



Faire avancer la sûreté nucléaire

Modélisation à pas de temps horaire des transferts de tritium au sein d'un écosystème prairial

Hugo RENARD
Décembre 2017

ISRN/IRSN-2018/210

Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-Octeville

UNIVERSITÉ AIX-MARSEILLE
ECOLE DOCTORALE
SCIENCES DE L'ENVIRONNEMENT

Thèse de doctorat
Géosciences de l'Environnement

Hugo RENARD

Modélisation à pas de temps horaire des transferts de tritium au sein d'un
écosystème prairial

Soutenue le 21 décembre 2017

Jury :

- Rapporteur : M. François Gastal, Directeur de Recherches, INRA, Lusignan
- Président du Jury : M. Michel Fromm, Professeur des Universités, Université de Franche-Comté
- Invitées : M^{me} Elodie Gagnaire-Renou, Ingénieur, EDF, Lyon
M^{me} Corinne Le Gal La Salle, Professeur des Universités, Université de Nîmes
- Directeurs de thèse : M. Olivier Radakovitch, chargé d'études, IRSN/PSE-ENV/LRTA, Cadarache
M. Denis Maro, Chef de laboratoire, IRSN/ PSE-ENV/SRTE/LRC, Cherbourg-Octeville
- Tutrice : M^{me}. Séverine Le Dizès-Maurel, Ingénieur-Chercheur, IRSN/PSE-ENV/LR2T, Cadarache



MOTS-CLES

Tritium; écosystème prairial; expérimentations; modélisation mécaniste

KEY-WORDS

Tritium; grassland ecosystem; experimentations; mecanist modeling

REMERCIEMENTS

La réalisation de ce manuscrit de thèse - et plus généralement de ces trois dernières années d'étude - a pu aboutir grâce à l'aide de nombreuses personnes que je tiens à remercier.

En tout premier lieu je tiens à exprimer ma gratitude et ma reconnaissance aux membres du jury de thèse. Je remercie Monsieur François Gastal (directeur de recherche à l'INRA Lusignan) et Monsieur Michel Fromm (professeur à l'université de Franche-Comté) pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ce travail de thèse. Je remercie également Nicolas Baglan (ingénieur-chercheur au CEA à Bruyères-le-Châtel), Elodie Gagnaire-Renou (ingénieur chez EDF DIDPE), Séverine Le Dizès-Maurel (ingénieur-chercheur à l'IRSN Cadarache), Corinne Le Gal La Salle (professeur à l'université de Nîmes) et Yves Thiry (expert à l'ANDRA à Châtenay-Malabry) pour avoir accepté d'être les examinateurs de mon travail. J'espère que la lecture de ce manuscrit vous intéressera autant que ce sujet m'a passionné durant ces trois dernières années.

Ce travail de thèse s'est déroulé à l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) au sein du Pôle Santé et Environnement (PSE) - direction de l'environnement, dans le Service de Recherche sur les Transferts et les effets des radionucléides sur les Ecosystèmes (SRTE). Dans ce cadre je tiens à remercier Madame Jacqueline Garnier-Laplace et Monsieur François Paquet, chefs successifs de ce service, pour m'avoir accueilli.

Ce sujet de thèse s'inscrit dans le cadre d'un projet cofinancé par l'IRSN et EDF. A ce titre je remercie tout particulièrement Céline Aulagnier et Fabien Vermorel pour l'intérêt porté à cette étude.

J'exprime toute ma reconnaissance à mes directeurs de thèse, dans un premier temps Corinne Le Gal La Salle remplacée par Olivier Radakovitch (ingénieur-chercheur à l'IRSN Cadarache) ainsi qu'à Denis Maro (Ingénieur-chercheur à L'IRSN Cherbourg-en-Cotentin). Je vous remercie pour vos conseils et pour avoir pris le temps de veiller au bon déroulement des travaux.

En raison de la dualité de ce sujet de thèse (modélisation et expérimentation), la première moitié de ce projet s'est déroulée à Cadarache sous la tutelle de Séverine Le Dizès-Maurel. Je tiens à te remercier tout particulièrement pour ton implication, ton accompagnement sans faille (même sous la pluie horizontale !), ta gentillesse et tes conseils avisés que tu m'as apportés tout au long de ce projet (la construction d'une boîte hydroponique étanche n'aura pas été de tout repos !). Merci de m'avoir fait partager ta rigueur et d'avoir toujours été présente, aussi bien scientifiquement qu'humainement.

Je remercie également tous les collègues de Cadarache qui ont participé de près ou de loin à ce projet. Un grand merci à Véronique Elisée (j'ai toujours une pensée pour toi quand Violetta passe à la télévision), Marie, Patrick, Marc-André, Pascale (tes connaissances en culture hydroponique

m'ont permis d'avoir la main verte), Daniel, Valérie, Claire, Rodolphe, Frédéric, Arnaud, Jean-François, Christophe, Karine, Jean-Michel, et tous ceux que j'aurais oubliés.

La seconde moitié de ce projet s'est déroulée à l'autre bout de la France, à Cherbourg-en-Cotentin sous la tutelle de Denis Maro. Je te remercie pour ta patience, ton écoute attentive, tes discussions enrichissantes et ton implication (sous tous climats, de jour comme de nuit). Ta passion et ton intérêt pour tout ce qui a trait à la science sont communicants, tout comme ton enthousiasme. Merci pour ton implication (la boîte hydroponique s'en souvient encore) et pour m'avoir aidé à mener cette thèse à bien avec tes conseils avisés, malgré un emploi du temps plus que rempli.

Je remercie toute l'équipe du LRC (Laboratoire de Radio-écologie de Cherbourg) pour leur implication dans les différentes expériences. Un grand merci à Dominique, Pascal, Olivier Co., Bruno, Claire G., Philippe, Olivier Ca., Théo, Serge, Mehdi, Marianne L. et Luc. Merci à tous pour vos nuits blanches à m'aider lors de mes expérimentations nocturnes, ainsi que pour les prélèvements d'herbe réalisés dans vos jardins. Un grand merci à Didier, Marianne R. et Claire V. pour votre implication et votre aide précieuse dans la mise en place des dispositifs expérimentaux.

Toutes les expérimentations réalisées s'accompagnent d'un nombre important de mesures. Une partie de ces mesures a été réalisée par l'équipe de métrologue du LMRE (Laboratoire de Métrologie de la Radioactivité dans l'Environnement), que je remercie. Je remercie Rodolfo, Cédric et Catherine pour les échanges enrichissants et la rapidité de mesure des nombreux échantillons.

Je tiens également à remercier tous les doctorants rencontrés au cours de ces trois dernières années (Anh (un merci tout particulier pour la découverte du durian), Pierre-Emmanuel (alias Michel), Loïc, Jackie, Geoffrey, Laure, Moustapha, Amine, Thomas, et tous les autres) pour les moments d'échange et de partage.

J'adresse mes remerciements à l'équipe d'éco-physiologie de l'INRA Lusignan pour leur accueil et leur gentillesse lors de mes différents séjours. En particulier, j'adresse mes sincères remerciements à Ela Frack pour le prêt de la pince Li-Cor et ses précieux conseils, ainsi que Romain Barillot et Abraham Escobar-Gutiérrez pour le temps, l'implication et les discussions enrichissantes qui ont permis d'améliorer ma conception et donc la modélisation de la croissance végétale.

Je remercie chaleureusement mes proches, plus particulièrement mes parents, mes frères et sœurs (Eloïse, Sandie, Thomas, Camille, Marie et Théo), mes beaux-parents, mon beau-frère et les copains, dont mon super Crazy nail.

Enfin, je tiens également à remercier tout particulièrement la future madame Renard pour son soutien sans faille. Merci pour m'avoir soutenu et entretenu (mon estomac te remercie).

Un grand merci à tous !

« All truths are easy to understand once they are discovered; the point is to discover them »

Galileo Galilei

TABLE DES MATIERES

LISTE DES FIGURES.....	13
LISTE DES TABLEAUX.....	23
LISTE DES SYMBOLES.....	27
GLOSSAIRE.....	31
INTRODUCTION.....	35
CHAPITRE I. ETAT DE L'ART.....	37
I.1 Généralités sur le tritium.....	37
I.1.1 Caractéristiques et origines.....	37
I.1.2 Les transferts de tritium : de l'environnement à l'Homme.....	42
I.2 Transferts du tritium dans l'environnement.....	52
I.2.1 Transferts dans l'atmosphère.....	52
I.2.2 Transferts dans le sol.....	53
I.2.3 Transferts dans la plante.....	62
I.3 Modélisation des transferts de tritium aux végétaux.....	86
I.3.1 Modélisation existante du transfert de tritium dans les végétaux et de son intégration dans la matière organique.....	86
I.3.2 Projet VATO : de l'expérimentation à la modélisation.....	92
CHAPITRE II. METHODOLOGIE GENERALE.....	110
CHAPITRE III. MATERIEL ET METHODES.....	114
III.1 Validation du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré/post-thèse}}$	114
III.1.1 Analyse à l'échelle de la feuille.....	114
III.1.2 Description pédologique et teneur en azote de la parcelle.....	121
III.1.3 Données météorologiques et hydriques.....	124
III.1.4 Analyse à l'échelle du couvert.....	126
III.1.5 Mesure du tritium dans les différents compartiments d'un écosystème prairial.....	137
III.2 Description du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$	145
III.2.1 Oxydation bactérienne du HT dans le sol.....	145
III.2.2 Transfert sol-plante (lysimètres).....	156
III.2.3 Cinétiques de transfert végétal de la vapeur d'eau tritiée atmosphérique.....	159
III.2.4 Discrimination des formes tritiées dans la matière organique végétale (from Renard <i>et al.</i> , 2017).....	163
III.2.5 Modélisation de la formation de OBT.....	182
CHAPITRE IV. RESULTATS.....	184
IV.1 Validation éco-physiologique du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$	184

IV.1.1	Echelle de la feuille.....	184
IV.1.2	Echelle du couvert	187
IV.2	Description du modèle TOCATTA-$\chi_{\text{post-thèse}}$	200
IV.2.1	Oxydation bactérienne du HT dans le sol	200
IV.2.2	Transfert sol-plante (lysimètres)	213
IV.2.3	Cinétique de transfert végétal de la vapeur d'eau tritiée atmosphérique.....	217
IV.2.4	Discrimination des formes tritiées dans la matière organique végétale (from Renard <i>et al.</i> , 2017)	228
IV.3	Prédictions du modèle TOCATTA-$\chi_{\text{post-thèse}}$	234
IV.3.1	HTO dans le sol	235
IV.3.2	TFWT dans la plante	245
IV.3.3	OBT dans la plante	250
IV.3.4	Discussion générale	258
CHAPITRE V.	CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES	261
	REFERENCES.....	265
	ANNEXES	285
Annexe A.	Outil Analytique	285
Annexe B.	Calcul de paramètres utilisés dans TOCATTA-χ	287
Annexe C.	Données expérimentales complémentaires	303

LISTE DES FIGURES

Figure I.1 : Système de prélèvement du tritium atmosphérique de type « MARC 7000 » (SDEC) (AFNOR, 2011).	43
Figure I.2 : Répartition des atomes d'hydrogène échangeable et non échangeable dans la cellulose (Bacchetta, 2014).	44
Figure I.3 : Procédure de séparation des fractions de tritium d'un échantillon biologique pour analyse. ...	46
Figure I.4 : Schéma de principe de la combustion des échantillons tritiés dans un four tubulaire (Baglan et al., 2010 d'après Bacchetta 2014).	47
Figure I.5: Comportement d'un effluent dans l'atmosphère (source IAEA, 1981).	52
Figure I.6: Triangle de texture proposé par l'USDA (IUSS Working Group WRB, 2006).	55
Figure I.7: Composition schématique (volumique) d'un sol à texture médiane, aux conditions considérées optimales pour la croissance végétale (Hillel, 2004). Les flèches indiquent une relation entre l'eau et l'air, de sorte qu'une augmentation du volume de l'un est associée à une diminution de l'autre.	56
Figure I.8: Distribution verticale des bactéries oxydantes dans les 20 premiers centimètres de sol, d'après Komuro et al. (2002).	58
Figure I.9: Représentation schématique d'une cellule végétale (Boyer (2009) d'après Hopkins (1995) et Gallien (2005)).	64
Figure I.10: Représentation schématique d'une feuille dicotylédone mésomorphe typique (Acer sp.) observée en coupe transversale (Hopkins, 2008).	65
Figure I.11: Echange d'ions et de solutés à travers les membranes cellulaires végétales impliquant la diffusion simple, la diffusion facilitée ou le transport actif (d'après Hopkins et Hüner, 2008).	67
Figure I.12 : Représentation schématique de la production de sucre à partir de la phase claire et de la phase sombre.	69
Figure I.13 : Représentation schématique de la phase claire (phase photosynthétique). L'éclair jaune symbolise l'action de la lumière au cours de cette phase (photolyse de l'eau), e ⁻ représente le gradient électrochimique, a représente la plastoquinone et b représente la plastocyanine.	71
Figure I.14: Représentation schématique de la phase sombre (Cycle de Calvin).	72
Figure I.15: Cycle de vie du ray-grass, de la germination à la production de graines (d'après DairyNZ.com)	75
Figure I.16: Représentation schématique des transferts du tritium aux interfaces air-sol-plante au sein d'un écosystème prairial.	78
Figure I.17: Echanges (flèches blanches) et transferts (flèches noires) terrestres de tritium considérés dans le modèle SOLVEG-II (issu de Ota et Nagai, 2011).	88

Figure I.18 : Modèle d'allocation et de translocation de carbohydrates utilisé dans le modèle SOLVEG-II. Les coefficients multiplicatifs des flux de carbohydrate E_{An} et E_{Rd} sont issus de Fondy et Geiger (1982) (d'après Ota et Nagai, 2011). 91

Figure I.19 : Localisation de la plateforme technique et des émissions principales et secondaires de l'usine AREVA NC La Hague, issu de Maro *et al.*, 2017. Les emplacements pour les mesures de la spéciation de 3H dans l'air sont également affichés (les chiffres correspondant aux références dans le Tableau I.8). 94

Figure I.20 : Rose des vents enregistrés au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague, de juin 2013 à août 2016. Pour le site de la plateforme expérimentale, la fréquence des directions d'origine du vent est reportée sur une rose des vents à 32 directions. La vitesse du vent est représentée par un code couleur : bleu pour les vitesses de vent inférieures à $3\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, noir pour les vitesses de vent comprises entre 3 et $5\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, vert pour les vitesses de vent comprises entre 5 et $8\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, rouge pour les vitesses de vent supérieures à $8\text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ 95

Figure I.21 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ avec les mesures provenant de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague, dans le compartiment **HTO** du sol. Le jeu de données correspond aux prélèvements semi-mensuels à mensuels réalisées de juin 2013 à juin 2015 (N=34) (d'après Le Dizès *et al.*, 2017 ; Maro *et al.*, 2017). 105

Figure I.22 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ avec l'ensemble des mesures provenant de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague, dans le compartiment **TFWT** du ray-grass. Le jeu de données correspond aux prélèvements semi-mensuels à mensuels réalisés de juin 2013 à juin 2015 (N=34) (d'après Le Dizès *et al.*, 2017 ; Maro *et al.*, 2017). L'encadré noir représente la variation temporelle de l'activité modélisée de **TFWT** pour le point mesuré à $62\text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ (d'après Le Dizès *et al.*, 2017). 106

Figure I.23 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ avec les mesures provenant de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague, dans le compartiment **TFWT** du ray-grass. Pour cette comparaison des activités **TFWT** de faible activité, les sorties du modèle ne sont confrontées qu'aux données mesurées inférieures à $15\text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$. Le jeu de données correspond aux prélèvements semi-mensuels à mensuels réalisés de juin 2013 à juin 2015 (N=32) (d'après Le Dizès *et al.*, 2017 ; Maro *et al.*, 2017). 107

Figure I.24 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ avec les mesures provenant de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague, dans le compartiment **OBT** du ray-grass. Le jeu de données correspond aux prélèvements semi-mensuels à mensuels réalisés de juin 2013 à juin 2015 (N=34) (d'après Le Dizès *et al.*, 2017 ; Maro *et al.*, 2017). 108

Figure II.1 : Représentation schématique des différents processus du modèle étudié au cours de cette thèse. Les flèches bleues et noires représentent les processus ou flux existant en amont de cette étude. Les paramètres et flèches en rouges correspondent aux processus ou flux améliorés ou validés au cours de cette étude. 112

Figure II.2 : Représentation conceptuelle de la trame de conception et de validation du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$, appliquée au cours de cette thèse. Le code couleur appliqué à cette figure suit la logique suivante : un rectangle orange aux bords arrondis correspond à un module du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré/post-thèse}}$; un hexagone orange correspond à une hypothèse du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré/post-thèse}}$; un rectangle bleu correspond à des mesures <i>in situ</i> ; un rectangle vert correspond à une expérimentation de thèse (en laboratoire et <i>in situ</i>).....	113
Figure III.1 : Illustration d'un appareil de mesure des échanges gazeux foliaires (CO_2 , H_2O) LI-6400 (Li-Cor).	114
Figure III.2 : Représentation schématique du calcul des flux de H_2O et de CO_2 au niveau foliaire, issu de Li-Cor (1999).	117
Figure III.3 : Représentation schématique des échanges gazeux mesurés à l'aide de LI-6400, issu de Li-Cor (1999).	117
Figure III.4 : Ajustement des courbes de réponse (A_{net} , C_i) à partir de mesures de photosynthèse nette (A_{net} , $\mu\text{mol.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$) pour différentes concentrations de CO_2 interne (C_i , Pa) (d'après Thomasset, 2016). Les points bleus représentent les différentes mesures expérimentales. La courbe rouge représente A_c limitée par $V_{c \text{ max}}$ (éclairage à $1000 \mu\text{mol photon.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$) tandis que la courbe verte représente A_j limitée par la régénération de RuBP (Équation III.1).....	119
Figure III.5 : Illustration d'un carottage de sol. L'échantillon prélevé s'étend à 20 cm de profondeur. ...	122
Figure III.6 : Illustration de la station météorologique utilisée au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague (WatchDog 2000 series).	125
Figure III.7 : Illustration de la sonde type diélectrique utilisée.	126
Figure III.8 : Illustration du planimètre LI-3100C.	127
Figure III.9 : Illustration du Planimètre LAI-2000.	128
Figure III.10 : Représentation de l'écoulement d'air au-dessus de la surface (Burba <i>et al.</i> , 2013).	129
Figure III.11 : Description de deux turbulences à un point seul sur la tour de mesure (Burba <i>et al.</i> , 2013).	130
Figure III.12 : Illustration des instruments de mesures <i>in situ</i> utilisés pour déterminer les flux de CO_2 et de H_2O au niveau de la parcelle expérimentale.	132
Figure III.13 : Représentation d'une courbe de co-spectre (Burba et Anderson, 2010).	135
Figure III.14 : Illustration des directions de vent retenues pour la mesure de flux par la méthode des flux turbulents, à partir d'une vue satellite de la parcelle expérimentale.	137
Figure III.15: Photographie d'un système de prélèvement du HTO gazeux par barbotage (MARC 7000). ..	139
Figure III.16 : Photographie d'un compteur proportionnel à ^{85}Kr LB111, Berthold.	140
Figure III.17 : Photographie d'un système de prélèvement H3R7000 (PREVAIR).	140
Figure III.18 : Illustration du système de préleveur automatique BL 2000 (à droite), en complément du système de prélèvement H3R7000 de la vapeur d'eau de l'air (à gauche).	141
Figure III.19 : Illustration d'un flacon de prélèvement avec un bouchon flotteur.	142

Figure III.20 : Représentation schématique du dispositif <i>in situ</i> de prélèvement automatique de HTO de l'eau liquide du sol. Avec (a) le couvert végétal ; (b) le sol ; (c) le drain ; (d) le réservoir d'eau du sol vidé toutes les 48 h ; (e) le préleveur automatique BL 2000 localisé dans le cabanon (f).	144
Figure III.21 : Photographie de la parcelle de ray-grass (plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague) où les prélèvements de d'herbe sont réalisés régulièrement.	145
Figure III.22 : Illustration du prélèvement de HT au pied de l'usine AREVA-NC la Hague. Le prélèvement est réalisé avec des compresseurs d'air et un détecteur ⁸⁵ Kr (image de droite).	149
Figure III.23 : Illustration d'un prélèvement de sol à l'aide d'un carottier. A gauche : enfoncement d'un carottier dans le sol pour prélèvement. A droite : manchon, placé à une extrémité du tube pour assurer son étanchéité.....	150
Figure III.24 : Illustration du dispositif expérimental d'oxydation du HT dans le sol.....	151
Figure III.25 : Illustrations des carottes de sol utilisées dans le dispositif expérimental d'oxydation du HT dans le sol.....	152
Figure III.26 : Représentation schématique du dispositif expérimental d'oxydation. a : bonbonne d'air HT (5 L sous 100 bars) ; b : biberons amont (piégeages des traces de HTO) ; c : carottes de sol (5-20 cm) ; d : pince clippante ; e : détecteur ⁸⁵ Kr (LB123) ; f : station acquisition (température, teneur en eau volumique) ; g : biberon aval.....	153
Figure III.27 : Situation du laboratoire par rapport à l'usine AREVA NC La Hague.....	154
Figure III.28 : Illustration du processus du conditionnement en barquette des tranches de carottes de sol.	155
Figure III.29 : Illustration du lysimètre à toit découvrant par temps sec de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague.....	157
Figure III.30 : Représentation schématique du lysimètre à couverture automatique de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague. Le schéma du haut représente le lysimètre par temps ensoleillé et le schéma du bas représente le lysimètre par temps de pluie. L'alimentation en eau du lysimètre est effectuée par un réservoir d'eau à 110 Bq.L ⁻¹	158
Figure III.31 : Vue extérieure (photographie de gauche) et intérieure (photographie de droite) de la serre de culture.	159
Figure III.32 : Illustration du suivi de la présence du panache. Le détecteur ⁸⁵ Kr (LB123) est relié à un ordinateur (photographie de gauche). Les activités de ⁸⁵ Kr sont présentées sous forme de chroniques afin d'anticiper la reprise d'un cycle de cisaillement de combustible radioactif par l'usine AREVA NC (photographie de droite).	161
Figure III.33 : Illustration de l'exposition des barquettes d'herbe (photographie de gauche) au panache (photographie de droite) le temps d'un cycle d'une heure de H3R7000.	161
Figure III.34 : Photographie des barquettes d'herbe lors de la phase d'épuration.	162
Figure III.35 : Conceptual representation of the method used to determine tritium forms discrimination in plant organic matter.	165

