

Étude par simulation sur modèles numériques du temps de séjour des aérosols dans la troposphère

Par ALAIN MARENCO et JACQUES FONTAN, *Physique des Aérosols et Echanges Atmosphériques, Centre de Physique Atomique, Université Paul Sabatier, Toulouse, France*

(Manuscrit reçu le 24 Janvier 1972; révisé le 14 Juin 1972)

RÉSUMÉ

Des sources complémentaires de ^{210}Po ont été envisagées dans la littérature pour expliquer les écarts entre les temps de séjour obtenus à partir des descendants à longue période du radon.

Une étude sur modèles numériques du temps de séjour des aérosols dans la troposphère, appliquée aux descendants du radon (^{210}Pb , ^{210}Bi , ^{210}Po) et aux éléments cosmogéniques (^7Be , ^{32}P), montre qu'il ne faut négliger ni l'influence des phénomènes d'échanges verticaux ni la localisation des processus d'élimination (lessivage, dépôt sec) et que le temps de séjour d'un aérosol dépend principalement de son altitude de formation. On souligne par ailleurs la nécessité d'intégrer les mesures dans le temps et dans l'espace, étant donné l'influence importante des discontinuités (source, élimination) sur la détermination des temps de séjour troposphériques. On montre enfin que les ^{210}Pb et ^{210}Bi sont représentatifs de la basse troposphère, le ^{210}Po de l'ensemble de la troposphère et le ^7Be de la haute troposphère.

Introduction

Les aérosols en suspension dans l'air sont éliminés au niveau de la troposphère par les précipitations et par dépôt sec au sol. Pour caractériser leur élimination d'un réservoir donné (atmosphère, tranche d'atmosphère), de nombreux auteurs ont utilisé la notion de temps de séjour qui correspond à leur durée de vie moyenne dans ce réservoir. Dans le cas d'un élément radioactif, la disparition s'effectuant aussi par désintégration radioactive, la durée de vie dépend alors de la période λ de l'élément. Aussi définit-on le temps de séjour τ comme la durée de vie moyenne d'un élément stable, de façon à ce qu'il soit représentatif des seules pertes par dépôts sec et humide. En pratique, τ est déterminé au moyen d'indicateurs radioactifs en éliminant l'influence des pertes par désintégration.

Les auteurs, négligeant en général l'influence des phénomènes d'échanges verticaux, ont considéré la troposphère comme un réservoir bien mélangé, avec un temps de séjour commun à tous les éléments. Les résultats expérimentaux

dépendent en fait des éléments considérés. En particulier, différentes valeurs de τ ayant été obtenues en utilisant les rapports d'activités entre les descendants à longue période du radon ($^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ et $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$), certains auteurs ont envisagé des sources complémentaires de ^{210}Po dans l'atmosphère pour expliquer ces écarts (Martell & Poet, 1969; Martell, 1970; Martell & Poet, 1970; Vilenskiy, 1970).

Nous avons montré dans une étude précédente que cette hypothèse n'était pas vérifiée, tout au moins dans le sud de la France où nous avons effectué de nombreuses mesures (Marengo & Fontan 1972). Nous pensons, en ce qui nous concerne, qu'il ne faut négliger ni les phénomènes d'échanges verticaux ni la localisation des processus d'élimination (étage nuageux, sol) et que le temps de séjour d'un élément dépend surtout de l'altitude de sa source de production.

Nous avons donc cherché, en utilisant des modèles numériques simples, à montrer l'importance de ces paramètres, en particulier au voisinage des discontinuités (sources, phénomènes de lessivage).

I. Principe de la détermination des temps de séjour troposphériques à l'aide de traceurs radioactifs

1.1. GÉNÉRALITÉS

Il n'est pas possible de rendre compte, à la fois et de manière simple, de tous les processus d'échanges verticaux (diffusion moléculaire et turbulente, convection, phénomènes de convergence au niveau des masses d'air ...). Comme l'on fait avant nous plusieurs auteurs (Jacobi & André, 1960; Davidson et al., 1966; Karol, 1966, 1970; Machta, 1966; Machta et al., 1970; Seitz et al., 1968), nous simulerons ces phénomènes d'échanges verticaux en utilisant une équation de diffusion. Cette équation n'est bien sûr qu'une manière très simplifiée de représenter le transport vertical des aérosols dans l'atmosphère, puisqu'elle ne décrit pas, en particulier, les processus intervenant à l'échelle de la circulation générale. Elle est cependant une approximation commode et les coefficients de diffusion utilisés en ce cas sont des coefficients d'échange moyens, ne dépendant que de l'altitude (troposphère, stratosphère), qui englobent l'ensemble des mouvements verticaux allant de l'échelle moléculaire à celle de la circulation générale. (Nous négligerons dans cette étude l'influence des mouvements méridiens sur la répartition verticale des aérosols.)

L'équation générale tient compte des sources et des pertes (en supposant les pertes par lessivage proportionnelles à la concentration); elle s'écrit, dans un volume donné, de la manière simplifiée suivante :

$$\frac{\partial X_i}{\partial t} = \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial z} \left(\rho K_z \frac{\partial X_i}{\partial z} \right) - \left(u_x \frac{\partial X_i}{\partial x} + u_y \frac{\partial X_i}{\partial y} + u_z \frac{\partial X_i}{\partial z} \right) + v_g \frac{\partial X_i}{\partial z} - (\lambda_i + \varepsilon \Lambda_i) X_i + Q_i \quad (1)$$

avec :

x, y : coordonnées horizontales

z : altitude

$X_i = X_i(x, y, z, t)$: concentration de l'élément i

u_x, u_y, u_z : composantes de la vitesse du vent

v_g : vitesse de sédimentation

$K_z = K_z(z)$: coefficient d'échange vertical

λ_i : constante radioactive de l'élément i

$\rho = \rho(z)$: masse spécifique de l'air

ε : efficacité de lessivage, fonction du diamètre des aérosols (elle comprend à la fois les phénomènes de lessivage par capture des aérosols au niveau du nuage — « rainout » — et par chute de la pluie — « washout » —) (Junge, 1963b; Storebø, 1965).

$\Lambda_i = \Lambda_i(z, t)$: coefficient de lessivage par voie humide (nul pour le radon)

$Q_i = Q_i(x, y, z, t)$: production (avec dans le cas des descendants du radon $Q_i = \lambda_{i-1} X_{i-1}(x, y, z, t)$).

On fait intervenir le dépôt sec, dans les conditions aux limites, par l'intermédiaire d'une vitesse de déposition β .

1.2. CALCUL DES TEMPS DE SÉJOUR

A. Hypothèses simplificatrices

Les auteurs ont dans tous les cas effectué les simplifications suivantes :

— source stratifiée et indépendante du temps : $Q_i = Q_i(z)$

— composante verticale du vent négligeable devant les phénomènes d'échanges verticaux ($u_z = 0$)

— diamètre des aérosols constant et voisin de 0.3μ (aérosols troposphériques). D'où : $\varepsilon = 1$; seul intervient alors le lessivage par « rainout » car l'efficacité de capture par la chute de la pluie est négligeable pour des particules de cette dimension (Junge, 1963b)

— vitesse de sédimentation négligeable étant donné le faible diamètre des aérosols ($v_g = 0$)

— coefficient de lessivage Λ_i constant dans le temps et dans l'espace

— regime stationnaire : $\partial X_i / \partial t = 0$

Certains auteurs ont tenu compte des phénomènes d'échanges verticaux (Jacobi & André, 1960; Machta, 1966; Seitz et al. 1968; Machta et al., 1970). L'équation (1) se réduit alors à :

$$\frac{1}{\rho(z)} \frac{\partial}{\partial z} \left(K_z(z) \rho(z) \frac{\partial X_i(z)}{\partial z} \right) - (\lambda_i + \Lambda_i) X_i(z) + Q_i(z) = 0 \quad (2)$$

Cependant, ils ont pour la plupart négligé l'influence des phénomènes de diffusion et considéré :

— un volume bien mélangé (X_i indépendant

de z), étanche et sans pertes sur les parois (pas de dépôt sec)

— une source uniformément répartie dans le volume (taux de production moyen). D'où l'équation simplifiée :

$$Q_i = (\lambda_i + \Lambda_i) X_i \quad (3)$$

et le temps de séjour τ a pour expression : $\tau = 1/\Lambda_i$ (par analogie et pour la commodité de l'écriture, on appellera « temps de lessivage » τ_i l'inverse du coefficient de lessivage). On a donc dans le cas où l'on ne considère pas de dépôt sec : $\tau = \tau_i$.

