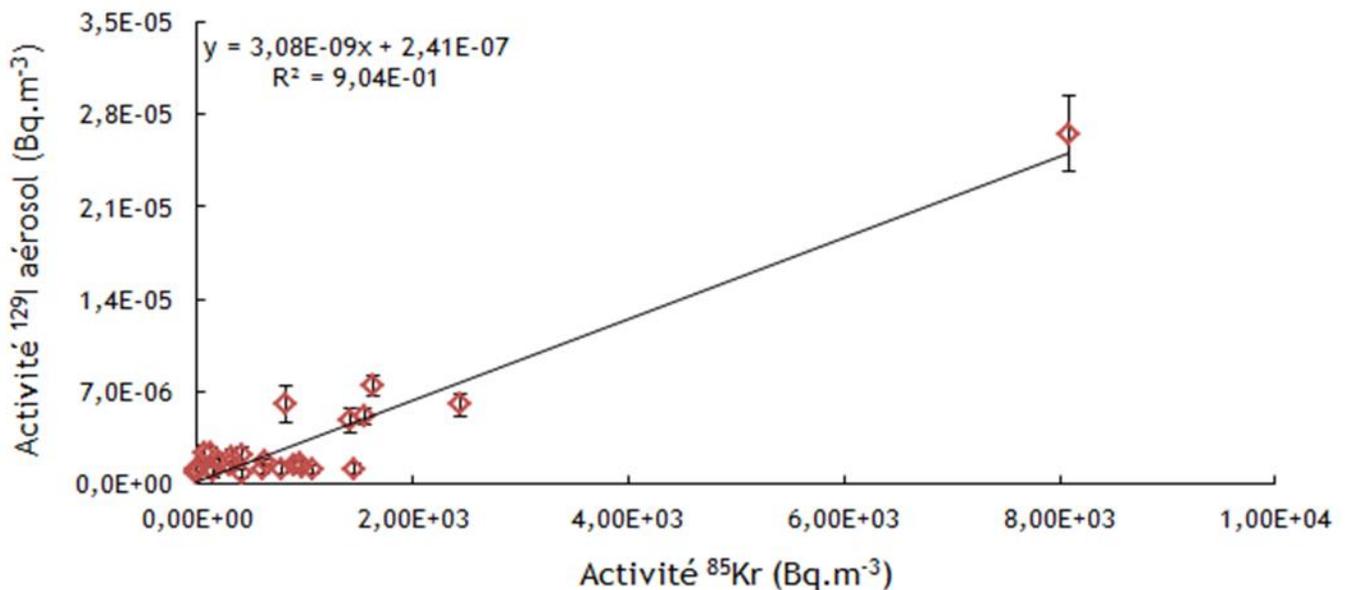


Figure V.27 : Evolution de l'activité d' ^{129}I aérosol en fonction du ^{85}Kr à la plateforme technique IRSN La Hague (losanges rouges). Les barres noires sur les losanges correspondent aux incertitudes de mesures.

Il est important de mentionner qu'il existe beaucoup d'incertitudes sur les mesures d' ^{129}I gazeux lorsque l'usine Orano La Hague est en arrêt ou lorsque les vents ne portent pas

sur la PTILH. Pour élucider cette constatation, l'activité d' ^{129}I gazeux mesuré entre le 19 octobre et le 09 novembre 2018 était de $5,0 \times 10^{-6} \text{ Bq.m}^{-3}$. Pour la même période l'activité de ^{85}Kr mesuré dans l'air était de 0 Bq.m^{-3} , correspondant à une période d'arrêt de cisailage de l'usine Orano La Hague. En prenant la période du 8 décembre au 22 décembre 2019 au cours de laquelle l'usine Orano n'a également pas fait de cisailage, l'activité d' ^{129}I gazeux mesuré dans l'air était de $1,44 \times 10^{-5} \text{ Bq.m}^{-3}$, soit environ un facteur 3 de plus que l'activité d' ^{129}I gazeux précédente.

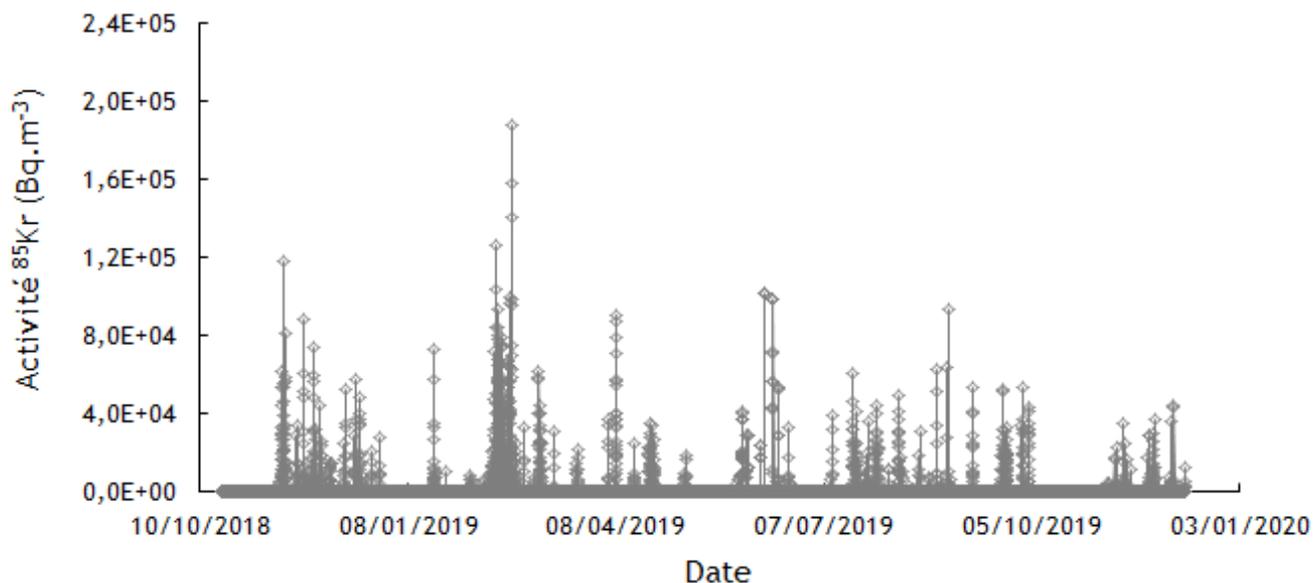


Figure V.28 : Evolution de l'activité de ^{85}Kr sur des pas de temps de 30 minutes à la plateforme technique IRSN La Hague (losanges gris).

A partir des corrélations trouvées entre l' ^{129}I et le ^{85}Kr , les données de ^{85}Kr sur des pas de temps de 30 minutes présentées Figure V.28 sont utilisées pour recalculer les concentrations dans l'air d' ^{129}I gazeux et d' ^{129}I particulaire sur des pas de temps de 30 minutes. Pour chaque fraction d' ^{129}I gazeux, les calculs sont effectués sur chaque période de 15 jours à partir des rapports ^{129}I gazeux/ ^{85}Kr correspondant et le bruit de fond d' ^{129}I gazeux ($5,0 \times 10^{-6} \text{ Bq.m}^{-3}$). Le bruit de fond d' ^{129}I gazeux est réparti de telle sorte que la moyenne des concentrations calculées sur chaque période de 15 jours corresponde à la valeur mesurée. Les concentrations d' ^{129}I particulaire sont calculées de façon identique à celles d' ^{129}I gazeux en utilisant les rapports ^{129}I particulaire/ ^{85}Kr et le bruit de fond d' ^{129}I particulaire ($8,4 \times 10^{-7} \text{ Bq.m}^{-3}$).

L'évolution des concentrations d' ^{129}I gazeux et particulaire sur des pas de temps de 30 minutes est présentée Figure V.29 et Figure V.30, respectivement.

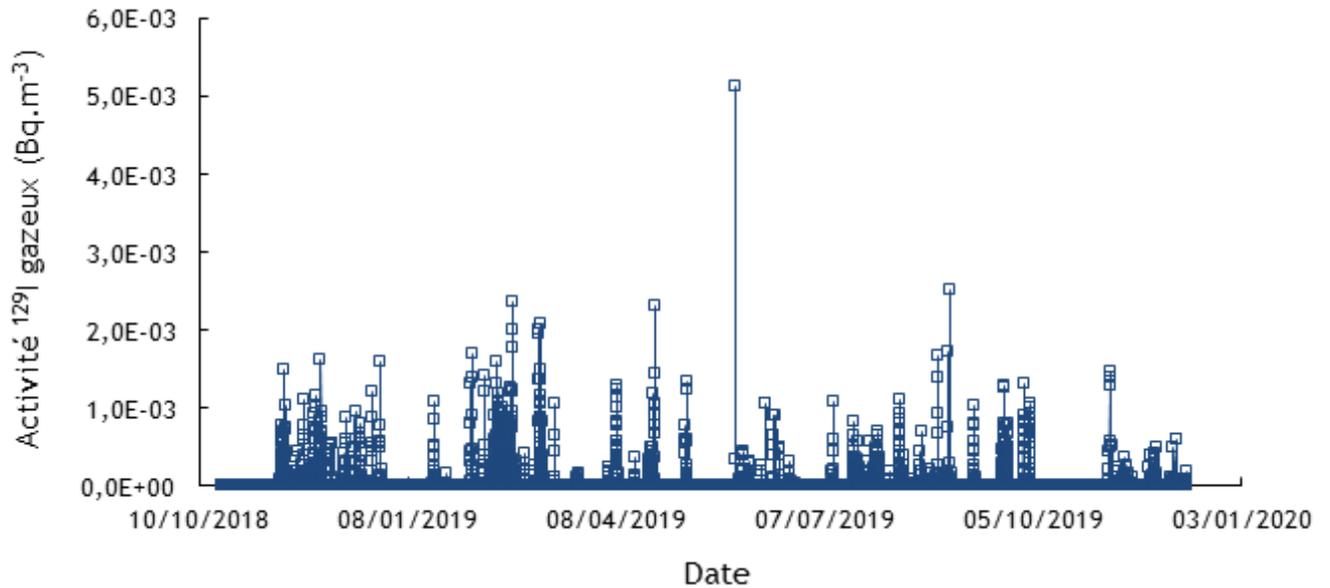


Figure V.29 : Evolution de l'activité d' ^{129}I gaz sur des pas de temps de 30 minutes à la plateforme technique IRSN La Hague (rectangles bleus).

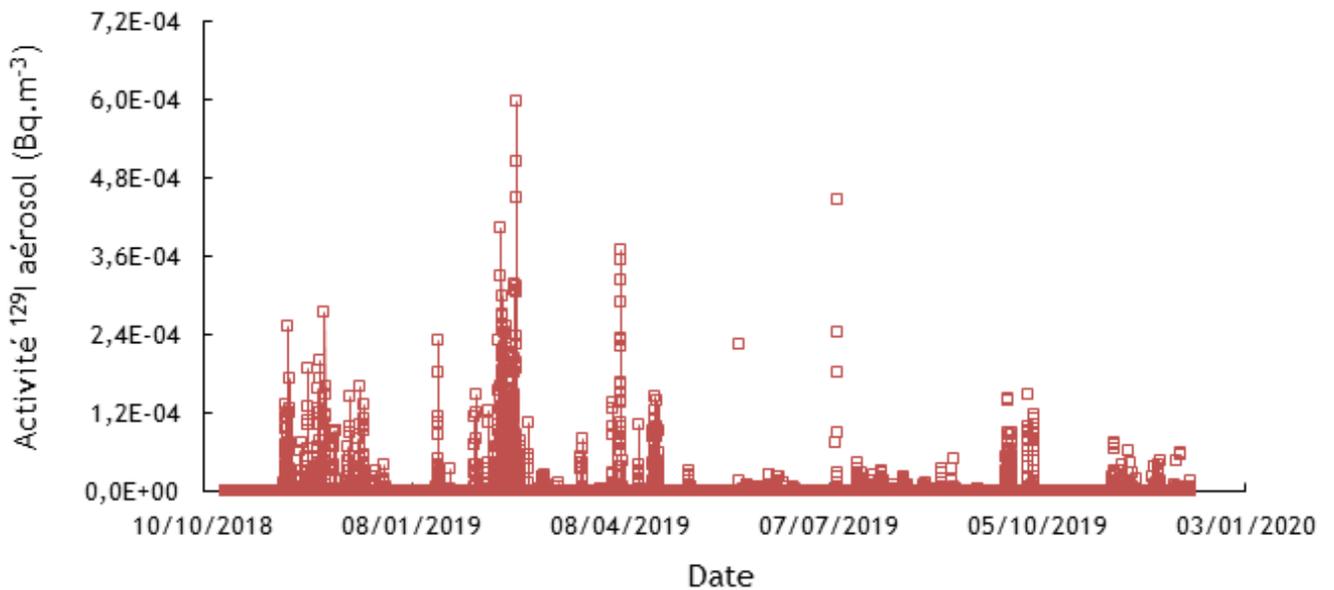


Figure V.30 : Evolution de l'activité d' ^{129}I aérosol sur des pas de temps de 30 minutes à la plateforme technique IRSN La Hague (rectangles rouges).

A partir des concentrations recalculées d' ^{129}I gazeux et particulaire, les rapports entre ^{129}I gazeux et l'activité totale d' ^{129}I (gazeux et particulaire) ont été reconstitués et exprimés en pourcentage. L'évolution de ces rapports en fonction de l'activité totale d' ^{129}I (gazeux et particulaire) a permis de montrer que la formation de ^{129}I particulaire à partir de ^{129}I gazeux était relativement constante (ANNEXE III). Par conséquent, cette évolution montre qu'il n'y a pas eu d'influence des gaz (O_3 , NO_x , NO , NO_2 et SO_2) sur la conversion gaz-particules au niveau de la plateforme technique IRSN La Hague.

V.2.1.2.2 Concentration d' ^{129}I mesuré sur l'herbe

L'évolution des concentrations d' ^{129}I (gazeux et particulaire) mesuré dans l'herbe des lysimètres placés à la plateforme technique IRSN La Hague est présentée Figure V.31.

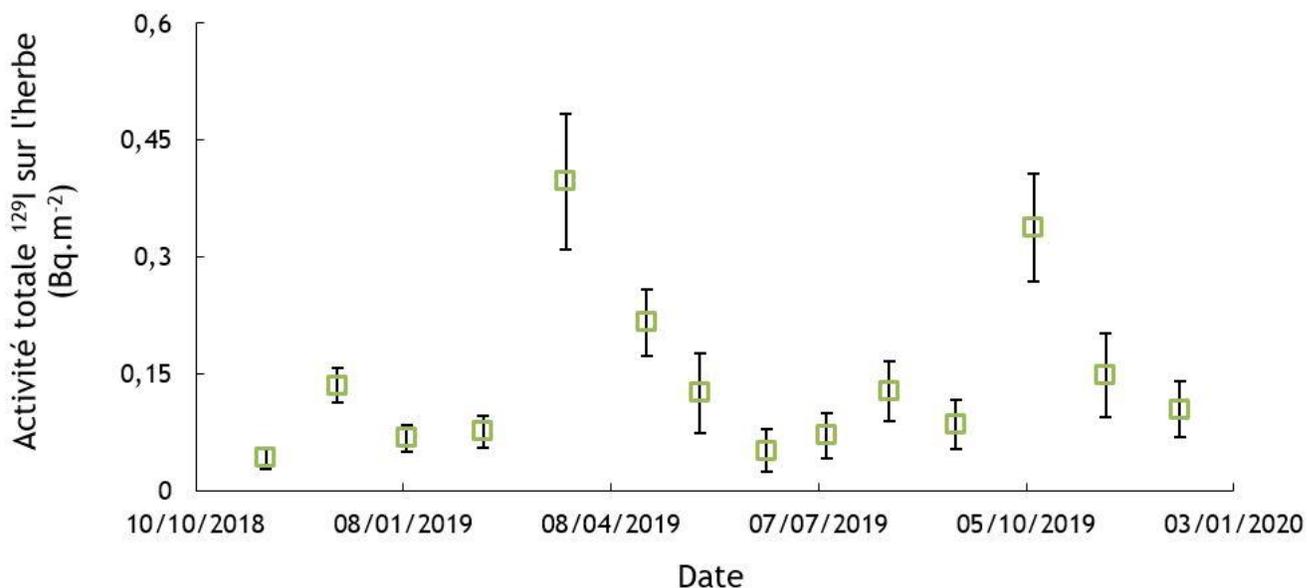


Figure V.31 : Evolution des concentrations d' ^{129}I mesuré sur l'herbe à la plateforme technique IRSN La Hague (rectangles verts). Les barres noires sur les rectangles correspondent aux incertitudes de mesures.

Les concentrations d' ^{129}I mesurées sur l'herbe sont très variées (valeur moyenne = $0,14 \pm 0,04$ Bq.m⁻²). La valeur minimale trouvée est de $0,04 \pm 0,01$ Bq.m⁻². Elle correspond à la période durant laquelle ^{129}I n'est pas émise par l'usine Orano La Hague

tandis que la valeur maximale est de $0,40 \pm 0,09 \text{ Bq.m}^{-2}$, soit une dispersion des données sur un ordre de grandeur.

V.2.2 Résultats des modèles

V.2.2.1 Vitesses de dépôt calculées à partir des modèles

Les vitesses de dépôt d' ^{129}I gazeux et d' ^{129}I particulaire calculées respectivement à l'aide du modèle de dépôt sec d' I_2 et du modèle de dépôt sec des aérosols sont présentées Figure V.32 et Figure V.33, respectivement.