Figure III.36 : Schematic representation of the hydroponic box. On the left: Isometric view of the hydroponic growing device. The set-up consists of a data recorder -photosynthetically active radiation, temperature, relative humidity- [a], downstream bubbling system [b], hydroponic box [c], upstream bubbling system [d], light [e], bubbling can volume of 70L [f], protection tent [g]. On the right: Sectional view of the hydroponic box with the air injection system (Marc7000) in the “water” - root zone- and “air” -leaf zone- compartment.	169
Figure III.37 : Compartments and mass transfer processes associated with hydrogen and carbon flow (dotted arrows) and hydrogen labile exchange (solid arrows) defined in the plant growth model. ...	178
Figure IV.1 : Courbes de réponse de l’assimilation nette de CO ₂ (A _{net}) à la concentration en CO ₂ dans les espaces intercellulaires (C _i) obtenues <i>in situ</i> sur les feuilles de ray-grass au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague à différentes dates. TPU signifie « triose-phosphate ».	186
Figure IV.2 : Evolution temporelle de la teneur en azote (% kg _{azote} /kg _{matière foliaire sèche}) mesurée dans les protéines des feuilles de ray-grass de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague (mai 2016 à mai 2017), selon la méthode Kjeldahl.	189
Figure IV.3 : Relation entre la vitesse de production de matière sèche par unité de surface et la teneur critique en azote foliaire chez les espèces en C3 (d’après Lemaire et Gastal, 1997).	190
Figure IV.4 : Mesure de la production journalière de matière sèche des feuilles de ray-grass de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague (g _{pooids sec} .m ⁻² .jour ⁻¹), de mai 2016 à mai 2017. Ces données sont issues des masses fraîches prélevées pour les mesures de OBT et TFWT et du ratio PF/PS du Tableau IV.4.	191
Figure IV.5 : Evolution annuelle de l’indice de surface foliaire (LAI , m ² .m ⁻²) des feuilles de ray-grass de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague (mai 2016 à mai 2017).	192
Figure IV.6 : Comparaison des mesures de LAI réalisées au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague via l’utilisation du code Matlab ou LAI-2000 et des prédictions du LAI par le modèle TOCATTA- χ (de mai 2016 à mai 2017). Les intervalles désignent les incertitudes liées à la mesure.	193
Figure IV.7 : Evolution de la quantité de matière sèche des parties aériennes du ray-grass de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague (juin 2013 à juin 2016).	194
Figure IV.8 : Comparaison entre la modélisation et les mesures de la production de matière sèche (MS) des parties aériennes du ray-grass de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague (juin 2013 à juin 2016), N=43.	196
Figure IV.9 : Exemple de chroniques des flux de H ₂ O de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague du 01/05/2016 au 11/05/2016, issues du modèle TOCATTA- χ (sorties semi-horaires) et de mesures <i>in situ</i> (sorties semi-horaires) par la méthode des flux turbulents. Les données expérimentales ont été corrigées en fonction de la stationnarité et de la direction du vent (N=1498).	197

Figure IV.10 : Comparaison des flux d'évapotranspiration issu du modèle TOCATTA- χ avec les mesures de flux de H ₂ O réalisées à la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague du 1er mai 2016 au 30 mai 2016. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.	198
Figure IV.11 : Exemple de chroniques des flux de CO ₂ ($\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague du 1 ^{er} mai 2016 au 11 mai 2016, issues du modèle TOCATTA- χ et de mesures <i>in situ</i> par la méthode des flux turbulents. Les données expérimentales ont été corrigé en fonction de la stationnarité et de la direction du vent (N=3821).	199
Figure IV.12 : Comparaison des flux net de CO ₂ ($\mu\text{mol}_{\text{CO}_2}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) issus du modèle TOCATTA- χ avec les mesures de flux de CO ₂ réalisées à la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague du 1 mai 2016 au 30 mai 2016. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale. .	200
Figure IV.13 : Evolution du ⁸⁵ Kr au cours des différentes expérimentations d'oxydation du HT par les bactéries du sol. Chaque point correspond à une mesure (expérimentation 1 : mesure ponctuelle, expérimentations 2 et 3 : mesure automatique (toutes les minutes) moyennée sur 1 heure). CPS signifie « Coups par Seconde ».	202
Figure IV.14 : Comparaison de la production de HTO obtenue expérimentalement par tranche de sol relative à la profondeur de sol utilisée (20 cm) avec l'évolution spatiale de la teneur en bactérie oxydante issue de Komuro <i>et al.</i> , 2002.	206
Figure IV.15 : Illustration de la variabilité du paramètre b1 (ppm HT) en fonction de la texture de sol. Les résultats issus de notre étude sont représentés par un cercle (sols décrits Tableau IV.6), les résultats issus de la littérature sont représentés par un triangle.	212
Figure IV.16 : Détermination du paramètre b1 (ppm HT) à partir de la texture de sol, pour des sols dont la teneur en argile est inférieure à 25 %. Parmi les valeurs de b1 reportées issues de la littérature (Tableau IV.14), si plusieurs valeurs de b1 sont présentes dans une étude pour un même type de sol alors la valeur de b1 retenue est une moyenne de ces données existantes.	213
Figure IV.17 : Chronique temporelle de l'activité de l'eau d'arrosage et de l'eau de drainage des lysimètres.	214
Figure IV.18 : Chronique temporelle des mesures de la teneur en eau du sol au niveau du ray-grass irrigué avec de l'eau marquée en tritium à 110 Bq.L ⁻¹	214
Figure IV.19 : Comparaison entre le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ et les mesures <i>in situ</i> des activités TFWT pour des végétaux protégés de la pluie et irrigués avec de l'eau du sol marquée à 110 Bq.L ⁻¹ , du 16 juin 2016 au 31 décembre 2016 (N=20). La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.	217
Figure IV.20 : Chroniques des activités de ⁸⁵ Kr lors du marquage des barquettes de ray-grass sous le panache d'AREVA NC-La Hague la nuit du 12 au 13 juillet 2016. La période de marquage est symbolisée en jaune.	218
Figure IV.21 : Evolution de l'activité en tritium du TFWT et OBT du ray-grass suite à un marquage de 55 minutes au tritium d'origine atmosphérique le 12 et 13 juillet 2016.	220

Figure IV.22 : Chroniques des activités ^{85}Kr lors du marquage des barquettes de ray-grass sous le panache d'AREVA NC-La Hague la nuit du 9 décembre 2016. La période de marquage est symbolisée en jaune.	221
Figure IV.23 : Evolution de l'activité en tritium du TFWT et OBT du ray-grass suite à un marquage de 55 minutes au tritium d'origine atmosphérique le 9 décembre 2016.	222
Figure IV.24 : Chroniques des activités ^{85}Kr lors du marquage des barquettes de ray-grass sous le panache d'AREVA NC-La Hague le 26 janvier 2017. La période de marquage est symbolisée en jaune.	223
Figure IV.25 : Evolution de l'activité en tritium du TFWT et OBT du ray-grass suite à un marquage de 55 minutes au tritium d'origine atmosphérique le 26 janvier 2017.	224
Figure IV.26 : Comparaison de la conductance stomatique de Huntingford avec le temps de demi-équilibre entre le TFWT et le HTO atmosphérique.	227
Figure IV.27 : Change over time in measured dehydrated mass (N=100) and modelled dehydrated mass for ryegrass leaf (mg DW). The error bar relates to uncertainty in measurements using a thermobalance.	228
Figure IV.28 : Change over time in measured dehydrated mass (N=100) and modelled dehydrated mass for ryegrass seed (mg DW). The error bar relates to uncertainty in measurements using a thermobalance.	229
Figure IV.29 : Change over time in measured dehydrated mass (N=100) and modelled dehydrated mass for ryegrass root (mg DW). The error bar relates to uncertainty in measurements using a thermobalance.	229
Figure IV.30 : Weight percentage in a ryegrass leaf. These model outputs (daily resolution) relate to the variation in foliar dehydrated mass resulting from allocation and photosynthesis processes, represented by dots and lines respectively.	231
Figure IV.31 : Correlation between modelled activity and measured activity of Leaf OBT. Each circle represents measured OBT activity (with the related measurement uncertainty) for a Leaf OBT model output, corrected to allow for enhanced correction using the parameter of the OBT/TFWT model.	232
Figure IV.32 : Chroniques temporelles des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ de l'activité de l'eau liquide du sol (Bq.L^{-1}) et des mesures <i>in situ</i> réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur la parcelle expérimentale IRSN-La Hague.	236
Figure IV.33 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ de l'activité de l'eau liquide du sol (Bq.L^{-1}) avec mesures <i>in situ</i> issues des prélèvements automatiques de l'eau drainée du sol (N=197), réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur la parcelle expérimentale IRSN-La Hague. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.	237
Figure IV.34 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ de l'activité de l'eau liquide du sol (Bq.L^{-1}) avec les mesures <i>in situ</i> issues des prélèvements ponctuels de carotte de sol (N=22), réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur la parcelle expérimentale IRSN-La Hague. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.	238

Figure IV.35 : Chroniques temporelles des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ de l'activité de l'eau liquide du sol (Bq.L^{-1}) et des mesures <i>in situ</i> réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur la parcelle expérimentale IRSN-La Hague.	239
Figure IV.36 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ de l'activité de l'eau liquide du sol avec les mesures <i>in situ</i> issues des prélèvements automatiques de l'eau drainée du sol (N=197), réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.	240
Figure IV.37 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ de l'activité de l'eau liquide du sol (Bq.L^{-1}) avec les mesures <i>in situ</i> issues des prélèvements ponctuels de carotte de sol (N=22), réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.	241
Figure IV.38 : Comparaison des sorties de la teneur en eau volumique ($\% \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-3}_{\text{sol}}$) du modèle pré-thèse avec les mesures par sonde diélectriques de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague, de juin 2013 à juin 2016.	242
Figure IV.39 : Comparaison des sorties de la teneur en eau volumique ($\% \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-3}_{\text{sol}}$) du modèle post-thèse avec les mesures par sonde diélectriques de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague, de juin 2013 à juin 2016.	243
Figure IV.40 : Comparaison des sorties de teneur en eau volumique ($\% \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-3}_{\text{sol}}$) du modèle pré-thèse avec les mesures de teneur en eau obtenues par pesée de carottes avant et après lyophilisation, de juin 2013 à juin 2016. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.	243
Figure IV.41 : Comparaison des sorties de teneur en eau volumique ($\% \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-3}_{\text{sol}}$) du modèle post-thèse avec les mesures de teneur en eau obtenues par pesée de carottes avant et après lyophilisation, de juin 2013 à juin 2016. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.	244
Figure IV.43 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ de TFWT avec les mesures <i>in situ</i> issues des prélèvements ponctuels, réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague (N=51). La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.	245
Figure IV.42 : Chroniques temporelles des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ de l'activité de l'eau cellulaire tritiée et des mesures <i>in situ</i> réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague.	246
Figure IV.44 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ de TFWT avec les mesures <i>in situ</i> issues des prélèvements ponctuels inférieures à $15 \text{ Bq} \cdot \text{L}^{-1}$, réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague (N=44). La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.	247
Figure IV.45 : Chroniques temporelles des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ de l'activité de l'eau cellulaire tritiée et des mesures <i>in situ</i> réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague.	248

Figure IV.46 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ de TFWT avec les mesures *in situ* issues des prélèvements ponctuels, réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague (N=51). La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale. 249

Figure IV.47 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ de TFWT avec les mesures *in situ* issues des prélèvements ponctuels inférieures à 15 Bq.L⁻¹, réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague (N=44). La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale. 250

Figure IV.48 : Chroniques temporelles des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ de l'activité de OB^T (Bq.L⁻¹) de la plante et des mesures *in situ* réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague. 252

Figure IV.49 : Chroniques temporelles des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ de l'activité en neOB^T(Bq.L⁻¹) et des mesures *in situ* réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague. La comparaison modèle-mesures pour la période de juin 2013 à juin 2015 est réalisée par Le Dizès *et al.* (2017). 253

Figure IV.50 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ de OB^T (Bq.L⁻¹) avec les mesures *in situ* issues des prélèvements ponctuels, réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague (N=51). La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale. 254

Figure IV.51 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ de neOB^T (Bq.L⁻¹) avec les mesures *in situ* issues des prélèvements ponctuels, réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague (N=51). La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale. 254

Figure IV.52 : Chroniques temporelles des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ de l'activité de OB^T (Bq.L⁻¹) et des mesures *in situ* réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague. 255

Figure IV.53 : Chroniques temporelles des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ de l'activité de neOB^T (Bq.L⁻¹) et des mesures *in situ* réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague. 256

Figure IV.54 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ de OB^T avec les mesures *in situ* issues des prélèvements ponctuels, réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale. 257

Figure IV.55 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ de neOB^T avec les mesures *in situ* issues des prélèvements ponctuels, réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale. 257

LISTE DES TABLEAUX

Tableau I.1 : Caractéristiques atomiques des isotopes naturels de l’hydrogène.....	37
Tableau I.2 : Bilan 2013 des quantités de tritium produites par an en fonction des principales sources passées et actuelles (Belot <i>et al.</i> , 1996 ; Glugla <i>et al.</i> , 2007 ; Le Guen, 2008 ; Guétat <i>et al.</i> , 2008 ; ASN, 2010) d’après Bacchatta (2014).	42
Tableau I.3 : DPUI chez l’adulte, l’enfant et le nourrisson en fonction de la forme chimique tritiée et le mode d’incorporation (Belot <i>et al.</i> , 1993 ; ICRP, 1993 ; ICRP, 1995 ; ICRP, 1996)	51
Tableau I.4 : Description des différents paramètres utilisés pour calculer la vitesse d’oxydation du HT en HTO.	59
Tableau I.5 : Liste des éléments nutritifs nécessaires pour une croissance normale des plantes (d’après Hopkins et Hüner, 2008).	66
Tableau I.6 : Temps de demi-équilibre ($t_{1/2}$, min) entre la concentration en eau libre du végétal et la vapeur d’eau tritiée atmosphérique obtenus expérimentalement pour différentes espèces végétales.	80
Tableau I.7 : Variabilité des ratios d’activités OBT/TFWT issus d’expérimentations présents dans la littérature.....	85
Tableau I.8 : Concentrations en ^3H mesurées en 2013 autour du site de La Hague, d’après Maro <i>et al.</i> , 2017. Le numéro d’identification représente le lieu de prélèvement, indiqué Figure I.19.	96
Tableau I.9 : Matrice conceptuelle de TOCATTACH _{pré-thèse} . Les compartiments élémentaires (éléments diagonaux) sont en gras dans les éléments colorés, d’après Le Dizès <i>et al.</i> , 2017. Les processus de transfert de masse d’eau et de carbone entre les compartiments (éléments en dehors des diagonales) sont écrits en italiques alors que les processus concernant le tritium sont en lettre normales.	99
Tableau I.10 : Comparaison statistique par confrontation des activités simulées par le modèle TOCATTACH _{pré-thèse} aux mesures de terrain, de juin 2013 à juin 2015. HTO _{sol} représente la fraction liquide d’eau tritiée dans le sol, TFWT représente l’eau cellulaire tritiée de la plante et OBT représente le tritium lié à la matière organique.	109
Tableau III.1 : Valeurs des différents paramètres utilisés pour déterminer $V_{c\text{ max}}$ (Équation III.2) d’après Sharkey <i>et al.</i> , 2007).....	119
Tableau III.2 : Caractéristiques expérimentales lors des utilisations du Li-6400 à la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague. Les valeurs sont moyennées sur N données mesurées, avec entre crochet le minimum et le maximum de chaque série de données.	121
Tableau III.3 : Dénomination usuelle des classes granulométriques (d’après AFNOR NF X31-107).....	122
Tableau III.4 : Teneurs en azote foliaire total des fourrages verts (Nozières <i>et al.</i> , 2007).	124
Tableau III.5 : Précision de mesure des différents instruments météorologiques utilisés au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague.	125

Tableau III.6 : Classe de stabilité en fonction de l'inverse de la longueur de Monin-Obukhov sur différents couverts (Damay 2010). z_0 est un paramètre de rugosité du sol.	135
Tableau III.7: Prélèvement des différentes formes tritiées présentes au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague.	138
Tableau III.8 : Description des différents paramètres et variables utilisés pour calculer la vitesse d'oxydation du HT en HTO.	147
Tableau III.9 : Caractéristiques de carottage des sols utilisés pour les expériences en laboratoire.....	151
Tableau III.10 : Détails sur les expérimentations réalisées pour l'étude de la cinétique d'assimilation du tritium dans les végétaux par voie atmosphérique.	163
Tableau III.11 : Experimental parameters used to determine the eOBT fraction in ryegrass.	166
Table III.12 : Variables and parameters used to calculate the fraction available for exchange.	168
Table III.13 : Description of the parameters measured in the six hydroponic culture experiments. Where a parameter is variable over the course of an experiment, it is given by the arithmetic mean calculated using the N values recorded. Minimum and maximum values of these of N data series are given between square brackets. PAR stands for Photosynthetically Active Radiation.	171
Table III.14 : Description of dehydrated matter mass obtained at the end of the six hydroponic culture experiments. ^a The symbol "-" means that there is no data available.	172
Table III.15 : Different parameters relating to tritium used for sample labelling. N = number of tritium activity measured for a given experiment. Where activity is given in Bold in this table it means that $N > 1$, determined using the arithmetic mean of the values measured N times, weighted by the uncertainty values for each measurement. OBT activity concentrations are measured from combustion water. ^a The symbol "-" means that there is no data available.	173
Table III.16 : Measurement of rehydration of the freeze-dried samples and corrections made to OBT as per the method developed by Maro <i>et al.</i> , 2017. ^a The symbol "-" means that there is no data available.	175
Table III.17 : List of parameters used for determining rehydration (see Equation III.27 to Equation III.30). OBT activity concentrations are measured from combustion water.	176
Table III.18 : Variables and parameters of the growth model.	179
Tableau IV.1 : Présentation des valeurs de la conductance stomatique à l'eau ($g_{s\ H_2O}$, $m.s^{-1}$) et des conditions ambiantes de la feuille lors des mesures <i>in situ</i> et des calculs par le modèle TOCATTA- χ . PAR est le rayonnement actif pour la photosynthèse, P_{atm} est la pression atmosphérique, T_{air} est la température de l'air, R est la constante des gaz parfaits, n/V est le nombre de moles par unité de volume et $g_{s\ CO_2}$ est la conductance stomatique au CO_2	185
Tableau IV.2 : Présentation des valeurs du paramètre $V_{c\ max}$ et des conditions ambiantes de la feuille lors des mesures <i>in situ</i> et des calculs par le modèle TOCATTA- χ . T_{leaf} est la température interne de la feuille, O_2 est la pression partielle de dioxygène au sein de la feuille et P_{atm} est la pression atmosphérique.	187
Tableau IV.3 : Analyse granulométrique sur le sol de la plateforme expérimentale IRSN-la Hague.....	188

Tableau IV.4 : Caractéristiques des échantillons foliaires nécessaires aux mesures de teneur en azote foliaire. Les symboles PF et PS signifient respectivement « poids frais » et « poids sec ».....	188
Tableau IV.5 : Paramètres statistiques de la comparaison modèle/mesure des flux de H ₂ O au niveau de la parcelle de ray-grass de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague.	199
Tableau IV.6 : Caractéristiques granulométriques des différents sols utilisés pour les expériences en laboratoire pour l'étude de l'oxydation bactérienne du HT.....	201
Tableau IV.7 : Caractéristiques expérimentales mesurées lors des essais en laboratoire d'oxydation bactérienne du HT dans les premiers centimètres de sol.	201
Tableau IV.8 : Activité du HTO présent dans l'air injecté dans la chambre d'oxydation.	203
Tableau IV.9 : Activité tritiée de l'eau du sol (HTO, Bq.L ⁻¹) des carottes autoclavées soumises à une exposition constante de HT, selon les conditions de l'expérimentation n°3.	203
Tableau IV.10 : Activité en HTO de l'eau du sol mesurée à différentes profondeurs, selon les conditions de l'expérimentation n°2. Les parties aériennes correspondent à la partie foliaire du ray-grass.....	204
Tableau IV.11 : Activité en HTO de l'eau du sol (Bq.L ⁻¹) mesurée à différentes profondeurs selon les conditions de l'expérimentation n°3.	207
Tableau IV.12 : Activité HTO de l'eau du sol mesurée après des temps variables d'exposition au HT, selon l'expérimentation n°3.	209
Tableau IV.13 : Activité de HTO de l'eau du sol mesurée dans différents types de sol après une exposition au HT.	210
Tableau IV.14 : Variabilité du paramètre b1 obtenu expérimentalement ou à partir de la littérature, en fonction de la texture de sol.	211
Tableau IV.15 : Mesures du tritium sous forme d'eau libre dans les différents compartiments (TFWT de la plante ou HTO du sol) au sein des lysimètres de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague.	215
Tableau IV.16 : Evolution de l'activité en tritium du TFWT et OBT du ray-grass suite à un marquage de 55 minutes au tritium d'origine atmosphérique le 12 et 13 juillet 2016, de 23h47 à 00h42 (TU).	219
Tableau IV.17 : Evolution de l'activité en tritium du TFWT et OBT du ray-grass suite à un marquage de 55 minutes au tritium d'origine atmosphérique le 9 décembre 2016, de 01h20 à 02h15 (TU).	221
Tableau IV.18 : Evolution de l'activité en tritium du TFWT et OBT du ray-grass suite à un marquage de 55 minutes au tritium d'origine atmosphérique le 26 janvier 2017, de 14h15 à 15h10 (TU).	224
Tableau IV.19 : Paramètres météorologiques et conductance stomatique de Huntingford g _{s CO2} modélisée au cours des trois expérimentations <i>in situ</i> de TFWT et eOBT.	226
Table IV.20 : Exchangeable fractions of tritium in organic matter, in ryegrass leaves and seeds.	230
Tableau IV.21 : Different experiment-based OBT/TFWT ratios in the literature.	233
Tableau IV.22 : Contribution relative des trois processus implémentés ou modifiés dans la nouvelle version de TOCATTA- χ au calcul du HTO du sol, pour la période 2013-2016 (N=52321).	259

Tableau IV.23 : Paramètres statistiques sur les comparaisons des modèles TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ et TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ avec les mesures réalisées sur le terrain expérimental de l'IRSN-AREVA NC La Hague, de 2013 à 2016. 260

LISTE DES SYMBOLES

Cette liste de symbole porte sur les différentes équations présentées au cours de cette thèse, à partir du § Méthodologie général, p. 110.