B. Discussion

Lorsque l'on considère un dépôt sur les parois du volume (dépôt sec), on a toujours l'équation (3), mais Λ_i n'a plus la même signification et englobe à la fois le dépôt sec et le dépôt humide. On écrira alors l'équation de la manière suivante :

$$Q_i = (\lambda_i + \Lambda) X_i \quad (4)$$

avec un coefficient Λ comprenant l'ensemble des pertes non radioactives (dépôts sec et humide) et différent du coefficient de lessivage Λ_i . On peut ramener la troposphère à ce cas simplifié, à condition de la considérer comme un volume étanche, avec un dépôt au sol et un lessivage homogène. Il est alors possible de calculer τ au moyen de l'équation (4) en prenant pour X_i et Q_i les valeurs des contenus et productions troposphériques.

En fait, les auteurs ont généralement calculé des temps de séjour à différentes altitudes en appliquant l'équation (4) à des mesures réalisées à des niveaux donnés (air au sol, pluies, mesures en altitude). Or, étant donné les phénomènes d'échanges verticaux et la localisation des sources et des phénomènes d'élimination, l'équation réelle d'équilibre, dans une couche non étanche, est :

$$Q_i + \phi_i = (\lambda_i + \Lambda) X_i \quad (5)$$

avec ϕ_i : bilan des flux échangés.

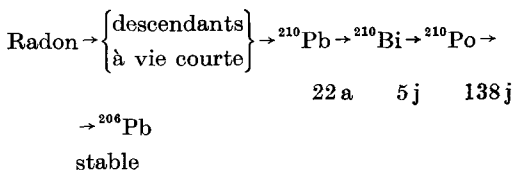
Le calcul des temps de séjour au moyen de l'équation (4) conduit alors à des « temps de séjour apparents » τ_a , différents des temps de séjour effectifs τ dans la couche considérée. On ne peut donc appliquer une équation d'équilibre de la forme (4) qu'à la condition de con-

siderer la troposphère dans son ensemble et d'intégrer verticalement les profils de concentration pour obtenir les valeurs des contenus troposphériques.

1.3. RÉSULTATS DES TRAVAUX ANTÉRIEURS

A. Descendants à longue période du radon

La chaîne de désintégration du radon peut se résumer :



A.a. L'application de l'équation (4) aux descendants à longue période du radon permet de calculer le temps de séjour $\tau = 1/\Lambda$ à partir des rapports d'activités, en le supposant indépendant de l'élément considéré :

$${}^{210}\text{Bi}/{}^{210}\text{Pb} = \lambda_{\text{Bi}}/(\lambda_{\text{Bi}} + \Lambda) \quad (4-a)$$

$${}^{210}\text{Po}/{}^{210}\text{Pb} = (\lambda_{\text{Bi}} \lambda_{\text{Po}})/((\lambda_{\text{Bi}} + \Lambda)(\lambda_{\text{Po}} + \Lambda)) \quad (4-b)$$

Certains auteurs ont déterminé τ à partir des valeurs du rapport ${}^{210}\text{Po}/{}^{210}\text{Pb}$ ou ${}^{210}\text{Bi}/{}^{210}\text{Pb}$ dans l'air près du sol ou dans les précipitations (cf. Tableau 1) (Lehmann & Sittkus, 1959; Peirson et al., 1966; Bhandari et al., 1970).

D'autres auteurs (Burton & Stewart, 1960; Lambert & Nezami, 1965; Nezami, 1966) ont estimé qu'une fraction du ${}^{210}\text{Po}$ était d'origine stratosphérique et ils ont corrigé les valeurs obtenues dans les précipitations (cf. Tableau 1). Lambert, en particulier, a proposé une formule tenant compte de la croissance des activités dans la fraction troposphérique (f_i) :

$$\begin{aligned} {}^{210}\text{Po}/{}^{210}\text{Pb} &= (\lambda_{\text{Bi}} \lambda_{\text{Po}}) (1 - (f_i/e) (1 - \lambda_{\text{Po}}/\Lambda)) / \\ &((\lambda_{\text{Bi}} + \Lambda) (\lambda_{\text{Po}} + \Lambda)) \end{aligned} \quad (4-c)$$

Quelques auteurs enfin (Martell et Poet, 1969; Martell, 1970; Martell & Poet 1970; Vilenky, 1970) ont envisagé d'autres sources complémentaires de ${}^{210}\text{Po}$ dans la troposphère afin d'expliquer les écarts entre les temps de séjour calculés à partir des rapports d'activités

Tableau 1. Principales déterminations expérimentales du temps de séjour troposphérique τ , à partir des rapports d'activités $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ et $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$

Auteur	Année	Méthode	τ	Remarque
Lehmann & Sittkus	1959	Po/Pb (air au sol)	14 j	équation (4)
		Po/Pb (pluies)	33 j	équation (4)
Peirson et al.	1966	Po/Pb (air au sol)	40 j	équation (4)
Bhandari et al.	1970	Bi/Pb (pluies : 0.80)	30 j	équation (4)
Burton & Stewart	1960	Po/Pb (pluies : 0.11)	22 j	correction par fraction d'origine stratosphérique
Lambert & Nezami	1965	Po/Pb (pluies : 0.11)	30-40 j	
Martell	1970	Bi/Pb (air en alt.)	7-15 j	} τ corrigé : 6 j
		Po/Pb (air en alt.)	20-60 j	
Vilenskiy	1970	Bi/Pb (pluies)	6 j	} τ corrigé : 4 j
		Po/Pb (pluies)	39 j	

$^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ et $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$. Vilenskiy, à la suite de mesures de ^{226}Ra et ^{210}Pb dans les retombées et dans les couches superficielles du sol, a ainsi supposé plus spécialement un réentraînement à partir du sol des ^{210}Pb , ^{210}Bi et ^{210}Po en équilibre radioactif. Ils ont donc été amenés à effectuer des corrections sur les rapports d'activités expérimentaux pour obtenir le même temps de séjour (cf. Tableau 1). Cependant, les mesures effectuées par Bhandari et al. (1970) aux Indes, et portant sur plusieurs années, ont donné une valeur moyenne du rapport $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ dans les pluies plus élevée ($r = 0.80$) ce qui correspond à un temps de séjour sensiblement plus important que les déterminations précédentes (cf. Tableau 1).

A.b. Jacobi & André (1963), pour leur part, ont tenu compte des phénomènes de diffusion (équation 2) et du dépôt sec, sans cependant faire intervenir la variation avec l'altitude de la masse spécifique de l'air ρ ; ils ont étudié sur modèle les répartitions verticales des ^{210}Po et ^{210}Pb , en fonction du coefficient de lessivage Λ_i (étendu à toute la troposphère), pour différents profils verticaux de diffusion. En comparant les courbes théoriques avec le profil expérimental de ^{210}Pb obtenu par Burton & Stewart, ils ont déduit que le temps de lessivage $\tau_i = 1/\Lambda_i$ variait avec l'altitude entre 30 et 70 jours.

A.c. On peut enfin citer certaines déterminations du temps de séjour à partir des bilans troposphériques de ^{210}Pb et ^{222}Rn ou du rapport $\text{RaC}/^{210}\text{Pb}$. Le tableau 2 résume les résultats.

B. Élément cosmogéniques

Les ^7Be et ^{32}P , produits par les rayonnements cosmiques, ont également été utilisés pour déterminer les temps de séjour dans la troposphère (Murayama, 1964). Leurs taux de production restent dans un rapport constant et augmentent fortement avec l'altitude (LAL et al. 1958); leur formation a donc lieu principalement dans la haute troposphère et la basse stratosphère.