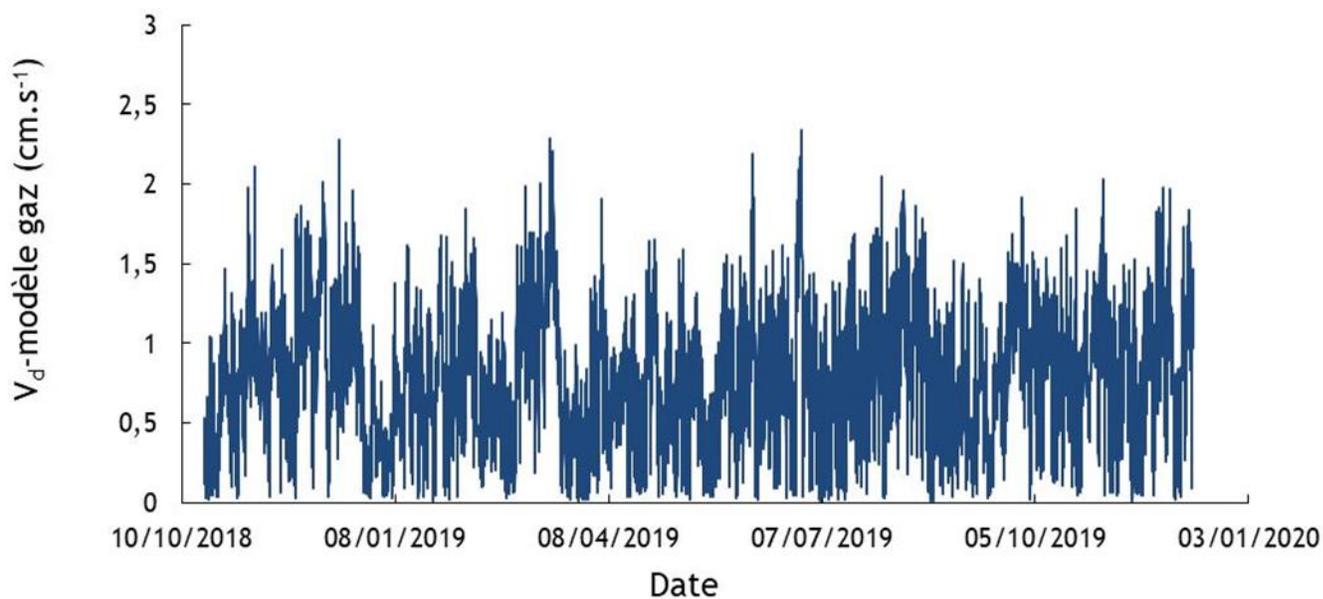


Figure V.32 : Evolution au cours du temps des vitesses de dépôt sec d' ^{129}I gazeux calculée sur des pas de temps de 30 minutes.

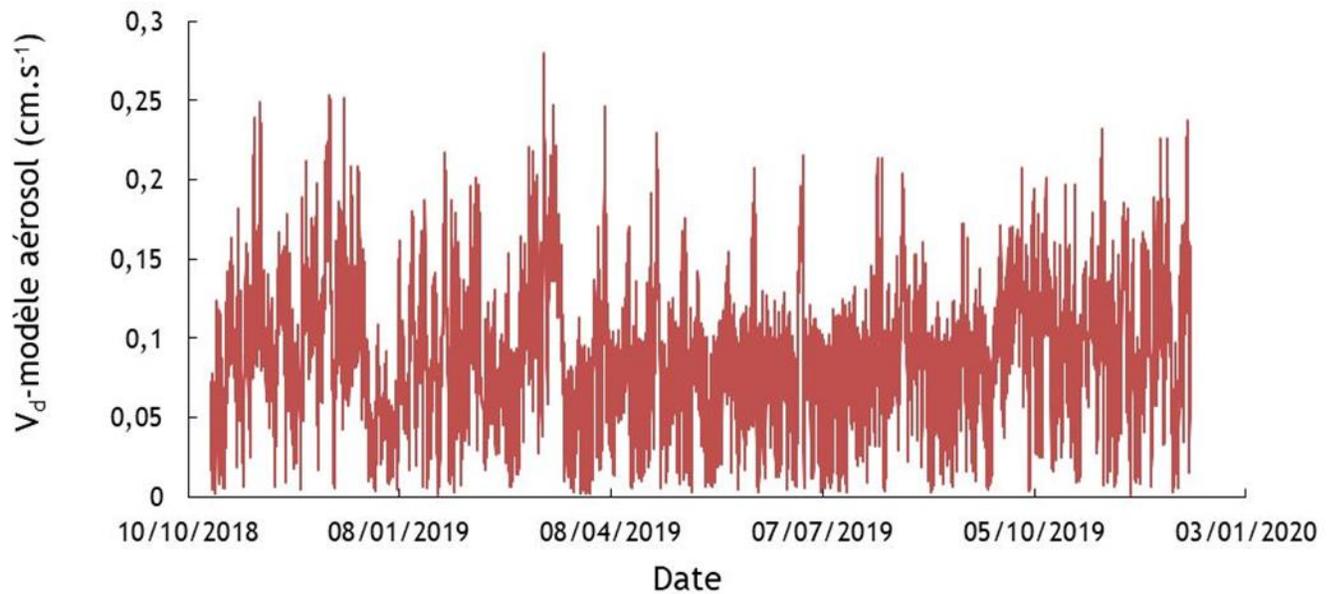


Figure V.33 : Evolution au cours du temps des vitesses de dépôt d' ^{129}I gazeux calculées sur des pas de temps de 30 minutes.

V.2.2.2 Concentrations d' ^{129}I calculées à partir des modèles de dépôt sec d' I_2

Pour rappel, les concentrations d' ^{129}I déposé sur l'herbe sur des pas de temps de 30 minutes ont été calculées en utilisant les vitesses de dépôt d' ^{129}I gazeux calculées sur des pas de temps de 30 minutes pour la fraction gazeuse d' ^{129}I et les vitesses de dépôt d' ^{129}I particulaire pour les aérosols d' ^{129}I calculées sur la même période. Les concentrations d' ^{129}I gazeux sont comprises entre $7,96 \cdot 10^{-7}$ et $1,14 \cdot 10^{-1} \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ tandis que celles d' ^{129}I particulaire varient entre $2,14 \cdot 10^{-8}$ et $7,59 \cdot 10^{-4} \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$. Durant les périodes pluvieuses, la vitesse de frottement du vent au-dessus de l'herbe des lysimètres s'annule quasiment. Par conséquent, les concentrations d' ^{129}I déposé durant ces périodes sont supposées négligeables. Sur la période d'exposition de l'herbe à la PTILH (du 19 octobre 2018 au 10 décembre 2019), ces périodes pluvieuses correspondent à environ 6 % du temps.

Les concentrations d' ^{129}I gazeux et particulaire calculées sur toute la durée d'exposition de l'herbe à la PTILH à partir des concentrations d' ^{129}I gazeux et particulaire sur des pas de temps de 30 jours sont présentées Figure V.34. Les valeurs minimales trouvées correspondent aux périodes au cours desquelles l'usine Orano La Hague n'avait pas cisaillé alors que les valeurs maximales sont observées lorsque les rejets atmosphériques

d'¹²⁹I sont plus importants. Les concentrations minimales et maximales calculées pour la forme gazeuse d'¹²⁹I sont 0,06 Bq.m⁻² et 1,68 Bq.m⁻², respectivement, tandis que les concentrations d'¹²⁹I particulaire varient entre 1,26 × 10⁻³ et 3,31 10⁻² Bq.m⁻².

En raison des concentrations atmosphériques d'¹²⁹I gazeux plus élevées (90 % de l'activité totale en moyenne) et des vitesses de dépôt d'¹²⁹I gazeux plus élevées (environ un facteur 10) que celles d'¹²⁹I particulaire, les concentrations d'¹²⁹I gazeux représentent plus de 95 % de l'activité totale d'¹²⁹I déposé sur l'herbe de la PTILH.

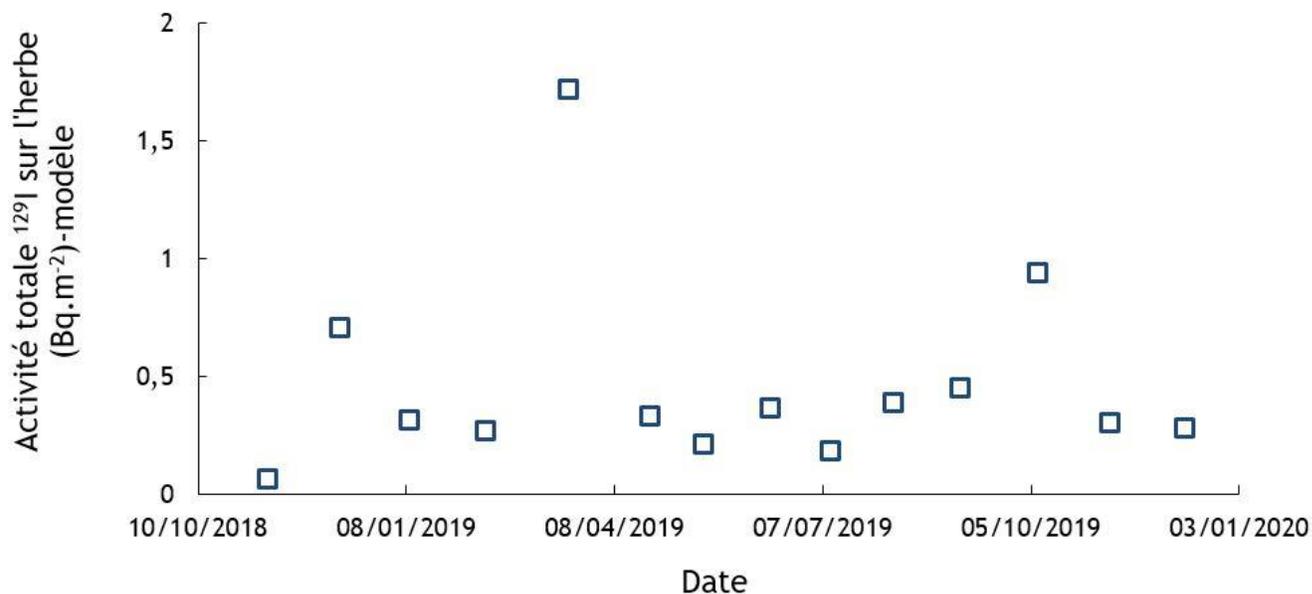


Figure V.34 : Evolution au cours du temps des concentrations totales d'¹²⁹I déposées sur l'herbe, calculées à partir du modèle.

V.2.3 Confrontation des résultats du modèle avec les mesures

Pour évaluer le modèle de dépôt sec d'I₂ développé, les concentrations totales (gaz et particules) d'¹²⁹I calculées sont comparées aux concentrations totales d'¹²⁹I mesurées dans l'herbe au niveau de la PTILH. En effet, pour l'ensemble des données, les valeurs du modèle sont surestimées de plus d'un facteur 3 par rapport aux mesures (Figure V.35) bien que l'ensemble des données reproduise les concentrations mesurées avec moins d'un facteur 3 de différence entre les données du modèle et les mesures (Erreur Absolue Moyenne en Pourcentage, MAPE = 236 %).

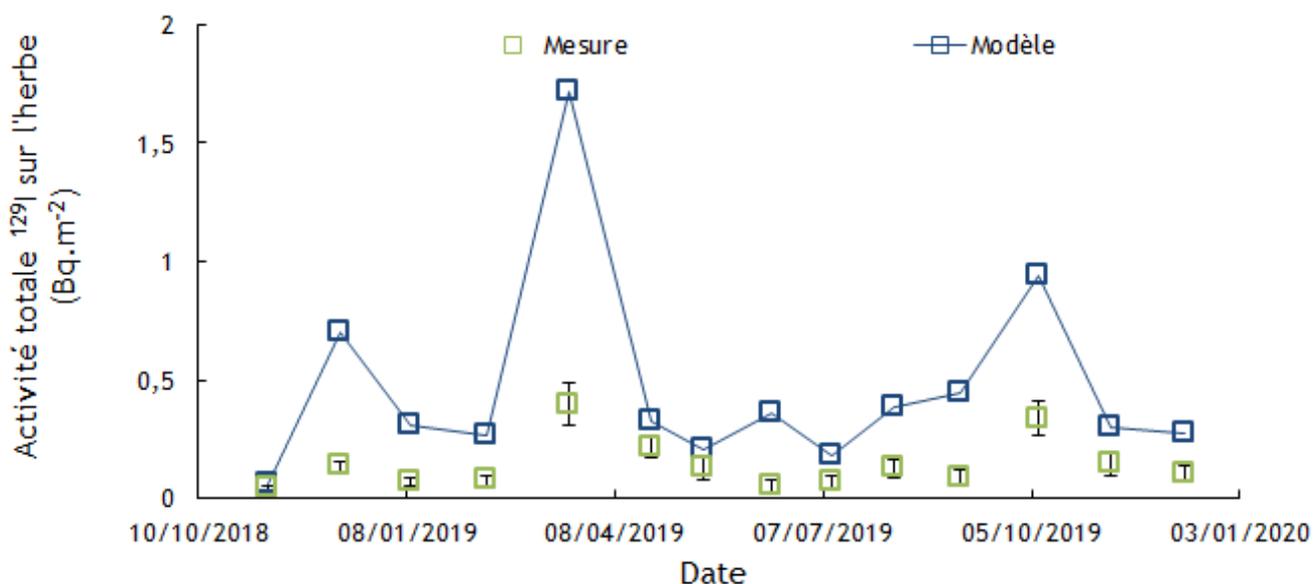


Figure V.35 : Evolution au cours du temps de la concentration d'¹²⁹I calculée (rectangles bleus) et mesurée (rectangles verts) dans l'herbe. Les barres noires sur les rectangles verts correspondent aux incertitudes de mesures.

En confrontant les données du modèle avec les valeurs mesurées, une corrélation de $R^2 = 0,75$ est trouvée. La Figure V.36 présente la confrontation des concentrations d'¹²⁹I calculées et les valeurs mesurées.

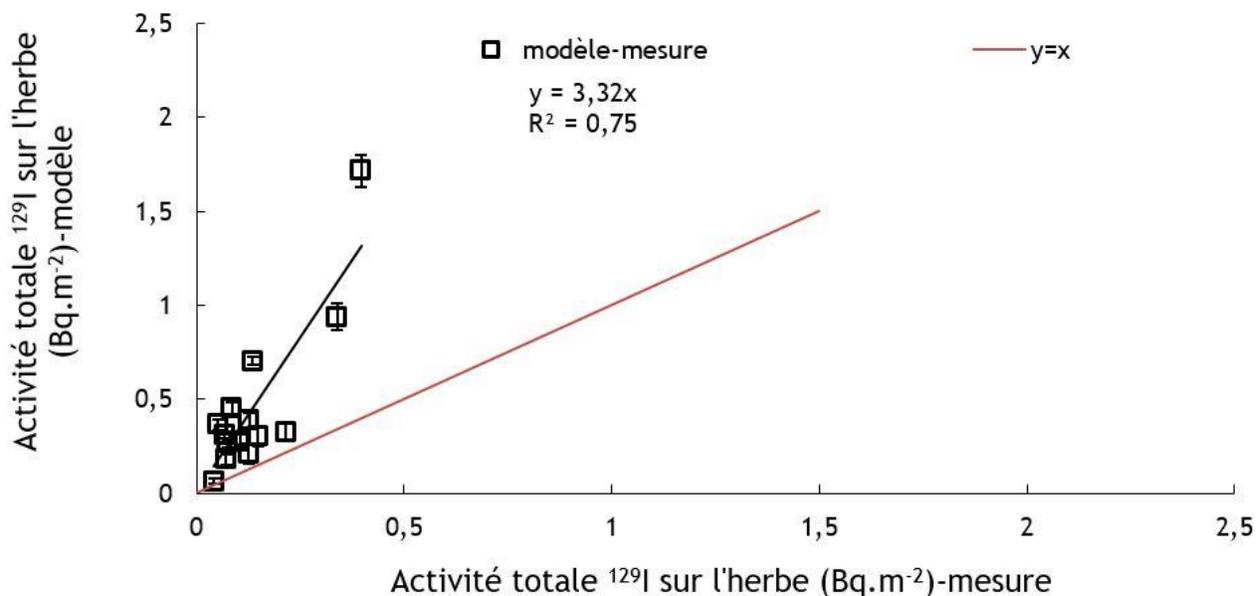


Figure V.36 : Confrontation des concentrations d'¹²⁹I calculées avec les modèles avec les valeurs mesurées dans l'herbe au niveau de la plateforme technique IRSN La Hague.

Les barres noires sur les rectangles correspondent aux incertitudes de mesures. La droite rouge représente la corrélation idéale entre le modèle et la mesure.

Les valeurs élevées du modèle de plus d'un facteur 3 par rapport aux mesures peuvent s'expliquer par la volatilisation d'une partie de l'¹²⁹I gazeux après le dépôt de ce dernier à la surface de l'herbe. En effet, nous avons démontré que l'¹²⁹I mesuré à la plateforme technique IRSN La Hague est principalement sous forme I₂. Lorsque l'absorption d'I₂ se fait en surface, sa volatilisation par sublimation devient très importante (Andersson et al., 2011). Pour comprendre si le dépôt d'I₂ est réalisé en surface ou à travers les stomates, l'analyse des vitesses de dépôt sec mesurées sur l'herbe placée à la PTILH est effectuée. Ces dernières sont déterminées en faisant les rapports des concentrations totales d'¹²⁹I (gazeux et particulaires) mesurées dans l'herbe par unité de surface et par unité de temps, et des concentrations totales d'¹²⁹I (gazeux et particulaires) mesurées dans l'air. Les valeurs trouvées varient entre $0,12 \pm 0,03$ et $0,36 \pm 0,19$ cm.s⁻¹ (valeur moyenne = $0,23$ cm.s⁻¹ et valeur médiane = $0,24$ cm.s⁻¹). La Figure V.37 montre l'évolution au cours du temps des vitesses de dépôt d'¹²⁹I mesurées sur l'herbe. On peut constater que l'évolution des vitesses de dépôt au cours du temps n'est pas fonction de la saison de l'année.

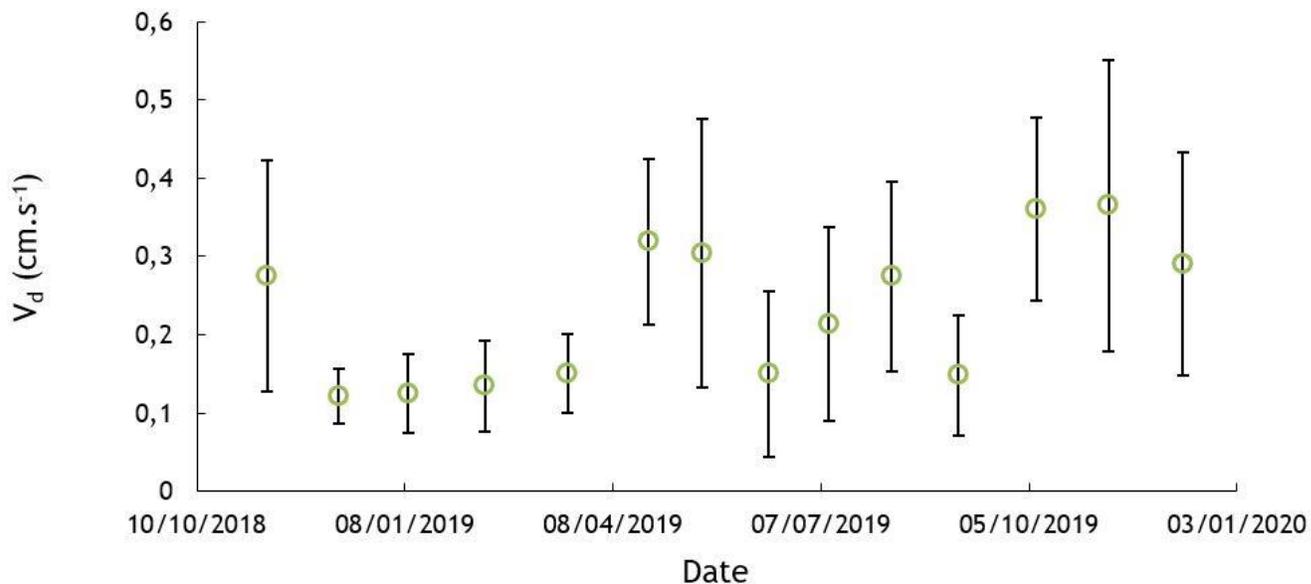


Figure V.37 : Vitesse de dépôt sec d'¹²⁹I (gazeux et particulaires) mesurées sur l'herbe des lysimètres au niveau de la plateforme technique IRSN La Hague. Les barres noires sur les cercles correspondent aux incertitudes de mesures.