Nom	Signification	Unités
Γ^*	Point de compensation photo-respiratoire	Pa
a	Fraction échangeable, comprise entre 0 et 1	-
a_1	Constante	$\text{mol.kg}^{-1}.\text{s}^{-1}$
a_2	Constante	K
A_c	Assimilation de carbone limitée par la Rubisco	$\mu\text{mol.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$
$\text{Act}_{\text{funnel}}$	Activité de l'eau tritiée dans l'ampoule suite au rinçage	Bq.L^{-1}
$\text{Act}_{\text{labelled water}}$	Activité en tritium de l'eau marquée	Bq.L^{-1}
$\text{Act}_{\text{rinsed water}}$	Activité en tritium de l'eau de rinçage	Bq.L^{-1}
A_{H_2}	Masse molaire de H_2	g.mol^{-1}
$A_{\text{H}_2\text{O}}$	Masse molaire de H_2O	g.mol^{-1}
A_j	Assimilation de carbone limitée par la régénération de RuBP	$\mu\text{mol.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$
a_{Leaf}	Paramètre de l'équation de Schnute	hr^{-1}
Alloc	Matière organique provenant de la graine	mg MS
A_{net}	Assimilation nette de carbone	$\mu\text{mol.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$
a_{Root}	Paramètre de l'équation de Schnute	hr^{-1}
a_{Seed}	Paramètre de l'équation de Schnute	hr^{-1}
b_1	Constante	ppm
b_2	Constante	K
b_{Leaf}	Paramètre de l'équation de Schnute	-
b_{Root}	Paramètre de l'équation de Schnute	-
b_{Seed}	Paramètre de l'équation de Schnute	-
c	Constante	$\text{mol.m}^{-3}.\text{ppm}^{-1}$
C_a	Concentration de tritium dans l'eau atmosphérique	Bq.kg^{-1}
C_{HTO}	Activité du HTO présent dans la vapeur d'eau de l'air lors de la préparation de l'échantillon pour mesure	Bq.L^{-1}
C_i	Pression partielle de CO_2 au niveau de la Rubisco	Pa
C_{Leaf}	Paramètre de l'équation de Schnute	mg
$C_{\text{M(OBT)}}$	Activité de l'eau de combustion de OBT du ray-grass	Bq.L^{-1}
$C_{\text{R(OBT)}}$	Activité réelle de l'eau de combustion de OBT du ray-grass	Bq.L^{-1}
C_{Root}	Paramètre de l'équation de Schnute	mg
C_{sO}	Concentration de tritium dans l'eau de la couche superficielle	Bq.kg^{-1}
C_{Seed}	Paramètre de l'équation de Schnute	mg
C_{TFWT}	Activité du TFWT de l'échantillon	Bq.L^{-1}

eOBT	Activité de l'eau de combustion de tritium lié à la matière organique avec une cinétique d'échange rapide	Bq.L ⁻¹
eOBT ₀	Activité du OBT au pas de temps <i>t</i>	Bq.L ⁻¹
eOBT ₋₁	Activité du OBT au pas de temps précédent	Bq.L ⁻¹
ETP	Evapotranspiration potentielle	g _{eau} .m ⁻² .s ⁻¹
ETR	Evapotranspiration réelle	g _{eau} .m ⁻² .s ⁻¹
F _c	Flux vertical de l'élément d'intérêt	kg.m ⁻² .s ⁻¹
f _s	Variable fonction de la concentration du substrat, comprise entre 0 et 1	-
f _T	Variable fonction de la température du sol, comprise entre 0 et 1	-
f _w	Variable fonction de la teneur en eau volumique du sol, comprise entre 0 et 1	-
f _z	Variable fonction de la profondeur de sol, comprise entre 0 et 1	-
g.T ₀ ⁻¹	Paramètre de flottabilité	m.s ⁻² .K ⁻¹
g _{s CO2}	Conductance stomatique foliaire au CO ₂	m.s ⁻¹
g _{s H2O}	Conductance stomatique foliaire à l'eau	m.s ⁻¹
H _{DM}	Ratio entre la masse d'hydrogène de l'échantillon désydraté et la masse totale de l'échantillon déshydraté	-
H _{OM}	Pourcentage massique d'hydrogène dans la matière organique (masse déshydratée)	-
H _{water}	Pourcentage massique d'hydrogène dans l'eau	-
J	Flux net de tritium	Bq.m ⁻² .s ⁻¹
k	Constante de von Kármán	-
K _C	Constante de Michaelis de la Rubisco pour le dioxyde de carbone	Pa
K _m	Paramètre de Michaelis-Menten	ppm
K _O	Constante d'inhibition de la Rubisco pour l'oxygène	Pa
LMO	Longueur de Monin-Obukhov	m
m _{rinse water}	Masse de l'eau de rinçage présente dans l'ampoule	g water
MS _{aérienne i}	Variations de matière sèche au pas de temps <i>i</i> au niveau des parties aériennes	kg.m ⁻² .s ⁻¹
m _{sample}	Masse de l'échantillon déshydraté	g DW
MS _{racinaire i}	Variations de matière sèche au pas de temps <i>i</i> au niveau des parties racinaires	kg.m ⁻² .s ⁻¹
MS _{végétale i}	Variations de matière sèche au pas de temps <i>i</i> au niveau du végétal	kg.m ⁻² .s ⁻¹
n	Nombre de moles	mol
neOBT	Activité de l'eau de combustion de tritium lié à la matière organique avec une cinétique d'échange lente	Bq.L ⁻¹
O	Pression partielle d'oxygène au niveau de la Rubisco	Pa
OBT	Activité de l'eau de combustion de tritium lié à la matière organique	Bq.L ⁻¹
OBT _{a i}	Activité en tritium de la matière organique sèche au pas de temps <i>i</i>	Bq.kg ⁻¹
P _{atm}	Pression atmosphérique	Pa
Photo	Matière organique produite issue de la photosynthèse	mg MS

P_{Root}	Fraction des assimilats carbonés issus de la photosynthèse, suivie d'une allocation vers les racines	-
R	Constante universelle des gaz parfaits	$J.K^{-1}.mol^{-1}$
R_d	Respiration	$\mu mol.m^{-2}.s^{-1}$
R_{FD}	Ratio entre la masse d'eau résiduelle dans l'échantillon après lyophilisation et la masse totale d'eau issue de la combustion de l'échantillon	-
R_{FDDM}	Ratio entre la masse d'eau résiduelle après la lyophilisation et la masse totale de l'échantillon déshydraté	-
R_{FDR}	Ratio entre la masse d'eau résiduelle après lyophilisation avec reprise en eau de l'échantillon déshydraté et la masse totale d'eau issue de la combustion de l'échantillon	-
Rg_{Leaf}	Respiration de croissance foliaire	mg
Rg_{Root}	Respiration de croissance racinaire	mg
Rg_{Seed}	Respiration de croissance de la graine	mg.seed ⁻¹
R_{Leaf}	Respiration foliaire	mg
Rm_{Leaf}	Respiration de maintenance foliaire	mg
Rm_{Root}	Respiration de maintenance racinaire	mg
Rm_{Seed}	Respiration de maintenance de la graine	mg.seed ⁻¹
root_uptake	Assimilation racinaire du HTO liquide du sol	$g_{eau}.m^{-2}.s^{-1}$
R_{Root}	Respiration racinaire	mg
R_{Seed}	Respiration de la graine	mg.seed ⁻¹
R_{TDM}	Ratio entre la masse d'eau résiduelle de l'échantillon après lyophilisation avec reprise en eau de l'échantillon déshydraté et la masse totale de l'échantillon déshydraté	-
s	Ratio de mélange de la substance d'intérêt	-
T	Température du sol	K
t	Temps depuis la mise en culture	hr
T^*	Température absolue virtuelle	K
T'	Fluctuation de température	K
T_{air}	Température de l'air	K
$TFWT_0$	Activité du TFWT au pas de temps t	$Bq.L^{-1}$
$TFWT_{-1}$	Activité du TFWT au pas de temps précédent	$Bq.L^{-1}$
$TFWT_i$	Activité de TFWT au pas de temps i	$Bq.L^{-1}$
T_{stn}	Température de 1 mol d'air à 20 °c et 1 atmosphère	K
u^*	Vitesse de frottement du vent	$m.s^{-1}$
V	Volume	m^3
$V_{10\%}$	Vitesse d'oxydation du D_2 à $\theta=10\%$	$mol.kg^{-1}.s^{-1}$
$V_{c\ max}$	Vitesse maximale de carboxylation par la Rubisco	$\mu mol.m^{-2}.s^{-1}$
V_e	Vitesse d'échange	$m.s^{-1}$
V_{opt}	Coefficient optimal pour D_2	$mol.kg^{-1}.s^{-1}$
V_{oxi}	Vitesse d'oxydation réelle HT	$mol.kg^{-1}.s^{-1}$
V_{ref}	Vitesse d'oxydation de référence de HT	$mol.kg^{-1}.s^{-1}$

w	Vitesse verticale du vent	$m.s^{-1}$
w'	Fluctuation turbulente verticale du vecteur vitesse	$m.s^{-1}$
w ₁	Coefficient pour D ₂	-
Weq	Facteur « équivalent en eau » de la fraction sèche de la plante	$L.kg^{-1}$
w _h	Coefficient pour D ₂	-
X ₁	Paramètre de l'équation de Schnute	hr
X _{2 Leaf}	Paramètre de l'équation de Schnute	hr
X _{2 Root}	Paramètre de l'équation de Schnute	hr
X _{2 Seed}	Paramètre de l'équation de Schnute	hr
Y _G	Efficacité de conversion du substrat à la structure	-
z	Profondeur de sol / Hauteur de mesure	m
β	Inverse du facteur de séparation isotopique	-
ΔG _{water}	variation de masse d'eau du végétal liée à la croissance	$g_{eau}.m^{-2}.s^{-1}$
Δ _t	Pas de temps de la modélisation	s
ε _{Leaf}	Paramètre de l'équation de Schnute	mg
ε _{Root}	Paramètre de l'équation de Schnute	mg
ε _{Seed}	Paramètre de l'équation de Schnute	mg
θ	Teneur en eau volumique du sol	$m^3.m^{-3}$
θ ₁	Teneur en eau volumique minimale du sol	$m^3.m^{-3}$
θ _h	Teneur en eau volumique maximale du sol	$m^3.m^{-3}$
λ _{eOBT}	Constante de demi-équilibre de eOBT avec TFWT	$Bq.L^{-1}$
λ _{TFWT}	Constante de demi-équilibre de TFWT avec le HTO atmosphérique	$Bq.L^{-1}$
λ _z	Constante	m^{-1}
ρ _a	Densité de l'air	$kg.m^{-3}$
ρ _a	Masse de vapeur d'eau par unité de volume d'air	$kg.m^{-3}$
ρ _c	Densité de la substance d'intérêt	$kg.m^{-3}$
ρ _v	Masse de vapeur d'eau saturante par unité de volume d'air	$kg.m^{-3}$
ω	Facteur de conversion	$mol.m^{-3}.ppm^{-1}$
x	Concentration en HT dans l'air du sol	$mol.m^{-3}$

GLOSSAIRE

Tous les mots présents dans le manuscrit et définis dans ce glossaire sont notés en gras.

Adénosine triphosphate (ATP) : l'ATP est un nucléotide servant à emmagasiner et transporter l'énergie nécessaire aux réactions chimiques du métabolisme. Cette molécule est constituée d'adénosine (adénine et ribose) et de trois groupements phosphates.

Aérosol : ensemble de fines particules (solides ou liquides) d'une substance chimique ou d'un mélange de substance chimique en suspension dans un milieu gazeux.

Amidon : l'amidon est une molécule de réserve pour les végétaux supérieurs de type polysaccharide (glucide complexe).

Autotrophe : organisme capable de générer sa propre matière organique à partir d'éléments minéraux.

Becquerel (Bq) : unité de mesure internationale utilisée pour la radioactivité. Le Becquerel est égal à une désintégration d'un noyau radioactif par seconde.

C3/C4 (plante en) : type de mécanisme de fixation du carbone au cours de la photosynthèse des plantes supérieures. Les plantes en C3 incorporent le carbone uniquement par l'intermédiaire du cycle de Calvin, dont le premier produit - dans lequel de dioxyde de carbone est incorporé - est un acide à trois atomes de carbone, le 3-phosphoglycérat (3-PGA). Pour les plantes en C4, le premier produit carboné est un acide à quatre atomes de carbone, l'oxaloacétate.

CAM (crassulacéen) : type métabolique photosynthétique rencontré chez les plantes des climats chauds et arides, permettant la fixation nocturne du dioxyde de carbone.

Capacité au champ : capacité de rétention maximale en eau du sol.

Catalyse : processus de modification de la vitesse d'une réaction chimique par l'action d'un catalyseur qui n'apparaît pas dans le bilan de la réaction.

Cellules de garde : ensemble de deux cellules réniformes, possédant entre elles une ouverture où s'effectuent les échanges gazeux de la plante (photosynthèse, respiration, transpiration).

Cellulose : polymérisation du glucose, constitutive de la membrane cellulaire des végétaux.

Cycle de Calvin : cycle photosynthétique de réduction du carbone.

Cycle des acides tricarboxyliques (ou cycle de Krebs) : cycle permettant la conversion du produit de la glycolyse (acide pyruvique) en dioxyde de carbone et en eau, dont la finalité est la production d'intermédiaires énergétiques pour la synthèse d'ATP.

Décroissance radioactive : décroissance du nombre de noyaux radioactifs dans un échantillon au cours du temps par désintégration.

Demi-vie : la demi-vie radioactive d'un élément est le temps mis par cet élément pour perdre la moitié de son activité radioactive.

Désintégration (radioactive) : réduction progressive du nombre d'atomes instables (radionucléides) d'une substance causée par la désintégration spontanée des noyaux ou leur transformation en atomes différents, accompagnée de l'émission de particules et/ou de photons.

Eau libre tritiée (ou Tissue Free Water Tritium, TFWT) : eau tritiée présente au sein d'un organisme et non retenue par les molécules ou particules hydrophiles.

Ecosystème : ensemble dynamique d'organismes vivants qui interagissent entre eux et avec le milieu dans lequel ils vivent.

Enolisable : transformable en « énoI ». Un énoI est un hydrocarbure insaturé avec au moins une double liaison covalente, possédant une fonction alcool en position vinylique (insaturée).

Élément fertile : un élément fertile possède un noyau qui n'est fissible qu'au contact d'un neutron ayant une énergie suffisante.

Enzyme : macromolécule d'origine protéique synthétisée par l'organisme, dotée de propriétés catalytiques (voir **catalyse**).

Evapotranspiration : phénomène de transport de l'eau du sol vers l'atmosphère englobant l'évaporation au niveau du sol et la transpiration végétale.

Fractionnement isotopique : répartition entre deux groupes d'isotopes d'un élément.

Hétérotrophe : organisme incapable de générer sa propre matière organique. Pour se nourrir, les organismes hétérotrophes utilisent les matières organiques constituants ou ayant constituées d'autres organismes.

Horizon de sol : couche de sol homogène et parallèle à la surface.

Humus : ensemble des matières organiques présent dans la couche superficielle d'un sol.

Hydromorphie : ce dit d'un sol présentant des marques physiques d'une saturation régulière en eau.

Indice de surface foliaire : surface d'un côté du feuillage des parties aériennes végétales par unité de surface au sol.

Isotopes : différents types d'atomes d'un même élément ayant le même nombre d'électrons et de protons mais un nombre de neutrons différents. Les isotopes d'un élément présentent les mêmes propriétés chimiques.

Lyophilisation : procédé permettant la déshydratation d'une substance congelée par sublimation.

Méristème : tissu dont les cellules sont en division active, conduisant à la formation d'organes ou de tissus végétaux.

Mésophylle : partie interne de la feuille et siège principal de la photosynthèse.

Météorique (eau) : eau ancienne présente dans le sol, originaire des précipitations d'eau de pluie.

Phloème : tissu conducteur de la sève élaborée (ou sève sucrée) produite au niveau des feuilles.

Photodéamie : pathologie végétale liée à un excès de lumière, entraînant un aspect brûlé sur les feuilles.

Photorespiration : processus métabolique des plantes qui correspond à la fixation de dioxygène sur le RuBP par la RubisCO à la place du dioxyde de carbone. Elle conduit à la production d'un produit intermédiaire qui sera recyclé et produira du CO₂. La photorespiration entraîne la destruction d'une partie de la matière organique fixée par photosynthèse.

Photosynthèse : production de glucides chez les plantes autotrophes à partir d'énergie solaire, d'eau et de dioxyde de carbone.

Point de compensation lumineux : point où la quantité d'énergie lumineuse absorbée permet un niveau des échanges gazeux liés à photosynthèse (absorption de CO₂, dégagement d'O₂) compensant exactement les échanges gazeux de la respiration (absorption d'O₂, dégagement de CO₂).

Point de flétrissement permanent : teneur en eau du sol en dessous de laquelle la plante ne peut plus prélever l'eau dans le sol nécessaire à son bon fonctionnement.

Radionucléide : nucléide instable.

Stomate : orifice généralement présent sur la face interne des feuilles, permettant les échanges gazeux entre la plante et l'air ambiant.

Sublimation : passage d'un corps de l'état solide à l'état gazeux, sans passer par l'état liquide.

Sucrose : hydrate de carbone complexe.

TFWT : voir eau libre tritiée.

Translocation : processus de transfert de composés organiques et d'autres substances solubles issues de la photosynthèse des feuilles vers les autres organes de la plante, notamment les organes en croissance (bourgeons, fleurs, ...) et les organes de réserve (racines, tubercules, ...).

Tritium lié à la matière organique (ou Organically Bound Tritium, OBT) : fraction de tritium d'une matrice biologique présente dans la matière sèche, liée par liaison covalente aux molécules organiques. En fonction de la nature des liaisons covalentes du tritium, OBT peut être divisé en deux fractions, eOBT et neOBT (voir Tritium Organiquement lié Echangeable et Tritium Organiquement lié Non-Echangeable).

Tritium Organiquement lié Echangeable (ou exchangeable Organically Bound Tritium, eOBT) : tritium présent dans les molécules organiques où il s'est substitué à l'hydrogène dans les radicaux typiques

(-OH, -SH, =NH, ...). Les atomes de tritium de la fraction organique à cinétique d'échange rapide sont très labiles (liaisons covalentes faibles) et susceptibles d'être extraits par simple échange isotopique.

Tritium Organiquement lié Non-Echangeable (ou non-exchangeable Organically Bound Tritium, neOBT) : tritium directement lié aux atomes de carbone dans les molécules organiques. L'extraction de la fraction de tritium organique à cinétique d'échange lente requiert la cassure des liaisons carbone-hydrogène (liaisons covalentes fortes) par combustion.

Ubiquiste : qui est présent partout.

Xylème : tissu conducteur de la sève brute (ou sève minérale).

INTRODUCTION

L'hydrogène est l'élément le plus abondant sur terre, présent de façon ubiquiste dans l'environnement en participant à différents cycles dont celui de l'eau, de l'oxygène et du carbone. L'hydrogène présente naturellement trois isotopes dont le tritium qui est le seul isotope radioactif de l'hydrogène. Le tritium est un élément présent naturellement sur Terre, avec une activité très faible à l'échelle mondiale. Cependant cet élément instable est également produit par l'industrie nucléaire, dont les rejets tritiés à l'échelle locale sont relativement importants et prévus en hausse à l'avenir avec le développement de centrales nucléaires à fusion notamment. Dans ce contexte, il s'avère important de connaître le comportement de ce radionucléide dans les écosystèmes afin de quantifier précisément l'impact de ces rejets anthropiques tritiés sur l'environnement et les populations vivants à proximité des installations nucléaires rejetant du tritium.

Le livre blanc du tritium (ASN, 2010) synthétise les différentes études existantes sur le comportement du tritium. Ce rapport rappelle les deux principaux questionnements récurrents sur les problématiques des impacts des rejets tritiés, à savoir (1) la question sur la bioaccumulation du tritium dans les différents compartiments de l'environnement et (2) la question des effets du tritium sur la santé. Ces incertitudes rémanentes sont un problème pour les modèles existants de transfert de tritium issu des installations nucléaires aux écosystèmes, comme le modèle TOCATTA- χ développé par l'IRSN et EDF et appliqué pour les écosystèmes prairiaux. Dans le cadre d'un écosystème terrestre, l'écosystème prairial est un élément particulièrement important à étudier car les végétaux qui y sont présents - typiquement le ray-grass - constituent la base de la chaîne alimentaire humaine.

Ces incertitudes rémanentes justifient la présente étude, qui consiste à améliorer le modèle TOCATTA- χ existant en étudiant certaines incertitudes relatives au transfert de tritium aux végétaux de type ray-grass :

- la validation *in situ* des paramètres éco-physiologiques du modèle TOCATTA- χ ;
- l'étude et l'évaluation à partir d'expérimentations *in situ* de la contribution du compartiment sol et du compartiment atmosphérique sur l'activité de tritium présent au sein de la plante ;
- l'étude et l'évaluation à partir d'expérimentations en laboratoire des incertitudes rémanentes du comportement du tritium dans l'environnement. Ces incertitudes portent sur trois aspects :
 - o l'étude de la discrimination des formes tritiées dans la matière organique végétale ;
 - o l'étude de l'oxydation bactérienne du dihydrogène tritié dans le sol ;
 - o l'étude de la cinétique de marquage des végétaux à la vapeur d'eau tritiée

atmosphérique.

- la validation du modèle de transfert de tritium au sein d'un écosystème prairial par confrontation des prédictions du modèle avec des données de terrain.

Afin de répondre aux différents objectifs fixés, la description de l'étude menée s'articule en quatre chapitres : (1) une synthèse bibliographique des données et connaissances existantes, (2) la méthodologie générale, (3) les démarches expérimentales utilisées et (4) les différents résultats expérimentaux et de modélisation obtenus.

Le premier chapitre dresse l'« état de l'art » du tritium dans l'environnement. Dans un premier temps, les généralités sur le tritium sont abordées avec la définition, les caractéristiques et l'impact du tritium sur l'homme. Dans un second temps, les transferts du tritium dans les différents compartiments de l'environnement sont évoqués incluant les transferts dans l'atmosphère, les transferts dans le sol et les transferts dans les plantes. Enfin, le dernier point traite de la modélisation des transferts de tritium aux végétaux, avec une description du projet encadrant cette présente étude et des incertitudes du modèle TOCATTA- γ .

Le second chapitre décrit la méthodologie générale appliquée au cours de cette étude, avec une description de la logique suivie dans le déroulement des expérimentations réalisées et des objectifs recherchés avec chaque expérimentation.

Le troisième chapitre présente les différentes approches expérimentales pour valider certains aspects du modèle ou affiner certains processus de transferts de tritium au sein d'une prairie. Ces expérimentations sont réalisées sur le terrain ou en laboratoire.

Les expérimentations de terrain consistent à (1) confirmer certaines caractéristiques spécifiques au terrain expérimental comme le type de sol et l'absence de déficit en azote et (2) valider certains paramètres éco-physiologiques du modèle existant de l'échelle de la feuille (vitesse de carboxylation maximale, résistance stomatique) à l'échelle du couvert (indice de surface foliaire, flux de H₂O et de CO₂).

Les expérimentations de laboratoire consistent à affiner les connaissances sur les transferts de tritium où certaines incertitudes persistent, comme les trois points évoqués plus haut.

Le dernier chapitre présente et analyse les différents résultats obtenus tout au long de cette étude. Il se termine sur les perspectives envisagées pour approfondir nos connaissances sur les transferts de tritium au sein d'un écosystème prairial.

CHAPITRE I. ETAT DE L'ART

I.1 Généralités sur le tritium

I.1.1 Caractéristiques et origines

I.1.1.1 Caractéristiques physico-chimiques du tritium

L'hydrogène est l'élément chimique noté H, constitué d'un proton et d'un électron. Il existe naturellement trois **isotopes** de l'hydrogène, qui se différencient par leur nombre de neutron (Tableau I.1) : le protium (noté ^1H), le deutérium (noté ^2H) et le tritium (noté ^3H). L'**isotope** de l'hydrogène le plus riche en neutron observé en laboratoire est ^7H (Korshennikov *et al.*, 2003).

Tableau I.1 : Caractéristiques atomiques des isotopes naturels de l'hydrogène.

Isotope	Nom	Masse atomique	Nombre de proton	Nombre de neutron	Abondance sur Terre	Radioactif
^1H	Protium	1	1	0	99,9885 %	Non
^2H	Deutérium	2	1	1	0,0115 %	Non
^3H	Tritium	3	1	2	traces	Oui

Les **isotopes** d'un même élément ont des propriétés chimiques identiques. Le tritium se différencie du protium de par son aspect radioactif ou encore par la forte différence de masse atomique. Ces différences physiques entre les **isotopes** stables de l'hydrogène et le tritium ne modifie pas les réactions chimiques en tant que telles, mais seulement la cinétique de réaction. Le phénomène de ségrégation isotopique lors des changements de phase de l'eau est observé, avec un faible enrichissement en tritium dans la phase d'eau la plus condensée (ASN, 2010). En conditions naturelles, aucune accumulation de tritium qui puisse être significative n'est impliquée par cette faible discrimination isotopique (Belot *et al.*, 1996).

I.1.1.2 Caractéristiques radiologiques du tritium

Le tritium est le seul **isotope** radioactif naturel de l'hydrogène, sa **demi-vie** est de $12,312 \pm 0,025$ ans (Bé *et al.*, 2006). Une unité tritium (notée U.T. et correspondant à $0,118 \text{ Bq.L}^{-1}$) correspond à la teneur moyenne du tritium dans la nature, soit un atome de tritium pour 10^{18} atomes d'hydrogène (Grosse *et al.*, 1951). Un gramme de tritium a une activité de $(3,59 \pm 0,64) \times 10^{14} \text{ Bq}$. En se désintégrant, le tritium émet un atome de ^3He stable et un rayonnement β^- de faible

énergie ($E_{\text{moyenne}}=5,7$ keV et $E_{\text{max}}=18,6$ keV). La faible énergie de l'électron émis suite à la **désintégration** entraîne un parcours maximum dans l'eau et dans l'air de 6 μm et 5 mm, respectivement, avec un parcours moyen dans l'eau de 0,56 μm . (Hill et Johnson, 1993 ; Belot *et al.*, 1996).