LAL et al (1960) ont calculé le temps théorique d'irradiation des masses d'air t , à partir du rapport de concentration R dans les pluies, en appliquant l'équation de croissance des activités : A ($A = Q(1 - e^{-\lambda t})$) et en négligeant les phénomènes de diffusion. On a :

$$R = (\lambda_2 Q_1 / \lambda_1 Q_2) ((1 - e^{-\lambda_1 t}) / (1 - e^{-\lambda_2 t})) \quad (6)$$

avec : indice (1) pour le ^7Be et (2) pour le ^{32}P ; λ : constante radioactive; Q : taux de production.

Sur les diagrammes représentant la distribution intégrée de la fréquence des périodes d'irradiation, ils ont déterminé d'après la pente des courbes un temps de séjour moyen de 45 jours.

Plus récemment, Bhandari & Lal (1970) ont appliqué l'équation (4) à des résultats d'activités dans les pluies aux Indes et ont calculé, à partir du rapport $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$, des temps de séjour variant entre 40 et 120 jours.

C. Autres déterminations

Certains auteurs ont calculé des temps de

Tableau 2. *Déterminations expérimentales du temps de séjour troposphérique τ , à partir des bilans troposphériques de ^{210}Pb et ^{222}Rn et du rapport $\text{RaC}/^{210}\text{Pb}$*

Auteur	Année	Méthode	τ
Blifford et al.	1952	RaC/ ^{210}Pb	1-10 j
Haxel & Schumann	1955		
Lehmann & Sittkus	1959		
Styra	1960	bilan ^{210}Pb et ^{222}Rn	15 j
Patterson & Lockhart	1964	$^{210}\text{Pb}/^{222}\text{Rn}$	1-7 j

séjour par d'autres méthodes. C'est ainsi que Stewart et al. (1957) ont déterminé un temps de séjour de 30 jours au moyen des bilans de produits de fission dans la troposphère.

Junge (1963b) a, pour sa part, calculé des valeurs théoriques de τ , en considérant uniquement les phénomènes de lessivage (rainout). Il a trouvé (en fonction des hauteurs moyennes de pluie, des densités de nuages et de la taille des particules) des temps de séjour compris entre quelques jours dans les basses couches et quelques dizaines de jours en altitude.

Machta et al. enfin, au moyen de modèles de simulation numérique reposant sur l'équation de diffusion ($K_z = 4$ ou $12 \text{ m}^2/\text{s}$) et comportant un profil de lessivage décroissant avec l'altitude, ont calculé le temps de « demi-élimination : θ » de produits injectés de manière discontinue à différentes altitudes. (θ , temps au bout duquel la concentration initiale est divisée par un facteur 2, bien que différent du temps de séjour τ tel que nous l'avons défini, reste cependant du même ordre de grandeur que τ). Les valeurs de θ ainsi calculées sont comprises entre 4 et 70 jours pour des éléments injectés entre 1 et 10 km d'altitude.

1.4. CONCLUSION

Les temps de séjour expérimentaux varient donc entre quelques jours et quelques mois selon les éléments étudiés, l'origine des mesures (mesures moyennes ou individuelles; mesures dans l'air ou dans la pluie) et les hypothèses simplificatrices introduites dans les calculs. Les auteurs, négligeant en général les phénomènes d'échanges verticaux et la localisation des processus d'élimination, ont considéré un temps de séjour troposphérique commun pour tous les aérosols. Afin d'expliquer les écarts constatés entre les temps de séjour calculés à partir d'éléments différents (^{210}Bi ; ^{210}Po), ils ont

été conduits à envisager des sources complémentaires de ^{210}Po dans la troposphère.

Nous avons montré que le ^{210}Po présent dans la troposphère ne provenait que du ^{210}Pb présent dans l'air (Marenco & Fontan, 1972). Nous pensons que les temps de séjour des aérosols dans la troposphère sont variables et dépendent de leur altitude de formation, et que les écarts sont accentués par le fait que l'on ne calcule que des temps de séjour apparents lorsque l'on applique l'équation d'équilibre (4) à des résultats de mesures individuelles, localisées dans le temps et dans l'espace.

Nous avons donc voulu montrer l'influence de ces divers paramètres et nous avons étudié la variation des temps de séjour troposphériques, en utilisant des modèles numériques reposant sur l'équation (1). (Nous avons à ce sujet précisé qu'il s'agissait d'une façon simplifiée d'aborder un problème complexe. Les temps de séjour ainsi considérés comprennent à la fois les pertes par dépôt humide et celles par dépôt sec et doivent être considérés à l'échelle de la circulation générale).

II. Modèles numériques

11.1. PRINCIPE DES MODÈLES

Les solutions analytiques de l'équation (1) n'existant que dans des cas simples, nous avons utilisé une résolution numérique selon un schéma de calcul implicite mis au point par Adroguer (1970) et Birot (1971). Le principe consiste à remplacer l'équation classique aux dérivées partielles par une équation aux différences finies. On limite, selon les cas, le système à une dimension (altitude z en régime stationnaire) ou à deux dimensions (altitude z et temps t en régime dépendant du temps). L'atmosphère est divisée en couches horizontales où sont connues les valeurs du coefficient d'échange et

de la densité de l'air. On détermine à la limite de chaque couche une valeur approchée de la quantité échangée verticalement, à partir des teneurs dans les couches voisines.

Lorsque l'on veut représenter l'évolution en fonction du temps, on définit un réseau de plans verticaux de pas Δt et on résout le système de proche, en prenant comme condition initiale dans chaque plan la solution calculée dans le plan précédent.

Nous avons appliqué ces modèles aux trois groupes d'éléments suivants, en les considérant fixés sur des aérosols de diamètre moyen ($\varepsilon = 1$) :

- descendants à longue période du radon (^{210}Pb , ^{210}Bi , ^{210}Po)
- éléments cosmogéniques (^7Be , ^{32}P)
- éléments stables (injectés à une altitude variable)

A. Régime indépendant du temps

On a alors l'équation différentielle :

$$\frac{1}{\varrho(z)} \frac{\partial}{\partial z} \left\{ \varrho(z) K_z(z) \frac{\partial X_i(z)}{\partial z} \right\} = (\lambda_i + \Lambda_i(z)) X_i(z) - Q_i(z)$$

avec :

- $\Lambda_i(z)$: coefficient de lessivage fonction de l'altitude (nul pour le radon)
- $Q_i(z)$: taux de production fonction de l'altitude (éléments cosmogéniques et stables)
- 0 (radon)
- $\lambda_{i-1} X_{i-1}(z)$ (descendants du radon)

Les conditions aux limites exprimant le flux au sol ϕ_s par :

— le dégagement au sol dans le cas du radon : $\phi_s = -E$, avec E : taux de dégagement du radon

— et le dépôt sec au sol des éléments solides :

$$\phi_s = \beta \{ \varrho(z) X_i(z) \}_{z=h}$$

avec β : vitesse de dépôt des aérosols, définie au voisinage du sol pour le niveau d'altitude h , pris en général égal à 1 m.

B. Régime indépendant du temps

L'équation générale s'écrit dans ce cas :

$$\frac{\partial X_i}{\partial t}(z, t) = \frac{1}{\varrho(z)} \frac{\partial}{\partial z} \left\{ \varrho(z) K_z(z) \frac{\partial X_i}{\partial z}(z, t) \right\} - (\lambda_i + \Lambda_i(z, t)) X_i(z, t) + Q_i(z, t)$$

Les autres conditions gardant la même forme que précédemment, avec : $X_i(z, t)$, $Q_i(z, t)$, $\Lambda_i(z, t)$ et $E(t)$ dépendant du temps.

II.2. DESCRIPTION DES MODÈLES

A. Conditions opératoires

Atmosphère : Nous avons envisagé un schéma simplifié d'atmosphère, limité à 40 km d'altitude avec une tropopause fixe à 11 km, et utilisé la variation verticale de la masse spécifique de l'air $\varrho(z)$ correspondant à l'atmosphère standard internationale (Lepas & Roche, 1965). Nous avons d'autre part considéré comme étage de lessivage la couche nuageuse moyenne comprise entre 2 et 6 km d'altitude (Bricard, 1959; Seitz et al., 1968).