En effet, bien que la température et l'ensoleillement soient plus élevées en printemps et en été qu'en automne et en hiver, il n'y a pas de tendance suivant laquelle les vitesses de dépôt d'¹²⁹I évolueraient selon les saisons de l'année. En partant du principe que les vitesses de dépôt sont principalement dues à la résistance de surface, les valeurs de R_c mesurées (valeur moyenne = 508 s.m⁻¹ et valeur médiane = 416 s.m⁻¹) sont proches de celle suggérée par Chamberlain et al, 1957 ($R_c = 500$ s.m⁻¹) qui suppose que la vitesse de dépôt d'I₂ n'évolue qu'en fonction de la turbulence mécanique. Cette évolution serait due du fait que l'herbe de la prairie est arrosée par le sol ou bien du fait qu'au cours des longues périodes de rejet l'effet de l'ouverture des stomates n'est pas mis en jeu. D'ailleurs à travers une étude réalisée sur des feuilles de haricot, Garland and Cox (1984) ont montré que la résistance stomatique contrôle l'absorption d'I₂ pour les humidités relatives inférieures à 40 % tandis que lorsque l'humidité s'élève à 80 %, le dépôt sec d'I₂ est contrôlée par l'absorption cuticulaire. Etant donné que les valeurs moyenne et médiane de l'humidité relative mesurée à la PTILH sont respectivement 82 % et 83 %, on peut conclure que le dépôt d'¹²⁹I sur l'herbe placée à la PTILH est réalisé en surface.

A partir de cette conclusion, on peut déduire qu'une quantité importante d'¹²⁹I déposé au niveau de la surface de l'herbe est éliminée au cours du temps.

Pour déterminer le taux d'élimination de l'iode, de nombreuses études basées sur le calcul de la demi-vie effective de l'iode ont été effectuées. Dans certains cas, la demi-vie effective a été calculée en prélevant des échantillons d'herbe ou d'autres végétaux en série, tandis que dans d'autres toute l'herbe a été prélevée dans une zone connue, et les résultats ont été exprimés en activité par unité de surface. En ce qui concerne le lait par exemple, la demi-vie apparente de l'iode est déterminée indirectement en observant le taux de diminution de la contamination d'¹³¹I du lait. La demi-vie apparente moyenne de toutes ces déterminations est de 4,9 jours. A partir des données de la demi-vie effective, l'Équation V.9 est utilisée pour déterminer la demi-vie biologique de l'iode :

$$\frac{1}{T_e} = \frac{1}{T_r} + \frac{1}{T_b} \quad \text{Équation V.9}$$

Où T_e , T_r et T_b sont la demi-vie effective, la période radioactive et la demi-vie biologique, respectivement. A partir de cette équation, connaissant la demi-vie radioactive de l'¹³¹I ($T_r = 8,02$ jours), la demi-vie biologique d'environ 13 jours pour $T_e = 4,9$ jours a été déduite par Chamberlain and Chadwick (1966a).

En effet, l'iode retenu par la végétation suite au dépôt atmosphérique est susceptible d'être éliminé par les effets des vents et des précipitations, ainsi que par la mort et la décomposition des tissus des plantes. Pour une végétation herbacée, les valeurs moyennes de la demi-vie environnementale pour l'I₂ sont de 7 à 9 jours (Whitehead, 1984a). Les mécanismes pouvant contribuer à l'élimination d'I₂ à partir de l'herbe sont :

- le lavage de l'iode par la pluie ;
- la volatilisation de l'iode par sublimation à partir de l'herbe ;
- la translocation de l'iode de l'herbe vers les racines et le sol ;
- la mort d'une partie de l'herbe qui peut ainsi échapper à l'échantillonnage ;
- la perte et la régénération des cuticules des plantes.

Concernant la volatilisation d'I₂ à la PTILH, étant donné que l'herbe est protégée par un système de fermeture automatique en cas de pluie, l'élimination de l'iode par lavage à travers la pluie n'est pas une piste envisageable. D'ailleurs, il a été prouvé que le lavage de l'iode par la pluie n'est pas le mécanisme principal d'élimination d'I₂ de la végétation. Marter (1964) a trouvé une demi-vie biologique de 17,50 jours dans une région où il ne pleut presque jamais et a conclu que l'effet de la pluie sur la demi-vie biologique de l'iode était moins important par rapport aux autres mécanismes. En plus, Tschiersch et al. (2009) ont conclu à partir d'une étude que le lavage d'I₂ déposé sur l'herbe avec de l'eau n'a permis d'éliminer que 10 % de l'iode. Par conséquent, à l'exception du lavage de l'iode par la pluie, les mécanismes cités plus haut et principalement la volatilisation d'I₂ sont les principales voies d'élimination de l'iode de la végétation. Une expérience menée à 25°C par Andersson et al. (2011) a d'ailleurs montré qu'en raison de la sublimation naturelle d'I₂, la demi-vie biologique d'I₂ des plantes passait de 8 à 6,5 jours. Cependant, Garland and Cox (1984) ont montré que suite à des expositions par forte humidité, une fraction importante d'I₂ déposée sur des feuilles de haricot pouvait être lessivée.

L'ajustement des concentrations d'¹²⁹I gazeux calculées à partir du modèle a permis de minimiser les écarts entre les résultats du modèle et les résultats des mesures. Cet ajustement a permis de montrer qu'une quantité importante d'¹²⁹I gazeux déposé est éliminée de l'herbe. L'herbe placée à la PTILH étant protégée de la pluie, l'¹²⁹I gazeux serait éliminé de l'herbe principalement par volatilisation. A cet effet, les demi-vies biologiques d'¹²⁹I gazeux trouvées au niveau de l'herbe des lysimètres placés à la plateforme technique IRSN La Hague sont de 8,5 jours (automne et hiver) et 7,7 jours (printemps et été). Les différences trouvées entre ces deux valeurs s'expliquent du fait que la volatilisation d'I₂ croît avec l'augmentation de la température (Andersson et al., 2011).

La volatilisation de l'iode gazeux à partir de la végétation pourrait expliquer le fait que suite à l'accident nucléaire de Fukushima Dai-ichi (Japon) en mars 2011, la fraction gazeuse d'¹³¹I mesuré dans l'air soit 2-3 fois supérieure à celle d'¹³¹I particulaire et que le ratio ¹³¹I gazeux/¹³¹I total mesuré en Europe entre le 11 mars 2011 et le 12 avril 2011 soit relativement constant (valeur moyenne pour 210 paires de données =

77,2 % ± 13,6 %) quel que soit la distance par rapport à l'émissaire (centrale nucléaire de Fukushima Dai-ichi) (Hötzl et al., 1987 ; Masson et al., 2011).

Les valeurs de la demi-vie biologique d'I₂ trouvée à la PTILH sont ensuite utilisées dans le modèle pour recalculer les concentrations finales d'¹²⁹I gazeux dans l'herbe à partir de l'Équation V.10 :

$$C_{\text{gaz (finale)}} = C_{\text{gaz (initiale)}} e^{-\frac{\ln 2 \times t}{T_b}}$$

Équation V.10

Où $C_{\text{gaz (initiale)}}$ et $C_{\text{gaz (finale)}}$ sont respectivement les concentrations d'¹²⁹I gazeux initiales et finales (après volatilisation d'une partie d'I₂) ; t est le temps de séjour (jours) de l'herbe depuis sa mise en place à la PTILH jusqu'à sa coupe et T_b est la demi-vie biologique de l'¹²⁹I gazeux calculée à partir de l'herbe placée à la PTILH. Le Tableau V.6 présente les valeurs de la demi-vie biologique d'¹³¹I calculées à partir des données de la demi-vie effective d'¹³¹I en utilisant l'Équation V.9 et les valeurs de la demi-vie biologique d'¹²⁹I gazeux trouvées dans cette étude.

Tableau V.6 : Demi-biologique de l'iode (¹³¹I et ¹²⁹I) déterminée à partir du lait et de la végétation.

Date	Localisation	Sources d'iode	Matériel contaminé	Demi-vie biologique (jours)	Remarques	Référence
1950	Harwell	Rejet expérimental	Herbe	13,28-23,82	¹³¹ I	Chamberlain (1953)
Mai/Juin 1961	Rivière Savannah	Traitement du combustible	Herbe	13,28 ^a	¹³¹ I, aucun effet de lavage	Marter (1964)
Mai/Juin 1961	Rivière Savannah	Traitement du combustible	Lait	7,98-13,28	¹³¹ I	Marter (1964)
Juillet 1962	Yucca, Nevada	Explosion nucléaire au sol	Sagebrush and Shadescale	17,50 ^a	¹³¹ I, absence de pluie	Martin (1964)

Tableau V.6 : (suite).

Date	Localisation	Sources d'iode	Matériel contaminé	Demi-vie biologique (jours)	Remarques	Référence
Septembre/ Octobre 1962	Handford	Explosion nucléaire à distance	Herbe	23,82 ^a	¹³¹ I	Soldat (1964)
Juillet/Août 1962	Utah	Explosions nucléaires	Lait	20,95	¹³¹ I	Pendleton et al. (1963)
Juillet/Août 1962	Nevada	Explosions nucléaires	Lait	13,28	¹³¹ I	Knapp (1964)
Octobre/ Novembre 1957	N.W. England	Accident de Windscale	Lait	4,79	¹³¹ I, 4-13 jours après rejet	Burch (1959)
			Lait	15,63	¹³¹ I, 13-32 jours après rejet	
Octobre/ Novembre 1957	Seascale, Cumberland	Accident de Windscale	Lait	11,35	¹³¹ I	Booker (1958)
Mai 1963	Chutes d'Idaho	Rejet expérimental	Herbe	6,21 ^a	¹³¹ I, probablement affecté par une nouvelle croissance	Hawley Jr (1964)
Octobre 2018/ Décembre 2019	La Hague, France	Rejets de l'usine Orano La Hague	Herbe Automne-hiver Printemps-été	8,5 7,7	¹²⁹ I, herbe protégée de la pluie	Présente étude

Suite à la prise en compte de la demi-vie d'élimination biologique de l'¹²⁹I gazeux de l'herbe, les concentrations d'¹²⁹I (gazeux et particulaire) calculées varient entre 0,04 et 0,38 Bq.m⁻² (Figure V.38).

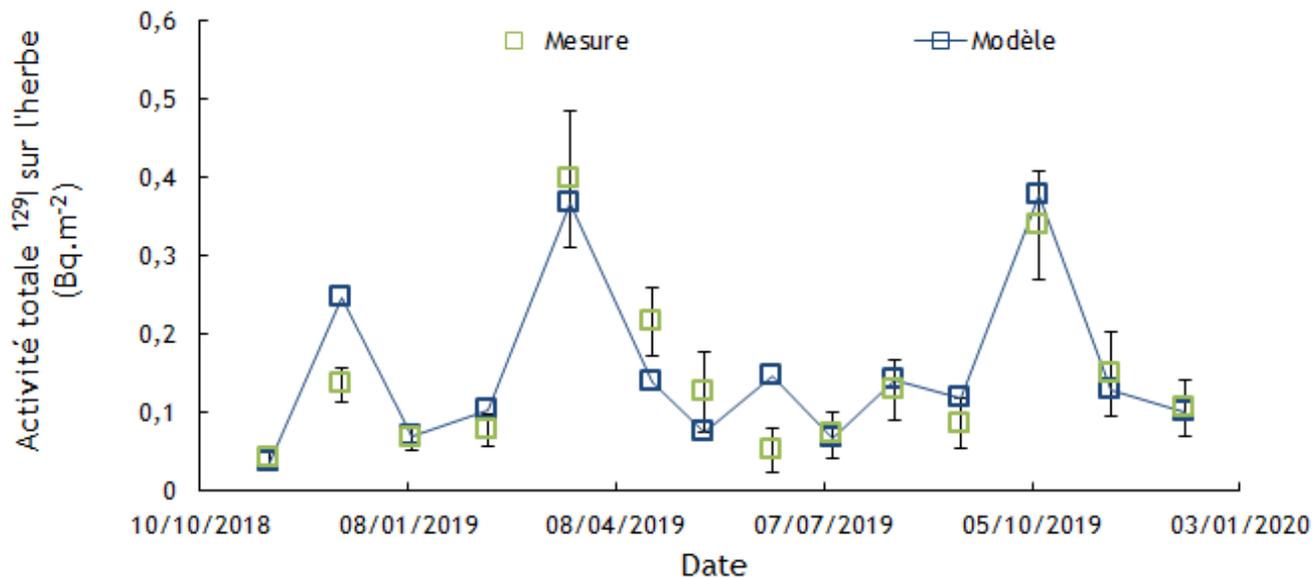


Figure V.38 : Evolution au cours du temps de la concentration d'¹²⁹I calculée (rectangles bleus) et mesurée (rectangles verts). Les barres noires sur les rectangles verts correspondent aux incertitudes de mesures.

Elles sont ensuite comparées aux résultats des mesures. La Figure V.39 présente la confrontation des valeurs du modèle avec les mesures. Cette nouvelle confrontation permet de trouver une corrélation $R^2 = 0,76$. L'analyse des données a montré que le modèle reproduit les valeurs mesurées avec une erreur absolue moyenne ($MAE = 0,04 \text{ Bq.m}^{-2}$) et moins de 50 % de différence, en moyenne, entre les données du modèle et les mesures ($MAPE = 37 \%$).

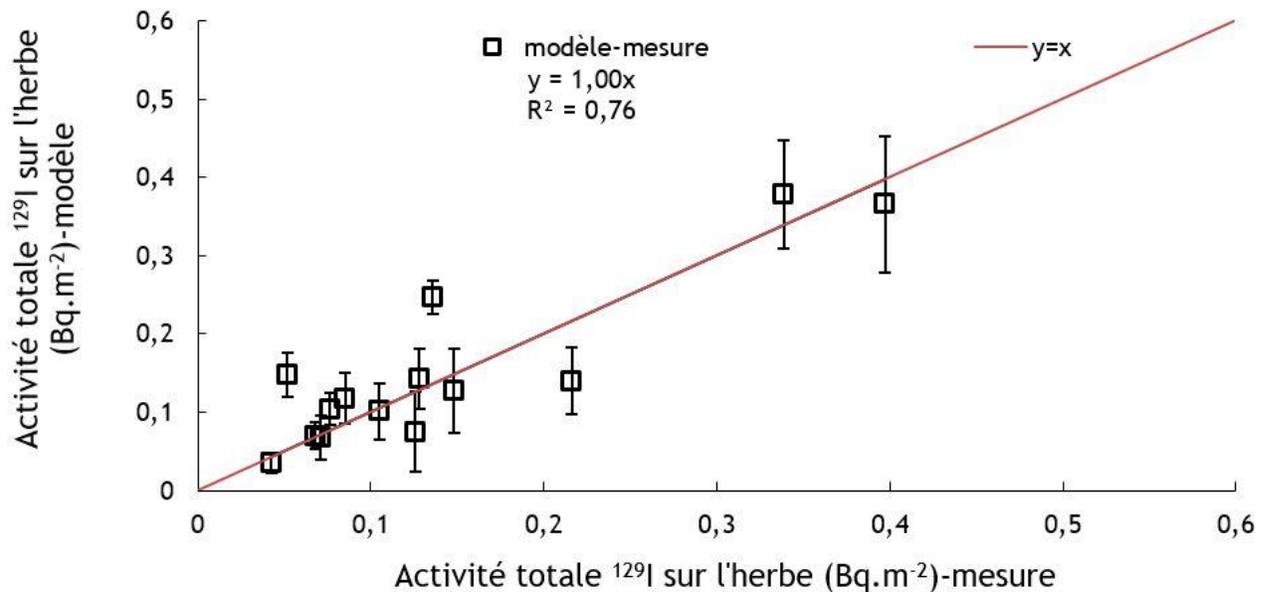


Figure V.39 : Confrontation des concentrations d'¹²⁹I recalculées suite à la volatilisation d'une quantité significative d'¹²⁹I gazeux avec les valeurs mesurées dans l'herbe au niveau de la plateforme technique IRSN La Hague. Les barres noires sur les rectangles correspondent aux incertitudes de mesures. La droite rouge représente la corrélation idéale entre le modèle et la mesure.

Pour des fins opérationnelles, les vitesses de dépôt sec d'¹²⁹I gazeux et particulaire sont ensuite calculées sur des pas de temps de 30 jours en rapportant les concentrations d'¹²⁹I gazeux (recalculées suite à la volatilisation d'une partie de l'¹²⁹I gazeux) et particulaire par unité de temps par les concentrations dans l'air d'¹²⁹I gazeux et particulaire, respectivement. La Figure V.40 et la Figure V.41 présentent l'évolution au cours du temps des vitesses de dépôt sec d'¹²⁹I gazeux et particulaire sur des pas de temps de 30 jours, respectivement. Les vitesses de dépôt calculées pour la fraction gazeuse d'¹²⁹I sont comprises entre $0,13 \pm 0,02$ et $0,46 \pm 0,07$ cm.s⁻¹ (valeur moyenne = $0,26$ cm.s⁻¹ et valeur médiane = $0,25$ cm.s⁻¹) tandis que les V_d d'¹²⁹I particulaire varient entre $0,06 \pm 0,01$ et $0,12 \pm 0,04$ cm.s⁻¹ (valeur moyenne = $0,08$ cm.s⁻¹ et valeur médiane = $0,08$ cm.s⁻¹).