1.1.1.3 Origines du tritium

- **Origine naturelle**

Le tritium est produit suite au bombardement neutronique (les neutrons sont issus du rayonnement cosmique) des principaux constituants de l'atmosphère : l'azote et l'oxygène (Grosse *et al.*, 1951 ; Kaufman *et al.*, 1954 ; Gazal et Amiard, 2010). Les principales réactions de formation de tritium cosmogénique sont décrites par les équations suivantes (Okada *et al.*, 1993 ; Belot *et al.*, 1996) :



Une très faible fraction de tritium est d'origine tellurique, issue de la réaction entre les traces de lithium ^6Li contenues dans les roches et les neutrons provenant de la fission spontanée de l'uranium et du thorium (Kaufman *et al.*, 1954 ; Belot *et al.*, 1996).

L'inventaire naturel global du tritium est évalué à environ 3,5 kg ($1,3 \times 10^{18}$ Bq), ce qui correspond à une production annuelle naturelle de 150 à 200 g ($5,4$ à $7,2 \times 10^{16}$ Bq), en tenant compte de la **décroissance radioactive** (Belot *et al.*, 1996 ; UNSCEAR, 2000 ; Guétat *et al.*, 2008 ; Gazal et Amiard, 2010).

- **Origine anthropique**

L'activité humaine contribue à la présence de tritium présent dans l'environnement, via les activités de défense et les activités civiles. A l'échelle mondiale, la production industrielle de tritium est estimée à environ quelques dizaines de PBq par an. De ce fait, le tritium est l'un des **radionucléides** rejetés par l'homme dans l'environnement dont l'activité est la plus importante. Les principales sources de production du tritium anthropogénique sont par ordre d'importance les usines de retraitement du combustible, les installations de production de tritium et les centrales nucléaires de production d'électricité (CNPE) (Okada et Momoshima, 1993 ; Tort *et al.*, 1997 ; Guétat *et al.*, 2008).

- ***Tritium issu des activités de défense***

Entre 1945 et 1996, et essentiellement entre 1952 et 1963, les essais d'armes thermonucléaires réalisés par différents pays ont été une source majeure de tritium d'origine anthropique. La quantité totale de tritium rejetée dans l'atmosphère durant cette période a été estimée à environ

560 kg dans l'hémisphère Nord (soit $2,4 \cdot 10^{20}$ Bq) et 130 kg dans l'hémisphère Sud (soit $5,6 \cdot 10^{19}$ Bq). En tenant compte de la **décroissance radioactive**, ce stock équivaut actuellement (en 2017) à 17,7 kg (40 kg en 2007), répartis entre les océans (90%), les eaux continentales (9 %) et l'atmosphère (1 %) (Belot *et al.*, 1996 ; Guétat *et al.*, 2008 ; Gazal et Amiard, 2010).

Avant les essais atmosphériques, les activités mesurées sur la terre étaient de $0,6 \text{ Bq.L}^{-1}$ dans les eaux de pluie, $0,3$ à $0,8 \text{ Bq.L}^{-1}$ dans les fleuves et inférieures à $0,1 \text{ Bq.L}^{-1}$ dans les océans (ASN, 2010). Après l'arrêt des essais atmosphériques, la concentration en tritium dans l'eau de pluie moyennée dans l'hémisphère Nord a atteint 150 Bq.L^{-1} et a dépassé 700 Bq.L^{-1} localement, mais est restée inférieure à 10 Bq.L^{-1} dans l'hémisphère Sud (Belot *et al.*, 1996). Elle était de l'ordre de 1 Bq.L^{-1} en 2010 (ASN, 2010).

- **Tritium issu des activités civiles**

Centrales nucléaires de production d'électricité (CNPE)

Les quantités de tritium rejetées dans l'environnement par les CNPE dépendent du type de réacteur nucléaire et de la quantité d'énergie fournie (ASN, 2010). Le tritium est produit dans le fluide du système de refroidissement des réacteurs à eau légère (filière REP) par activation neutronique d'éléments légers tels que le bore-10 et le lithium-6 qui servent respectivement à contrôler la réactivité en absorbant les neutrons et à contrôler le pH. Le tritium ainsi produit constitue la majeure partie des rejets des CNPE dans le cadre de leur fonctionnement normal (Belot *et al.*, 1996 ; Le Guen, 2008). Pour les réacteurs à eau lourde (filière CANDU), la production du tritium se fait à partir du deutérium.

Pour tous les types de réacteurs de puissance, le tritium est produit dans le combustible, principalement lors de la fission ternaire de certains **isotopes** de l'uranium et du plutonium dans le combustible, où il se trouve sous forme d'hydrure de zirconium (Belot *et al.*, 1996 ; ASN, 2010). La majeure partie du tritium de fission est libérée lors du retraitement du combustible.

Dans le cas des réacteurs à eau lourde, la production de tritium par activation neutronique du deutérium de l'eau lourde (de l'ordre de $53650 \text{ TBq.GW}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$) dépasse de très loin la production de tritium dans le combustible lui-même (de l'ordre de $520 \text{ TBq.GW}^{-1} \cdot \text{an}^{-1}$) (ASN, 2010).

Centre de retraitement des combustibles usés

Le tritium piégé dans les gaines de combustible est libéré lorsque le combustible est mis en solution, pendant la phase de retraitement. Les rejets tritiés des usines de retraitement (La Hague, Sellafield) se font principalement sous forme liquide en milieu marin, en raison de la proximité de ces installations avec le bord de mer. A titre d'exemple, l'usine AREVA NC de la Hague rejette $10^{16} \text{ Bq.an}^{-1}$ de tritium sous forme liquide en milieu marin et $7 \cdot 10^{13} \text{ Bq.an}^{-1}$ sous forme gazeuse (Guétat *et al.*, 2008).

Production et fabrication à usage civil et retraitement des déchets

Deux utilisations industrielles conduisant à une production de quantité significative de tritium doivent être mentionnées. La première concerne l'utilisation industrielle de tritium pour la production d'objets luminescents (éclairage, ...) contenant du tritium sous forme de gaz. Par exemple, une plaque luminescente « EXIT » peut contenir de 280 µg à 1,4 mg (1×10^{11} à 5×10^{11} Bq) de tritium (Guétat *et al.*, 2008 ; ASN, 2010). A ces fins, du tritium est produit dans des réacteurs nucléaires spécifiques par irradiation neutronique d'éléments fertiles tels que le ${}^6\text{Li}$. La seconde utilisation concerne la production et l'utilisation de molécules marquées pour des applications médicales ou dans le cadre de recherches scientifiques. A titre d'exemple, les installations d'Amersham (GE 19 Healthcare), en Grande-Bretagne, rejetaient de l'ordre de 1,4 g de tritium par an (5.10^{14} Bq.an⁻¹) avant les années 2000. Les rejets étaient en 2008 de l'ordre de 0,3 g de tritium par an (1.10^{14} Bq.an⁻¹) (Guétat *et al.*, 2008). Il existe d'autres installations susceptibles de relâcher des quantités importantes de tritium dans l'environnement, tels que les centres de recherche civils et militaires et les entreposages de déchets tritiés. La quantité de tritium rejetée dans l'atmosphère à partir de ces différentes installations est de 5 g.an⁻¹ ($1,80 \times 10^{15}$ Bq.an⁻¹) pour la France (Belot *et al.*, 1996). Les « petits utilisateurs » de molécules marquées (hôpitaux, laboratoires pharmaceutiques, recherche en biologie, ...) produisent peu de rejets. Les stocks de déchets nucléaires provenant de ces activités en France sont évalués à 1,4 g (5×10^{14} Bq) (Guétat *et al.*, 2008).

Utilisations et émissions futures

Les installations dédiées à la production de tritium conduisent au rejet d'environ 5 g de tritium par an en France (environ 2 PBq), 2 g au Canada et 30 g aux Etats-Unis (Belot *et al.*, 1996).

Les gestions futures du combustible dans les centrales nucléaires françaises conduiront à une augmentation de la production de tritium, à énergie produite égale, du fait du plus fort taux d'enrichissement en ${}^{235}\text{U}$ (> 4,5 %). En effet, la production de tritium est essentiellement liée à l'énergie produite par le réacteur et au mode de gestion du combustible. Un taux d'enrichissement en ${}^{235}\text{U}$ plus important nécessite d'augmenter la concentration en bore dans le circuit primaire pour compenser l'excès de réactivité du combustible. Le tritium étant essentiellement formé par activation neutronique du bore-10, l'augmentation de la concentration en bore-10 entraînera donc une production de tritium accrue. Avec les nouveaux combustibles, les rejets liquides de tritium seront d'environ 55 TBq.an⁻¹ (0,15 g.an⁻¹) au lieu de 30 TBq.an⁻¹ aujourd'hui (0,08 g.an⁻¹) pour une production de 1300 MWe.an⁻¹ (Tableau I.2) (Le Guen, 2008).

Le réacteur EPR (European Pressurized Reactor), réacteur à eau sous pression actuellement en construction en France (à Flamanville) en Finlande et en Chine, permettra une production de plus de 1600 MWe d'électricité. En France, les rejets de tritium dans les effluents liquides associés à ce réacteur seront un peu plus élevés que les rejets de la centrale déjà existante à Flamanville (environ 30 000 GBq/tranche pour l'EPR), tandis que les rejets gazeux devraient être du même ordre de grandeur (environ 1000 GBq/tranche) (ASN, 2010).

De nouvelles installations dédiées à la recherche et au développement contribueront également à l'augmentation des rejets de tritium dans l'environnement. Les réacteurs à fusion et notamment le projet ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor), ayant pour objectif la maîtrise de l'énergie produite suite aux réactions de fusion nucléaire, entraîneront une utilisation et une production importante de tritium. En effet, à la fois consommateur et producteur de tritium, l'inventaire global maximal de l'installation serait de 4 kg, avec une consommation annuelle de l'ordre de 1 à 1,2 kg (Glugla *et al.*, 2007 ; ASN, 2010). Les rejets associés au projet ITER ne sont pas encore évalués mais pourraient être de l'ordre de quelques grammes par an (environ $3,6 \times 10^{14}$ Bq.an⁻¹). D'autres installations, telles que le Laser Mégajoule (LMJ) devraient utiliser et rejeter quelques milligrammes de tritium par an (environ $3,6 \times 10^{11}$ Bq.an⁻¹) (Guétat *et al.*, 2008). Le LMJ permet de simuler le comportement des matériaux sous des conditions similaires à celles atteintes lors du fonctionnement nucléaires des armes, en délivrant une forte énergie lumineuse sur une cible.

En considérant l'ensemble des rejets de tritium actuels et l'ensemble de ceux en prévision à moyen terme, une augmentation des rejets de l'ordre de 3 à 3,5 % surviendrait dans le futur (Bacchetta, 2014). Néanmoins, la production naturelle demeurera la principale source de tritium dans l'environnement.

- **Importance relative des sources artificielles et naturelles**

Les rejets industriels se font en milieu aquatique (océans ou rivières) ou dans l'atmosphère. Les rejets en milieu aquatique sont très fortement dilués et influent peu sur le niveau de tritium dans les eaux de surface à l'échelle globale (Belot *et al.*, 1996). La production naturelle annuelle de tritium (200 g) reste cependant la source principale de production de tritium dans l'environnement (Tableau I.2).

Tableau I.2 : Bilan 2013 des quantités de tritium produites par an en fonction des principales sources passées et actuelles (Belot *et al.*, 1996 ; Glugla *et al.*, 2007 ; Le Guen, 2008 ; Guétat *et al.*, 2008 ; ASN, 2010) d'après Bacchatta (2014).

	Inventaire globale (Kg)	Quantité produite par an	
		g.an ⁻¹	TBq.an ⁻¹
Production naturelle	3,5	200	7,2.10 ⁴
Essais nucléaires	35	-	-
CNPE pour une production de 900 MW.an ⁻¹	-	3.10 ⁻² (liquide)	0,1 (liquide)
	-	6.10 ⁻⁵ (gaz)	0,2 (gaz)
CNPE pour une production de 1300 MW.an ⁻¹	-	8.10 ⁻² (liquide)	30 (liquide)
	-	4.10 ⁻³ (gaz)	1,3 (gaz)
CANadian Deutérium natural Uranium (CANDU) pour une production de 10 GW.an ⁻¹		4,4 (liquide)	1,6.10 ³ (liquide)
		5,8 (gaz)	2,1 (gaz)
Retraitement du combustible (La Hague)	-	30 (liquide)	1.10 ⁴ (liquide)
	-	0,2 (gaz)	70 (gaz)
Réacteurs dédiés à la production de tritium et autres installations	-	5	1,8.10 ³

I.1.2 Les transferts de tritium : de l'environnement à l'Homme

I.1.2.1 Caractérisation et analyse des différentes formes

Le tritium, **isotope** de l'hydrogène, peut être présent dans toutes les molécules hydrogénées. IL peut être présent dans l'environnement sous forme gazeuse (atmosphère, fraction gazeuse du sol, ...), liquide (eaux de surface du globe, eaux **météoriques**, eau tissulaire, ...) ou solide (matière organique solide, matière inorganique solide) (Boyer, 2009 ; ASN, 2010 ; Gazal et Amiard, 2010 ; Bacchetta, 2014).

- **Formes chimiques tritiées dans l'air**

Définition :

Le tritium est présent dans l'atmosphère essentiellement sous forme de vapeur d'eau tritiée (HTO) (Belot *et al.*, 1996). Cependant les formes d'hydrogène tritié (HT) et de méthane tritié (CH_3T) sont également retrouvées (Belot *et al.*, 1996). Le transfert de ces différentes molécules tritiées dans l'environnement est lié à des processus physiques (transport de masse, diffusion), chimiques (réactions, changements d'état) et biologiques (Murphy, 1993).

Analyse :

Dans l'air, le tritium atmosphérique peut être prélevé par aspiration d'air, par des systèmes appelés « barboteurs » (Figure I.1). Ce système de barbotage permet de piéger le tritium sous forme HT et HTO.

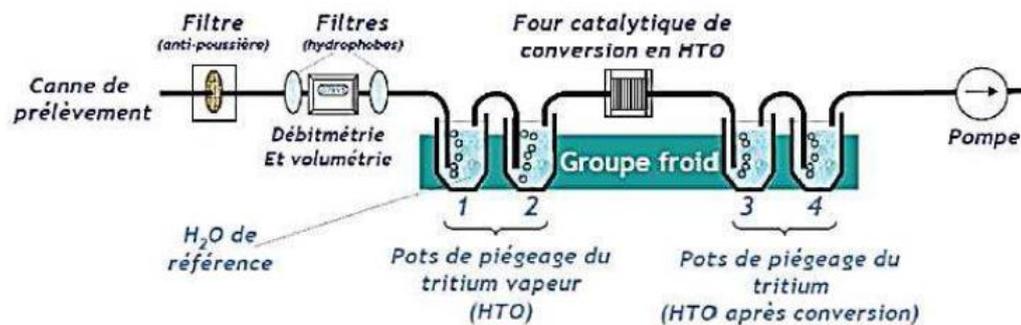


Figure I.1 : Système de prélèvement du tritium atmosphérique de type « MARC 7000 » (SDEC) (AFNOR, 2011).

L'air est successivement entraîné, à débit constant connu pendant une période de temps déterminée, dans 4 flacons remplis d'un volume connu d'eau à très faible teneur en tritium. Les deux premiers flacons sont dédiés au piégeage de la vapeur d'eau tritiée atmosphérique par condensation. L'air est ensuite entraîné dans un four contenant un catalyseur afin d'oxyder l'hydrogène tritié en eau tritiée. Cette dernière est ensuite collectée dans les deux derniers flacons (Wood *et al.*, 1993 ; Belot *et al.*, 1996). L'eau des pots de piégeage est récupérée puis analysée par scintillation liquide (cf. annexe A.1). Les activités mesurées sont ensuite rapportées au volume d'air total échantillonné pour déterminer la concentration volumique d'eau tritiée dans l'air (Wood *et al.*, 1993 ; Belot *et al.*, 1996 ; AFNOR, 2011).

- **Formes chimiques tritiées dans les végétaux**

Il est nécessaire de différencier deux fractions de tritium lorsque l'on considère les organismes biologiques animaux ou végétaux : le tritium de l'eau tissulaire de l'organisme et le tritium directement lié à la matière organique.

- **Le tritium dans l'eau tissulaire des organismes**

Le tritium présent sous forme d'eau tritiée (HTO) dans le compartiment aqueux des organismes vivants est noté **TFWT** (Tissue Free Water Tritium). Cette fraction est en équilibre rapide (de l'ordre de l'heure) avec son environnement (Belot *et al.*, 1996 ; ASN, 2010 ; IAEA, 2014).

- **Le tritium dans la matière organique**

Le tritium directement incorporé dans les molécules organiques constitutives de la matrice considérée est noté **OBT** (Organically Bound Tritium). Il est formé dans les organismes vivants à partir de l'eau tissulaire tritiée et est issu de processus biologiques tels que la **photosynthèse** (Kim *et al.*, 2013a ; Bacchetta, 2014). En fonction de la force de liaison entre l'atome de tritium et la molécule organique, **OBT** peut être divisé en deux fractions (Diabaté et Strack, 1993 ; Belot *et al.*, 1996 ; Baglan *et al.*, 2005 ; Kim *et al.*, 2013b ; Le Goff, 2013 ; Bacchetta, 2014) : **eOBT** (exchangeable Organically Bound Tritium) et **neOBT** (non-exchangeable Organically Bound Tritium) (Figure I.2). Pour la suite de ce mémoire, il est important de souligner que **eOBT** et **neOBT** correspondent à un aspect cinétique, selon lequel **eOBT** représente une fraction **OBT** à cinétique d'échange rapide et **neOBT** une fraction **OBT** à cinétique d'échange lente.

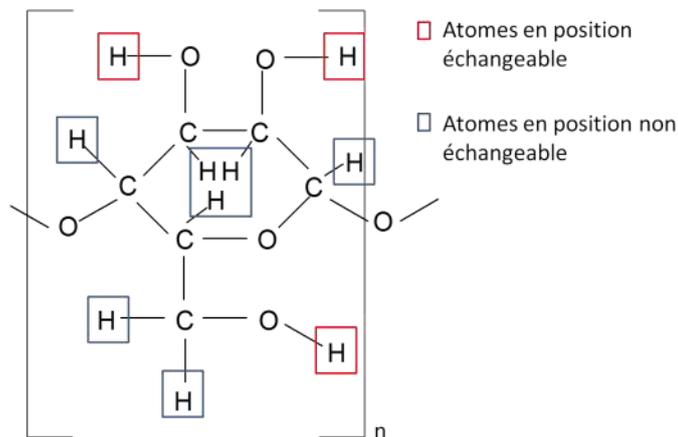


Figure I.2 : Répartition des atomes d'hydrogène échangeable et non échangeable dans la cellulose (Bacchetta, 2014).

Le tritium à cinétique d'échange rapide

Définition :

Le tritium organique à cinétique d'échange rapide (**eOBT**) correspond à un tritium avec une liaison à caractère faible, typiquement un hétéroatome (atome d'oxygène, d'azote, de soufre), un halogène (atome de fluor, de chlore, de brome, ...) ou encore sur le carbone α (une cétone ou un aldéhyde **énolisable**) (Diabaté et Strack, 1993 ; Belot *et al.*, 1996 ; Baglan *et al.*, 2005).

Dans la mesure où ces liaisons **eOBT** sont faibles, les atomes d'hydrogène et de tritium sont en équilibre rapidement avec ceux présents dans le milieu. Dans le cas de **eOBT**, ces atomes sont en équilibre avec l'eau tissulaire et se comportent comme celle-ci (Thompson et Nelson, 1971 ; Guenot et Belot, 1984 ; Kim *et al.*, 2013b). La fraction **eOBT** représente 20 % à 30 % de **OBT** (Lang et Mason, 1960 ; Guenot et Belot, 1984 ; Yamada *et al.*, 1992 ; Diabaté et Strack, 1993 ; Pointurier *et al.*, 2004).

Le tritium à cinétique d'échange lente

Définition :

L'emploi du terme **neOBT** concerne les atomes de tritium intégrés à la matière organique par des liaisons covalentes fortes (liaisons carbonées). Ces liaisons sont stables sauf en présence d'acides forts, de bases fortes ou de catalyseurs. **neOBT** n'est pas soumis à un échange avec les atomes d'hydrogène environnant. La fraction **neOBT** est intégrée à la matière organique lors de la formation des molécules et n'est dégradée qu'après décomposition du composé auquel il est incorporé (Diabate et Strack, 1993 ; Ware et Allott, 1999 ; Pointurier *et al.*, 2004). De ce fait, la fraction **neOBT** est un bon indicateur de la contamination au tritium en cas de rejet accidentel ou chronique (Guenot, 1984, Melintescu et Galeriu, 2017).

Analyse des différentes fractions de tritium dans la matière organique :

Afin d'analyser le tritium dans une fraction biologique donnée, il est nécessaire d'extraire la fraction en question (Figure I.3).

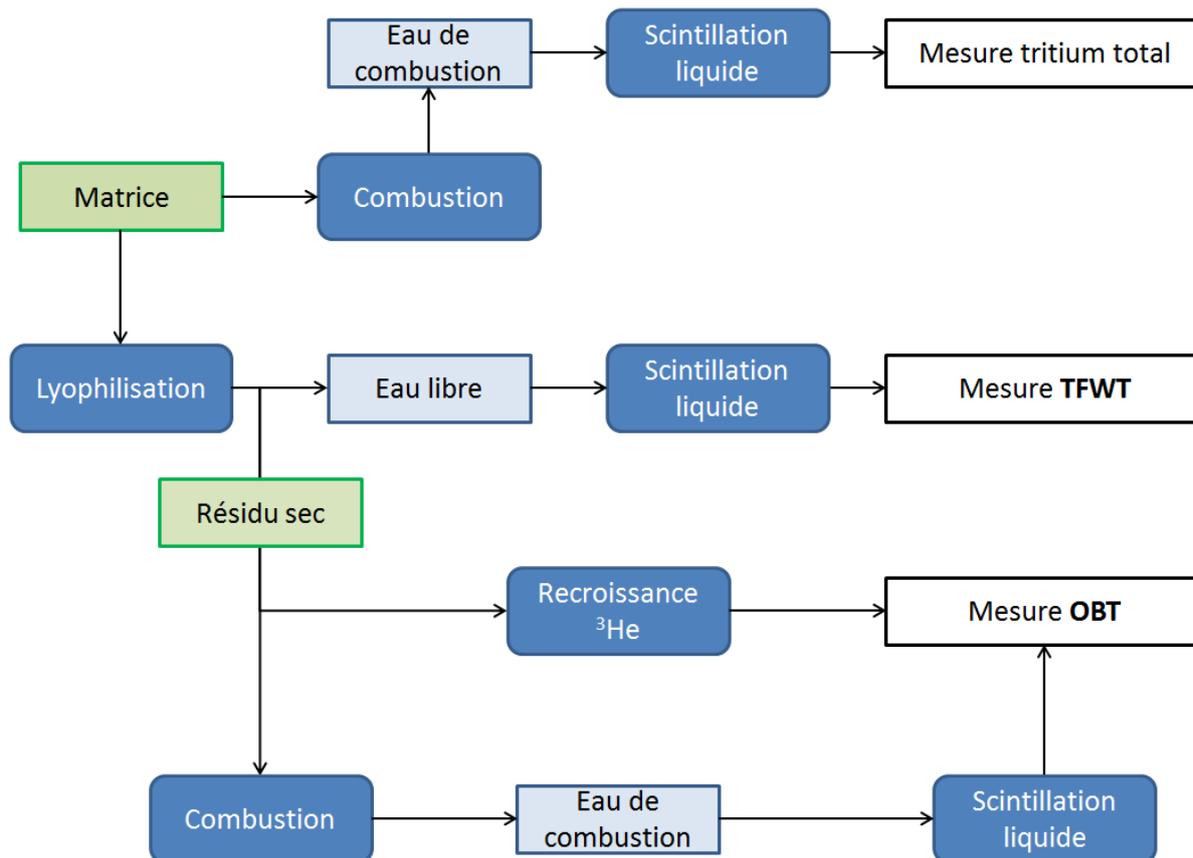


Figure I.3 : Procédure de séparation des fractions de tritium d'un échantillon biologique pour analyse.