Coefficient d'échange : Les coefficients d'échange moyens K_z , considérés dans la littérature (Davidson et al., 1966; Machta, 1966; Machta et al., 1970; Karol, 1966, 1970; Feely & Seitz, 1970; Seitz et al. 1968), sont de l'ordre de :

- 3 m²/s dans la troposphère
- 0.1 m²/s dans la stratosphère.

Nous avons utilisé dans nos modèles un profil (figure 1) tenant compte des transitions au voisinage du sol et de la tropopause (Jacobi & Andre, 1963; Machta, 1966; Karol, 1970; Birot, 1971). En l'absence d'informations plus précises, nous le considérerons à titre indicatif pour la schématisation des mouvements verticaux.

Nous avons aussi, dans les expériences numériques, introduit des valeurs différentes de K_z dans la troposphère ($K_z = 1$ ou 10 m²/s) (Machta et al., 1970) de façon à étudier l'influence de l'amplitude de ces mouvements. Nous n'avons pas toujours indiqué les résultats, qui vont toujours dans le même sens, afin de ne pas alourdir la présentation de ce travail.

Sources : Nous avons envisagé une source de radon localisée au sol et selon les modèles : uniforme ($E = 0.4$ at/cm² s) ou hétérogène ($E = 0$ sur les océans, et $E = 1$ at/cm² s sur les continents) (Jacobi & Andre, 1963).

Nous avons utilisé dans le cas des éléments cosmogéniques la répartition verticale des taux de production pour le 45° parallèle (latitude moyenne) (LAL et al., 1958). D'autre part, une étude statistique de nos résultats dans l'air à

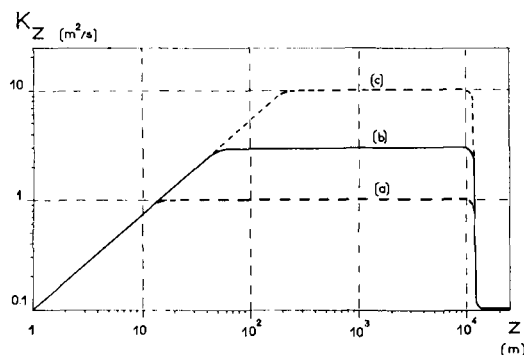


Fig. 1. Variation du coefficient d'échange vertical K_z avec l'altitude z . (a) et (c) profils extrêmes considérés; (b) profil moyen.

Toulouse nous a conduits à prendre une valeur de 59.4 pour le rapport des taux de production des ^7Be et ^{32}P (rapport minimum d'activités : $^7\text{Be}/^{32}\text{P} = 16$).

Nous avons simulé enfin l'injection d'un élément stable à une altitude variable Z_i , en prenant :

$$Q_i(z) = \begin{cases} 1 \text{ at/s} & (z = Z_i) \\ 0 \text{ at/s} & (z \neq Z_i) \end{cases}$$

Conditions aux limites : On traduit donc la capture des éléments solides, par le sol ou la végétation, au moyen d'une vitesse de déposition : $\beta = 0.2 \text{ cm/s}$ à 1 mètre du sol (Peirson & Keane, 1962; Peirson & Cambray, 1965; Chamberlain & Chadwick, 1966; Seitz et al., 1968; Karol, 1970; Davidson et al., 1966; Feely & Seitz, 1970).

Nous avons d'autre part choisi une valeur nulle (Karol, 1970) pour les concentrations à l'infini, cette condition s'appliquant dans nos modèles à la dernière couche (40 km), donc assez loin de la tropopause pour ne pas introduire de perturbation notable.

Enfin, en régime dépendant du temps, nous avons toujours considéré une atmosphère initialement vide d'éléments.

B. Modèles expérimentaux

Nous avons utilisé dans notre étude trois types de modèles.

Modèle (1) : Il permet, en régime indépendant du temps et avec une source plane ou stratifiée (production uniquement fonction de l'altitude z), d'étudier l'influence des mouvements verti-

caux, du dépôt sec, de l'étage de lessivage et de l'altitude d'injection.

Modèle (2) : Ce modèle a pour but d'étudier, dans le cas du radon et de ses descendants, l'influence d'une discontinuité de dégagement. Nous avons pour cela considéré un schéma simplifié de circulation (déplacement zonal des masses d'air autour du globe) et adapté le « régime dépendant du temps » en considérant un profil de vent constant avec l'altitude (5 m/s) et en faisant varier avec le temps le taux de dégagement du radon (nul sur les océans et de $1 \text{ at/cm}^2 \text{ s}$ sur les continents) de façon à simuler le passage successif, le long du 45° parallèle, sur :

- 5 000 km de mer (Océan Atlantique)
- 8 000 km de terre (Europe-Asie)
- 9 000 km de mer (Océan Pacifique)
- 5 000 km de terre (Amérique)

Après un nombre suffisant de cycles, correspondant chacun à une rotation autour du globe, on obtient un régime d'équilibre et on étudie alors les variations des temps de séjour apparents, par rapport à la discontinuité « Océan Atlantique - Europe ».

Modèle (3) : Enfin, pour étudier l'influence des discontinuités dues au lessivage, nous avons simulé en « régime dépendant du temps », pour une source plane ou stratifiée, un lessivage complet et discontinu dans l'étage de lessivage : 2-6 km d'altitude. On étudie ainsi, au voisinage de la discontinuité, la variation des temps de séjour apparents en fonction du temps.

III. Expériences numériques sur modèles

III.1. INFLUENCE DES DIFFÉRENTS

PARAMÈTRES EN RÉGIME STATIONNAIRE

L'intégration dans une colonne troposphérique verticale, des profils de concentration permet de calculer les temps de séjour troposphériques à partir des résultats moyens d'activités.

A. Descendants du radon

A.a. Lessivage étendu à toute la troposphère. Lorsque l'on envisage les conditions de la littérature (lessivage homogène dans toute la troposphère, pas de dépôt sec : $\beta = 0$), on vérifie bien sur les modèles (figure 2, courbe A) que

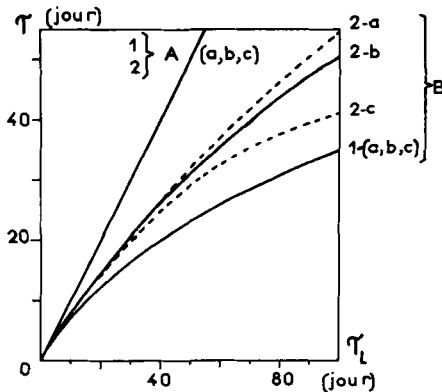


Fig. 2. (régime stationnaire, lessivage étendu à toute la troposphère). Variations, en fonction du temps de lessivage τ_l , des temps de séjour troposphériques τ tirés des rapports d'activités entre les descendants du radon : $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ (1) et $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ (2) — dans diverses conditions de dépôt sec au sol (A) $\beta = 0$; (B) $\beta = 0.2$ cm/s; et pour différents coefficients d'échange troposphériques K_z (a) 1 m^2/s ; (b) 3 m^2/s ; (c) 10 m^2/s .

les temps de séjour, calculés à partir des rapports d'activités $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ et $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$, sont égaux au temps de lessivage τ_l et indépendants des échanges verticaux (K_z égal à 1, 3 ou 10 m^2/s).

Lorsque l'on introduit un dépôt sec au sol ($\beta = 0.2$ cm/s à 1 mètre de hauteur), les temps de séjour calculés à partir des rapports $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ et $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ deviennent différents et diminuent (figure 2, courbes B); les valeurs de τ calculées à partir du rapport $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ sont supérieures à celles tirées du rapport $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$. La variation du coefficient d'échange troposphérique ($K_z = 1, 3$ ou 10 m^2/s) n'a d'influence sensible (τ décroissant pour K_z augmentant) que dans le cas des temps de séjour tirés du rapport $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ et pour les valeurs élevées du temps de lessivage (τ_l supérieur à 50 jours). La considération d'un dépôt sec au sol a donc pour effet d'abaisser la valeur du temps de séjour qui devient alors fonction de l'élément considéré.