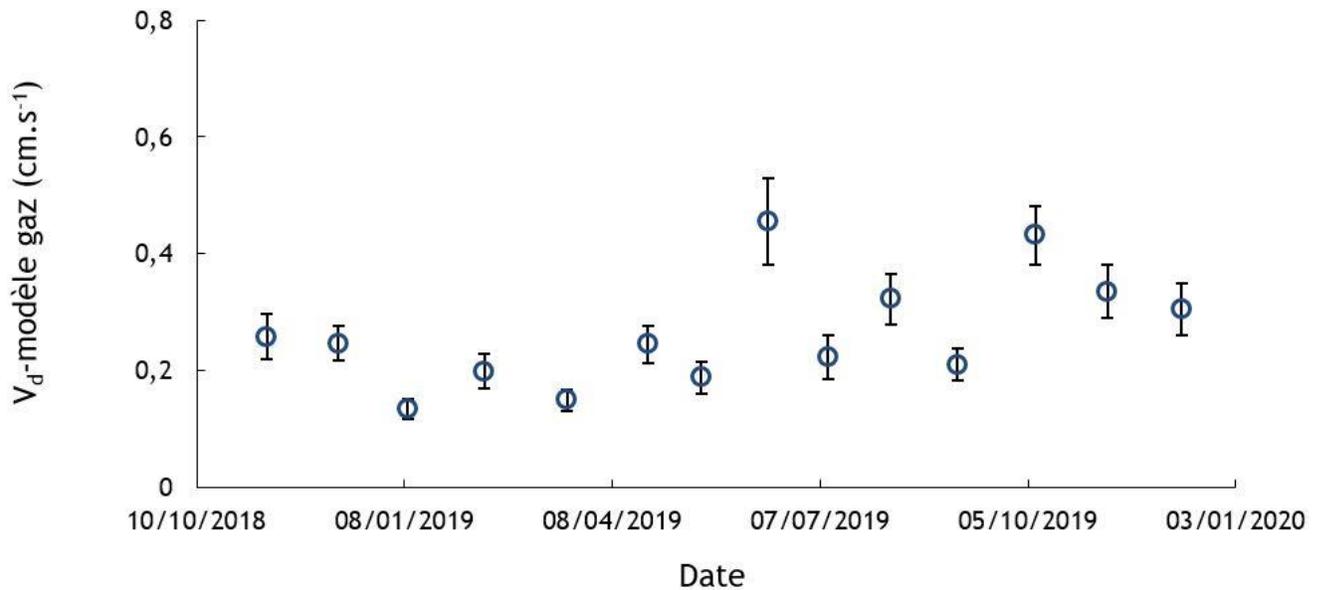


Figure V.40 : Evolution au cours du temps des vitesses de dépôt sec de l'¹²⁹I gazeux calculées sur des pas de temps de 30 jours (cercles bleus). Les barres sur les cercles correspondent aux incertitudes de mesures de l'¹²⁹I gazeux dans l'air.

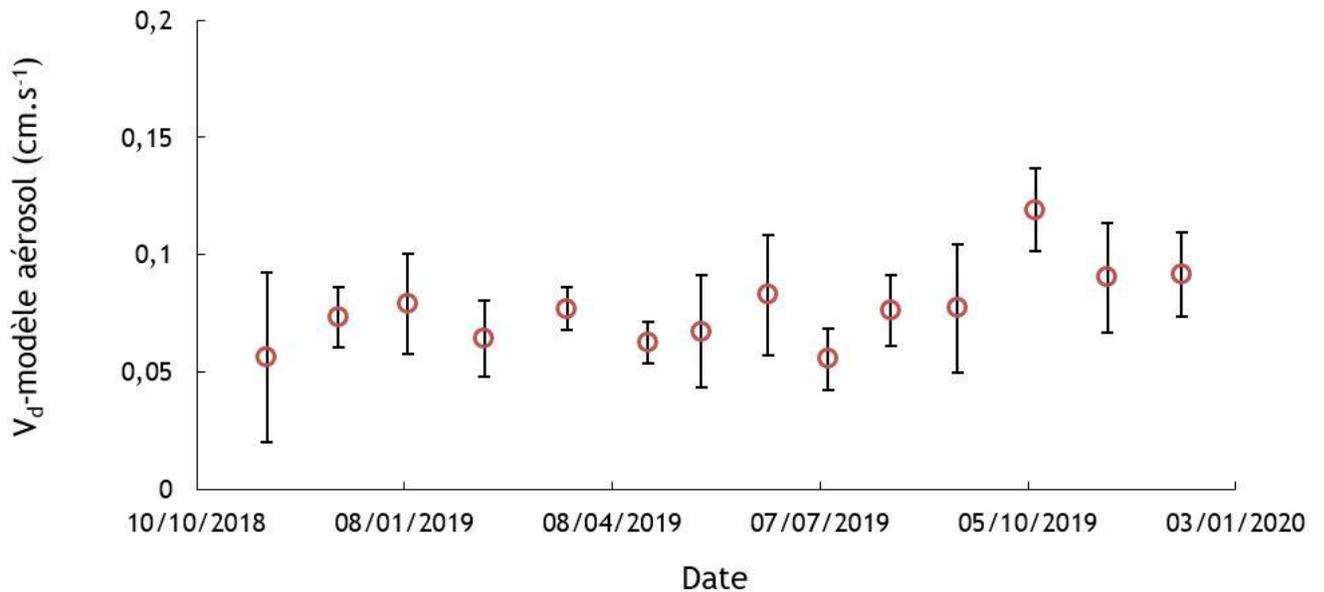


Figure V.41 : Evolution au cours du temps des vitesses de dépôt sec de l'¹²⁹I particulaire calculées sur des pas de temps de 30 jours (cercles rouges). Les barres sur les cercles correspondent aux incertitudes de mesure de l'¹²⁹I particulaire dans l'air.

On peut observer que les vitesses de dépôt sec calculées pour l'¹²⁹I gazeux sont plus élevées d'environ un facteur 3 que les V_d calculées pour l'¹²⁹I particulaire. Les valeurs

de R_c (valeur moyenne = 461 s.m^{-1} et valeur médiane = 468 s.m^{-1}) calculées à partir des modèles (gazeux et particulaire) sont identiques aux valeurs de R_c mesurées sur l'herbe placée au niveau de la PTILH (valeur moyenne = 508 s.m^{-1} et valeur médiane = 416 s.m^{-1}). Par conséquent, les V_d d' ^{129}I (gazeux et particulaire) calculées sont identiques aux vitesses de dépôt sec d' ^{129}I (gazeux et particulaire) mesurées sur l'herbe.

V.3 Conclusion

Les concentrations d' ^{129}I gazeux et particulaire mesurées dans l'air au niveau de la plateforme technique IRSN La Hague varient fortement suivant que le vent en provenance de l'usine Orano La Hague porte sur le site ou que cette dernière soit en fonctionnement ou en arrêt. Les valeurs minimales et maximales trouvées pour la fraction gazeuse d' ^{129}I sont $5,00 \times 10^{-6} \text{ Bq.m}^{-3}$ et $1,10 \times 10^{-4} \text{ Bq.m}^{-3}$, respectivement, tandis que les valeurs trouvées pour l' ^{129}I particulaire varient entre $8,40 \times 10^{-7}$ et $2,70 \times 10^{-5} \text{ Bq.m}^{-3}$. Les concentrations d' ^{129}I gazeux représentent près de 90 % de l'activité totale d' ^{129}I dans l'air. Même lorsque l'usine Orano La Hague est en arrêt, de l' ^{129}I gazeux et particulaire sont mesurés au niveau de la PTILH. Ces rejets proviendraient d'une source secondaire qui serait probablement le milieu marin bien que cette source ne soit pas encore déterminée. Le fait que cette source ne soit pas encore connue ne permet pas de savoir si les conditions météorologiques en général et la direction du vent en particulier constituent une source d'incertitude pour les mesures parce que les concentrations d' ^{129}I gazeux mesurées entre le 19 octobre et le 9 novembre 2018, et entre le 8 décembre et le 22 décembre 2019, correspondant à des périodes d'arrêt de l'usine, sont $5,00 \times 10^{-6} \text{ Bq.m}^{-3}$ et $1,44 \times 10^{-5} \text{ Bq.m}^{-3}$, respectivement. Soit environ un facteur 3 entre les mesures. Les concentrations totales d' ^{129}I (gazeux et particulaires) mesurées dans l'herbe varient entre $0,04 \pm 0,01$ et $0,40 \pm 0,09 \text{ Bq.m}^{-2}$. La valeur minimale trouvée correspond à une période au cours de laquelle l'usine Orano La Hague était en arrêt de cisailage tandis que la valeur maximale correspond à la période au cours de laquelle les concentrations atmosphériques d' ^{129}I (gazeux et particulaire) sont maximales.

Les concentrations d' ^{129}I (gazeux et particulaire) calculées dans l'herbe sur des pas de temps de 30 jours à l'aide du modèle de dépôt sec d' I_2 et du modèle de dépôt sec

des aérosols, respectivement, ont montré qu'une quantité significative de l'¹²⁹I gazeux déposé sur l'herbe est éliminée au cours du temps, probablement par volatilisation. La demi-vie biologique correspondant à l'élimination de l'¹²⁹I gazeux de l'herbe placée au niveau de la plateforme technique IRSN La Hague entre le 19 octobre 2018 et le 12 décembre 2019, est de 8,5 jours pour les périodes d'automne et d'hiver et de 7,7 jours pour les périodes de printemps et d'été. Pour la fraction gazeuse, les dépôts d'¹²⁹I calculés varient entre 0,03 et 0,38 Bq.m⁻² tandis les valeurs d'¹²⁹I particulaire sont comprises entre $1,26 \times 10^{-3}$ et $3,31 \times 10^{-2}$ Bq.m⁻².

Les vitesses de dépôt sec de l'¹²⁹I gazeux et particulaire sont calculées sur des pas de temps de 30 jours à partir des concentrations de l'¹²⁹I gazeux et particulaire obtenues respectivement à l'aide du modèle de dépôt sec d'I₂ et du modèle de dépôt sec des aérosols. Les valeurs trouvées pour l'¹²⁹I gazeux sont comprises entre $0,13 \pm 0,02$ et $0,46 \pm 0,07$ cm.s⁻¹ (valeur moyenne = $0,26$ cm.s⁻¹ et valeur médiane = $0,25$ cm.s⁻¹) tandis que les V_d de l'¹²⁹I particulaire varient entre $0,06 \pm 0,01$ et $0,12 \pm 0,04$ cm.s⁻¹ (valeur moyenne = $0,08$ cm.s⁻¹ et valeur médiane = $0,08$ cm.s⁻¹). En raison des vitesses de dépôt sec de l'¹²⁹I gazeux plus élevées d'environ un facteur 3 que celles de l'¹²⁹I particulaire et de la quasi-totalité des concentrations dans l'air d'¹²⁹I sous forme gazeuse, les concentrations de l'¹²⁹I gazeux déposé représentent plus de 95 % de l'activité totale d'¹²⁹I (gazeux et particulaire) déposé sur l'herbe. D'ailleurs, les V_d de l'¹²⁹I gazeux calculées sont comparables à celles de l'¹²⁹I (gazeux et particulaire) directement mesurées sur l'herbe placée au niveau de la PTILH. Ces dernières sont comprises entre $0,12 \pm 0,03$ et $0,36 \pm 0,19$ cm.s⁻¹ (valeur moyenne = $0,23$ cm.s⁻¹ et valeur médiane = $0,24$ cm.s⁻¹).

La confrontation des données du modèle avec les mesures a permis de trouver une corrélation significative ($R^2 = 0,76$). L'analyse des données a montré que le modèle de dépôt sec d'I₂ développé permet de reproduire les valeurs mesurées avec moins de 50 % de différence entre les données du modèle et les concentrations d'¹²⁹I (gazeux et particulaire) mesurées dans l'herbe (MAPE = 37 %).

Afin de réduire ces incertitudes, le modèle peut être amélioré en mesurant les résistances stomatiques minimales en lieu et place d'attribuer des valeurs fixes en

fonction des différentes saisons de l'année qui ne correspondent pas forcément aux réalités. Les incertitudes liées aux mesures des concentrations atmosphériques d' ^{129}I pourront être minimisées en réalisant des mesures suivant que le panache provienne de l'usine Orano La Hague ou pas afin de distinguer l' ^{129}I qui proviendrait de l'usine de celui qui proviendrait d'une source secondaire.

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

L'objectif de cette étude consistait à déterminer expérimentalement la vitesse de dépôt sec (V_d) de l'iode sous forme moléculaire gazeux (I_2) sur l'herbe afin de comprendre les paramètres météorologiques influençant cette V_d et à réaliser un modèle de dépôt sec d' I_2 sur la base des propriétés physiques et chimiques de l'iode et des propriétés de surface de l'herbe. Il consistait ensuite à valider le modèle développé dans des conditions météorologiques et des temps d'intégration différents par des mesures des transferts par temps sec d' ^{129}I gazeux (I_2) dans l'herbe.

Conclusion générale :

La démarche mise en place afin de réaliser ces objectifs a d'abord consisté à introduire les notions sur le comportement de l'iode (^{127}I) et ses sources dans l'environnement, dont les mécanismes et processus incluant plusieurs compartiments (milieu marin, atmosphère, sol et végétation) et leurs interactions. Ensuite une attention particulière a été apportée aux sources d'iode radioactif dans l'environnement, à la notion de turbulence atmosphérique présentant la couche limite atmosphérique et surtout la couche de surface (couche à flux constant) y compris les mécanismes d'échanges verticaux de polluants (gaz et aérosols) entre l'atmosphère et la surface terrestre. Les notions de mécanismes et processus de dépôt sec ainsi que les méthodes de détermination de la vitesse de dépôt sec d' I_2 sont apportés. Enfin, une revue présentant les vitesses de dépôt sec d' I_2 a montré des différences de ces dernières allant jusqu'à trois ordres de grandeur sans qu'aucune paramétrisation en fonction des paramètres météorologiques (vitesse de frottement du vent, flux de chaleur sensible, température, humidité, ...) ou des propriétés de surface de l'herbe (résistance stomatique, indice de surface foliaire, ...) ne soit effectuée (Chapitre I).

La mise au point de la méthodologie expérimentale de détermination de la vitesse de dépôt sec d' I_2 ainsi que les appareils utilisés (anémomètre ultrasonique, station météorologique et LAI-mètre) pour l'acquisition des paramètres météorologiques et de l'indice de surface foliaire ont ensuite été abordés. La méthode originale mise en place pour déterminer la vitesse de dépôt sec d' I_2 a consisté à émettre de l'iode stable (^{127}I)

sous forme élémentaire (I_2) à court terme (30 minutes à 1 heure) dans l'air en l'absence de pluie au milieu d'une prairie. Ensuite, elle a consisté à quantifier l' I_2 déposé sur des éprouvettes d'herbe de 16 cm x 16 cm de dimension placées à 3 m de l'émissaire et l' I_2 dans l'air à 26 cm au-dessus des éprouvettes d'herbe. La vitesse de dépôt sec d' I_2 ($\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$) est déterminée en faisant le rapport entre la concentration d' I_2 déposé sur les éprouvettes d'herbe par unité de surface et par unité de temps, et la concentration d' I_2 dans l'air (Chapitre II).

Concernant la procédure d'adaptation du modèle de dépôt sec des gaz à l'iode, la notion de transfert des gaz reposant sur l'analogie à la résistance électrique dans laquelle le transfert du gaz de l'atmosphère vers la surface est régi par trois résistances (la résistance aérodynamique, la résistance quasi-laminaire et la résistance de surface) a été rappelée. Ensuite, la paramétrisation des V_d a consisté à présenter l'ensemble des paramètres d'entrée du modèle ainsi que la procédure de leur acquisition sur la base des V_d mesurées sur l'herbe, des propriétés physiques et chimiques de l'iode, des paramètres météorologiques et des propriétés de surface de l'herbe (Chapitre III).

La méthode de détermination de la vitesse de dépôt sec d' I_2 développée a été appliquée *in situ* à travers trois campagnes expérimentales de mesure au milieu d'une prairie entre juillet 2018 et juin 2019 sur un site de l'Institut National de Recherche pour l'Agriculture, l'Alimentation et l'Environnement (INRAE) à Lusignan (environ 30 km de Poitiers). Le site expérimental, le matériel et les principaux paramètres météorologiques de chaque campagne ont été décrits chronologiquement. La première campagne (MIOSEC 1) a été une campagne de mise au point. Elle a été réalisée en juillet 2018. En raison des faibles quantités d' I_2 émises dans l'air par le générateur d'iode (Model 500 Dynacalibrator), les rejets d' I_2 ont été canalisés. L'écoulement de l'air dans le canal n'étant pas assez stationnaire, les vitesses de dépôt sec d' I_2 ont été présentées sans que l'influence des paramètres météorologiques sur ces dernières ne soit étudiée. La campagne MIOSEC 2 a eu lieu en septembre 2019. Elle a été réalisée suite à la conception d'un générateur expérimental d' I_2 (^{127}I) capable d'émettre dans l'air des concentrations d' I_2 suffisamment élevées pour être mesurées sans que les émissions d' I_2 ne soient canalisées. La campagne MIOSEC 3 a eu lieu en juin 2019 dans l'optique d'obtenir des vitesses de dépôt sec d' I_2 sur l'herbe pour différentes conditions

météorologiques. L'évolution des principaux paramètres météorologiques et des V_d obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3 a été présentée.

Les V_d obtenues lors des campagnes MIOSEC 2 et 3 étaient comprises entre 0,02 et 1,25 $\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$, soit une dispersion des données sur plus d'un ordre de grandeur. L'ensemble des résultats a été analysé afin d'identifier les principaux paramètres météorologiques influençant les vitesses de dépôt sec d' I_2 . Il a été trouvé que les V_d étaient principalement liées à la vitesse de frottement du vent (u^*). La normalisation de V_d par u^* a montré que l'humidité relative influence également la vitesse de dépôt sec d' I_2 , en favorisant l'absorption d' I_2 sur le film d'eau présent au niveau de la surface de l'herbe (absorption cuticulaire).

Les paramètres d'entrée du modèle tenant compte des propriétés physiques et chimiques de l'iode, des paramètres météorologiques et des propriétés de surface de l'herbe ont permis de calculer les vitesses de dépôt sec d' I_2 . Les résultats obtenus variaient entre 0,05 et 1,18 $\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$.