Les échantillons prélevés ne sont pas analysables immédiatement et sont donc stockés avant les phases d'extraction des fractions de tritium. Les échanges isotopiques doivent être bloqués pour limiter toute perturbation de la signature isotopique de l'échantillon (Alanic et Le Meignan, 2008 ; Maro *et al.*, 2017). Les échantillons sont systématiquement emballés dans des sachets hermétiques et étanches pour les isoler de la vapeur d'eau atmosphérique. Ils sont ensuite congelés et conservés dans un congélateur jusqu'à leur traitement (Alanic et Le Meignan, 2008), après une durée minimale de congélation de 48 h (Maro *et al.*, 2017). Enfin, les fractions TFWT et OBt peuvent être extraites pour mesurer les activités :

- extraction pour la mesure du TFWT

L'eau libre de l'échantillon peut être extraite par **lyophilisation**, distillation simple, distillation azéotropique, dilution ou séchage simple (Wood *et al.*, 1993). La **lyophilisation** est la technique recommandée par rapport à la distillation azéotropique ou à l'étuvage en raison notamment des risques de dégradation de la matière organique (CETAMA, 2013). Elle consiste à congeler rapidement l'échantillon pour ensuite éliminer la majeure partie de l'eau constitutive du produit par **sublimation** (Belot *et al.*, 1996 ; Marin et René, 2000). Cette eau est ensuite récupérée pour la mesure.

- extraction pour la mesure de **OBT**

Les échantillons déshydratés, après extraction de l'eau libre et/ou après déshydratation de la matière organique, contiennent le tritium lié à la matière organique. En fonction de l'outil analytique utilisé pour la mesure du tritium, l'échantillon sec peut être traité de deux manières :

- il peut être calciné pour extraire le tritium sous forme d'eau tritiée à haute température. La combustion de l'échantillon est la méthode courante utilisée pour extraire le tritium lié à la matière organique. Cette fraction peut être extraite par combustion dans une bombe de Parr ou dans un four tubulaire en quartz (Belot *et al.*, 1996). Pour des masses importantes d'échantillons (plusieurs dizaines de grammes), les calcinations sont réalisées dans des fours à combustion sous courant d'oxygène. Ceux-ci consistent en un tube en quartz de diamètre suffisant pour le traitement de masses élevées : la mesure par scintillation liquide requiert 10 g d'eau, obtenue sur la base d'une combustion de 20 g d'échantillon sec. Ce tube est inséré dans deux unités chauffantes (Figure I.4) (Baglan *et al.*, 2010). L'échantillon est, quant à lui, placé dans une nacelle en quartz qui est introduite dans le tube en quartz.

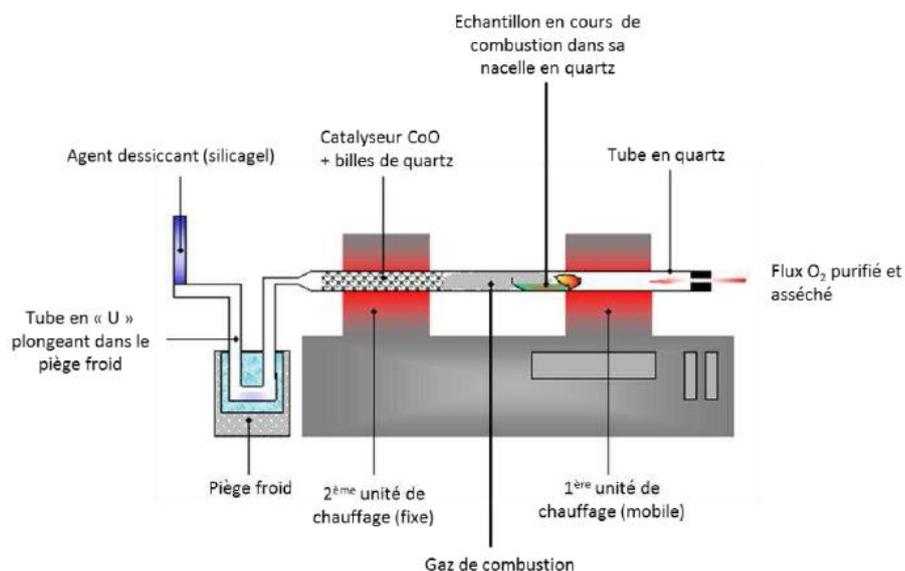


Figure I.4 : Schéma de principe de la combustion des échantillons tritiés dans un four tubulaire (Baglan *et al.*, 2010 d'après Bacchetta 2014).

- il peut être conservé dans un flacon en verre après l'avoir purgé de tout hélium atmosphérique pour la mesure du produit de **décroissance radioactive** du tritium, l'hélium 3 (Jean-Baptiste *et al.*, 1992 ; Jean-Baptiste *et al.*, 2010). L'hélium-3 diffuse à travers les composés organiques et s'accumule dans le flacon de conservation pendant la durée de stockage. La teneur en tritium est alors déduite de la teneur en hélium 3

mesurée (Baglan *et al.*, 2010 ; Jean-Baptiste *et al.*, 2010). Cette méthode est intéressante pour la détermination des teneurs environnementales en tritium au-dessous des limites de détection des compteurs à scintillation liquide à bas bruit de fond (de l'ordre de 1 Bq.L⁻¹) mais nécessite de longs temps de stockage, typiquement de 100 à 150 jours pour des matrices environnementales telles que les plantes agricoles (légumes) ou herbacées (Jean-Baptiste *et al.*, 2010).

1.1.2.2 Risques pour l'homme liés au tritium

- **Marquage d'organismes vivants par le tritium**

Du fait de la faible énergie du rayonnement (Emoy=5,8 keV, Emax=18,6 keV), il n'y a pas d'exposition des cellules cibles de la peau car celles-ci sont situées à environ 70 µm de profondeur alors que le rayonnement du tritium ne parcourt que 6 µm dans l'eau (Comte, 2005). Les risques liés à une exposition externe sont donc inexistantes (INRS, 2009) et seules les situations d'exposition interne (après ingestion, inhalation ou absorption) sont à considérer.

- ***Absorption***

Le tritium peut être absorbé par voie interne (inhalation ou ingestion) ou externe (absorption cutanée). Tout comme son **isotope** stable, le tritium suit les voies d'accès de l'eau et des substances organiques non radioactives. La pénétration dans les tissus, les organes ou les fluides biologiques est plus ou moins rapide selon la forme chimique initiale (Belot *et al.*, 1996).

Inhalation

Une fois présent dans un organisme, le transfert du tritium au sang est fonction de la forme chimique inhalée (ICRP, 1989, 1993, 1995 ; Belot *et al.*, 1996) :

HTO liquide

La forme liquide de **HTO** est très fortement retenue par l'organisme, l'évacuation de la fraction de **HTO** liquide inhalée de l'organisme est de l'ordre de 1 %. Une fois présente dans l'organisme, **HTO** diffuse à travers les membranes cellulaires et un équilibre s'établit avec les fluides corporels (Belot *et al.*, 1996).

HTO gazeux, hydrogène tritié HT et méthane tritié

Le tritium gazeux est peu soluble dans l'eau. De ce fait, une faible fraction du tritium inhalé (<1 %) est transférée dans le sang, sous la forme **HTO** (Belot *et al.*, 1996). Pinson et Anderson (1950) ont démontré que moins de 0,1 % du **HT** de l'atmosphère inhalé par des rats est retrouvé dans les fluides sous forme **HTO**.

Tritium organique

L'absorption par l'organisme du tritium organique inhalé est fonction de la nature chimique de la molécule. Une molécule soluble dans l'eau entraîne une absorption des vapeurs organiques tritiées complètes et rapides (Belot *et al.*, 1996).

Autres

Concernant les autres composés tritiés (tritiums métalliques, peinture radio-luminescentes, ...), leur libération d'un organisme semble plus lente (de l'ordre de la dizaine de jours) que les formes citées précédemment (Belot *et al.*, 1996 ; Trivedi et Cheng, 1997).

Absorption transcutanée

L'absorption transcutanée est similaire aux processus d'absorption par inhalation, décrit précédemment. HTO liquide est la forme chimique tritiée qui est la plus facilement transférée au sang (Belot *et al.*, 1996). Dans une atmosphère contenant de la vapeur d'eau tritiée, un tiers de la contamination se fait par voie percutanée et deux tiers par inhalation (ICRP, 1989, 1993, 1995 ; Belot *et al.*, 1996 ; ICRP, 1996). La forme HT pénètre difficilement la peau (Belot *et al.*, 1996).

Ingestion

Qu'il soit sous forme d'eau tritiée ou de tritium organique, la digestion du tritium est complète et rapide. Le tritium est ainsi rapidement transféré au sang, pour ensuite suivre le devenir biologique de l'hydrogène. Bien que faible, l'ingestion de nourriture tritiée induit une plus grande fraction de tritium incorporée à la matière organique que l'ingestion d'eau tritiée (respectivement 4,1-4,2 % et 0,3-0,7 % (Belot *et al.*, 1996).

- Bio-cinétique des composés tritiés dans l'organisme

La bio-cinétique d'élimination du tritium dépend de la forme chimique considérée. L'eau tritiée suit les voies de transfert classiques de l'eau dans l'organisme : elle est éliminée par les urines, la transpiration et l'air expiré. Le renouvellement de l'eau libre corporelle et l'élimination consécutive du tritium suite à une exposition s'effectuent avec une période biologique d'une dizaine de jours chez l'adulte, correspondant au renouvellement de l'eau libre corporelle (Hill et Johnson, 1993 ; Belot *et al.*, 1996 ; Trivedi *et al.*, 1997 ; ASN, 2010). Le tritium absorbé est transféré au sang sous forme d'eau tritiée : 3 % sont intégrés dans des molécules organiques et 97 % restent sous forme d'HTO (ICRP, 1989).

La plupart des composés organiques absorbés sont utilisés et dégradés pour produire de l'énergie et de l'eau tritiée qui retourne au stock de l'eau cellulaire. Une fraction mineure des composés organiques ingérés est cependant directement incorporée aux tissus sous forme organique. En moyenne, le tritium organique se maintient au sein du corps environ 30 à 40 jours (Belot *et al.*, 1996), mais certaines molécules organiques tritiées (notamment les matières adipeuses ou le collagène) peuvent demeurer dans l'organisme jusqu'à 450 jours (Okada et Momoshima, 1993).

• Effets biologiques

Les facteurs de risques liés au tritium sur le plan biologique tiennent notamment à sa très grande mobilité et à ses capacités d'échange avec les hydrogènes labiles des molécules organiques telles que les acides nucléiques (ADN, ARN) ou les protéines. D'une manière générale, les dommages potentiels à l'ADN sont considérés comme un point critique vis-à-vis des effets des rayonnements ionisants, qu'il s'agisse de la mort cellulaire ou de l'induction de mutations, potentiellement transmissibles aux descendants de la cellule touchée après division cellulaire de cellules lésées.

Les effets biologiques et les risques radiologiques associés au tritium ont fait l'objet de nombreuses études épidémiologiques sur différents types de population : travailleurs du nucléaire, populations vivant à proximité d'installations nucléaires, adultes ou jeunes enfants (Little et Wakeford, 2008). Les seuls effets sanitaires significatifs dus au tritium ont été observés chez des utilisateurs professionnels de peintures luminescentes, dont le nombre de cellules sanguines a chuté (CARMIN, 2008). En dehors de ces quelques cas d'expositions chroniques et massives (plusieurs TBq), aucun effet n'a été observé chez l'Homme. En particulier, les études épidémiologiques ne mettent pas en évidence d'excès de cancers attribuables au tritium. Cependant, la plupart de ces études se basent sur des données statistiques collectées auprès de travailleurs du nucléaire exposés à différentes sources de radiations, et il est souvent impossible de tirer des conclusions quant à l'impact spécifique d'une exposition au tritium (Little et Wakeford, 2008). D'autre part, les données expérimentales actuelles concernant les expositions chroniques à faible dose et à faible débit de dose ne sont pas suffisamment étayées pour le tritium.

De fait, les connaissances actuelles sur les effets radiologiques du tritium se basent essentiellement sur des observations faites en laboratoire sur des cultures cellulaires ou sur des animaux. Ces expériences ont démontré que des excès de tumeurs, leucémies, malformations fœtales, et mutations génétiques peuvent être induits chez des rongeurs suite à une exposition au tritium à fortes doses, au-delà de 0,1-0,2 Gy (correspondant à 100-200 mSv) (Okada et Momoshima, 1993 ; Straume, 1993 ; Belot *et al.*, 1996). Bien que les concentrations pour lesquelles des effets biologiques ou cancérigènes apparaissent expérimentalement soient très supérieures aux concentrations mesurées dans l'environnement, le risque de développement d'un cancer chez l'Homme suite à une exposition sensiblement chronique au tritium ne peut être exclu. La probabilité théorique de mort par cancer due à une incorporation de tritium a été estimée à $65 \cdot 10^{-6}$ par mSv (Straume, 1993).

De façon à pouvoir transposer les résultats obtenus sur les animaux au cas humain, la notion d'Efficacité Biologique Relative (EBR) est définie comme le rapport de la dose absorbée d'un rayonnement de référence (X ou gamma) à la dose absorbée du rayonnement étudié produisant le même effet biologique. La probabilité des effets stochastiques ne dépend pas seulement de la dose absorbée mais également du type et de l'énergie du rayonnement. La dose absorbée est convertie en dose équivalente, par pondération (facteur wR) du type d'énergie de rayonnement. Sur la base de considérations biophysiques, la Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR) considère des valeurs de l'EBR et du facteur wR de 1 pour le tritium (ICRP, 2007). Néanmoins, la

valeur de ces paramètres est actuellement discuté (Straume, 1993 ; Melintescu *et al.*, 2007 ; Galeriu *et al.*, 2008 ; Little et Wakeford, 2008).

- **Dosimétrie du tritium**

La dose efficace est exprimée pour une unité d'incorporation donnée (DPUI). Il s'agit d'une somme de doses équivalentes, pondérée par un facteur de risque qui est associé à chaque organe. Le récapitule les différents DPUI chez l'Homme, en fonction de l'âge, de la forme chimique tritiée et du Tableau I.3 mode d'ingestion.

Tableau I.3 : DPUI chez l'adulte, l'enfant et le nourrisson en fonction de la forme chimique tritiée et le mode d'incorporation (Belot *et al.*, 1993 ; ICRP, 1993 ; ICRP, 1995 ; ICRP, 1996)

Forme chimique / mode d'incorporation	DPUI adulte (Sv.Bq ⁻¹)	DPUI enfant (Sv.Bq ⁻¹)	DPUI nourrisson (Sv.Bq ⁻¹)
Tritium organique / inhalation	4,2.10 ⁻¹¹	5,5.10 ⁻¹¹	1,5.10 ⁻¹⁰
Tritium organique / ingestion	4,1.10 ⁻¹¹	5,3.10 ⁻¹¹	1,4.10 ⁻¹⁰
HTO inhalation	1,8.10 ⁻¹¹	2,3.10 ⁻¹¹	6,3.10 ⁻¹¹
HTO / ingestion	1,8.10 ⁻¹¹	2,3.10 ⁻¹¹	6,3.10 ⁻¹¹
CH ₃ T / inhalation	1,8.10 ⁻¹¹	2,3.10 ⁻¹¹	6,3.10 ⁻¹¹
HT / inhalation	1,8.10 ⁻¹⁵	2,3.10 ⁻¹⁵	6,3.10 ⁻¹¹

A concentration égale, l'ingestion du tritium organique est une importante voie d'incorporation du tritium à l'homme (Garland et Ameen, 1979 ; Diabate et Strack, 1993), car le coefficient de dose est élevé (Tableau I.3) et son temps de séjour biologique est 3 à 6 fois plus long que celui de l'eau tritiée (Galeriu, 1994).

I.2 Transferts du tritium dans l'environnement

I.2.1 Transferts dans l'atmosphère

I.2.1.1 Formes chimiques tritiées dans l'atmosphère

Les principales formes chimiques du tritium dans l'atmosphère sont la vapeur d'eau tritiée (HTO), le dihydrogène tritié (HT) et le méthane tritié (CH₃T). Les rejets de tritium atmosphérique par les installations nucléaires suivent les écoulements de l'air.

I.2.1.2 Transports du tritium dans l'atmosphère

En situations de rejets chroniques ou accidentels de polluants dans l'atmosphère, leur dispersion est régie par leurs propriétés physiques et celles de l'atmosphère dans laquelle ils sont rejetés (IAEA, 1981). Les effluents pénètrent dans l'atmosphère avec une vitesse et une température qui diffèrent généralement de celles de l'air ambiant, et provoquent ainsi une surélévation thermocinétique du panache (Maro, 2011). La différence d'obstacles de différentes hauteurs influence également le trajet de l'effluent (Figure I.5).

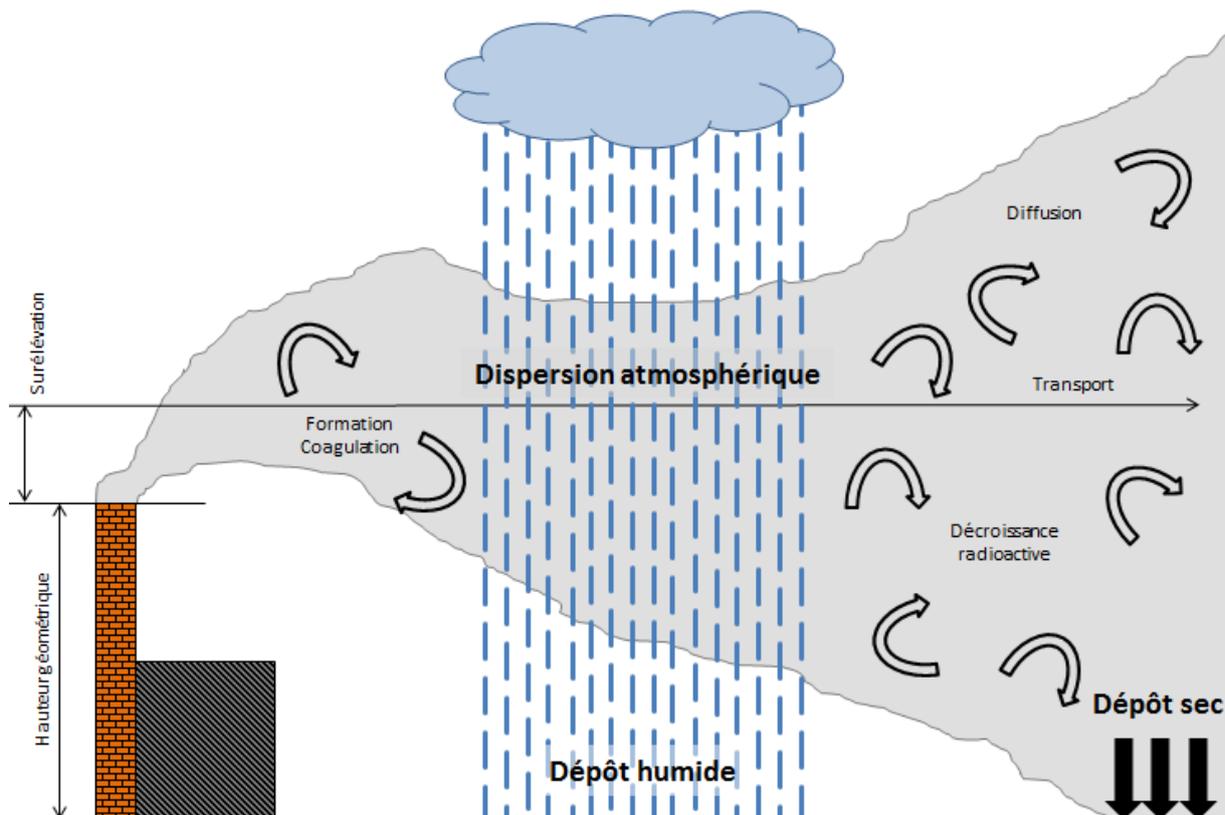


Figure I.5 : Comportement d'un effluent dans l'atmosphère (source IAEA, 1981).

Le mouvement de l'effluent avec le vent, pendant et après la surélévation du panache, correspond au transport. La turbulence de l'atmosphère, induite par le frottement du vent sur le sol

(turbulence mécanique) ou après les effets indirects du soleil (turbulence thermique) provoque des mouvements désordonnés de l'effluent qui entraînent progressivement sa diffusion (Maro, 2011). La dispersion atmosphérique liée à la diffusion moléculaire est négligeable devant le transport turbulent : respectivement, le coefficient de diffusion moléculaire de l'HTO dans l'air est de $\sim 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ (Belot *et al.*, 1996 ; Seigneur, 2012) en opposition à des diffusions turbulentes variant de $\sim 1 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ en conditions stables à $\sim 100 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ en conditions instables (Seigneur, 2012).

1.2.1.3 Processus atmosphérique de d'évolution dans la masse d'air du tritium

Suite à leur émission dans l'atmosphère, les formes chimiques tritiées sont soumises à des processus tels que (Maro, 2011) :

- la formation ou la coagulation des **aérosols** ;
- la **décroissance radioactive** ;
- le dépôt sec (diffusion brownienne, interception, impaction inertielle, sédimentation gravitationnelle, ...) ;
- le dépôt humide par les précipitations (diffusion brownienne, interception, impaction inertielle, diffusion turbulente, effets phorétiques, effets électrostatiques, ...) ;
- la remise en suspension.

Les formes HT et CH₃T sont essentiellement entraînées par dépôt sec en raison de leur faible solubilité. La vapeur d'eau tritiée (HTO) est au contraire facilement échangée avec les gouttes de pluie : les dépôts humides et secs sont possibles.

1.2.2 Transferts dans le sol

1.2.2.1 Origine et caractérisation d'un sol

• Définition

L'Association Française d'Etude de Sol (AFES) définit le sol comme « un volume qui s'étend depuis la surface de la Terre jusqu'à une profondeur marquée par l'apparition d'une roche dure ou meuble, peu altérée ou peu marquée par la pédogenèse. L'épaisseur du sol peut varier de quelques centimètres à quelques dizaines de mètres ou plus. Il constitue localement une partie de la couverture pédologique qui s'étend à l'ensemble de la surface de la Terre. Il comporte le plus souvent plusieurs **horizons** correspondant à une organisation des constituants organiques et/ou minéraux (la terre). Cette organisation est le résultat de la pédogenèse et de l'altération du matériau parental. Le sol est le lieu d'une intense activité biologique (racines, faune et microorganismes) ».

• Origine

Les sols sont constitués d'une fraction minérale et d'une fraction organique. La répartition des fractions minérale et organique est variable suivant le type de sol. La pédogénèse peut se résumer

en trois étapes élémentaires fondamentales combinant processus physiques, biologiques et chimiques (Duchaufour, 1990) :

- altération de la roche mère :

La masse minérale s'altère suite à des phénomènes physico-chimique (thermoclastie, hydroclastie, dissolution, gélivation, cryoturbation, solifluction, arrachement gravitaire, ... (Guillien, 1949 ; Chevalier, 2012)).

- humification :

L'altération du substrat minéral permet la colonisation végétale. La décomposition des végétaux permet la formation d'**humus**.

- mouvement de matière :

La ségrégation et la migration de matière (exemple : eau) permet la mise en place de phénomène tel que le processus d'oxydoréduction (**hydromorphie**).

Un sol est constitué de sous-couche horizontales appelées **horizons** de sol. Ces **horizons** de sol permettent de caractériser une couverture pédologique suivant trois critères : la constitution, l'organisation (présence de structure), les dynamiques (fonctionnement, évolution) (Baize et Girard, 2008).