A.b. Lessivage limité à une zone d'altitude. Les processus de lessivage sont en fait localisés principalement dans l'étage nuageux; étant donné l'ordre de grandeur de la vitesse des échanges verticaux, on ne peut pas considérer le lessivage comme homogène. Nous avons donc, en plus du dépôt sec au sol, considéré également

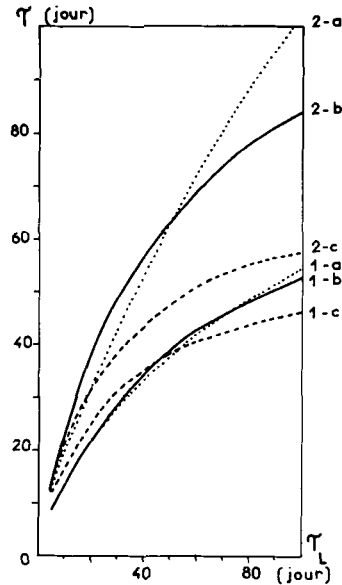


Fig. 3. (régime stationnaire, lessivage limité à une zone d'altitude : 2–6 km, dépôt sec au sol $\beta = 0.2$ cm/s). Variations, en fonction du temps de lessivage τ_l , des temps de séjour troposphériques τ tirés des rapports d'activités entre les descendants du radon : $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ (1) et $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ (2), pour différents coefficients d'échange troposphériques K_z (a) 1 m^2/s ; (b) 3 m^2/s ; (c) 10 m^2/s .

un coefficient de lessivage égal à Λ_l entre 2 et 6 km d'altitude et nul ailleurs.

Lorsque l'on déduit les temps de séjour des rapports d'activités, on constate que les courbes de variation de τ sont encore plus distinctes (figure 3), les valeurs de τ calculées à partir du rapport $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ étant toujours supérieures à celles calculées à partir du $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ (facteur 1.8 pour $K_z = 3$ m^2/s). En effet, les profils de concentration sont différents (figure 4) pour les ^{210}Pb et ^{210}Bi d'une part (présence d'un maximum en altitude) et le ^{210}Po d'autre part (répartition toujours croissante avec l'altitude), ce qui conduit à des pertes par lessivage différentes.

La localisation des processus de dépôts sec et humide a donc pour résultat d'accentuer les différences entre les temps de séjour, calculés à partir de chacun des rapports d'activités, car à la fois les pertes par dépôt sec et celles par lessivage dépendent des éléments considérés. L'intensité des échanges verticaux (K_z compris entre 1 et 10 m^2/s), si elle n'affecte pas beaucoup les profils de répartition verticale dans le

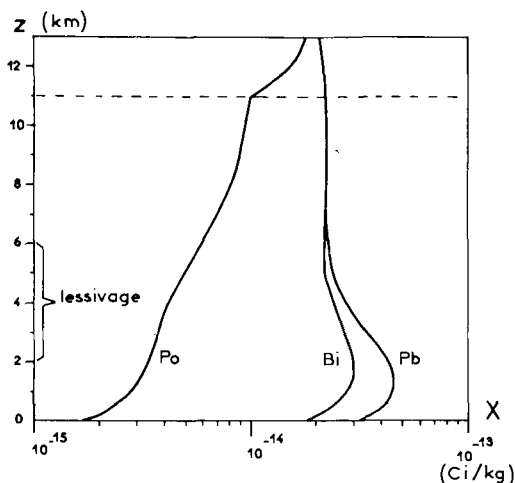


Fig. 4 (régime stationnaire, lessivage limité à une zone d'altitude : 2–6 km, dépôt sec au sol $\beta = 0.2$ cm/s, K_z troposphérique = $3 \text{ m}^2/\text{s}$). Variations avec l'altitude z des répartitions verticales d'activité X des descendants du radon (^{210}Pb , ^{210}Bi , ^{210}Po), pour un temps de lessivage τ_l de 30 jours.

cas des ^{210}Pb et ^{210}Bi , agit par contre sur celui du ^{210}Po et par conséquent sur le rapport $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$. L'augmentation du coefficient d'échange troposphérique (figure 3) réduit, ici aussi, l'écart entre les valeurs de τ calculées à partir de chaque rapport d'activité.

Il est possible, également, de déterminer des temps de séjour à partir de chacun des éléments (équation 4) en éliminant donc l'influence des pertes par désintégration. Etant donné que les temps de séjour dépendent des éléments considérés, les valeurs de τ calculées à partir du rapport $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ ne correspondent pas en fait exactement à celles tirées du ^{210}Po . On calcule directement le temps de séjour, au moyen de chaque élément, en considérant la relation :

$$P = \lambda X \quad (7)$$

avec : X : contenu troposphérique

P : ensemble des pertes (dépôts sec et humide)

Dans le cas des descendants du radon, les contributions stratosphériques sont négligeables et : $P = (Q - \lambda X)$; avec Q : production troposphérique.

On a donc :

$$\tau = \frac{X}{P} = \frac{X}{(Q - \lambda X)}$$

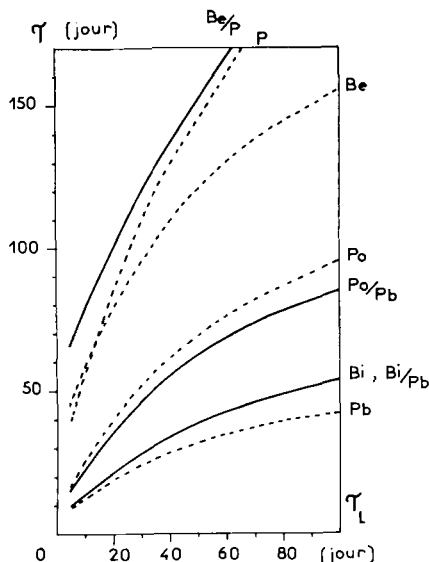


Fig. 5 (régime stationnaire, lessivage limité à une zone d'altitude : 2–6 km, dépôt sec au sol $\beta = 0.2$ cm/s, K_z troposphérique = $3 \text{ m}^2/\text{s}$). Variations, en fonction du temps de lessivage τ_l , des temps de séjour troposphériques τ , calculés à partir des rapports d'activités et des bilans troposphériques d'éléments, dans le cas des descendants du radon (^{210}Pb , ^{210}Bi , ^{210}Po) et des éléments cosmogéniques (^7Be , ^{32}P).

On constate (figure 5) que les temps de séjour obtenus à partir des éléments diffèrent nettement entre eux et augmentent respectivement pour les ^{210}Pb , ^{210}Bi et ^{210}Po . C'est ainsi que pour un rapport moyen $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ de 0.16, correspondant à une valeur de τ_l d'environ 30 jours, les temps de séjour sont de :

- 21 jours avec le ^{210}Pb
- 26 jours avec le ^{210}Bi (ou le $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$)
- 47 jours avec le $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$
- 52 jours avec le ^{210}Po

B. Éléments cosmogéniques

L'application du modèle précédent (lessivage entre 2 et 6 km; dépôt au sol : $\beta = 0.2$ cm/s, K_z troposphérique égal à $3 \text{ m}^2/\text{s}$) aux ^7Be et ^{32}P permet de calculer les temps de séjour à partir du rapport d'activité $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ ou des bilans de chaque élément. On constate (figure 5) qu'ils sont nettement supérieurs à ceux obtenus avec les descendants du radon et que l'utilisation du rapport $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ conduit à des valeurs de τ sensiblement plus élevées que celles données