La confrontation des résultats du modèle avec les résultats des mesures a permis de trouver une corrélation significative ($R^2 = 0,88$). L'analyse des résultats a montré que le modèle reproduisait les mesures avec moins de 50 % de différence entre l'ensemble des valeurs mesurées et les données du modèle. Il a été montré que les V_d ont évolué au cours des différentes saisons de l'année. Les V_d étaient plus élevées en été (campagne MIOSEC 3), période durant laquelle l'ouverture des stomates était maximale. Dans ce cas, les vitesses de dépôt étaient liées à la fois à la vitesse de frottement du vent, à l'humidité relative et à l'ouverture des stomates. Elles étaient toutefois moins élevées en automne (campagne MIOSEC 2), période correspondant à une ouverture des stomates négligeable par comparaison à la résistance non stomatique. Par conséquent, les valeurs mesurées lors de cette période étaient principalement influencées par la vitesse de frottement du vent et l'humidité relative (Chapitre IV).

Enfin, le modèle de dépôt sec d' I_2 développé à partir des émissions d' I_2 (^{127}I) à court terme (30 minutes à 1 heure) a été validé dans des conditions météorologiques et des pas de temps différents par des mesures des transferts par temps sec dans l'herbe d'iode radioactif (^{129}I) émis par l'usine Orano La Hague principalement sous forme gazeuse (I_2)

au niveau de la plateforme technique IRSN La Hague (PTILH). Le site expérimental, le matériel pour l'acquisition des paramètres météorologiques (anémomètre ultrasonique et station météorologique), le matériel de prélèvement d' ^{129}I dans l'air (préleveur à haut débit, HIVOL) et le matériel protégeant l'herbe de la pluie (lysimètres avec un toit à fermeture automatique en cas de pluie) ont été décrits. La procédure de détermination des concentrations d' ^{129}I gazeux dans l'herbe a été décrite. L' ^{129}I étant mesuré au niveau de la PTILH sous forme gazeuse et particulaire, la procédure de détermination de la concentration de l' ^{129}I particulaire dans l'herbe a également été décrite.

Les mesures des concentrations d' ^{129}I par spectrométrie gamma ont permis de trouver des concentrations d' ^{129}I gazeux dans l'air comprises entre $5,0 \times 10^{-6}$ et $1,1 \times 10^{-4} \text{ Bq.m}^{-3}$ tandis que celles de l' ^{129}I particulaire variaient entre $8,4 \times 10^{-7}$ et $2,7 \times 10^{-5} \text{ Bq.m}^{-3}$. Les concentrations totales d' ^{129}I (gazeux et particulaire) mesurées dans l'herbe étaient comprises entre $0,04 \pm 0,01$ et $0,40 \pm 0,09 \text{ Bq.m}^{-2}$. L'analyse des résultats a montré l'existence d'une source secondaire d' ^{129}I au niveau de la PTILH parce que les valeurs minimales d' ^{129}I mesurées correspondaient à des arrêts de cisailage de l'usine Orano La Hague. Cette source secondaire est le milieu marin. Les résultats ont également permis de montrer que la concentration de l' ^{129}I gazeux représentait en moyenne près de 90 % de l'activité totale d' ^{129}I . L'analyse des résultats de la vitesse de dépôt sec d' ^{129}I (gazeux et particulaire) déterminée en rapportant la concentration d' ^{129}I (gazeux et particulaire) déposé sur l'herbe par unité de surface et par unité de temps à la concentration d' ^{129}I (gazeux et particulaire) dans l'air (valeur moyenne = $0,26 \text{ cm.s}^{-1}$ et valeur médiane = $0,25 \text{ cm.s}^{-1}$) a montré que l' ^{129}I est déposé au niveau de la surface de l'herbe par absorption cuticulaire.

Le couplage du modèle gazeux avec le modèle des aérosols a permis de calculer les concentrations d' ^{129}I (gazeux et particulaire) dans l'herbe sur des pas de temps de 30 jours. Pour la fraction particulaire, les concentrations d' ^{129}I calculées étaient comprises entre $1,26 \times 10^{-3}$ et $3,31 \times 10^{-2} \text{ Bq.m}^{-2}$. Les résultats des concentrations totales (gazeux et particules) ont montré des écarts allant jusqu'à un facteur trois par rapport aux résultats des mesures d' ^{129}I (gazeux et particulaires) trouvés dans l'herbe. Ces écarts étaient dus à l'élimination au cours du temps d'une quantité significative d' ^{129}I gazeux

déposé de l'herbe, probablement par volatilisation. La demi-vie biologique correspondant à l'élimination de l'¹²⁹I gazeux de l'herbe placée au niveau de la plateforme technique IRSN La Hague entre le 19 octobre 2018 et le 12 décembre 2019, était de 8,5 jours pour les périodes d'automne et d'hiver et de 7,7 jours pour les périodes de printemps et d'été. Les concentrations d'¹²⁹I gazeux calculées après la prise en compte de la demi-vie d'élimination biologique de l'¹²⁹I gazeux ont varié entre 0,03 et 0,38 Bq.m⁻².

La confrontation des données du modèle avec les résultats des mesures a permis de trouver une corrélation significative ($R^2 = 0,76$). L'analyse des données a montré que le modèle de dépôt sec d'I₂ développé permet de reproduire les valeurs mesurées avec moins de 50 % de différence entre les résultats du modèle et les concentrations d'¹²⁹I (gazeux et particulaire) mesurées dans l'herbe.

Perspectives :

Cette étude a permis de déterminer expérimentalement les vitesses de dépôt sec de l'iode sous forme élémentaire gazeux sur l'herbe. La paramétrisation de V_d en fonction des paramètres météorologiques et des propriétés du couvert a permis de déterminer le lien existant entre ces derniers et V_d .

Dans la littérature il apparaît aussi qu'il existe peu de données sur les dépôts secs d'I₂ sur d'autres surfaces (légumes, fruits, ...). La méthodologie développée dans cette étude pourrait donc être utilisée sur ces surfaces afin de quantifier les vitesses de dépôt sec d'I₂ et de déterminer de la même manière les paramètres influençant les V_d .

L'adaptation du modèle de dépôt sec des gaz à l'iode a permis d'obtenir des valeurs plus rapprochées des résultats des mesures parce qu'elle tient non seulement compte de l'évolution des paramètres météorologiques, des propriétés physiques et chimiques de l'iode, mais également des propriétés du couvert y compris l'indice de surface et la résistance stomatique. Cependant, des incertitudes allant jusqu'à 50 % en moyenne existent entre les valeurs du modèle et les résultats des mesures.

Afin de réduire ces incertitudes, le modèle peut être amélioré en mesurant les résistances stomatiques minimales en lieu et place d'attribuer des valeurs fixes en

fonction des différentes saisons de l'année qui ne correspondent pas forcément aux réalités. Pour cela, en plus des paramètres météorologiques acquis dans cette étude, l'humidité de surface de l'herbe et du sol sur lequel repose l'herbe devront être déterminées. En lieu et place d'attribuer une valeur arbitraire à la résistance du sol pour I_2 , cette dernière pourra être déterminée à partir des émissions d' I_2 sur un sol neutre pour différentes conditions météorologiques et surtout pour différentes conditions d'humidité relative.

L'application du modèle au niveau de la plateforme technique IRSN La Hague sur un temps d'intégration plus long (30 jours) sur des transferts par temps sec dans l'herbe d' ^{129}I gazeux émis par l'usine Orano La Hague a montré des écarts allant jusqu'à un facteur trois entre les résultats du modèle et les résultats des mesures.

Après la prise en compte de la demi-vie d'élimination biologique de l' ^{129}I gazeux de l'herbe, les résultats du modèle ont permis de reproduire l'ensemble des résultats des mesures avec moins de 50 % d'écarts en moyenne. Une quantité significative d' ^{129}I gazeux déposé est par conséquent éliminée de l'herbe, probablement par volatilisation (7 jours < demi-vie d'élimination biologique d' ^{129}I sous forme I_2 au niveau de la plateforme technique IRSN La Hague < 9 jours).

Cette observation a permis de montrer que les résultats du modèle élevés de plus d'un facteur trois en moyenne par rapport aux résultats des mesures étaient dus du fait que le modèle des gaz adapté à I_2 ne tenait pas compte de la volatilisation d' I_2 .

Dans le but d'utiliser le modèle sur d'autres surfaces (légumes, fruits, ...), la détermination de la demi-vie biologique sur ces surfaces doit également être envisagée. Pour cela, ces surfaces pourront être exposées à des rejets atmosphériques d' I_2 sur des périodes courtes (30 minutes à 1 heure) en l'absence de précipitation. Après avoir quantifié les concentrations d' I_2 sur une portion de chacune des surfaces, les portions restantes de ces dernières pourront être mises à l'abri des émissions d' I_2 . Des prélèvements réguliers sur ces portions restantes permettront de quantifier la part d' I_2 volatilisée au cours du temps. Les mesures de paramètres météorologiques lors de ces expériences permettront de déterminer l'influence de ces derniers sur la volatilisation d' I_2 .

Le modèle pourrait ensuite être adapté de la même manière à d'autres gaz tels que le ^{36}Cl par la prise en compte des propriétés physiques et chimiques de ce dernier.

BIBLIOGRAPHIE

Affre, C., 1997. Méthodologie de la mesure (aéroportée et au sol) des flux turbulents. Application à l'ozone aux échelles locale et régionale. Toulouse 3.

Al-Ajely, K.O., 1985. Biogeochemical prospecting as an effective tool in the search for mineral deposits in Wales. University of Wales.

Allen, M., Neff, R., 1975. Measurements of deposition velocity of gaseous elemental iodine on water. Health physics 28, 707-715.

Amano, H., Akiyama, M., Chunlei, B., Kawamura, T., Kishimoto, T., Kuroda, T., Muroi, T., Odaira, T., Ohta, Y., Takeda, K., 2012. Radiation measurements in the Chiba Metropolitan Area and radiological aspects of fallout from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plants accident. Journal of Environmental Radioactivity 111, 42-52.

Amiro, B., Johnston, F., 1989. Volatilization of iodine from vegetation. Atmospheric Environment (1967) 23, 533-538.

Andersson, K.G., Nielsen, S.P., Thørring, H., Hansen, H.S., Joensen, H.P., Isaksson, M., Kostianen, E., Suolanen, V., Pálsson, S.E., 2011. Revision of deposition and weathering parameters for the ingestion dose module (ECOSYS) of the ARGOS and RODOS decision support systems. Journal of environmental radioactivity 102, 1024-1031.

Arya, S.P., 1999. Air pollution meteorology and dispersion. Oxford University Press New York.

Atkins, D., Chadwick, R., Chamberlain, A., 1967. DEPOSITION OF RADIOACTIVE METHYL IODIDE ON VEGETATION. Atomic Energy Research Establishment, Harwell, Eng.

Baker, A., Tunnicliffe, C., Jickells, T., 2001. Iodine speciation and deposition fluxes from the marine atmosphere. Journal of Geophysical Research: Atmospheres 106, 28743-28749.

Baklanov, A., Sørensen, J., 2001. Parameterisation of radionuclide deposition in atmospheric long-range transport modelling. Physics and Chemistry of the Earth, Part B: Hydrology, Oceans and Atmosphere 26, 787-799.

Baldocchi, D.D., Hincks, B.B., Meyers, T.P., 1988. Measuring biosphere-atmosphere exchanges of biologically related gases with micrometeorological methods. *Ecology* 69, 1331-1340.

Barkley, R.A., Thompson, T.G., 1960. The total iodine and iodate-iodine content of seawater. *Deep Sea Research (1953)* 7, 24-34.

Barry, P., Chamberlain, A., 1964. Deposition of iodine onto plant leaves from air, *Biology of Radioiodine*. Elsevier, pp. 69-77.

Bennett, J.H., Hill, A.C., 1975. Interactions of air pollutants with canopies of vegetation. *Responses of plants to air pollution*, 273-306.

Biester, H., Keppler, F., Putschew, A., Martinez-Cortizas, A., Petri, M., 2004. Halogen retention, organohalogenes, and the role of organic matter decomposition on halogen enrichment in two Chilean peat bogs. *Environmental science & technology* 38, 1984-1991.

Booker, D., 1958. Physical measurements of activity in samples from Windscale. United Kingdom Atomic Energy Authority. Research Group. Atomic Energy

Bowley, H.E., 2013. Iodine dynamics in the terrestrial environment. University of Nottingham.

Brandt, J., Christensen, J.H., Frohn, L.M., 2002. Modelling transport and deposition of caesium and iodine from the Chernobyl accident using the DREAM model. *Atmos. Chem. Phys.* 2, 397-417.

Bunch, D., 1968. Controlled environmental radioiodine Tests. Progress report number three. DO-12063. IDO [reports]. US Atomic Energy Commission, 1-77.

Burch, P., 1959. Measurements at Leeds following the Windscale reactor accident: iodine-131 in human thyroids and iodine-131 and caesium-137 in milk. *Nature* 183, 515-517.

- Businger, J., 1986. Evaluation of the accuracy with which dry deposition can be measured with current micrometeorological techniques. *Journal of Climate and Applied Meteorology* 25, 1100-1124.
- Carpenter, L., Malin, G., Liss, P., Küpper, F., 2000. Novel biogenic iodine-containing trihalomethanes and other short-lived halocarbons in the coastal east Atlantic. *Global Biogeochemical Cycles* 14, 1191-1204.
- Carpenter, L.J., 2003. Iodine in the Marine Boundary Layer. *Chemical Reviews* 103, 4953-4962.
- Carpenter, L.J., MacDonald, S.M., Shaw, M.D., Kumar, R., Saunders, R.W., Parthipan, R., Wilson, J., Plane, J.M., 2013. Atmospheric iodine levels influenced by sea surface emissions of inorganic iodine. *Nature Geoscience* 6, 108-111.
- Cetin, B., Odabasi, M., 2007. Particle-phase dry deposition and air– soil gas-exchange of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in Izmir, Turkey. *Environmental science & technology* 41, 4986-4992.
- Chamberlain, A., 1953. Deposition of airborne radioiodine vapor. *Nucleonics* 8, 22-25.
- Chamberlain, A., 1959. Deposition of iodine-131 in Northern England in October 1957. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 85, 350-361.
- Chamberlain, A., 1960. Aspects of the deposition of radioactive and other gases and particles. *Intern. J. Air Pollution* 3.
- Chamberlain, A., 1970. Interception and retention of radioactive aerosols by vegetation. *Atmospheric Environment (1967)* 4, 57-78.
- Chamberlain, A., Chadwick, R., 1966a. Transport of iodine from atmosphere to ground. *Tellus* 18, 226-237.
- Chamberlain, A.C., Chadwick, R.C., 1966b. Transport of iodine from atmosphere to ground. *Tellus* 18, 226-237.

Chance, R., Baker, A.R., Carpenter, L., Jickells, T.D., 2014. The distribution of iodide at the sea surface. *Environmental Science: Processes & Impacts* 16, 1841-1859.

Chance, R., Baker, A.R., Küpper, F.C., Hughes, C., Kloareg, B., Malin, G., 2009. Release and transformations of inorganic iodine by marine macroalgae. *Estuarine, Coastal and Shelf Science* 82, 406-414.

Chance, R., Malin, G., Jickells, T., Baker, A.R., 2007. Reduction of iodate to iodide by cold water diatom cultures. *Marine Chemistry* 105, 169-180.

Chen, J.M., Black, T., 1992. Defining leaf area index for non-flat leaves. *Plant, Cell & Environment* 15, 421-429.

Chen, W., Kuze, H., Uchiyama, A., Suzuki, Y., Takeuchi, N., 2001. One-year observation of urban mixed layer characteristics at Tsukuba, Japan using a micro pulse lidar. *Atmospheric Environment* 35, 4273-4280.

Choi, B.S., Lee, H.K., Park, G.I., Lee, K.W., Cho, I.H., Oh, W.J., 1997. A study on the removal of radioiodine on silver-impregnated adsorbents, *Proceedings of the Korean Nuclear Society autumn meeting Vol2*. KNS, Korea, Republic of, p. 716.

Clark, M., Smith, F., 1988. Wet and dry deposition of Chernobyl releases. *Nature* 332, 245-249.

Cline, J., Wilson, D., Hungate, F., 1965. Effect of physical and biological conditions on deposition and retention of ¹³¹I on plants. *Health Physics* 11, 713-717.

Connan, O., Masson, O., Béguin-Leprieur, M., De Vismes-Ott, A., D'Amico, D., Faramond, J., Hébert, D., Paulat, P., 2019. Rapport IRSN Mesures de ¹²⁹I particulaire et gazeux à proximité du site Orano La Hague.

Activités, répartition gaz/particules et distribution granulométrique. Données non publiées.

Costes, J.-P., 1996. Simulations numériques des écoulements atmosphériques sur sols fortement hétérogènes. Nantes.

Dai, J., Zhang, M., Hu, Q., Huang, Y., Wang, R., Zhu, Y., 2009. Adsorption and desorption of iodine by various Chinese soils: II. Iodide and iodate. *Geoderma* 153, 130-135.

Damay, P., 2010a. Détermination expérimentale de la vitesse de dépôt sec des aérosols submicroniques en milieu naturel: Influence de la granulométrie, des paramètres micrométéorologiques et du couvert. INSA de Rouen, p. 218.

Damay, P., 2010b. Experimental determination of submicron aerosol dry deposition velocity onto rural canopies: influence of aerosol size, of micro meteorological parameters and of the substrate. Institut de Radioprotection et de Sureté Nucleaire.

Danner, M., Locherer, M., Hank, T., Richter, K., Consortium, E., 2015. Measuring Leaf Area Index (LAI) with the LI-Cor LAI 2200C or LAI-2200 (+ 2200Clear Kit)-theory, measurement, problems, interpretation.

Davi, H., 2004. Développement d'un modèle forestier générique simulant les flux et les stocks de carbone et d'eau dans le cadre des changements climatiques. Université Paris XI, Orsay.

Davidson, C.I., Lindberg, S.E., Schmidt, J.A., Cartwright, L.G., Landis, L.R., 1985. Dry deposition of sulfate onto surrogate surfaces. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 90, 2123-2130.

Delmas, R., Mégie, G., Peuch, V.-H., 2005. *Physique et chimie de l'atmosphère*. Belin.

Doi, T., Masumoto, K., Toyoda, A., Tanaka, A., Shibata, Y., Hirose, K., 2013. Anthropogenic radionuclides in the atmosphere observed at Tsukuba: characteristics of the radionuclides derived from Fukushima. *Journal of Environmental Radioactivity* 122, 55-62.

Dowd, C.D., 2001. Biogenic coastal aerosol production and its influence on aerosol radiative properties. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 106, 1545-1549.

Dubravčić, M., 1955. Determination of iodine in natural waters (sodium chloride as a reagent in the catalytic reduction of ceric ions). *Analyst* 80, 295-300.