- **Caractérisation d'un sol**

Le sol est un milieu dynamique triphasé : solide, liquide et gazeuse (Hillel, 2004). La phase solide est composée de particules minérales et de particules organiques, de formes irrégulières et de tailles diverses ; la phase liquide est composée d'eau et de solutés, la phase gazeuse correspond à l'air dans le sol. Pour caractériser un sol, il est important de distinguer deux notions : la texture et la structure.

- la distribution des particules en fonction de leur diamètre se définit via la texture du sol. L'USDA distingue trois types de particules pour classer les sols en fonction de leur texture (Figure 1.6) : les sables (50-2000 μm), les limons (2-50 μm) et les argiles (moins de 2 μm). Les particules de diamètre supérieur à 2 mm sont appelées les éléments grossiers.

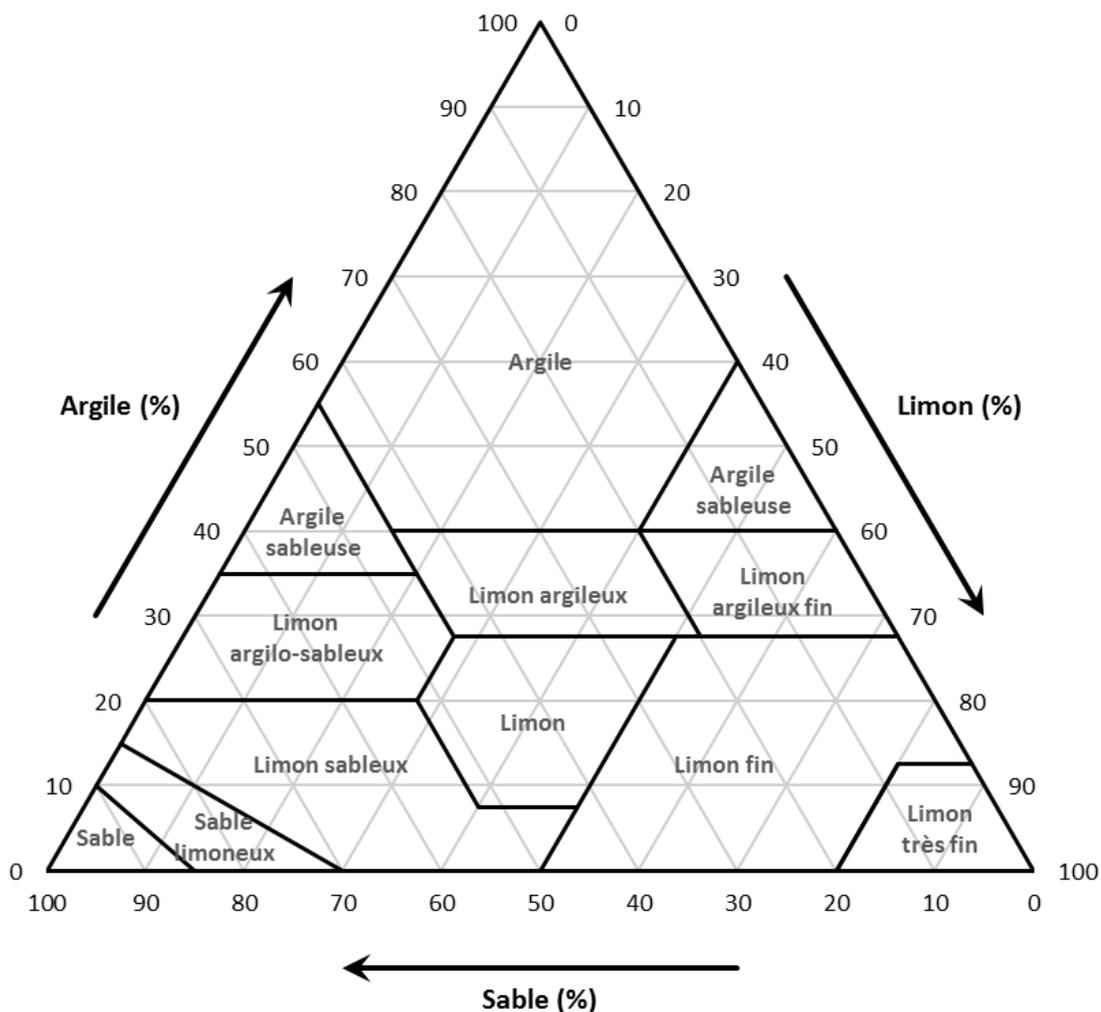


Figure I.6 : Triangle de texture proposé par l'USDA (IUSS Working Group WRB, 2006).

- la structure du sol est une caractéristique dynamique qui se réfère à l'arrangement des particules solides. Elle est associée à la porosité du sol, c'est à dire l'espace libre de matière entre la matière minérale et la matière organique qui peut être rempli d'eau et d'air (Figure I.7). La porosité varie dans l'espace et dans le temps en fonction des conditions agro-environnementales et des propriétés du sol. Ce réseau poreux intervient dans de nombreux processus pédologique tels que la circulation de l'eau et de l'air, le transport de solutés et la croissance, le développement des racines, ... (Ugarte Nano, 2015).

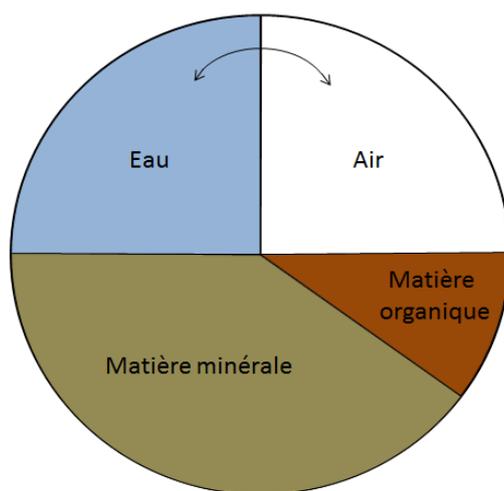


Figure 1.7 : Composition schématique (volumique) d'un sol à texture médiane, aux conditions considérées optimales pour la croissance végétale (Hillel, 2004). Les flèches indiquent une relation entre l'eau et l'air, de sorte qu'une augmentation du volume de l'un est associée à une diminution de l'autre.

- **Vie pédologique**

Le sol est un réservoir riche en biodiversité, contenant une communauté diverse d'organismes (vers de terre, taupe, champignons, bactéries, ...). Les plus petits organismes (comme les bactéries) sont les plus nombreux et les plus diversifiés (Weaver *et al.*, 1994). La plupart des organismes sont fortement présents dans les premiers centimètres de sol où les concentrations en matières organiques sont les plus élevées, et où l'enracinement permet une aération (Waksman, 1927).

1.2.2.2 Flux des formes tritiées majeures au sein d'un sol

Le tritium atmosphérique peut rejoindre la solution du sol, avec des cinétiques variables selon sa forme chimique (**HT** ou **HTO**). L'eau tritiée du sol se comporte comme l'eau non tritiée, et participe notamment aux phénomènes d'évaporation, de percolation vers les nappes profondes, de diffusion, d'assimilation racinaire et de transpiration par les plantes (Eisenbud *et al.*, 1978 ; Papke et Foerstel, 1991 ; Murphy, 1993). La dynamique de l'eau dans le sol est liée à son état énergétique, composé d'énergie cinétique et d'énergie potentielle (Ugarte Nano, 2015). Seule l'énergie potentielle est considérée dans les calculs de bilans d'eau dans le sol, l'énergie cinétique étant généralement négligée du fait d'une vitesse d'écoulement d'eau dans le sol - variable selon la texture et la structure de sol - relativement faible (inférieure à $0,1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ selon Or *et al.*, 2004).

- **HT**

Le dihydrogène tritié (**HT**), élément peu biodisponible (Pinson, 1951) et peu soluble dans l'eau (Belot, 1986), confère une dose à l'homme relativement faible en comparaison avec l'eau tritiée (**HTO**) (Peterson *et al.*, 2002). Cependant, bien que l'impact radiologique d'une inhalation de **HTO** soit 25000 fois supérieure que celle de **HT** pour l'homme (Galeriu *et al.*, 2008), la forme **HT** n'est

pas négligeable puisque cette dernière peut être oxydée en HTO et ainsi devenir biodisponible et intégrer la chaîne alimentaire.

- **Dépôt du HT**

La vitesse de dépôt du tritium atmosphérique au sol ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) est définie comme le ratio entre le flux de tritium délivré au sol ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) et la concentration volumique de l'hydrogène tritié dans l'atmosphère au-dessus de ce sol ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) (Belot *et al.*, 1996). Les vitesses de dépôt de l'hydrogène tritié sont liées au type de sol et à ses propriétés (structure, contenu en micro-organismes, teneur en eau, teneur en air, ...) mais indépendantes du temps de contact entre le gaz tritié et la surface de sol (Belot *et al.*, 1996 ; Galeriu *et al.*, 2008). Les vitesses de dépôt de l'hydrogène tritié obtenues dans la littérature pour la plupart des sols sont comprises entre 10^{-5} et 10^{-3} $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, pour différents types de sols (Foerstel, 1986, 1988 ; Paillard *et al.*, 1988 ; Taschner *et al.*, 1988 ; Murphy, 1993 ; Belot *et al.*, 1996 ; Koarashi *et al.*, 2001).

- **Oxydation du HT**

Dans l'atmosphère

Le gaz H_2 n'étant pas très réactif en conditions atmosphériques, l'oxydation de HT dans l'atmosphère est suffisamment faible pour être négligé (Clerc *et al.*, 1988 ; Ota *et al.*, 2007 ; Ehhalt et Rohrer, 2009).

A la surface des feuilles

Certaines études (Cline, 1953 ; Ichimasa *et al.*, 1999) ont démontré que l'oxydation du HT est possible au niveau de la surface foliaire d'un végétal. Bien que l'oxydation foliaire varie d'une espèce à une autre, elle est cependant moins importante que l'oxydation dans le sol (Dunstall *et al.*, 1985 ; Ichimasa *et al.*, 1999).

Dans le sol

Le devenir du HT atmosphérique est lié à 3 processus élémentaires (Ota *et al.*, 2007) :

- transport turbulent de l'atmosphère vers le sol ;
- diffusion de HT dans le sol ;
- oxydation de HT par les micro-organismes au sein du sol.

Le sol contribue au stockage de gaz trace type H_2 , en jouant moins un rôle de production de H_2 que de piège à H_2 (contribution relative en % : 5 % de source de H_2 et 95 % de piège de H_2 , Conrad, 1996). La pénétration des gaz dans un sol est directement fonction de la perméabilité de ce sol (Kramer et Boyer, 1995 ; Ball *et al.*, 1997 ; Singer *et al.*, 2000), avec une profondeur de pénétration moyenne de 3 à 4 cm (Balaine *et al.*, 2016).

L'oxydation du HT en HTO dans le sol n'est possible qu'avec un sol non-stérile, c'est-à-dire pourvu de micro-organismes ou de bactéries (McFarlane *et al.*, 1978, Momoshima *et al.*, 1992). L'oxydation du HT s'effectue essentiellement au niveau du sol, en majorité par les bactéries du sol (Schuler *et*

al., 1990 ; Conrad *et al.*, 1991) et en minorité par les **enzymes** abiotiques du sol (Conrad et Schuler, 1981 ; Schuler et Conrad, 1990 ; Schuler et Conrad., 1991). Il existe deux types d'activité bactérienne oxydante du HT (Libert *et al.*, 2000) : les bactéries aérobies - majoritaires dans le processus d'oxydation du HT, essentiellement constituées de streptomyces (Komuro *et al.*, 2002) - et les bactéries anaérobies. Plusieurs études mettent en évidence ces deux cinétiques d'oxydation bactérienne (Popelier *et al.*, 1985 ; Schuler et Conrad, 1990 ; Piché-Choquette *et al.*, 2016), tout en soulignant que l'oxydation dans le sol est plus importante avec les bactéries aérobies. Ces microorganismes sont présents dans la surface du sol, de façon **ubiquiste** (Guo *et al.*, 2008). Le profil vertical des bactéries du sol oxydante du HT (Komuro *et al.*, 2002) est représenté Figure I.8.

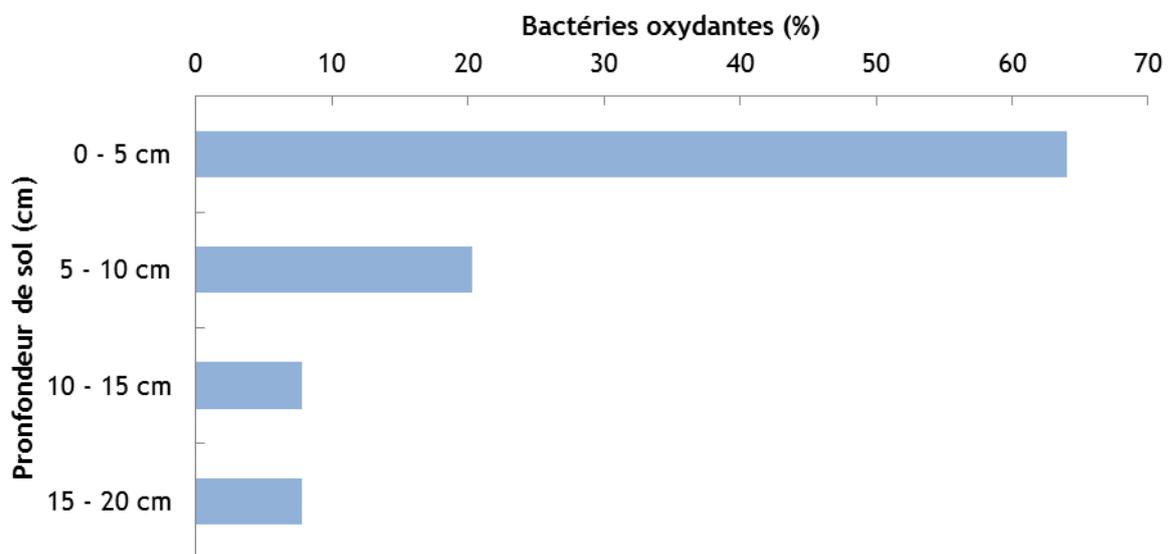


Figure I.8 : Distribution verticale des bactéries oxydantes dans les 20 premiers centimètres de sol, d'après Komuro *et al.* (2002).

Cette oxydation bactérienne s'effectue via l'**enzyme** hydrogénase qui **catalyse** l'oxydation de H₂. L'oxydation du H₂ par les bactéries du sol s'effectue via une réduction d'un accepteur d'électron (Équation I.4), correspondant à l'oxygène dans l'air pour les bactéries aérobies (Libert *et al.*, 2000).



L'oxydation du HT en HTO par les bactéries du sol est une réaction enzymatique qui suit la loi de Michaëlis-Menten (Quinlan, 1980 ; Edao *et al.*, 2016) :



Où dans le cas de l'oxydation de HT : E représente l'enzyme (hydrogénase), S le substrat (HT), P le produit (HTO) et ES correspond au complexe enzyme-substrat.

Dans l'hypothèse où la concentration en substrat est bien supérieure à la concentration en enzyme, la vitesse de la réaction d'oxydation v_{oxi} suit l'équation de Michaëlis-Menten :

$$v_{oxi} = \frac{x \cdot v_{max}}{x + K_m} \quad \text{Équation I.6}$$

Avec : x le substrat (HT), K_m la constante de Michaëlis-Menten traduisant l'affinité de l'enzyme à un sol donné, v_{max} la vitesse maximale de réaction par unité de masse de sol (les unités sont précisées Tableau I.4). Pour une réaction d'oxydation du HT en HTO par les bactéries du sol, K_m et v_{max} sont fonction de différents paramètres (Fallon, 1982 ; Ichimasa *et al.*, 1988 ; Schuler et Conrad, 1991 ; Meredith *et al.*, 2014) :

- K_m dépend du pH du sol, de la température du sol et de la texture du sol (Quinlan 1980 ; Schuler *et al.*, 1983 ; Schuler *et al.*, 1991b ; Dong *et al.*, 2001) ;
- v_{max} dépend de la teneur en eau du sol, de la température du sol, de la profondeur de sol (Schuler *et al.*, 1983 ; Schuler *et al.*, 1991b ; Ichimasa *et al.*, 1995 ; Komuro *et al.*, 2002 ; Ota *et al.*, 2007 ; Edao *et al.*, 2016).

La concentration en HT dans le sol décroît rapidement avec le temps (Conrad, 1996). La concentration de H_2 en dessous de laquelle le H_2 n'est plus consommé par les bactéries dépend de caractéristiques thermodynamiques de cette consommation bactérienne (Conrad, 1996). Cette oxydation rapide (McFarlane 1978 ; Amano, 1995) du HT a lieu dans les 5 premiers centimètres de sol (McFarlane *et al.*, 1978 ; Ichimasa *et al.*, 1995 ; Conrad, 1996). Une fois oxydé, le HTO nouvellement formé va suivre le cycle de l'eau (advection, diffusion, évapotranspiration, ...).

Tableau I.4 : Description des différents paramètres utilisés pour calculer la vitesse d'oxydation du HT en HTO.

Symbole	Définition	Valeur	Unités	Références
K_m	Paramètre de Michaelis-Menten	-	mol.m^{-3}	-
v_{oxi}	Vitesse d'oxydation réelle de HT	-	$\text{mol.g}^{-1}.\text{hr}^{-1}$	-
v_{max}	Vitesse maximale de réaction	$2,8.10^{-8}$	$\text{mol.g}^{-1}.\text{hr}^{-1}$	Ota <i>et al.</i> , 2007
x	Concentration en HT dans la fraction air du sol	-	mol.m^{-3}	-

Les études d'oxydation du HT en HTO par les bactéries du sol porte sur les sols sableux (Conrad *et al.*, 1983 ; Dong et Layzell, 2001 ; Ota *et al.*, 2007) et limoneux fins (Conrad *et al.*, 1983), mais à notre connaissance il n'y a pas d'étude sur l'oxydation du HT dans les milieux limoneux plus grossiers ou argileux.

- **HTO gazeux**

- **Echange à l'interface atmosphère-sol**

La vapeur d'eau atmosphérique rejoint le compartiment sol par diffusion entre l'air et la surface du sol : il s'agit du dépôt sec (Garland, 1980). Ce flux diffusif de la vapeur à la surface de sol peut être décrit par la loi de Fick : le flux net de tritium est proportionnel à la différence des concentrations volumiques de vapeur d'eau tritiée dans l'air et au niveau du sol (Belot *et al.*, 1996).

- **Echange à l'interface atmosphère-plante**

Selon Belot *et al.* (1996), l'activité en TFWT de la plante est influencée par deux processus : (1) un équilibre diffusif entre le HTO de l'air et le TFWT de la plante via les stomates foliaires et (2) un apport d'eau tritiée par l'eau du sol (Équation I.7).

$$\frac{dC_f}{dt} = \frac{\gamma v_c}{M} \cdot (\rho_a C_a - \beta \rho_v C_f) + \frac{v_c}{M} \cdot (\rho_v - \rho_a) \cdot C_{sr} \quad \text{Équation I.7}$$

Avec : C_f la concentration de tritium dans l'eau du tissu foliaire (Bq.kg^{-1}), C_{sr} la concentration moyenne de tritium dans l'eau de la couche racinaire du sol (Bq.kg^{-1}), C_a la concentration de tritium dans la vapeur d'eau présente dans la couche atmosphérique au-dessus des plantes (Bq.kg^{-1}), v_c la vitesse d'échange de l'eau tritiée ($\gamma=0,95$), v_c la vitesse d'échange de l'eau à la surface du couvert (m.s^{-1}), M la masse d'eau contenue dans les feuilles par unité de surface horizontale de sol, ρ_a la masse de vapeur d'eau par unité de volume d'air à la température des feuilles, ρ_v la masse de vapeur d'eau saturante par unité de volume d'air à la température des feuilles, B l'inverse du facteur de séparation isotopique ($B=0,91$).

- **HTO liquide**

- **Dépôt**

L'apport de tritium au sol par précipitation est calculé suivant cette formule :

$$\text{Flux}^{\text{HTO}} = I \cdot A_{\text{pluie}}^{\text{HTO}} \cdot \text{ruiss} \quad \text{Équation I.8}$$

Où Flux^{HTO} désigne le flux de tritium sous forme HTO ($\text{Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$) apporté par la pluie au sol, I l'intensité de la pluie (m.s^{-1}), $A_{\text{pluie}}^{\text{HTO}}$ l'activité de l'eau de pluie (Bq.kg^{-1}) et ruiss un facteur de ruissellement de l'eau de pluie, déterminé par Huang *et al.* (2013). Ce facteur de ruissellement, compris entre 0 et 1, est fonction de l'intensité de précipitation, le pourcentage de couvert végétal

recouvrant le sol, la pente du terrain et la saturation en eau des pores du sol. Le ruissellement est estimé en laboratoire sur un couvert de type ray-grass.

- **Devenir dans les premiers cm de sol**

Une fois infiltrée dans le sol, le devenir de l'eau tritiée dépend de la structure et de la texture du sol (argileux, limoneux, sableux).

Assimilation racinaire

L'essentiel du flux d'eau traversant les plantes terrestres provient du sol. Cette eau est prélevée par le système racinaire du végétal puis, une fois incorporée à la plante, diffuse au sein de l'organisme via le système vasculaire (Murphy, 1993). Le végétal puise l'eau du sol dans un stock disponible appelé réserve utile en eau.

La réserve en eau correspond à la différence entre deux humidités caractéristiques du sol :

- la teneur en eau à la **capacité au champ** : c'est la teneur en eau retenue dans le sol après ressuyage ;
- l'humidité au **point de flétrissement** permanent : c'est la teneur en eau retenue dans le sol et non disponible pour les plantes.

Le potentiel matriciel du sol caractérise l'état hydrique du sol, et correspond aux forces de rétention exercée par le sol. Il augmente quand la teneur en eau diminue. Pour la majorité des plantes cultivées sous un climat tempéré, la teneur en eau à la **capacité au champ** et l'humidité au **point de flétrissement** permanent ont respectivement un potentiel matriciel pF de 1,5 (ou pF 2,5 en fonction du type de sol) et pF de 4,2.

Évapotranspiration

L'**évapotranspiration** est composée de l'évaporation du sol et de la transpiration végétale. L'évaporation est fonction des conditions météorologiques (température, vitesse du vent, ...) et pédologiques (stress hydrique). Pour un couvert végétal uniforme, l'**évapotranspiration** est généralement modélisée selon le modèle « Big Leaf » de Penman-Monteith (Penman, 1948). Le couvert végétal est considéré de manière simplifiée comme une feuille unique recouvrant toute la surface de sol étudiée. Le modèle TOCATTA- χ est basé sur ces principes (cf. annexe B.1, Le Dizès *et al.*, 2017).

Migration, percolation

La conductivité hydraulique du sol est définie par la loi de Darcy suivante, établie en milieu non saturée :

$$\vec{q} = - K(h) \cdot \vec{\nabla} H \quad \text{Équation I.9}$$

Avec \vec{q} le débit volumique par unité de surface ($\text{m}^3 \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$), H est la charge hydraulique (m), et K(h) est la conductivité hydraulique ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$) fonction de la charge matricielle du sol. Dans notre

approche opérationnelle, le modèle TOCATTA- χ utilise l'équation empirique de Yamazawa (2001), selon laquelle la conductivité hydraulique dépend aussi de la teneur en eau du sol, mais est plus facile à paramétrer. L'infiltration est maximale suite à une pluie après un épisode sec du fait d'un fort gradient hydraulique (Équation I.10).

$$K = K_s \cdot \left(\frac{\eta_w}{\eta_{ws}} \right)^{2b+3} \quad \text{Équation I.10}$$

Où K_s est la conductivité hydraulique à saturation ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$), η_w est la teneur en eau volumique du sol ($\text{m}^3\cdot\text{m}^{-3}$), η_{ws} est la teneur en eau volumique du sol à saturation ($\text{m}^3\cdot\text{m}^{-3}$), et b est une constante fonction de la texture du sol.