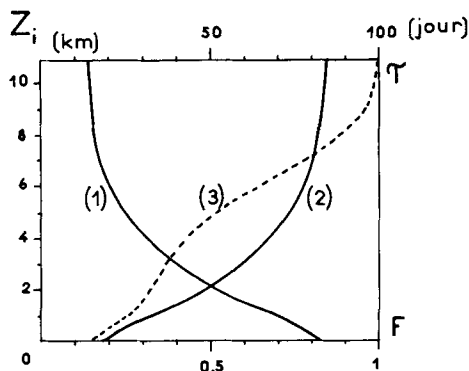


Fig. 6 (régime stationnaire, lessivage limité à une zone d'altitude : 2–6 km, dépôt sec au sol $\beta = 0.2$ cm/s, K_z troposphérique = $3 \text{ m}^2/\text{s}$). Simulation d'injection d'un élément stable à une altitude donnée Z_i . Variations, en fonction de l'altitude d'injection Z_i , des fractions F de pertes par dépôt sec (1) et humide (2) et du temps de séjour τ (3), pour un temps de lessivage de 30 jours.

par les éléments eux-mêmes. On a ainsi pour $\tau_i = 30 \text{ j}$:

$\tau = 120 \text{ j}$ à partir du ${}^7\text{Be}/{}^{32}\text{P}$
 94 j avec le ${}^7\text{Be}$
 109 j avec le ${}^{32}\text{P}$

En effet, les arrivées stratosphériques ne sont plus dans ce cas négligeables ($\Phi \neq 0$) et les pertes (lessivage, dépôt sec et désintégration) ne sont pas égales à la production troposphérique. Les valeurs de τ , calculées à partir du rapport d'activité des contenus troposphériques ${}^7\text{Be}/{}^{32}\text{P}$, ne correspondent pas à celles des éléments.

D'autre part, en raison de la période relativement courte du ${}^{32}\text{P}$ (14,45 j) et de la variation accusée avec l'altitude des taux de production, la perte par désintégration, lors du transport vers une zone d'élimination, est plus importante pour le ${}^{32}\text{P}$ que pour le ${}^7\text{Be}$. Aussi, le temps de séjour mesuré avec le ${}^{32}\text{P}$ devient-il supérieur à celui obtenu avec le ${}^7\text{Be}$, dès que le temps de lessivage τ_i devient grand devant la période du ${}^{32}\text{P}$. On vérifie bien qu'il ne faut utiliser que des éléments dont la période soit plus grande ou du même ordre de grandeur que les temps de séjour mesurés.

C. Eléments stables

L'injection d'un élément stable à une altitude variable Z_i permet d'étudier l'influence

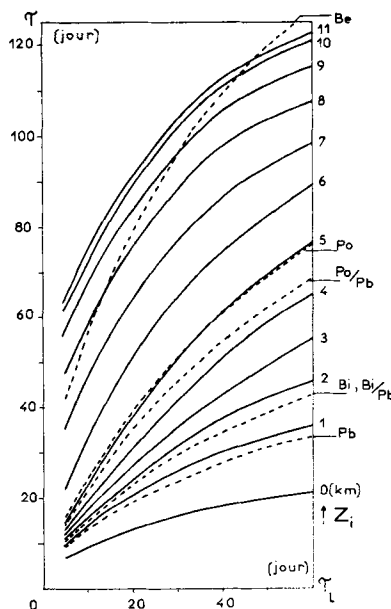


Fig. 7 (régime stationnaire, lessivage limité à une zone d'altitude : 2–6 km, dépôt sec au sol $\beta = 0.2$ cm/s, K_z troposphérique = $3 \text{ m}^2/\text{s}$). Variations comparées, en fonction du temps de lessivage τ_i , des temps de séjour troposphériques τ calculés avec : (i) des éléments stables injectés à diverses altitudes Z_i ; (ii) les descendants du radon (${}^{210}\text{Pb}$, ${}^{210}\text{Bi}$, ${}^{210}\text{Po}$) et leurs rapports d'activités; (iii) les éléments cosmogéniques (${}^7\text{Be}$, ${}^{32}\text{P}$) et leur rapport d'activité.

de l'altitude de formation, dans les conditions opératoires précédentes (lessivage limité entre 2 et 6 km; $\beta = 0.2 \text{ cm/s}$; $K_z = 3 \text{ m}^2/\text{s}$).

On constate (figure 6) que le temps de séjour troposphérique (courbe 3) augmente avec l'altitude d'injection Z_i et que les proportions respectives de pertes par lessivage (courbe 2) et par dépôt sec (courbe 1) dépendent également de Z_i . C'est ainsi que le dépôt sec sera prépondérant pour un élément injecté près du sol (82 % dans l'exemple considéré) alors que ce sera le lessivage (85 %) pour un produit injecté au niveau de la tropopause.

On calcule le temps de séjour τ à partir du bilan troposphérique (équation 7). La figure 7 présente la variation de τ en fonction du temps de lessivage τ_i , pour différentes altitudes d'injection. On constate que le temps de séjour augmente avec l'altitude d'injection Z_i et le temps de lessivage τ_i , et varie ainsi, pour $\tau_i = 30 \text{ j}$, de 15 jours pour un élément injecté près du sol à environ 100 jours pour un élément injecté près de la tropopause (figure 7).

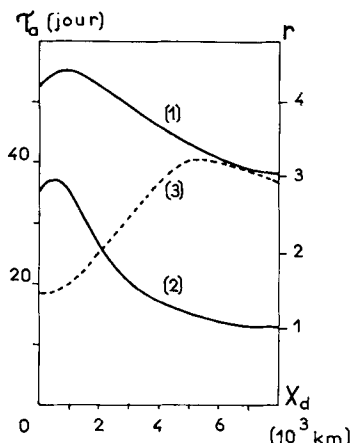


Fig. 8 (régime stationnaire, lessivage limité à une zone d'altitude : 2-6 km, dépôt sec au sol $\beta = 0.2$ cm/s, K_z troposphérique = $3 \text{ m}^2/\text{s}$). Discontinuité de dégagement du radon. Variations en fonction de la distance X_d à la discontinuité « Océan Atlantique-Europe » et pour un temps de lessivage τ_l de 30 jours : (i) du temps de séjour troposphérique apparent τ_a au-dessus du continent (calculé à partir des rapports d'activités $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ (1) et $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ (2)); (ii) du rapport (3) entre les valeurs des temps de séjour $\tau_a(1)/\tau_a(2)$.

Si l'on compare les courbes de variations de temps de séjour, obtenues pour les éléments radioactifs, avec le réseau précédent déterminé pour les éléments stables, on observe pour chaque radionucléide une « altitude apparente » de formation, correspondant approximativement au « centre de gravité » de la courbe des taux de production. Cette altitude apparente est d'environ 9 000 m pour le ^7Be , 5 000 m pour le ^{210}Po , 1 500 m pour le ^{210}Bi et 1 000 m pour le ^{210}Pb . Pour les ^{210}Pb et ^{210}Bi (surtout formés dans les basses couches à partir du radon) et pour le ^7Be (produit principalement dans la haute troposphère) ces altitudes correspondent bien à la position des sources. Le ^{210}Po , par contre, a une source (^{210}Bi) répartie dans toute la troposphère (centre de gravité situé à l'altitude moyenne de 5 000 m) et il est finalement représentatif de l'ensemble de la troposphère.

Ces résultats ne sont pas en contradiction avec les valeurs de τ de l'ordre de 1 à 2 mois obtenues avec les produits de fission originaires de la stratosphère; il faut en effet considérer que leur injection dans la troposphère est un phénomène saisonnier (printemps) donc discontinu, et que le temps de séjour diminue

rapidement au fur et à mesure de leur mélange dans l'air troposphérique, jusqu'à une valeur constante représentative d'une altitude moyenne (4 à 7 km) (Junge, 1963a).

D. Conclusion

Nous pouvons finalement tirer de ces résultats les conclusions partielles suivantes :

Le dépôt sec et la limitation du lessivage à une tranche d'atmosphère ont une influence importante sur les temps de séjour. Les pertes variant avec l'altitude de formation des éléments, il en résulte que les temps de séjour diffèrent selon les produits considérés. L'augmentation de l'intensité des échanges verticaux a pour effet d'atténuer les différences observées entre les temps de séjour obtenus avec chacun des éléments. Enfin, l'utilisation des rapports d'activités pour calculer les temps de séjour ne conduit qu'à des valeurs de τ approchées.