Duce, R.A., Zoller, W.H., Moyers, J.L., 1973. Particulate and gaseous halogens in the Antarctic atmosphere. *Journal of Geophysical Research* 78, 7802-7811.

Edwards, R., 1962. Iodine-129: its occurrence in nature and its utility as a tracer. *Science* 137, 851-853.

Englund, E., Aldahan, A., Hou, X., Possnert, G., Söderström, C., 2010. Iodine (129I and 127I) in aerosols from northern Europe. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 268, 1139-1141.

Erisman, J.W., 1993a. Acid deposition onto nature areas in the Netherlands; Part II. Throughfall measurements compared to deposition estimates. *Water, Air, and Soil Pollution* 71, 81-99.

Erisman, J.W., 1993b. Acid deposition to nature areas in the Netherlands: Part I. Methods and results. *Water, air, and soil pollution* 71, 51-80.

Fields, R., 1960. Deposition velocities of airborne fission products. Convair report FZM-1985.

Foken, T., Wichura, B., 1996. Tools for quality assessment of surface-based flux measurements. *Agricultural and forest meteorology* 78, 83-105.

Forsythe, W., 1956. *Smithsonian physical tables*: Smithsonian Inst. Washington, DC, Pub 4169.

Fowler, D., Pilegaard, K., Sutton, M., Ambus, P., Raivonen, M., Duyzer, J., Simpson, D., Fagerli, H., Fuzzi, S., Schjørring, J.K., 2009. Atmospheric composition change: ecosystems-atmosphere interactions. *Atmospheric Environment* 43, 5193-5267.

Fréchou, C., Calmet, D., 2003. 129I in the environment of the La Hague nuclear fuel reprocessing plant—from sea to land. *Journal of environmental radioactivity* 70, 43-59.

Freeman, W.P., Mohacsi, T.G., Kovach, J., 1985. Evaluation of quaternary ammonium halides for removal of methyl iodide from flowing air streams.

- Fuge, R., 1989. Iodine in waters: possible links with endemic goitre. *Applied Geochemistry* 4, 203-208.
- Fuge, R., 1996. *Geochemistry of iodine in relation to iodine deficiency diseases*. Geological Society, London, Special Publications 113, 201-211.
- Fuge, R., Ander, E., Nicholson, K., 1998. Geochemical barriers and the distribution of iodine in the secondary environment: implications for radio-iodine. *Energy and the environment: geochemistry of fossil, nuclear and renewable resources*, MacGregor Science, Aberdeen, 163-170.
- Fuge, R., Johnson, C.C., 1986. The geochemistry of iodine—a review. *Environmental geochemistry and health* 8, 31-54.
- Fuge, R., Johnson, C.C., 2015. Iodine and human health, the role of environmental geochemistry and diet, a review. *Applied Geochemistry* 63, 282-302.
- Gall, E.A., Küpper, F.C., Kloareg, B., 2004. A survey of iodine content in *Laminaria digitata*. *Botanica Marina* 47, 30-37.
- Gallagher, M., Fontan, J., Wyers, P., Ruijgrok, W., Duyzer, J., Hummelshøj, P., Pilegaard, K., Fowler, D., 1997. Atmospheric particles and their interactions with natural surfaces, *Biosphere-atmosphere exchange of pollutants and trace substances*. Springer, pp. 45-92.
- Garland, J., 1967. The adsorption of iodine by atmospheric particles. *Journal of Nuclear Energy* 21, 687-700.
- Garland, J., Cox, L., 1984. The uptake of elemental iodine vapour by bean leaves. *Atmospheric Environment (1967)* 18, 199-204.
- Garland, J., Curtis, H., 1981. Emission of iodine from the sea surface in the presence of ozone. *Journal of Geophysical Research: Oceans* 86, 3183-3186.
- Garner, R.J., Comar, C.L., 1972. Transfer of radioactive materials from the terrestrial environment to animals and man. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology* 2, 337-385.

GERMAIN, P., HERBELET, J., MERLE-SZEREMETA, A., THYBAUD, E., 2004. suite aux recommandations du groupe radioécologie Nord-Cotentin (GRNC) formulées en 1999. *RADIOPROTECTiON* 39.

Gerzabek, M.H., Muramatsu, Y., Strebl, F., Yoshida, S., 1999. Iodine and bromine contents of some Austrian soils and relations to soil characteristics. *Journal of plant nutrition and soil science* 162, 415-419.

Geunot, J., Caput, C., Belot, Y., Bourdeau, F., 1986. Absorption of hypoiodous acid by plant leaves, Speciation of fission and activation products in the environment.

Gifford, F., Pack, D., 1962. Surface deposition of airborne material. *Nucl. Safety* 3, 76-80.

Golder, D., 1972. Relations among stability parameters in the surface layer. *Boundary-Layer Meteorology* 3, 47-58.

Gower, S.T., Kucharik, C.J., Norman, J.M., 1999. Direct and indirect estimation of leaf area index, fAPAR, and net primary production of terrestrial ecosystems. *Remote sensing of environment* 70, 29-51.

Großmann, K., Frieß, U., Peters, E., Wittrock, F., Lampel, J., Yilmaz, S., Tschirner, J., Sommariva, R., Von Glasow, R., Quack, B., 2013. Iodine monoxide in the Western Pacific marine boundary layer. *Atmospheric Chemistry and Physics* 13, 3363-3378.

Happell, J.D., Wallace, D.W., 1996. Methyl iodide in the Greenland/Norwegian Seas and the tropical Atlantic Ocean: Evidence for photochemical production. *Geophysical Research Letters* 23, 2105-2108.

Hawley Jr, C., 1964. Controlled environmental radioiodine tests at the National Reactor Testing Station. Idaho Operations Office, US Atomic Energy Commission.

Heinemann, K., Stoepler, M., Vogt, K., Angeletti, L., 1976. Studies on the Deposition and Release of Iodine on Vegetation, ORNL-tr-4313. National Technical Information Service, US Dept. of Commerce Springfield, VA.

Heinemann, K., Vogt, K., 1980. Measurements of the deposition of iodine onto vegetation and of the biological half-life of iodine on vegetation. *Health Physics* 39, 463-474.

Heinemann, K., Vogt, K., Angeletti, L., 1974. Deposition and biological half-life of elemental iodine on grass and clover. *Atmosphere-Surface Exchange of Particulate and Gaseous Pollutants* (1974).

Henner, P., Hurtevent, P., Thiry, Y., Levchuk, S., Yoschenko, V., Kashparov, V., 2013. Translocation of ^{125}I , ^{75}Se and ^{36}Cl to edible parts of radish, potato and green bean following wet foliar contamination under field conditions. *Journal of environmental radioactivity* 124, 171-184.

Hicks, B., McMillen, R., 1984. A simulation of the eddy accumulation method for measuring pollutant fluxes. *Journal of climate and applied meteorology* 23, 637-643.

Hoffman, F., 1989. Pasture grass interception and retention of ^{131}I , ^7Be , and insoluble microspheres deposited in rain. ORNL-6542.

Holland, J., 2013. Physical origin and dispersion of radioiodine, *Biology of Radioiodine: Proceedings of the Hanford Symposium on the Biology of Radioiodine*. Elsevier, p. 15.

Hötzl, H., Rosner, G., Winkler, R., 1987. Ground depositions and air concentrations of Chernobyl fallout radionuclides at Munich-Neuherberg. *Radiochimica Acta* 41, 181-190.

Hou, X., Hansen, V., Aldahan, A., Possnert, G., Lind, O.C., Lujaniene, G., 2009. A review on speciation of iodine-129 in the environmental and biological samples. *Analytica Chimica Acta* 632, 181-196.

Imanaka, T., Koide, H., 1986. Fallout in Japan from Chernobyl. *Journal of environmental radioactivity* 4, 149-153.

Jean-Claude, A., 2013. *Le risque radioactif: Devenir des radionucléides dans l'environnement et impacts sur la santé*. Lavoisier.

Johnson, C., 2003a. Database of the iodine content of soils populated with data from published literature.

Johnson, C., 2003b. The geochemistry of iodine and its application to environmental strategies for reducing the risk from iodine deficiency disorders (IDD).

Johnson, C.C., 1980. The geochemistry of iodine and a preliminary investigation into its potential use as a pathfinder element in geochemical exploration. University College of Wales.

Jones, C.E., Hornsby, K.E., Sommariva, R., Dunk, R.M., Von Glasow, R., McFiggans, G., Carpenter, L.J., 2010. Quantifying the contribution of marine organic gases to atmospheric iodine. *Geophysical research letters* 37.

Jubin, R.T., 1979. A literature survey of methods to remove iodine from off-gas streams using solid sorbents. Citeseer.

Kaplan, D.I., Denham, M.E., Zhang, S., Yeager, C., Xu, C., Schwehr, K., Li, H.-P., Ho, Y.-F., Wellman, D., Santschi, P.H., 2014. Radioiodine biogeochemistry and prevalence in groundwater. *Critical reviews in environmental science and technology* 44, 2287-2335.

Karunakara, N., Ujwal, P., Yashodhara, I., Sudeep Kumara, K., Mohan, M.P., Bhaskar Shenoy, K., Geetha, P.V., Dileep, B.N., James, J.P., Ravi, P.M., 2018. Estimation of air-to-grass mass interception factors for iodine. *Journal of Environmental Radioactivity* 186, 71-77.

Katagiri, K., Shimizu, T., Akatsu, Y., Ishiguro, H., 1997. Study on the behavior of ^{129}I in the terrestrial environment.

Keppler, F., Biester, H., Putschew, A., Silk, P., Schöler, H., Müller, G., 2003. Organoiodine formation during humification in peatlands. *Environmental Chemistry Letters* 1, 219-223.

Kim, Y.S., 1989. Study on adsorption characteristics and deterioration patterns of an impregnated active carbon under a simulated service condition of the filtering system at a nuclear power plant.

Klement, A.W., 2019. Handbook of environmental radiation. CRC press.

Knapp, H.A., 1964. Iodine-131 in Fresh Milk and Human Thyroids Following a Single Deposition of Nuclear Test Fall-Out. *Nature* 202, 534-537.

Knight, D.H., 1973. Leaf area dynamics of a shortgrass prairie in Colorado. *Ecology* 54, 891-896.

Korobova, E., 2010. Soil and landscape geochemical factors which contribute to iodine spatial distribution in the main environmental components and food chain in the central Russian plain. *Journal of Geochemical Exploration* 107, 180-192.

Küpper, F.C., Carpenter, L.J., McFiggans, G.B., Palmer, C.J., Waite, T.J., Boneberg, E.-M., Woitsch, S., Weiller, M., Abela, R., Grolimund, D., 2008. Iodide accumulation provides kelp with an inorganic antioxidant impacting atmospheric chemistry. *Proceedings of the National Academy of Sciences* 105, 6954-6958.

Lai, S., Hoffmann, T., Xie, Z., 2008. Iodine speciation in marine aerosols along a 30,000 km round-trip cruise path from Shanghai, China to Prydz Bay, Antarctica. *Geophysical Research Letters* 35.

Lang, A., 1991. Application of some of Cauchy's theorems to estimation of surface areas of leaves, needles and branches of plants, and light transmittance. *Agricultural and Forest Meteorology* 55, 191-212.

Lebel, L.S., Dickson, R.S., Glowa, G.A., 2016. Radioiodine in the atmosphere after the Fukushima Dai-ichi nuclear accident. *Journal of environmental radioactivity* 151, 82-93.

Leblanc, C., Colin, C., Cosse, A., Delage, L., La Barre, S., Morin, P., Fiévet, B., Voiseux, C., Ambroise, Y., Verhaeghe, E., 2006. Iodine transfers in the coastal marine environment: the key role of brown algae and of their vanadium-dependent haloperoxidases. *Biochimie* 88, 1773-1785.

Lebourgeois, V., 1997. Le comportement de l'iode dans les organismes marins. Mémoire de maîtrise, Université de Caen.

Li, J., Wang, Y., Xie, X., Zhang, L., Guo, W., 2013. Hydrogeochemistry of high iodine groundwater: a case study at the Datong Basin, northern China. *Environmental Science: Processes & Impacts* 15, 848-859.

Lin, L., Chen, G., Chen, Y., 2011. Determination of iodine and its species in plant samples using ion chromatography-inductively coupled plasma mass spectrometry. *Se pu= Chinese journal of chromatography* 29, 662-666.

Lininger, R.L., Duce, R.A., Winchester, J.W., Matson, W.R., 1966. Chlorine, bromine, iodine, and lead in aerosols from Cambridge, Massachusetts. *Journal of Geophysical Research* 71, 2457-2463.

Liss, P., Herring, J., Goldberg, E., 1973. The Iodide/Iodate System in Seawater as a Possible Measure of Redox Potential. *Nature Physical Science* 242, 108-109.

Luther III, G.W., Campbell, T., 1991. Iodine speciation in the water column of the Black Sea. *Deep Sea Research Part A. Oceanographic Research Papers* 38, S875-S882.

Magomedova, L., Zyrin, N., Salmanov, A., 1970. Iodine in soils and rocks of the mountains of Dagestan. *Agrokhimiya*, 117-125.

Mahajan, A., Gómez Martín, J., Hay, T., Royer, S.-J., Yvon-Lewis, S., Liu, Y., Hu, L., Prados-Roman, C., Ordóñez, C., Plane, J., 2012. Latitudinal distribution of reactive iodine in the Eastern Pacific and its link to open ocean sources. *1foldr Import 2019-10-08 Batch 2*.

Mäkelä, J., Aalto, P., Jokinen, V., Pohja, T., Nissinen, A., Palmroth, S., Markkanen, T., Seitsonen, K., Lihavainen, H., Kulmala, M., 1997. Observations of ultrafine aerosol particle formation and growth in boreal forest. *Geophysical Research Letters* 24, 1219-1222.

Mäkelä, J., Hoffmann, T., Holzke, C., Väkevä, M., Suni, T., Mattila, T., Aalto, P., Tapper, U., Kauppinen, E.I., O'Dowd, C., 2002. Biogenic iodine emissions and identification of end-products in coastal ultrafine particles during nucleation bursts. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 107, PAR 14-11-PAR 14-14.

- Manley, S.L., 1984. MICRONUTRIENT UPTAKE AND TRANSLOCATION BY MACROCYSTIS PYRIFERA (PHAEOPHYTA) 1. *Journal of phycology* 20, 192-201.
- Maqua, M., Bonka, H., Horn, H., 1987. Deposition velocity and washout coefficient of radionuclides bound to aerosol particles and elemental radioiodine. *Radiation Protection Dosimetry* 21, 43-49.
- Markee, E., 1967. A parametric study of gaseous plume depletion by ground surface adsorption.
- Markee Jr, E., 1971. Studies of the Transfer of Radioiodine Gas to and from Natural Surfaces, Technical Memorandum ERL ARL-29. US National Oceanic and Atmospheric Administration, Air Resources ..., p. 28.
- Maro, D., 2013. Transfert des radionucléides sous forme de gaz et d'aérosols dans les environnements complexes: études expérimentales de dispersion atmosphérique et d'échanges aux interfaces. Mémoire d'habilitation à diriger des recherches, Université des Sciences de Nantes. IRSN, Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire.
- Marter, W., 1964. Radioiodine release incident at the Savannah River plant, *Biology of Radioiodine*. Elsevier, pp. 25-29.
- Martin, W., 1964. Loss of I131 from fallout-contaminated vegetation, *Biology of Radioiodine*. Elsevier, pp. 61-68.
- Martino, M., Mills, G.P., Woeltjen, J., Liss, P.S., 2009. A new source of volatile organoiodine compounds in surface seawater. *Geophysical Research Letters* 36.
- Masson, O., Baeza, A., Bieringer, J., Brudecki, K., Bucci, S., Cappai, M., Carvalho, F., Connan, O., Cosma, C., Dalheimer, A., 2011. Tracking of airborne radionuclides from the damaged Fukushima Dai-ichi nuclear reactors by European networks. *Environmental Science & Technology* 45, 7670-7677.
- Masson, O., Tschiersch, J., Lebel, L.S., Wershofen, H., Mietelski, J.W., Steinhauser, G., Blanchardon, É., Cantrel, L., Grégoire, A.-C., Quélo, D., 2019. Radioiodine Releases in Nuclear Emergency Scenarios, *Nuclear Emergencies*. Springer, pp. 175-204.

McFiggans, G., Bale, C., Ball, S., Beames, J., Bloss, W., Carpenter, L., Dorsey, J., Dunk, R., Flynn, M., Furneaux, K., 2010. Iodine-mediated coastal particle formation: an overview of the Reactive Halogens in the Marine Boundary Layer (RHAMBLE) Roscoff coastal study. *Atmos. Chem. Phys* 10, 2975-2999.

McMahon, T., Denison, P., 1979. Empirical atmospheric deposition parameters—a survey. *Atmospheric Environment* (1967) 13, 571-585.

Megaw, W., Chadwick, R., 1956. Some field experiments on the release and deposition of fission products and thoria. UK Atomic Energy Research Establishment, Harwell.

Mestayer, P., 2007. L 'atmosphère habitée: dynamique, thermodynamique et dispersion des polluants. Cours de l'Ecole Centrale de Nantes P 225.

Miyake, Y., Tsunogai, S., 1963. Evaporation of iodine from the ocean. *Journal of Geophysical Research* 68, 3989-3993.

Miyanaga, I., Kasai, A., Imai, K., 1973. A preliminary experiment on the deposition of gaseous radioiodine onto environmental materials. *Environmental behaviour of radionuclides released in the nuclear industry*, 157.

Momoshima, N., Sugihara, S., Ichikawa, R., Yokoyama, H., 2012. Atmospheric radionuclides transported to Fukuoka, Japan remote from the Fukushima Dai-ichi nuclear power complex following the nuclear accident. *Journal of environmental radioactivity* 111, 28-32.

Monin, A., Obukhov, A., 1954. Dimensionless characteristics of turbulence in the surface layer. *Akad. Nauk SSSR, Geofiz. Inst., Tr* 24, 163-187.

Moran, J.E., Oktay, S.D., Santschi, P.H., 2002. Sources of iodine and iodine 129 in rivers. *Water resources research* 38, 24-21-24-10.

Mourlon, C., 2014. Rapport IRSN "Amélioration de la différenciation des formes chimiques de l'iode dans SYMBIOSE : revue bibliographique". IRSN, pp. 1-47.

Moyers, J.L., Duce, R.A., 1972. Gaseous and particulate iodine in the marine atmosphere. *Journal of Geophysical Research* 77, 5229-5238.

Moyers, J.L., Zoller, W.H., Duce, R.A., 1971. Gaseous iodine measurements and their relationship to particulate lead in a polluted atmosphere. *Journal of the Atmospheric Sciences* 28, 95-98.