Diffusion

La diffusion répond aux gradients de concentrations de l'eau tritiée au sein de la porosité du sol, elle ne correspond pas à un mouvement apparent de l'eau du sol (Murphy, 1993). En l'absence de forte pluie, la vitesse de diffusion est supérieure à la vitesse d'infiltration. Cependant, cette vitesse de diffusion diminue rapidement en fonction du temps (Belot *et al.*, 1996).

- ***Devenir dans les premiers centimètres de sol***

La majeure partie de l'eau tritiée pénétrant dans les couches plus profondes que les horizons racinaires est transportée sous forme liquide, en raison de phénomènes convectifs et diffusifs liés à la porosité du sol, avec une vitesse variant de $3\cdot 10^{-3} \text{ m}\cdot\text{jour}^{-1}$ à $2 \text{ m}\cdot\text{jour}^{-1}$ selon le type de sol considéré (Eisenbud *et al.*, 1978 ; Murphy, 1993 ; Belot *et al.*, 1996). L'eau tritiée rejoint alors les eaux souterraines et suit le comportement des eaux phréatiques.

I.2.3 Transferts dans la plante

I.2.3.1 Fonctionnement d'un végétal

- **Relation eau-plante**

L'eau circule à travers la plante selon un mouvement ascendant principalement dans le **xylème**. La principale force motrice du mouvement de l'eau dans le **xylème** est la transpiration et la pression qui en résulte dans la colonne d'eau. La colonne d'eau est maintenue en raison de la résistance à la traction élevée de l'eau. L'eau perdue par transpiration est reconstituée par l'absorption de l'eau du sol par le système racinaire (Hopkins et Hüner, 2008). De grandes quantités d'eau sont perdues par les plantes par évaporation à partir des surfaces des feuilles, processus connu sous le nom de transpiration. La transpiration foliaire s'explique par les différences de pression de vapeur d'eau entre les espaces internes des feuilles et l'air ambiant. Divers facteurs influent sur le taux de transpiration, tels que la température, l'humidité, la vitesse du vent et la structure des feuilles.

- **Constitution des plantes**

- ***Cellule végétale***

La cellule est la brique élémentaire, l'unité fonctionnelle de tous les êtres vivants.

Une cellule végétale est constituée d'un noyau cellulaire entouré d'un protoplasme et de divers organites (également appelé plastes). Le tout est protégé par une membrane plasmique et une paroi cellulaire (Figure 1.9). Le cytosquelette est un réseau tridimensionnel de protéines fibrillaires qui confère à la cellule l'essentiel de ses propriétés mécaniques. Il joue en outre un rôle vital dans le déterminisme de l'organisation et de la morphologie cellulaire, ainsi que dans sa division, sa croissance ou encore sa différenciation (Hopkins et Hüner, 2008).

Les principales activités métaboliques sont compartimentées par les organites cellulaires (Hopkins et Hüner, 2008 ; Boyer, 2009) :

- les plantes sont des organismes eucaryotes, caractérisés par la présence d'un noyau limité par une enveloppe. Le noyau contient l'information génétique sous forme d'acide désoxyribonucléique (ADN). L'ADN contient les gènes qui codent pour l'information nécessaire à la synthèse d'acide ribonucléique (ARN). L'ARN est exporté vers le cytoplasme où il dirige la synthèse de protéines spécifiques ;
- le réticulum endoplasmique et l'appareil de Golgi forment un système membranaire complexe impliqué dans la biosynthèse des lipides et des protéines ;
- la grande vacuole centrale renferme une grande quantité d'ions inorganiques, d'acides organiques, de glucides, d'enzymes et des métabolites secondaires tels que les pigments. La forte teneur en solutés de la vacuole permet l'absorption d'eau nécessaire à l'accroissement cellulaire ;
- les mitochondries sont le siège de la respiration cellulaire. Ce processus permet l'oxydation des glucides et donc l'obtention d'énergie utilisable sous forme d'adénosine triphosphate (ATP). La respiration végétale est décrite plus précisément dans le paragraphe 2.3.2.2 ;
- les chloroplastes sont le siège de la **photosynthèse**, dont le processus est décrit dans le paragraphe 2.3.2.2.

- ***Organes végétaux***

Les cellules sont groupées en fonction de leur structure et/ou de leur fonction. Les cellules d'un même groupe sont réunies en tissus, qui constituent eux-mêmes les organes. Les principaux organes végétatifs (assurant le développement de la plante) sont les racines, les tiges et les feuilles. Les organes reproducteurs (assurant la reproduction de la plante) sont les fleurs et les fruits.

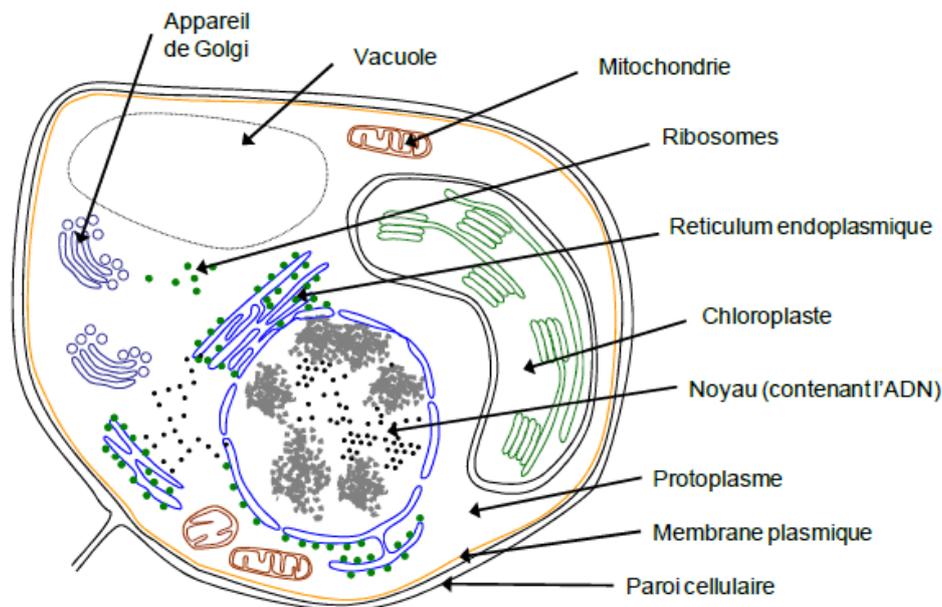


Figure I.9 : Représentation schématique d'une cellule végétale (Boyer (2009) d'après Hopkins (1995) et Gallien (2005)).

Organes végétatifs

Les racines ont pour fonctions principales l'ancrage dans le sol, la mise en réserve et l'absorption d'eau et de sels minéraux.

Les tiges de jeunes dicotylédones (par exemple l'herbe) ont une structure régulière, disposés en cercles concentriques autour d'une moelle centrale de nature parenchymateuse. Ces tiges sont constituées de deux types de tissus conducteurs :

- le **xylème** pour le transport d'eau, de minéraux dissouts et dans une moindre mesure de molécules organiques ;
- le **phloème** pour la **translocation** de matériel organique primaire produit au niveau des sites de **photosynthèse** (Hopkins et Hüner, 2008).

Les feuilles sont rattachées à la tige par le pétiole. Le limbe d'une feuille est la partie de cet organe situé à l'extrémité du pétiole, avec une structure typique en lame. Les surfaces du limbe foliaire sont recouvertes d'un épiderme supérieur et inférieur qui entoure un tissu parenchymateux chlorophyllien appelé **mésophylle** (Figure I.10) : c'est le siège principal de la **photosynthèse**. Les monocotylédones sont généralement constituées d'un seul type de parenchyme contrairement aux plantes dicotylédones qui possèdent deux types de **mésophylle** (Hopkins et Hüner, 2008) :

- le **mésophylle** palissadique qui forme dans la partie supérieure de la feuille une couche de cellules allongées fortement jointives ;
- le **mésophylle** spongieux, constitué de cellules irrégulières plus lâches. Ce dernier délimite tout un réseau de lacunes remplies d'air (Hopkins, 1995).

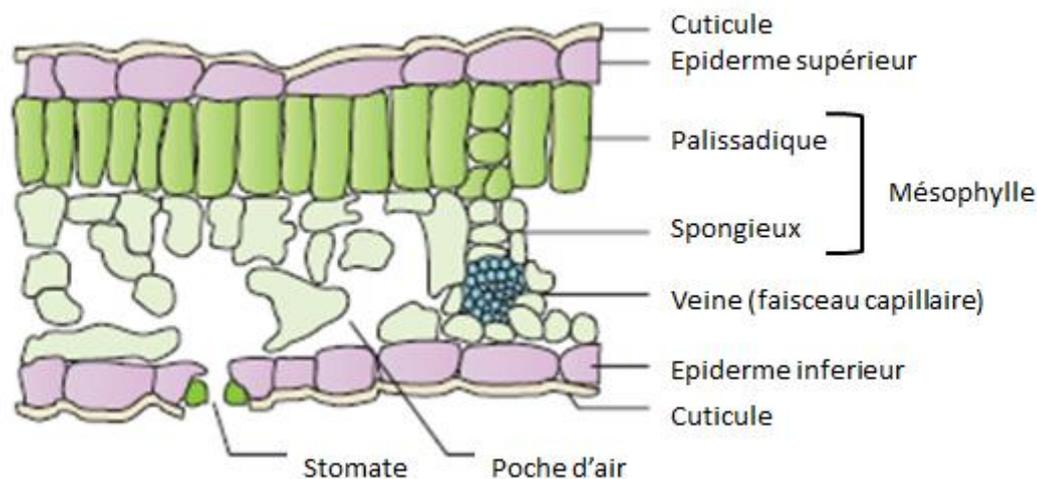


Figure I.10 : Représentation schématique d'une feuille dicotylédone mésomorphe typique (*Acer* sp.) observée en coupe transversale (Hopkins, 2008).

Organes reproducteurs

Au cours de la floraison puis de la fructification, certaines cellules se différencient pour créer les organes reproducteurs (les fleurs et les fruits). Au cours de cette période la plus grande partie des molécules organiques synthétisées sont exportées vers les fruits afin de constituer les organes de réserve pour les graines (Lafarge et Durand, 2011).

- **Croissance des végétaux**

- ***Absorption des nutriments nécessaires à la croissance végétale***

Les plantes sont des organismes **autotrophes** une grande partie de leur vie (cf. § Hétérotrophie et autotrophie, p. 75), la production de matière organique est assurée par la réduction de matière inorganique et minérale. Les plantes ont besoin de carbone, d'hydrogène et d'oxygène, plus 14 autres éléments naturels qui sont prélevés sur le sol, dont l'azote. Ces 17 éléments (Tableau I.5) sont considérés comme essentiels car il a été démontré qu'en leur absence toutes les plantes sont incapables de compléter un cycle de vie normal. Les éléments essentiels peuvent être considérés comme des macronutriments ou des micronutriments, selon la quantité normalement requise. Les micronutriments sont normalement requis en concentrations inférieures à $10 \text{ mmol.kg}_{\text{sec}}^{-1}$ (Hopkins et Hüner, 2008).

Tableau I.5 : Liste des éléments nutritifs nécessaires pour une croissance normale des plantes (d'après Hopkins et Hüner, 2008).

Éléments	Symbole chimique	Forme disponible	Concentration dans la matière sèche (mmol.kg _{sec} ⁻¹)
macronutriments			
Hydrogène	H	H ₂ O	60000
Carbone	C	CO ₂	40000
Oxygène	O	O ₂ , CO ₂	30000
Azote	N	NO ₃ ⁻ , NH ₄ ⁺	1000
Potassium	K	K ⁺	250
Calcium	Ca	Ca ²⁺	125
Magnésium	Mg	Mg ²⁺	80
Phosphore	P	HPO ₄ ⁻ , HPO ₃ ²⁻	60
Souffre	S	SO ₄ ²⁻	30
micronutriments			
Chlore	Cl	Cl ⁻	3,0
Bore	B	BO ₃ ³⁻	2,0
Fer	Fe	Fe ²⁺ , Fe ³⁺	2,0
Manganèse	Mn	Mn ²⁺	1,0
Zinc	Zn	Zn ²⁺	0,3
Cuivre	Cu	Cu ²⁺	0,1
Nickel	Ni	Ni ²⁺	0,05
Molybdène	Mo	Mo ₄ ²⁻	0,001

Les trois principaux macronutriments nécessaires à la croissance des plantes (H, C et O) sont présents sous formes gazeuse ou liquide, tandis que tous les autres éléments sont présents sous forme ionique dans le sol. L'absorption des sels nutritifs par les plantes implique une interaction complexe entre les racines des plantes et le sol. La composante colloïdale du sol, composée de particules d'argile et d'humus, présente une surface spécifique très importante et portante de nombreuses charges, principalement négatives. Les ions adsorbés sur les surfaces colloïdales chargées représentent le principal réservoir de nutriments pour la plante. Lorsque les ions sont retirés de la solution diluée du sol par les racines, ils sont remplacés par des ions échangeables du réservoir colloïdal (Hopkins et Hüner, 2008).

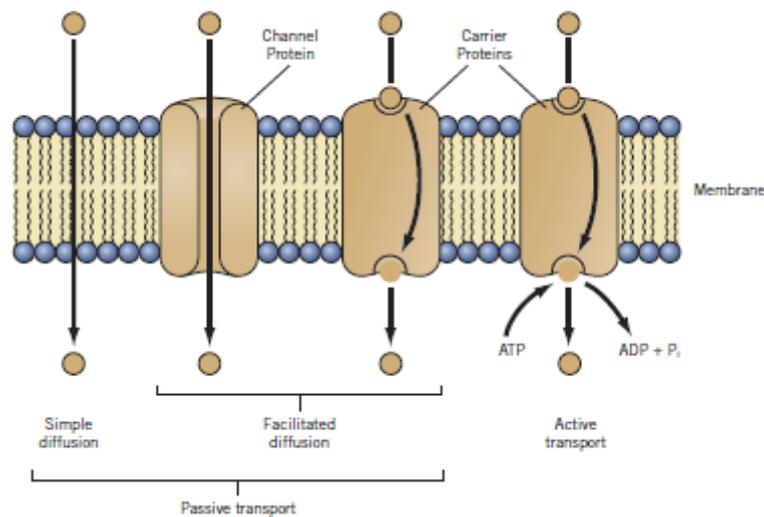


Figure I.11 : Echange d'ions et de solutés à travers les membranes cellulaires végétales impliquant la diffusion simple, la diffusion facilitée ou le transport actif (d'après Hopkins et Hüner, 2008).

L'échange de gaz impliqués dans les processus photosynthétiques entre la feuille et l'air dépend de la diffusion et est régi par l'ouverture et la fermeture de pores épidermiques spécialisés appelés **stomates** (Figure I.10). Le mouvement stomatique est régulé par des niveaux de potassium (K^+) dans les **cellules de garde**. L'ouverture et la fermeture des **stomates** sont également sensibles aux facteurs environnementaux tels que les niveaux de CO_2 , la lumière, la température et l'état de l'eau de la plante (Hopkins et Hüner, 2008).

Pour que les nutriments soient absorbés par une plante, ils doivent être transportés à travers la membrane cellulaire dans la cellule racinaire. Les solutés peuvent traverser une membrane par trois voies (Figure I.11) : la diffusion simple, la diffusion facilitée (participation de protéines de transport) ou le transport actif (nécessite une source d'énergie métabolique, normalement sous forme d'ATP). Les protéines de la bicouche lipidique jouent un rôle de médiateur dans la diffusion facilitée et le transport actif. Seul le transport actif permet d'accumuler des ions contre un gradient

électrochimique. L'absorption des nutriments par la plupart des plantes est renforcée par l'association des racines avec les microorganismes du sol, en particulier les champignons. Les associations de racines fongiques (mycorhizes) bénéficient à la plante en augmentant considérablement le volume de sol accessible aux racines (Hopkins et Hüner, 2008).

- **Croissance par production de matière sèche : la photosynthèse**

L'assimilation du carbone par les plantes crée la biomasse végétale sèche. Le bilan global en carbone dépend de la productivité primaire nette : l'équilibre entre l'absorption de carbone par la **photosynthèse** et la perte de carbone par la respiration.

La **photosynthèse**, la respiration et la **photo-respiration** répondent différemment à la température. Ainsi, la température optimale pour la **photosynthèse** nette n'est pas la même que la température optimale pour la **photosynthèse** brute. Les plantes nécessitent également une alimentation en eau et en azote adéquate afin de maximiser leur capacité photosynthétique foliaire. La productivité photosynthétique dépend également de la sénescence des feuilles et de la structure du couvert végétal. Le couvert végétal idéal maximise l'efficacité de l'interception de la lumière et du gain de carbone en équilibrant la surface des feuilles, l'angle des feuilles, l'orientation des feuilles, la densité de la plante et la sénescence des feuilles plus anciennes (Hopkins et Hüner, 2008).

Structures photosynthétiques

La structure des feuilles des végétaux vasculaires est étroitement liée à la notion de fonction. Une feuille a besoin d'un apport adéquat en lumière, dioxyde de carbone et eau afin d'accomplir sa fonction principale de production photosynthétique. Le développement d'une surface foliaire importante et la présence de chlorophylle et de pigments permettent notamment d'optimiser la capture de la lumière solaire. Un système conducteur très développé permet d'apporter eau et nutriments aux cellules photosynthétiques et d'exporter les molécules photo-synthétisées aux tissus et organes non photosynthétiques de la plante (Hopkins et Hüner, 2008 ; Boyer, 2009).

Le processus de **photosynthèse** se déroule dans le chloroplaste, un organite spécifique présent dans le cytoplasme des cellules végétales chlorophylliennes (Figure 1.9). Les chloroplastes sont constitués de quatre compartiments structurels : une enveloppe externe, une matrice fondamentale non structurée (le stroma), un système de membranes internes très structurées (les thylakoïdes), et un espace compris à l'intérieur de ces membranes (le lumen). Les membranes constituant les thylakoïdes sont le siège des réactions de conversion de l'énergie alors que les réactions de réduction du carbone se déroulent dans le stroma (Hopkins et Hüner, 2008 ; Boyer, 2009).

Réactions photosynthétiques

Le processus de **photosynthèse** se déroule en deux phases bien distinctes (Figure I.12) :

- la phase photochimique ou phase claire : des réactions dépendantes de la lumière produisent le NADPH (coenzyme réductrice) et l'ATP (coenzyme qui stocke l'énergie chimique) ;
- la phase biochimique ou phase sombre : des réactions indépendantes de la lumière utilisent les coenzymes produites lors de la phase claire pour absorber et réduire le dioxyde de carbone.

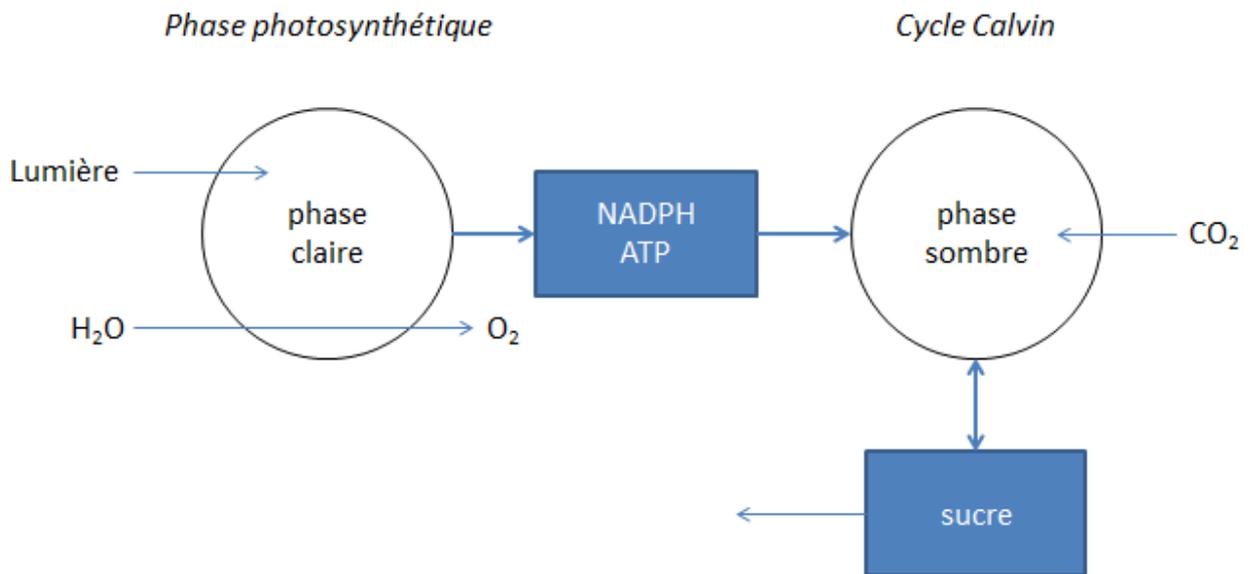
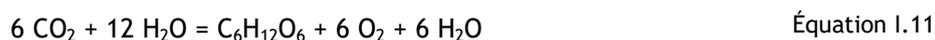


Figure I.12 : Représentation schématique de la production de sucre à partir de la phase claire et de la phase sombre.

Bilan global

La **photosynthèse** correspond globalement à une réaction d'oxydoréduction où le dioxyde de carbone est réduit en glucides, dont l'équation-bilan peut s'écrire selon l'Équation I.11 ou l'Équation I.12. Dans ces réactions, l'eau tient le rôle de réducteur et le dioxyde de carbone celui de l'oxydant. Dans l'Équation I.12, le terme (CH₂O) représente la structure de base d'un glucide.



Phase claire

Les réactions qui accomplissent les transformations énergétiques constituent les réactions photochimiques (réactions qui dépendent de la lumière), communément appelées « phase claire ». Ces réactions photochimiques correspondent globalement à une photolyse de l'eau (Boyer, 2009 ; Simon, 2009).

La fonction des réactions dépendantes de la lumière de la **photosynthèse** est de générer l'**ATP** et le potentiel de réduction (comme NADPH) requis pour la réduction de carbone ultérieure (Figure I.13). La chaîne de transport d'électrons dans les membranes thylakoïdes est composée de deux photosystèmes (PSI, PSII) et d'un complexe cytochrome b6f. Les trois complexes sont liés par la plastoquinone et la plastocyanine, des supports mobiles qui diffusent librement dans le plan de la membrane. Dans le centre de réaction, le flux d'électrons est initié par une séparation de charge (photo-oxydation). En conséquence, les électrons obtenus à partir de l'oxydation de l'eau sont transmis par PSII, le complexe cytochrome b6f et PSI à NADP⁺. Les protons pompés à travers la membrane entre PSII et PSI conduisent la photophosphorylation (Hopkins et Hüner, 2008).