III.2. INFLUENCE DES DISCONTINUITÉS

Les répartitions horizontales de concentration ne sont pas en fait toujours uniformes, en raison de la discontinuité des sources (dégagement du radon à la surface des continents) et des phénomènes de lessivage. Nous avons donc étudié la variation du temps de séjour au voisinage des discontinuités pour déterminer les écarts introduits par l'application de l'équation (4), formulée dans le cas d'une atmosphère stratifiée en régime indépendant du temps.

A. Discontinuité de dégagement du radon

Nous avons étudié sur le modèle (2) le cas d'arrivée sur l'Europe d'air océanique, dans les conditions opératoires précédentes. Au bout d'un nombre suffisant de rotations autour du globe, le régime devient stationnaire en chaque point et l'on détermine à partir des rapports d'activités $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ et $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$, les temps de séjour apparents τ_a au-dessus du continent, en fonction de la distance à la mer X_d (vitesse horizontale constante de 5 m/s) (figure 8).

On constate que les temps de séjour τ_a diminuent et se distinguent considérablement en fonction de l'éloignement X_d . On passe ainsi (pour $\tau_l = 30$ jours) de valeurs de 36 et 52 jours, respectivement à partir des rapports $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ et $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ au niveau de la côte, à des valeurs de 15 et 45 jours à 4 000 km sur le continent. L'apport de ^{210}Pb et de ^{210}Bi récemment formés dans les basses couches modifie

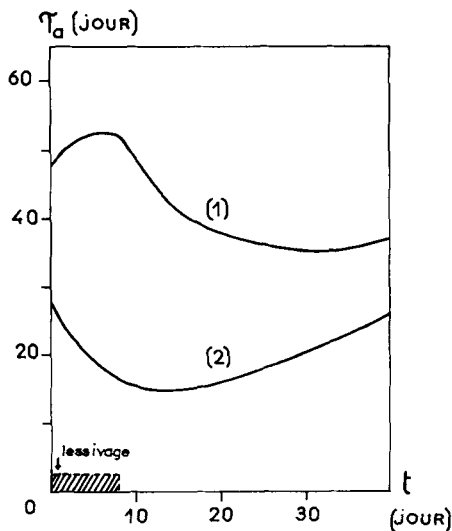


Fig. 9 (régime dépendant du temps, lessivage limité à une zone d'altitude : 2-6 km, dépôt sec au sol $\beta = 0.2$ cm/s, K_z troposphérique : $3 \text{ m}^2/\text{s}$). Influence d'une discontinuité de lessivage (durée : 8 jours) sur la détermination, en fonction du temps, des temps de séjour apparents τ_a , tirés des rapports d'activités : $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ (1) et $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ (2).

en effet très sensiblement les rapports d'activités et l'application des équations (4-a) et (4-b) conduit à des différences encore plus importantes dans les valeurs des temps de séjour.

B. Discontinuités dues au lessivage

Les perturbations atmosphériques sont en fait limitées dans le temps et le coefficient de lessivage Λ_t est à la fois fonction de z et de t . Nous avons donc simulé (en régime dépendant du temps : modèle (3)) une discontinuité de lessivage, en considérant successivement un coefficient Λ_t dans la couche de 2 à 6 km :

— $\Lambda_t = (1/30) \text{ jour}^{-1}$, durant un temps assez long pour atteindre le régime stationnaire

— $\Lambda_t = 1 \text{ s}^{-1}$, pendant une durée de 8 jours (durée moyenne d'existence des perturbations) (Queney, 1959)

— et enfin $\Lambda_t = 0$ le reste du temps.

Un tel modèle est évidemment très schématique. Il a pour but de mettre en évidence l'influence d'une discontinuité dans le lessivage sur la détermination des temps de séjour apparents, calculés à partir de résultats isolés dans le temps et dans l'espace.

Lorsque l'on étudie la variation dans le temps

des temps de séjour apparents, calculés à partir des rapports d'activités des contenus troposphériques ($^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$, $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$), on constate qu'ils évoluent différemment au voisinage de la discontinuité (figure 9), la décroissance étant la plus accusée pour les valeurs de τ_a tirées du rapport $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$.

On obtient ainsi, à la fin du lessivage, des temps de séjour apparents de 15 et 52 jours respectivement avec les rapports $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ et $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$.

Si l'on considère non plus les contenus troposphériques mais les répartitions verticales des rapports d'activités et que l'on calcule à chaque altitude les temps de séjour apparents en négligeant les flux, les différences sont encore plus accusées (figure 10). Quatre jours après la fin du lessivage, les valeurs de τ_a obtenues à partir des rapports $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ et $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ sont respectivement de 13 et 65 jours à 5 km d'altitude.

C. Conclusion

L'application, au voisinage des discontinuités, d'une équation d'équilibre du type (4), formulée pour un volume bien mélangé en régime indépendant du temps, accentue encore plus les différences observées entre les temps de séjour obtenus avec les éléments. Les temps alors déterminés sont en fait des temps de séjour apparents qui peuvent dans les conditions choisies différer (pour les valeurs déduites des rapports $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ et $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$) d'un facteur 3 au-dessus d'un continent, 4 après un lessivage, ou 5 pour les valeurs calculées en altitude en négligeant les flux, les différences étant encore plus accusées si les divers phénomènes sont combinés.

Pour déterminer des valeurs correctes et représentatives du temps de séjour, il est donc nécessaire de considérer les valeurs troposphériques moyennes intégrées dans le temps et dans l'espace.

Conclusion

Cette étude sur modèles numériques montre qu'il n'est pas possible de négliger les mouvements verticaux et de définir un temps de séjour troposphérique commun à tous les aérosols. En effet, étant donné les phénomènes d'échanges et la localisation des processus de

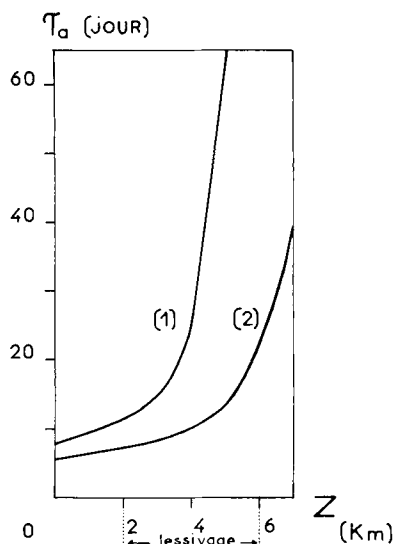


Fig. 10 (régime dépendant du temps, lessivage limité à une zone d'altitude : 2–6 km, dépôt sec au sol $\beta = 0.2$ cm/s, K_z troposphérique = $3 \text{ m}^2/\text{s}$). Discontinuité de lessivage (durée : 8 jours). Variations avec l'altitude z des temps de séjour apparents τ_a calculés à partir des rapports entre les activités en altitude des descendants du radon : $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ (1) et $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ (2), quatre jours après la fin du lessivage.

dépôts sec et humide, le temps de séjour d'un élément dépend de l'altitude de sa source. D'autre part, d'importantes modifications dans les répartitions verticales des concentrations

se produisent au voisinage des discontinuités de dégagement ou de lessivage, et il est nécessaire, pour calculer des temps de séjour au moyen d'une équation d'équilibre simplifiée, de considérer les valeurs moyennes des mesures intégrées dans le temps et dans l'espace. On constate alors que les temps de séjour troposphériques augmentent avec l'altitude de formation des éléments et la période des phénomènes de lessivage, cependant que les écarts diminuent lorsque s'accroissent les échanges verticaux.

Les modèles, appliqués aux descendants du radon à longue période et aux éléments cosmogéniques, montrent qu'ils sont représentatifs :

- pour le ^{210}Pb et le ^{210}Bi d'éléments produits dans la basse troposphère
- pour le ^{210}Po d'éléments formés dans l'ensemble de la troposphère
- et pour le ^7Be d'éléments créés dans la haute troposphère.