Müller, H., Pröhl, G., 1993. ECOSYS-87: A dynamic model for assessing radiological consequences of nuclear accidents. *Health Physics* 64, 232-252.

Muramatsu, Y., Christoffers, D., Ohmomo, Y., 1983. Influence of chemical forms on iodine uptake by plant. *Journal of radiation research* 24, 326-338.

Muramatsu, Y., Uchida, S., Sumiya, M., Ohmomo, Y., 1996. Deposition velocity of gaseous organic iodine from the atmosphere to rice plants. *Health physics* 71, 757-762.

Myrup, L., Ranzieri, A.J., 1976. A consistent scheme for estimating diffusivities to be used in air quality models.

Nemitz, E., 2015. Surface/atmosphere exchange of atmospheric acids and aerosols, including the effect and model treatment of chemical interactions, *Review and Integration of Biosphere-Atmosphere Modelling of Reactive Trace Gases and Volatile Aerosols*. Springer, pp. 115-149.

Nicholson, K., 1988. The dry deposition of small particles: a review of experimental measurements. *Atmospheric Environment* (1967) 22, 2653-2666.

Nissenbaum, A., 1977. Minor and trace elements in Dead Sea water. *Chemical Geology* 19, 99-111.

Noguchi, H., Murata, M., 1988. Physicochemical speciation of airborne ¹³¹I in Japan from Chernobyl. *Journal of Environmental Radioactivity* 7, 65-74.

Norman, J.M., Campbell, G.S., 1989. *Canopy structure, Plant physiological ecology*. Springer, pp. 301-325.

O'Dowd, C.D., Jimenez, J.L., Bahreini, R., Flagan, R.C., Seinfeld, J.H., Hämeri, K., Pirjola, L., Kulmala, M., Jennings, S.G., Hoffmann, T., 2002. Marine aerosol formation from biogenic iodine emissions. *Nature* 417, 632-636.

- Oram, D., Penkett, S., 1994. Observations in eastern England of elevated methyl iodide concentrations in air of Atlantic origin. *Atmospheric Environment* 28, 1159-1174.
- Padro, J., den Hartog, G., Neumann, H.H., 1991. An investigation of the ADOM dry deposition module using summertime O₃ measurements above a deciduous forest. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics* 25, 1689-1704.
- Panofsky, H.A., 1984. *Atmospheric turbulence. Models and methods for engineering applications.* 397.
- Panosfsky, H., Dutton, J., 1984. *Atmospheric turbulence: Models and methods for engineering applications.* NewYork: JohnWiley&Sons.
- Park, S.W., Lee, W.K., Moon, H., 1993. Adsorption and desorption of gaseous methyl iodide in a triethylenediamine-impregnated activated carbon bed. *Separations Technology* 3, 133-142.
- Parker, H., 1955. Radiation exposure from environmental hazards, *Proceedings of the International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy*, Geneva, Switzerland.
- Pearson Jr, R., Stedman, D., 1980. Instrumentation for fast-response ozone measurements from aircraft. *Atmos. Technol.;(United States)* 12.
- Pellerin, G., 2017. Quantification des vitesses de dépôt par temps sec et documentation des processus d'émission des aérosols sur couvert naturel: du nanomètre au micron.
- Pendleton, R.C., Lloyd, R.D., Mays, C.W., 1963. Iodine-131 in Utah during July and August 1962. *Science* 141, 640-642.
- Perel'man, A.I., Perel'man, A.I.i., 1977. *Geochemistry of elements in the supergene zone.* Israel Program for Scientific Translations.
- Petroff, A., Mailliat, A., Amielh, M., Anselmet, F., 2008. Aerosol dry deposition on vegetative canopies. Part II: A new modelling approach and applications. *Atmospheric Environment* 42, 3654-3683.

Pröhl, G., Twining, J.R., Crawford, J., 2012. Radiological consequences modelling, Radioactivity in the Environment. Elsevier, pp. 281-342.

Pryor, S., Gallagher, M., Sievering, H., Larsen, S.E., Barthelmie, R.J., Birsan, F., Nemitz, E., Rinne, J., Kulmala, M., Grönholm, T., 2008a. A review of measurement and modelling results of particle atmosphere-surface exchange. *Tellus B: Chemical and Physical Meteorology* 60, 42-75.

Pryor, S., Larsen, S.E., Sørensen, L.L., Barthelmie, R.J., 2008b. Particle fluxes above forests: Observations, methodological considerations and method comparisons. *Environmental Pollution* 152, 667-678.

Qi-dong, L., Sui-yuang, H., 1985. Study of adsorption properties of impregnated charcoal for airborne iodine and methyl iodide.

Raupach, M., 1994. Simplified expressions for vegetation roughness length and zero-plane displacement as functions of canopy height and area index. *Boundary-layer meteorology* 71, 211-216.

Renoux, A., Boulaud, D., 1998. Les aérosols: physique et métrologie. Tec & Doc Lavoisier.

Roulier, M., 2018. Cycle biogéochimique de l'iode en écosystèmes forestiers. Pau.

Ruijrok, W., Davidson, C.I., W. NICHOLSON, K., 1995. Dry deposition of particles. *Tellus B* 47, 587-601.

Saenko, G., Kravtsova, Y., Ivanenko, V., Sheludko, S., 1978. Concentration of iodine and bromine by plants in the seas of Japan and Okhotsk. *Marine Biology* 47, 243-250.

Saiz-Lopez, A., Plane, J.M., Baker, A.R., Carpenter, L.J., von Glasow, R., Gómez Martín, J.C., McFiggans, G., Saunders, R.W., 2012. Atmospheric chemistry of iodine. *Chemical reviews* 112, 1773-1804.

Saiz-Lopez, A., Plane, J.M., 2004. Novel iodine chemistry in the marine boundary layer. *Geophysical research letters* 31.

- Sandell, E.B., Kolthoff, I.M., 1937. Micro determination of iodine by a catalytic method. *Microchimica Acta* 1, 9-25.
- Sehmel, G.A., 1980. Particle and gas dry deposition: A review. *Atmospheric Environment* (1967) 14, 983-1011.
- Seinfeld, J.H., 1985. *Atmospheric Chemistry and Physics of Air Pollution* Wiley. New York 986.
- Seinfeld, J.H., Pandis, S.N., 1998. From air pollution to climate change. *Atmospheric Chemistry and Physics* 1326.
- Seinfeld, J.H., Pandis, S.N., 2016. *Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change*. John Wiley & Sons.
- Sievering, H., 1989. The dry deposition of small particles: A review of experimental measurement. *AtmEn* 23, 2863-2864.
- Silverio, L.B., de Queiroz Lamas, W., 2011. An analysis of development and research on spent nuclear fuel reprocessing. *Energy Policy* 39, 281-289.
- Singhal, R., Narayanan, U., Gurg, R., 2004. Estimation of deposition velocities for ⁸⁵Sr, ¹³¹I, ¹³⁷Cs on spinach, radish and beans leaves in a tropical region under simulated fallout conditions. *Water, air, and soil pollution* 158, 181-192.
- Smith, J.D., Butler, E.C., 1979. Speciation of dissolved iodine in estuarine waters. *Nature* 277, 468-469.
- Smyth, D., Johnson, C.C., 2011. Distribution of iodine in soils of Northern Ireland. *Geochemistry: Exploration, Environment, Analysis* 11, 25-39.
- Soldat, J., 1964. The relationship between I131 concentrations in various environmental samples, *Biology of Radioiodine*. Elsevier, pp. 87-91.
- Sportisse, B., 2007. A review of parameterizations for modelling dry deposition and scavenging of radionuclides. *Atmospheric Environment* 41, 2683-2698.

- Stemmler, I., Hense, I., Quack, B., Maier-Reimer, E., 2013. Methyl iodide production in the open ocean. *Biogeosciences Discussions* 10.
- Stewart, N., Crooks, R., 1958. Long-range travel of the radioactive cloud from the accident at Windscale. *Nature (London)* 182.
- Stull, R.B., 1988. Mean boundary layer characteristics, *An Introduction to Boundary Layer Meteorology*. Springer, pp. 1-27.
- Stull, R.B., 2012. *An introduction to boundary layer meteorology*. Springer Science & Business Media.
- Takeyasu, M., Sumiya, S., 2014. Estimation of dry deposition velocities of radionuclides released by the accident at the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant. *Progress in Nuclear Science and Technology* 4, 20.
- Tang, Q., Xu, Q., Zhang, F., Huang, Y., Liu, J., Wang, X., Yang, Y., Liu, X., 2013. Geochemistry of iodine-rich groundwater in the Taiyuan Basin of central Shanxi Province, North China. *Journal of Geochemical Exploration* 135, 117-123.
- Tasdemir, Y., Odabasi, M., Vardar, N., Sofuoglu, A., Murphy, T.J., Holsen, T.M., 2004. Dry deposition fluxes and velocities of polychlorinated biphenyls (PCBs) associated with particles. *Atmospheric Environment* 38, 2447-2456.
- Tennekes, H., 1972. Lumley; JL (1972) *A first course in turbulence*. The MIT Press.
- Tigeras, A., Bachet, M., Catalette, H., Simoni, E., 2011. PWR iodine speciation and behaviour under normal primary coolant conditions: An analysis of thermodynamic calculations, sensibility evaluations and NPP feedback. *Progress in Nuclear Energy* 53, 504-515.
- Truesdale, V.W., 1978. Iodine in inshore and off-shore marine waters. *Marine Chemistry* 6, 1-13.
- Truesdale, V.W., 2008. The biogeochemical effect of seaweeds upon close-to natural concentrations of dissolved iodate and iodide in seawater-Preliminary study with *Laminaria digitata* and *Fucus serratus*. *Estuarine, Coastal and Shelf Science* 78, 155-165.

Tschiersch, J., Shinonaga, T., Heuberger, H., 2009. Dry deposition of gaseous radioiodine and particulate radiocaesium onto leafy vegetables. *Science of the total environment* 407, 5685-5693.

Tsunogai, S., 1971. Iodine in the deep water of the ocean, *Deep Sea Research and Oceanographic Abstracts*. Elsevier, pp. 913-919.

Tsunogai, S., Sase, T., 1969. Formation of iodide-iodine in the ocean, *Deep Sea Research and Oceanographic Abstracts*. Elsevier, pp. 489-496.

Turbelin, G., 2000. Modélisation de la turbulence atmosphérique en vue de l'étude du chargement aérodynamique des structures soumises aux effets du vent.

Van der Hoven, I., 1957. Power spectrum of horizontal wind speed in the frequency range from 0.0007 to 900 cycles per hour. *Journal of meteorology* 14, 160-164.

Van Muylder, J., Pourbaix, M., 1966. Establishment and Interpretation of Potential-pH Equilibrium Diagram of P, *Atlas of Electrochemical Equilibria in Aqueous Solutions*. Pergamon Press, Cebelcor Brussels.

Vogt, K.J., 1976. Propagation of Pollutants in the Atmosphere and Stress on the Environment. Pacific Northwest Lab.

Voogt, W., Holwerda, H.T., Khodabaks, R., 2010. Biofortification of lettuce (*Lactuca sativa* L.) with iodine: the effect of iodine form and concentration in the nutrient solution on growth, development and iodine uptake of lettuce grown in water culture. *Journal of the Science of Food and Agriculture* 90, 906-913.

Watts, M., Mitchell, C., 2009. A pilot study on iodine in soils of Greater Kabul and Nangarhar provinces of Afghanistan. *Environmental geochemistry and health* 31, 503.

Wershofen, H., Aumann, D., 1989. Iodine-129 in the environment of a nuclear fuel reprocessing plant: VII. Concentrations and chemical forms of ¹²⁹I and ¹²⁷I in the atmosphere. *Journal of environmental radioactivity* 10, 141-156.

- Wesely, M., Eastman, J.A., Stedman, D.H., Yalvac, E., 1982. An eddy-correlation measurement of NO₂ flux to vegetation and comparison to O₃ flux. *Atmospheric Environment* (1967) 16, 815-820.
- Wesely, M., Hicks, B., 2000. A review of the current status of knowledge on dry deposition. *Atmospheric environment* 34, 2261-2282.
- Wesely, M.L., 1989. Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models. *Atmospheric Environment* (1967) 23, 1293-1304.
- Whelpdale, D., Shaw, R., 1974. Sulphur dioxide removal by turbulent transfer over grass, snow, and water surfaces. *Tellus* 26, 196-205.
- Whitby, K., Sverdrup, G., 1980. California aerosols-their physical and chemical characteristics. *Adv. Environ. Sci. Technol.;*(United States) 9.
- Whitehead, D., 1984a. The distribution and transformations of iodine in the environment. *Environment International* 10, 321-339.
- Whitehead, D.C., 1984b. The distribution and transformations of iodine in the environment. *Environment International* 10, 321-339.
- Wilding, R., Cataldo, D., Garland, T., 1986. Volatilization of iodine from soils and plants, Speciation of fission and activation products in the environment.
- Wishkerman, A., 2006. Bromine and iodine in plant-soil systems.
- Wong, G.T., 1980. The stability of dissolved inorganic species of iodine in seawater. *Marine Chemistry* 9, 13-24.
- Xu, S., Zhang, L., Freeman, S.P., Hou, X., Shibata, Y., Sanderson, D., Cresswell, A., Doi, T., Tanaka, A., 2015. Speciation of radiocesium and radioiodine in aerosols from Tsukuba after the Fukushima nuclear accident. *Environmental science & technology* 49, 1017-1024.

Yiou, F., Raisbeck, G., Zhou, Z., Kilius, L., 1994. ¹²⁹I from nuclear fuel reprocessing; potential as an oceanographic tracer. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 92, 436-439.

Zhang, L., Brook, J.R., Vet, R., 2002a. On ozone dry deposition—with emphasis on non-stomatal uptake and wet canopies. *Atmospheric Environment* 36, 4787-4799.

Zhang, L., Brook, J.R., Vet, R., 2003a. Evaluation of a non-stomatal resistance parameterization for SO₂ dry deposition. *Atmospheric Environment* 37, 2941-2947.

Zhang, L., Brook, J.R., Vet, R., 2003b. A revised parameterization for gaseous dry deposition in air-quality models. *Atmos. Chem. Phys.* 3, 2067-2082.

Zhang, L., Moran, M.D., Makar, P.A., Brook, J.R., Gong, S., 2002b. Modelling gaseous dry deposition in AURAMS: a unified regional air-quality modelling system. *Atmospheric Environment* 36, 537-560.

Zhang, L., Vet, R., 2006. A review of current knowledge concerning size-dependent aerosol removal. *China Particuology* 4, 272-282.

Zhao, J., Wang, P., Shang, L., Sullivan, K.M., Van Der Haar, F., Maberly, G., 2000. Endemic goiter associated with high iodine intake. *American journal of public health* 90, 1633.

Zimbrick, J., Voilleque, P., 1969. Controlled environmental radioiodine tests at the national reactor testing station, Progress Report No. 4, IDO 12065. US Dept. of Commerce Springfields, Va. 22151.

Zufall, M., Davidson, C., 1998. Dry deposition of particles from the atmosphere, Air pollution in the Ural Mountains. Springer, pp. 55-73.

Zyrin, N., Imadi, T.K., 1967. Iodine in soils of the Russian Plain and Crimea. *Agr- khimiia*, 1.

ANNEXES

ANNEXE I. Influence des paramètres météorologiques sur les résistances de surface calculées à l'aide du modèle durant les campagnes MIOSEC 2 et 3

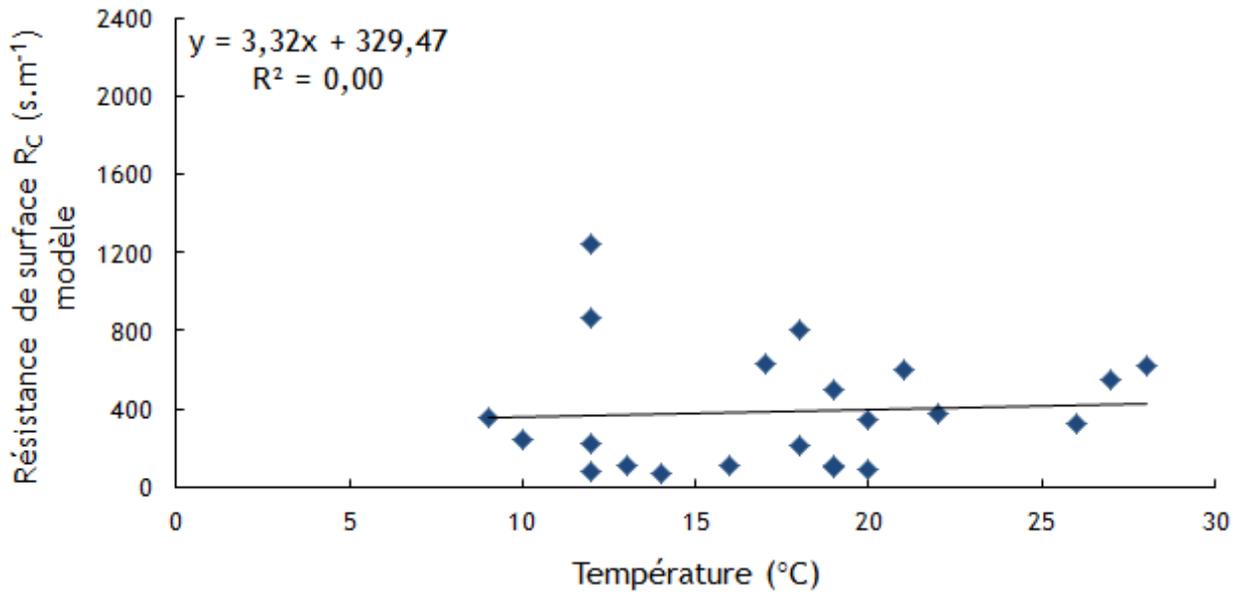


Figure ANNEXE I.1 : Influence de la température sur Rc calculée.