Remerciements

Nous remercions Monsieur le Professeur D. Blanc, Directeur du C.P.A.T., pour l'intérêt qu'il a porté à cette étude.

Nous sommes également très reconnaissants à Messieurs A. Birot et A. Druilhet pour leurs conseils compétents ainsi qu'à Monsieur J. Servant pour ses fructueuses critiques.

Bibliographie

- Adroguer, B. 1970. Étude de la diffusion de matière dans la troposphère à l'aide de traceurs radioactifs naturels. Thèse de doctorat de spécialité, n° 900, Toulouse.
- Bhandari, N., Lal, D. & Rama, S. 1970. Vertical structure of the troposphere as revealed by radioactive tracer studies. *J. Geophys. Res.* 75, 2974.
- Birot, A. 1971. Contribution à l'étude de la diffusion du radon et des aérosols dans la troposphère. Thèse de doctorat n° 428, Toulouse.
- Blifford, J. H., Lockhart, L. B. & Rosenstock, H. B. 1952. On the natural radioactivity in the air. *J. Geophys. Res.* 57, 499.
- Bricard, J. 1959. Les formations nuageuses. La terre, Gallimard, p. 315.
- Burton, W. M. & Stewart, H. G. 1960. Use of long-lived natural radioactivity as an atmospheric tracer. *Nature* 186, 584.
- Chamberlain, A. C. & Chadwick, R. C. 1966. Transport of iodine from atmosphere to ground. *Tellus* 18, 226.
- Davidson, B., Friend, J. P. & Seitz, 1966. Numerical models of diffusion and rainout of stratospheric radioactive materials. *Tellus* 18, 301.
- Feely, H. W. & Seitz, H. 1970. Use of lead-210 as a tracer of transport processes in the stratosphere. *J. Geophys. Res.* 75, 2885.
- Haxel, O. & Schumann, G. 1955. Selbstreinigung der Atmosphäre. *Z. Physik B.* 152, 127.
- Jacobi, W. & André, K. 1963. The vertical distribution of radon-222, radon-220 and their decay products in the atmosphere. *J. Geophys. Res.* 68, 3799.
- Junge, C. E. 1963a. Studies of global exchange processes in the atmosphere by natural and artificial tracers. *J. Geophys. Res.* 68, 3849.
- Junge, C. E. 1963b. *Air chemistry and radioactivity*. Academic Press, New York.
- Karol, I. L. 1966. Quantitative investigation of stratospheric mixing processes by means of long-lived radon decay products. *Tellus* 18, 337.

- Karol, I. L. 1970. Calculation of planetary distributions of radon and its long-lived daughter concentrations in the troposphere and lower stratosphere. *Tellus* 22, 219.
- Lal, D., Malhotra, P. K. & Peters, B. 1958. On the production of radioisotopes in the atmosphere by cosmic radiation and their application to meteorology *J. Atmos. Terr. Phys.* 12, 306.
- Lal, D., Rama, S. & Zutshi, P. K. 1960. Radioisotopes ^{32}P , ^7Be and ^{35}S in the atmosphere *J. Geophys. Res.* 65, 669.
- Lambert, G. & Nezami, M. 1965. Determination of the mean residence time in the troposphere by measurement of the ratio between the concentrations of Lead-210 and Polonium-210. *Nature* 206, 1343.
- Lehmann, L. & Sittkus, A. 1959. Bestimmung von Aerosolverweilzeiten aus dem RaD- und RaF-gehalt der atmosphärischen Luft und des Niederschlags. *Naturwissenschaften* 46, 9.
- Lepas, J. & Roche, G. 1965. Cours de météorologie générale, vol. 1 & 2. Ecole de la météorologie, Paris.
- Machta, L. 1966. Some aspects of simulating large scale atmospheric mixing. *Tellus* 18, 355.
- Machta, L., List, R. J., Smith, M. E. & Oeschger, H. 1970. Use of natural radioactivities to estimate large-scale precipitation scavenging. Precipitation scavenging (1970), *AEC Symposium series* 22. USAEC Div. Techn. Inf. Ext., CONF-700601, p. 447.
- Marenco, A. & Fontan, J. 1972. Sources of Polonium-210 within troposphere. *Tellus* 24, 38.
- Martell, E. A. & Poet, S. E. 1969. Excess atmospheric ^{210}Po pollutant or natural constituent? Transactions of the American nuclear society, 1969 winter meeting, San Francisco, p. 484.
- Martell, E. A. 1970. Transport patterns and residence times for atmospheric trace constituents vs. altitude. *Adv. Chem. Ser.* 93, 138.
- Martell, E. A. & Poet, S. E. 1970. Residence times of natural and pollutant aerosols in the troposphere. Contribution to the University of Colorado workshops on research problems in air and water pollution, Aug. 3-15, Colorado Associated University Press.
- Murayama, N. 1964. Meteorological feature of cosmic ray produced Be-7. *J. Meteorol. Soc. Japan* 42, 43.
- Nezami, M. 1966. Contribution à l'étude du comportement géophysique du Plomb-210 par application de la spectrométrie alpha. Rapport CEA, R-2886.
- Patterson, R. L. & Lockhart, L. B. 1964. Geographical distribution of lead-210 (RaD) in ground-level air. In *The natural radiation environment*, p. 383. University of Chicago Press, Chicago.
- Peirson, D. H. & Keane, J. R. 1962. Characteristics of early fallout from the Russian nuclear explosion of 1961. *Nature* 196, 801.
- Peirson, D. H. & Cambray, R. S. 1965. Fission product fallout from the nuclear explosions of 1961 and 1962. *Nature* 205, 433.
- Peirson, D. H., Cambray, R. S. & Spicer, G. S. 1966. Lead-210 and Polonium-210 in the atmosphere. *Tellus* 18, 427.
- Queney, P. 1959. Les mouvements de l'atmosphère. La terre, Gallimard, p. 243.
- Seitz, H., Davidson, B., Friend, J. P. & Feely, H. W. 1968. Final report on project streak: numerical models of transport, diffusion and fallout of stratospheric radioactive material. Report no. NYO-3654-4 USAEC, Washington D.C.
- Stewart, N. G., Crooks, R. N. & Fischer, E. M. 1955. The radiological dose to persons in the UK due to debris from nuclear test explosions. Report for the M.R.P. Committee on the Medical Aspects of Nuclear Radiation. A.E.R.A., Harwell.
- Storebø, P. B. 1965. Aerosols behaviour traced by artificial and natural radioactivity. *Tellus* 18, 532.
- Styra, B. 1960. About the contamination and cleaning the atmosphere of radioactive admixtures. Collected papers for the 19th International Geographical Congress. Acad. of Sci. of the Lithuanian SSR.
- Vilenskiy, V. D. 1970. The influence of natural radioactive atmospheric dust in determining the mean staytime of lead-210 in the troposphere. *Izv. Atmos. and Ocean. Phys.* 63, 307.

ИЗУЧЕНИЕ ВРЕМЕНИ ПРЕБЫВАНИЯ АЭРОЗОЛЕЙ В ТРОПОСФЕРЕ ЧИСЛЕННЫМИ МЕТОДАМИ

В современной технической литературе для объяснения расхождений в величинах времен жизни долгоживущих продуктов распада радона было предположено наличие дополнительных источников ^{210}Po . Изучение времени пребывания аэрозолей в тропосфере численными методами в применении к продуктам распада радона (^{210}Pb , ^{210}Bi , ^{210}Po) и к космогенным элементам (^7Be , ^{32}P), показывает, что нельзя пренебрегать ни влиянием эффектов вертикального обмена, ни локализацией удаляющих процессов (вымывание

осадками, сухое осаждение) и что время жизни аэрозоля зависит в основном от высоты, где он образуется. Более того, при рассмотрении важности источников или стоков аэрозоля для определения времени их пребывания в тропосфере, следует подчеркнуть необходимость осреднения данных измерений во времени и в пространстве. Делается вывод, что ^{210}Pb и ^{210}Bi характерны для нижней тропосферы, ^{210}Po — для всей тропосферы и ^7Be — для верхней тропосферы.