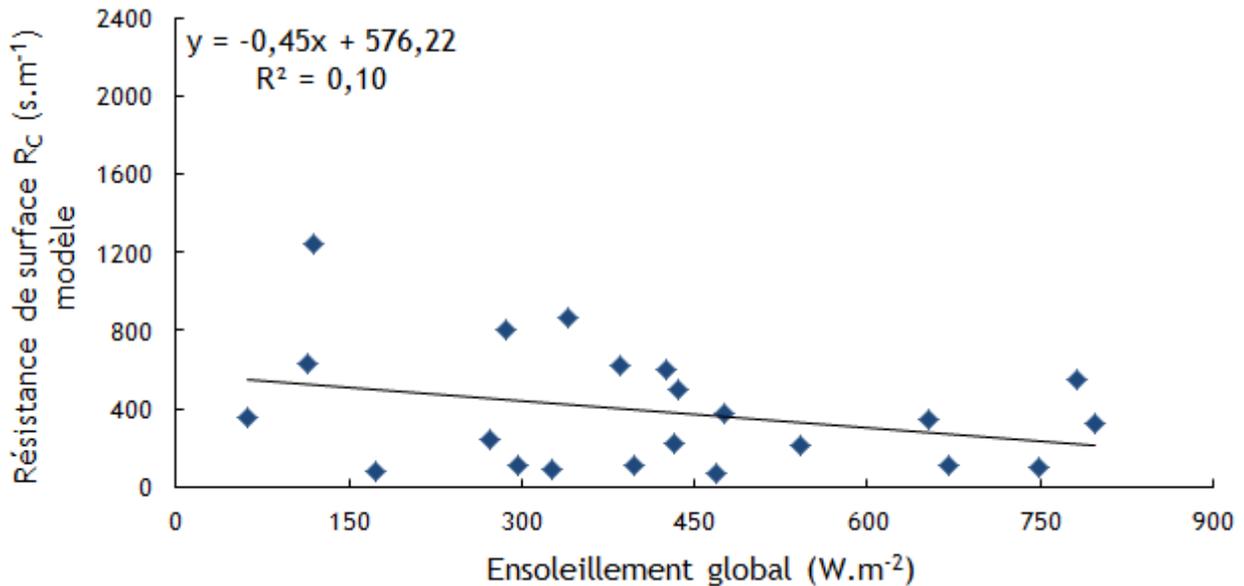


Figure ANNEXE I.2 : Influence de l'ensoleillement global sur Rc calculée.

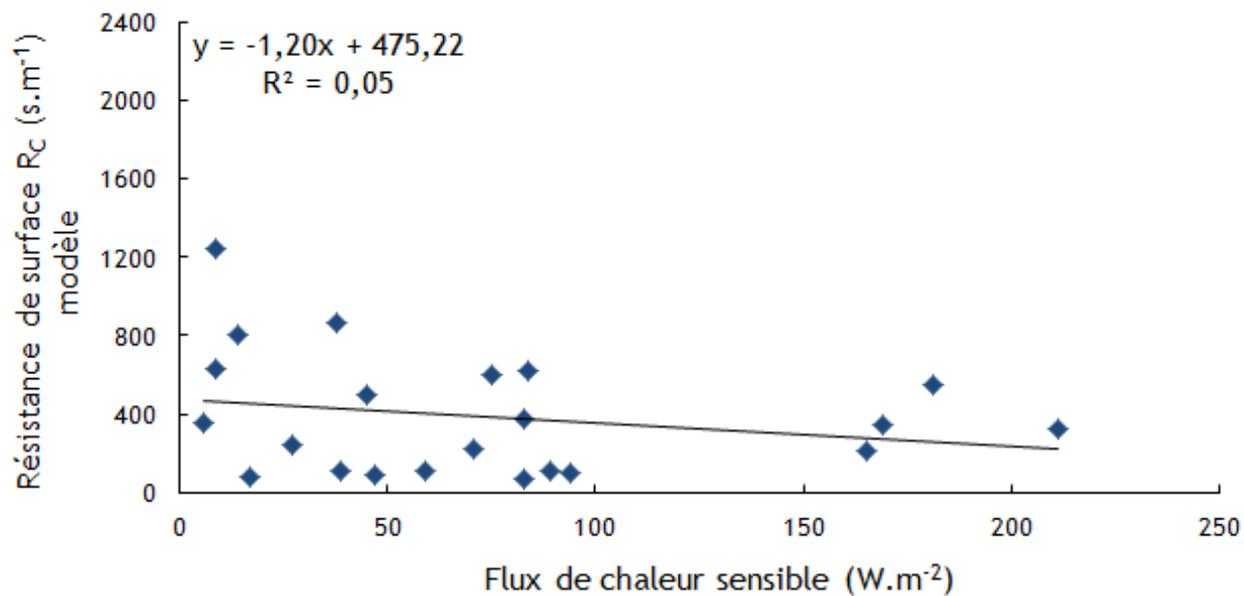


Figure ANNEXE I.3 : Influence du flux de chaleur sensible sur R_c calculée.

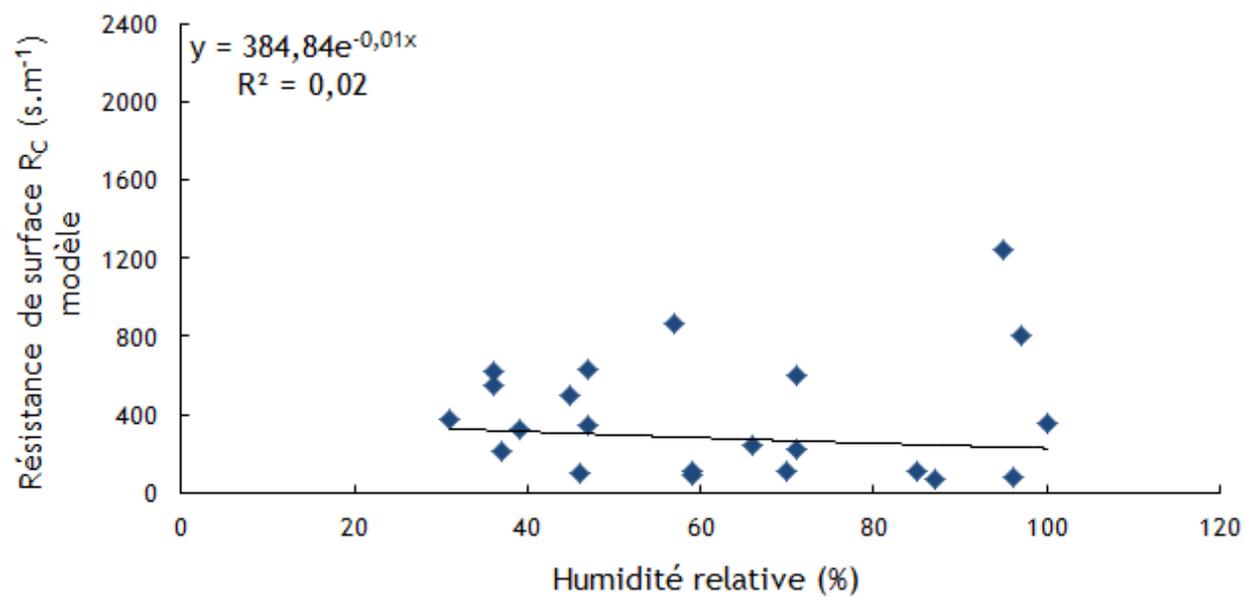


Figure ANNEXE I.4 : Influence de l'humidité relative sur R_c calculée.

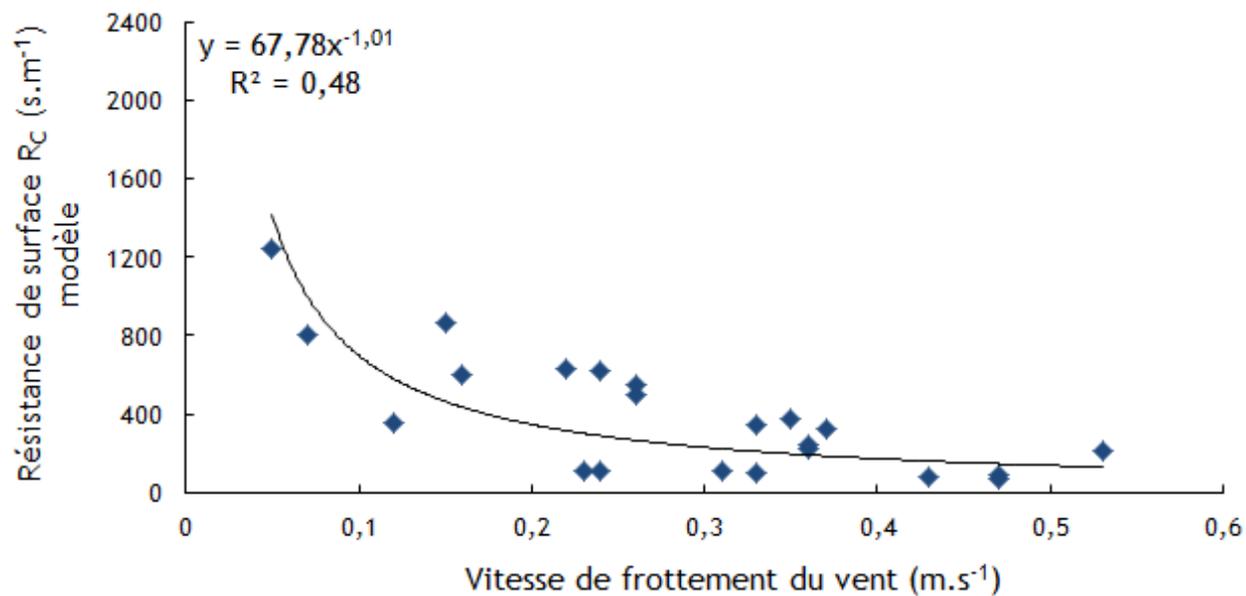


Figure ANNEXE I.5 : Influence de la vitesse de frottement du vent sur R_c calcul e.

ANNEXE II. Activité d'¹²⁹I gazeux et particulaire dans l'air et sur l'herbe au niveau de la plateforme technique IRSN La Hague

Tableau ANNEXE II.1 : Activité d'¹²⁹I gazeux dans l'air à la PTILH.

Date heure début	Date heure fin	Volume d'air (m ³)	Activité d' ¹²⁹ I gazeux (mBq)	Incertitude (mBq)
19/10/2018 12:53	09/11/2018 10:09	20177	100,0	15,0
09/11/2018 10:30	28/11/2018 11:30	19409	688,2	82,6
28/11/2018 12:00	10/12/2018 13:00	11440	407,1	48,8
10/12/2018 13:30	21/12/2018 10:45	14461	411,0	48,0
21/12/2018 11:20	09/01/2019 09:25	25771	339,0	48,4
09/01/2019 09:45	25/01/2019 10:54	15738	176,9	25,8
25/01/2019 11:16	11/02/2019 12:45	19848	445,1	65,2
12/02/2019 14:30	01/03/2019 09:50	23544	2507,8	305,3
01/03/2019 10:52	19/03/2019 12:05	22187	845,4	96,8
19/03/2019 14:15	05/04/2019 10:00	24172	171,9	31,4
05/04/2019 10:32	23/04/2019 12:47	24671	691,1	81,6
23/04/2019 13:13	07/05/2019 11:30	19364	431,9	55,5
07/05/2019 12:07	16/05/2019 11:10	12877	202,3	36,9
16/05/2019 11:26	29/05/2019 12:50	17591	156,5	29,6
29/05/2019 13:12	14/06/2019 12:05	19961	321,4	48,4
14/06/2019 12:53	26/06/2019 09:18	17058	310,5	45,8
26/06/2019 09:43	10/07/2019 11:12	19773	170,1	36,2
10/07/2019 14:36	24/07/2019 11:52	19947	363,9	51,2
24/07/2019 12:27	06/08/2019 13:30	15975	302,1	37,9

Tableau ANNEXE II.1 : (suite).

Date heure début	Date heure fin	Volume d'air (m ³)	Activité d' ¹²⁹ I gazeux (mBq)	Incertitude (mBq)
06/08/2019 13:46	20/08/2019 11:30	19854	450,5	55,0
20/08/2019 12:00	04/09/2019 13:15	21579	458,2	62,0
04/09/2019 13:50	19/09/2019 08:25	20957	277,0	40,0
19/09/2019 08:54	08/10/2019 08:48	23667	1021,2	110,2
08/10/2019 09:30	22/10/2019 08:32	16571	239,2	34,6
22/10/2019 09:00	08/11/2019 09:05	24484	333,0	43,2
08/11/2019 10:08	22/11/2019 13:00	15799	128,2	21,3
22/11/2019 14:50	10/12/2019 09:45	25353	344,9	47,6

Tableau ANNEXE II.2 : Activité d'¹²⁹I particulaire dans l'air à la PTILH.

Date heure début	Date heure fin	Volume d'air (m ³)	Activité d' ¹²⁹ I particulaire (mBq)	Incertitude (mBq)
19/10/2018 12:53	09/11/2018 10:09	20177	17,0	10,9
09/11/2018 10:30	28/11/2018 11:30	19409	117,0	17,0
28/11/2018 12:00	10/12/2018 13:00	11440	69,2	15,9
10/12/2018 13:30	21/12/2018 10:45	14461	69,0	13,3
21/12/2018 11:20	09/01/2019 09:25	25771	27,0	12,5
09/01/2019 09:45	25/01/2019 10:54	15738	34,5	9,4
25/01/2019 11:16	11/02/2019 12:45	19848	47,0	11,2
12/02/2019 14:30	01/03/2019 09:50	23544	625,0	67,0
01/03/2019 10:52	19/03/2019 12:05	22187	27,0	10,6
19/03/2019 14:15	05/04/2019 10:00	24172	49,1	13,8
05/04/2019 10:32	23/04/2019 12:47	24671	183,8	18,6
23/04/2019 13:13	07/05/2019 11:30	19364	29,5	10,3
07/05/2019 12:07	16/05/2019 11:10	12877	11,4	4,2
16/05/2019 11:26	29/05/2019 12:50	17591	17,8	6,1
29/05/2019 13:12	14/06/2019 12:05	19961	22,0	6,1
14/06/2019 12:53	26/06/2019 09:18	17058	20,0	6,3
26/06/2019 09:43	10/07/2019 11:12	19773	46,3	9,3
10/07/2019 14:36	24/07/2019 11:52	19947	30,2	6,6
24/07/2019 12:27	06/08/2019 13:30	15975	23,4	4,1
06/08/2019 13:46	20/08/2019 11:30	19854	23,4	8,1
20/08/2019 12:00	04/09/2019 13:15	21579	25,0	8,9

Tableau ANNEXE II.2 : (suite).

Date heure début	Date heure fin	Volume d'air (m ³)	Activité d' ¹²⁹ I particulaire (mBq)	Incertitude (mBq)
04/09/2019 13:50	19/09/2019 08:25	20957	18,0	6,0
19/09/2019 08:54	08/10/2019 08:48	23667	120,5	14,4
08/10/2019 09:30	22/10/2019 08:32	16571	18,6	6,6
22/10/2019 09:00	08/11/2019 09:05	24484	31,3	6,2
08/11/2019 10:08	22/11/2019 13:00	15799	21,8	5,6
22/11/2019 14:50	10/12/2019 09:45	25353	42,2	7,0

Tableau ANNEXE II.3 : Activité d'¹²⁹I (gazeux et particulaire) dans l'herbe à la PTILH.

Date heure début	Date heure fin	Surface (m ²)	Herbe Poids sec (g)	Activité d' ¹²⁹ I (mBq)	Incertitude (mBq)
09/10/2018 14:30	09/11/2018 09:00	2	147,5	84,8	26,7
09/11/2018 09:30	10/12/2018 10:00	2	131,6	271,6	43,1
10/12/2018 10:30	09/01/2019 10:40	2	146,0	135,9	34,6
09/01/2019 11:15	11/02/2019 13:30	2	181,1	152,6	41,3
12/02/2019 15:15	19/03/2019 12:30	2	326,0	794,6	173,9
19/03/2019 13:30	23/04/2019 12:00	2	414,5	432,1	86,4
23/04/2019 12:35	16/05/2019 10:30	2	570,0	251,4	102,4
16/05/2019 11:15	14/06/2019 11:00	2	303,3	103,6	55,1
14/06/2019 12:00	10/07/2019 12:30	2	378,0	142,4	57,0
10/07/2019 13:30	06/08/2019 12:15	2	278,3	256,3	77,5
06/08/2019 14:00	04/09/2019 12:10	2	298,7	170,8	64,4
04/09/2019 13:10	08/10/2019 07:30	1	197,7	338,6	69,2
08/10/2019 08:00	08/11/2019 08:25	1	191,9	148,1	53,8
08/11/2019 09:00	10/12/2019 09:30	1	148,0	104,8	35,3

ANNEXE III. Rapports ^{129}I Gazeux/ ^{129}I Total recalculés au niveau de la PTILH en fonction de l'activité totale d' ^{129}I

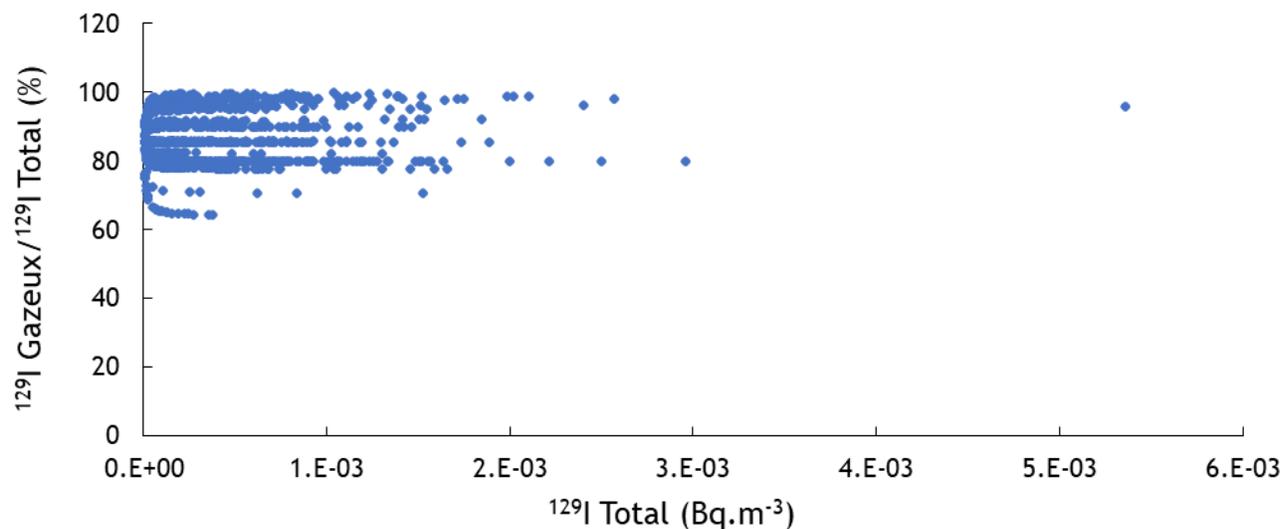


Figure ANNEXE III : Evolution des rapports ^{129}I Gazeux/ ^{129}I Total recalculés au niveau de la PTILH en fonction de l'activité totale d' ^{129}I .