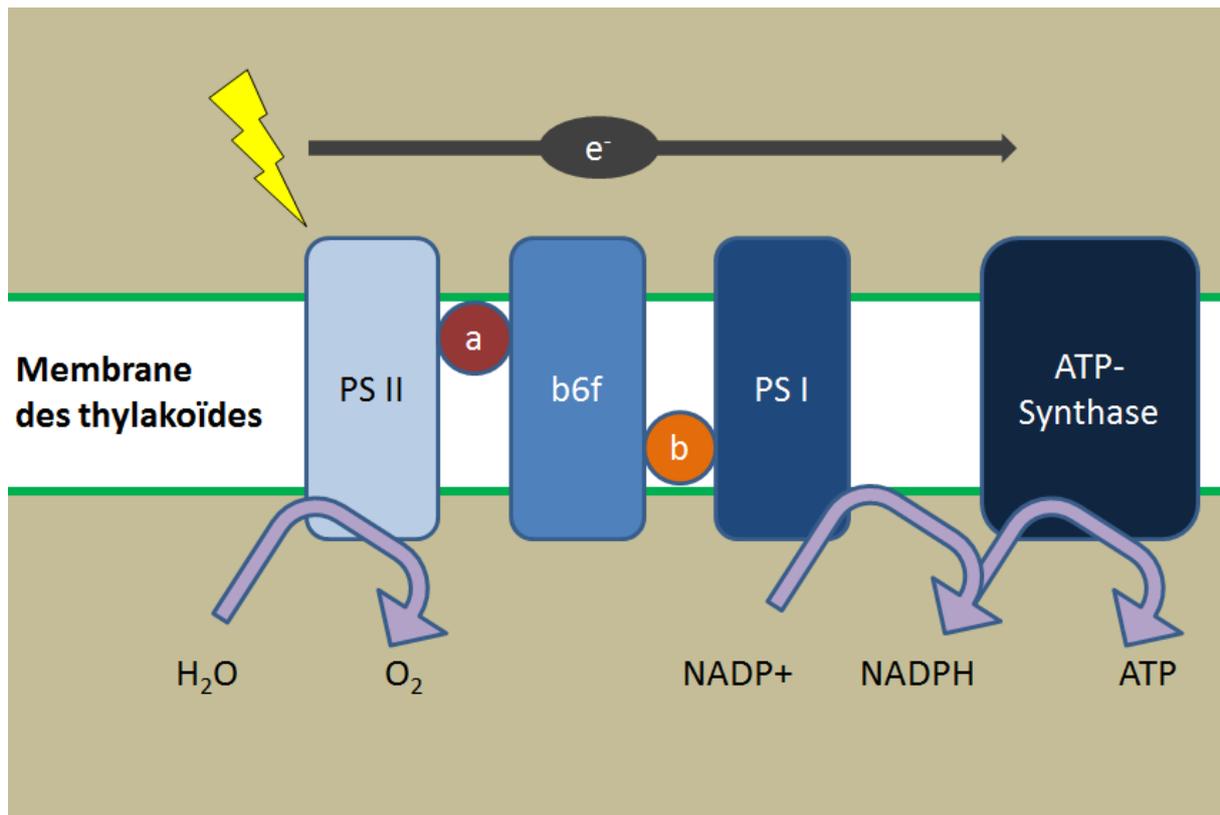


Figure I.13 : Représentation schématique de la phase claire (phase photosynthétique). L'éclair jaune symbolise l'action de la lumière au cours de cette phase (photolyse de l'eau), e^- représente le gradient électrochimique, a représente la plastoquinone et b représente la plastocyanine.

Phase sombre

L'énergie produite au cours de la phase claire est ensuite utilisée pour réduire le dioxyde de carbone en carbone organique sous la forme de glucides. Cette phase de fixation du carbone, également appelée **cycle de Calvin**, met en jeu des réactions non-photochimiques (réactions indépendantes de la lumière), qui ont conduit à la nommer improprement « phase sombre » (Boyer, 2009 ; Simon, 2009).

Le cycle de réduction du carbone photosynthétique (Figure I.14) se produit dans le stroma des chloroplastes (Figure I.9). C'est la séquence de réactions que toutes les plantes utilisent pour réduire le dioxyde de carbone en carbone organique. L'**enzyme** clé est la ribulose-1,5-bisphosphate carboxylase-oxygénase (RubisCo), qui **catlyse** l'addition d'une molécule de dioxyde de carbone à une molécule acceptrice, ribulose-1,5-bisphosphate (RuBP), produisant de l'acide phosphoglycérique (APG). L'énergie provenant des réactions dépendantes de la lumière est requise en deux étapes : **ATP** et **NADPH** pour la réduction de APG et **ATP** pour la régénération de la molécule acceptrice RuBP. La majeure partie du cycle comporte une série de réarrangements de sucre qui (1) régénèrent le RuBP et (2) accumulent l'excès de carbone. Cet excès de carbone peut

être stocké dans le chloroplaste sous forme d'**amidon** ou exporté du chloroplaste pour le transport vers d'autres parties de la plante (Hopkins et Hüner, 2008).

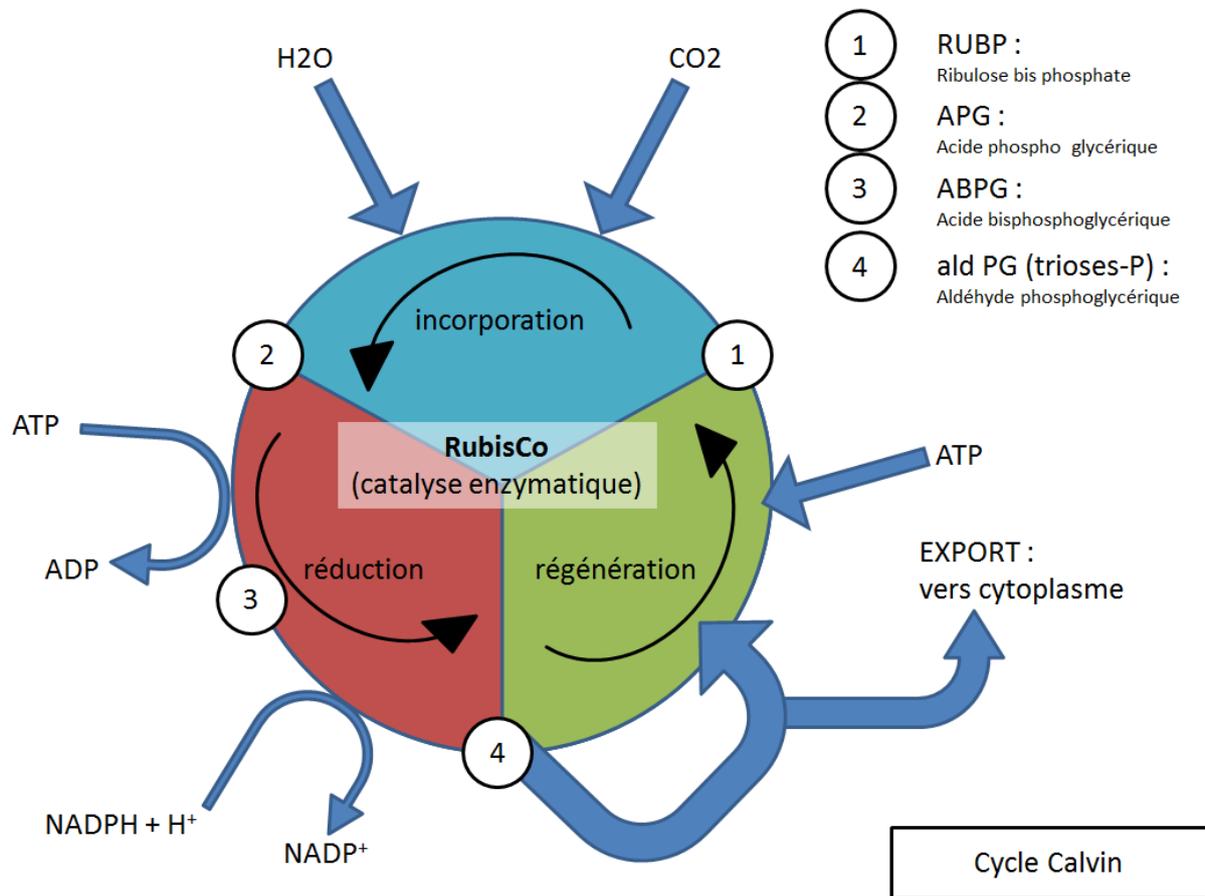


Figure I.14 : Représentation schématique de la phase sombre (Cycle de Calvin).

Les types métaboliques du point de vue de la photosynthèse

Il existe trois types métaboliques de **photosynthèse** chez les végétaux vasculaires (Yamori *et al.*, 2014) : la **photosynthèse en C₃**, en **C₄** et le métabolisme crassulacéen (**CAM**). Ils sont définis par la première réaction de fixation du dioxyde de carbone qu'ils mettent en jeu (Boyer, 2009 ; Simon, 2009).

Les plantes en **C₃** sont les plantes qui incorporent le carbone uniquement par l'intermédiaire du **cycle de Calvin**. Le premier produit dans lequel le dioxyde de carbone est incorporé dans ce cas est le 3-phosphoglycérate (APG), acide à 3 atomes de carbone, d'où la dénomination « **C₃** ». Les végétaux des régions tempérées ou froides, notamment la plupart des plantes de culture occidentales et de leurs ancêtres appartiennent à ce groupe. Les plantes qui utilisent le **cycle de Calvin** pour fixer le carbone sont également soumises à un processus inverse qui libère du dioxyde de carbone : la **photorespiration**. La source du CO₂ est le cycle photosynthétique d'oxydation du

carbone (PCO), dont la première étape, également catalysée par la RuBisCO, conduit à l'oxydation et à la carboxylation du RuBP en présence d'oxygène. In fine, ce cycle provoque la libération de CO₂ et le retour du carbone restant dans le **cycle de Calvin** (Hopkins, 1995). Chez les plantes en **C3**, la **photorespiration** des feuilles est toujours beaucoup plus importante que leur respiration à l'obscurité (environ 5 fois plus) (Jolivet et Moise, 1982). Le minimum de concentration en dioxyde de carbone à partir duquel la **photosynthèse** l'emporte (**point de compensation** du CO₂) est d'environ 50 µL.L⁻¹ d'air. De nombreux végétaux de type **C3** sont adaptés aux éclairagements faibles ; même les plantes héliophiles de ce groupe ont un plateau de saturation lumineuse généralement peu élevée, inférieur à 150 ou 200 W.m⁻² (Boyer, 2009).

Chez les plantes en **C4**, le premier produit carboné est un acide à 4 atomes de carbone (l'oxaloacétate). Excepté dans les régions tropicales et subtropicales, les plantes en **C4** tels que le maïs (*Zea mays* L.), la canne à sucre (*Saccharum officinarum* L.) ou le sorgho (*Sorghum bicolor*), sont beaucoup moins abondantes que les plantes de type **C3**, et leurs caractéristiques sont différentes. En effet, ces plantes ont mis en place un mécanisme de concentration du dioxyde de carbone dans des cellules spécialisées pour sa fixation et évitent ainsi la perte de CO₂ par **photorespiration**. De ce fait, les plantes en **C4** ont un **point de compensation** pour le CO₂ et un taux de **photorespiration** très bas. Elles sont capables de maintenir une **photosynthèse** élevée alors que la concentration en dioxyde de carbone est très faible, ou en cas de stress hydrique (Hopkins, 1995). D'autre part, le rendement énergétique aux faibles éclairagements des plantes en **C4** est inférieur à celui des plantes de type **C3**, mais elles utilisent beaucoup mieux les forts éclairagements (Boyer, 2009). Ainsi, leur plateau de saturation lumineuse n'est pas atteint à 500 W.m⁻² (Jolivet et Moise, 1982).

Dans le cadre d'un habitat chaud et aride (très faible disponibilité en eau), certaines plantes développent un métabolisme dit crassulacéen (**CAM**) pour maintenir une activité métabolique. Celles-ci ont un cycle d'ouverture/fermeture des **stomates** inversé : ils sont ouverts la nuit (période de faible stress hydrique) et fermés le jour (fort stress hydrique), d'où une fixation nocturne du CO₂ (Hopkins, 1995).

La respiration

La respiration cellulaire se compose d'une série de voies interdépendantes par lesquelles les glucides et autres molécules sont oxydés dans le but de récupérer l'énergie stockée par **photosynthèse** et pour obtenir les squelettes carbonés qui servent de précurseurs pour d'autres molécules utilisées dans la croissance et l'entretien de la cellule.

La perte de carbone par respiration peut être divisée en coût carbone de la croissance -ou la respiration de croissance- et en coût pour le simple maintien de la structure et des processus qui n'entraînent pas une augmentation nette de la matière sèche. Le taux de respiration des plantes et des organes entiers varie considérablement selon l'âge, l'état métabolique et les conditions environnementales (Hopkins et Hüner, 2008).

La mise en réserve/remobilisation des réserves

Les plantes stockent les photo-assimilats excédentaires soit sous forme d'**amidon** - un long polymère linéaire ou ramifié de glucose - dans le stroma des chloroplastes ou sous forme de fructane - un polymère de fructose - dans la vacuole. Ces glucides de stockage (l'**amidon** et les fructanes) sont dégradés enzymatiquement en glucose ou fructose, qui à la suite de différentes conversions sont converti en triose-phosphate, point de départ de la glycolyse. Dans le processus appelé **cycle de Krebs**, une petite quantité d'ATP et de potentiel réducteur sont générés. Les intermédiaires de la glycolyse sont des sucres à trois carbones, dont beaucoup sont des précurseurs des triglycérides et des acides aminés. Les précurseurs à quatre et cinq carbones sont produits par une voie alternative pour le métabolisme du glucose appelé voie de pentose phosphate oxydant. La voie du pentose phosphate oxydant produit également NADPH (par opposition à NADH), qui offre une réduction du potentiel lorsque c'est requis pour les réactions biosynthétiques des plantes (Hopkins et Hüner, 2008).

Le stockage sous forme d'**amidon** ou l'exportation vers le cytoplasme sont des processus concurrents soumis à une régulation par des changements subtils dans le taux de triose phosphate et de phosphate inorganique (Pi) ainsi que le métabolite régulateur, le fructose-2,6-bisphosphate (F-2,6-BP). De nombreuses graines stockent du carbone sous la forme de graisses et des huiles, qui doivent d'abord être transformées en sucre pour pouvoir être respirées. Après que les acides gras soient décomposés en unités acétyl-CoA - une série complexe de réactions impliquant des **enzymes** de la mitochondrie - du glyoxysome et du cytosol convertissent les unités d'acétate en phosphoénolpyruvate. Le pyruvate est ensuite converti en glucose par la gluconéogenèse, un processus qui est essentiellement un renversement de la glycolyse (Hopkins et Hüner, 2008).

Vie du végétal

Cycle de vie du végétal

La vie d'un individu végétal commence par la fertilisation ou l'union d'un noyau de sperme haploïde (fourni par un grain de pollen) avec un noyau d'œuf haploïde dans l'ovaire, situé à la base du pistil. Le zygote résultant passe par une série d'étapes pour produire un embryon mature composé d'un ou plusieurs cotylédons, d'une plumule constituée de feuilles primaires et d'un **méristème** apical et d'une radicule destinée à devenir une racine primaire. L'embryon se développe dans un tissu nutritif appelé endosperme (Hopkins et Hüner, 2008).

La germination des graines est initiée lorsque la graine absorbe de l'eau pour réhydrater les tissus secs. La respiration est l'une des premières activités métaboliques réalisée car les réserves nutritives sont mobilisées à partir de l'endosperme ou des cotylédons et l'embryon renouvelle sa croissance (Hopkins et Hüner, 2008).

Le contrôle génétique de la mort des cellules, appelé mort cellulaire programmée, est une composante normale du développement et donne lieu à des structures aussi diverses que les vaisseaux de **xylème** matures et les fleurs unisexuelles (Hopkins et Hüner, 2008).

Hétérotrophie et autotrophie

Au cours de la vie du végétal, la matière organique est transférée d'un organe source à un autre organe puit. Dans ce contexte le terme « allocation » correspond à la répartition de saccharose et d'**amidon** issus des graines vers les autres organes de la plante. Ce processus a lieu lors des premiers stades de développement de l'individu, avant la production de matière carbonée par **photosynthèse** (Figure I.15). À partir des premières réactions photosynthétiques, le processus d'allocation laisse place progressivement à la **translocation** : c'est la transition **hétérotrophie-autotrophie** du végétal. La **translocation** est le processus de redistribution de photo-assimilats provenant des feuilles vers les autres organes de la plante.

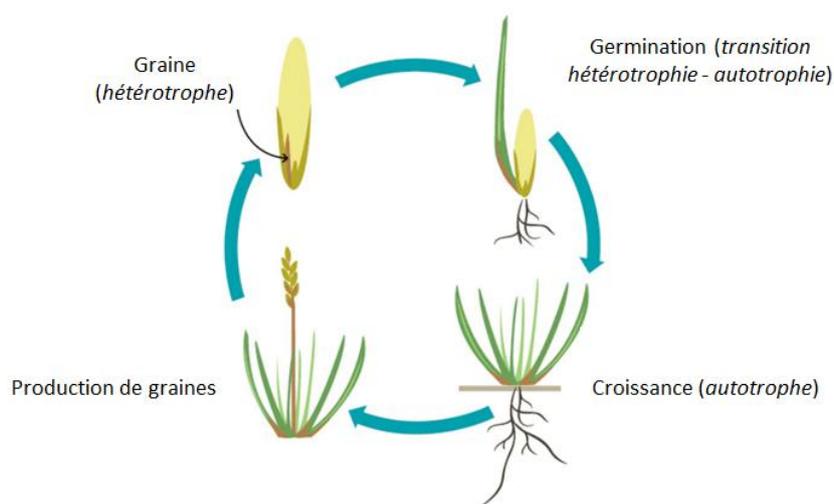


Figure I.15 : Cycle de vie du ray-grass, de la germination à la production de graines (d'après DairyNZ.com)

Les produits de la **photosynthèse** peuvent être stockés sous forme d'**amidon** dans le chloroplaste ou exportés du chloroplaste vers le cytosol où ils sont transformés en saccharose. La direction de la **translocation** longue distance qui a lieu dans le **phloème** est déterminée en grande partie par les relations source-puits. Un organe ou un tissu qui produit plus d'assimilation qu'il n'en a besoin pour son propre métabolisme est une source, alors qu'un puits est un importateur net d'assimilats. Les puits comprennent les **méristèmes** et les feuilles en développement au sommet, les tissus de tige non-radicalaire, les racines et les organes de stockage. Les organes tels que les feuilles sont couramment des puits dans leurs premiers stades, mais deviennent des sources lorsqu'ils sont pleinement développés et à mesure qu'ils vieillissent (Hopkins et Hüner, 2008).

Zone de développement

Les plantes, comme tout autre organisme multicellulaire, se développent en combinant croissance et différenciation. La croissance est simplement une augmentation irréversible de la taille qui reflète une augmentation du nombre de cellules ainsi que la taille des cellules individuelles. La

différenciation se réfère aux changements qualitatifs, ou à la spécialisation dans la structure et la fonction de la cellule, qui normalement accompagnent la croissance (Hopkins et Hüner, 2008).

La croissance des plantes est limitée aux régions distinctes appelées **méristèmes**. Les principaux **méristèmes** qui donnent naissance au corps primaire de la plante sont situés aux sommets des tiges et des racines. Les **méristèmes** secondaires dans les tiges et les racines sont responsables de l'augmentation de la circonférence (Hopkins et Hüner, 2008).

- **Adaptation environnementale des plantes**

La croissance végétale est influencée par une variété de facteurs génétiques et environnementaux qui influencent la **photosynthèse**. Les facteurs environnementaux comprennent la lumière, le dioxyde de carbone, la température, l'eau du sol, les éléments nutritifs et la structure du couvert végétal. Ces différents facteurs peuvent jouer un rôle de stress s'ils sont présents dans des quantités insuffisantes, en modifiant l'état cellulaire du végétal. Le maintien d'un état stable cellulaire loin de l'équilibre entraîne une condition d'adaptation appelée homéostasie. La modulation environnementale de l'homéostasie peut être définie comme un stress biologique (Hopkins et Hüner, 2008).

Le stress implique généralement un effet néfaste sur la physiologie d'une plante. Celle-ci peut y répondre de plusieurs façons.

- **Domage d'un stress sur un végétal**

Une caractéristique commune de tous les stress est qu'ils induisent ou répriment des gènes spécifiques ou des familles de gènes et qu'ils affectent négativement le fonctionnement hydrique et carboné du végétal, dont la **photosynthèse**. En conséquence, la combinaison des contraintes abiotiques et biotiques réduit la productivité des plantes et le rendement des cultures (Hopkins et Hüner, 2008).

Stress lumineux

Le taux de **photosynthèse** augmente entre le **point de compensation** de la lumière et la saturation. En raison du changement constant du rayonnement à l'échelle d'une journée, le gain de carbone à long terme dépend de l'éclairement cumulatif pendant la saison de croissance. Bien que la lumière soit nécessaire pour l'assimilation photosynthétique du CO₂, une trop grande quantité de lumière peut inhiber la **photosynthèse**. Le cas d'une photo-inhibition chronique peut entraîner une **photodéamie** (Demmig-Adams et Adams, 1992 ; Sharkey et Loreto, 1993 ; Hopkins et Hüner, 2008).

Stress hydrique

Le stress hydrique dans les milieux naturels provient généralement du manque de précipitations, une condition connue sous le nom de sécheresse. Cela conduit à la dessiccation du protoplasme et du dysfonctionnement cellulaire. Une réponse immédiate de la plupart des plantes au stress hydrique est la fermeture stomatique due à une faible turbulence dans les **cellules de garde**. La

fermeture stomatale est déclenchée par la diminution du potentiel hydrique dans la **mésophylle** foliaire. L'hormone acide abscisique (ABA) semble avoir un rôle important dans la fermeture stomatique (Tardieu et Simonneau, 1998 ; Hopkins et Hüner, 2008 ; Huntingford *et al.*, 2015 ; Simonneau *et al.*, 2015).

Stress thermique

La limite de température supérieure pour la plupart des plantes est déterminée par une combinaison de dénaturation irréversible d'**enzymes** et de problèmes de fluidité membranaire. Les plantes soumises à un stress thermique y répondent en synthétisant une nouvelle famille de protéines de choc thermique à faible masse moléculaire (Sharkey et Loreto, 1993 ; Sinsawat *et al.*, 2004 ; Hopkins et Hüner, 2008).

Stress biotique

Les plantes répondent aux dommages causés par les insectes et aux pathogènes microbiens avec des changements dans la composition de la paroi cellulaire et une augmentation de la résistance de la paroi cellulaire, ainsi que la formation de lésions nécrotiques au niveau du site d'infection. Ces réponses servent à isoler l'agent pathogène potentiel et à prévenir son développement et à se propager à travers la plante (Hopkins et Hüner, 2008 ; Suzuki *et al.*, 2014).

- *Acclimatation des plantes au stress*

Les plantes résistantes ou tolérantes au stress présentent la possibilité d'acclimater ou de s'adapter au stress environnemental. Bien que les changements spécifiques de la physiologie provoqués par l'acclimatation à un stress ne soient pas héréditaires, la capacité des plantes à s'acclimater reflète leur remarquable plasticité. Les plantes présentent une tolérance au stress en raison de leur capacité génétique à s'acclimater et à établir un nouvel état homéostatique au fil du temps. Contrairement aux mécanismes à court terme qui initient des réactions d'acclimatation, les mécanismes à long terme de l'acclimatation peuvent entraîner des changements phénotypiques (Hopkins et Hüner, 2008 ; Huntingford *et al.*, 2015).

La photostase est le maintien d'un équilibre entre l'énergie absorbée par rapport à l'énergie utilisée par le métabolisme et la croissance. La réalisation de la photostase semble être une caractéristique commune de l'acclimatation à la lumière élevée, aux déficits hydriques et à la température (Melis, 1998 ; Ensminger *et al.*, 2006 ; Hopkins et Hüner, 2008).

1.2.3.2 *Intégration du tritium aux végétaux*

- **Absorption**

Les plantes chlorophylliennes constituent le premier maillon de la chaîne trophique. La compréhension des processus d'intégration de tritium dans les végétaux est un prérequis essentiel pour estimer la dose de tritium ingérée par l'homme (Bacchetta, 2014).

Le transfert du tritium à la végétation est conditionné par deux facteurs :

- la forme chimique tritiée : l'eau tritiée (HTO) pénètre facilement et rapidement dans les plantes, contrairement au tritium gazeux (HT) qui est très peu absorbé en raison d'une très faible solubilité dans l'eau (Belot *et al.*, 1996) ;
- la voie de transfert : concernant les végétaux, deux voies de transfert de l'eau tritiée sont envisageables. Il s'agit de l'absorption par voie foliaire du tritium atmosphérique et de l'absorption par voie racinaire du tritium contenu dans la solution du sol (Elwood, 1971 ; McFarlane *et al.*, 1979a ; IAEA, 2007).

Le transfert de tritium dans un **écosystème** prairial, aux interfaces air - sol - plante, est présenté Figure I.16.

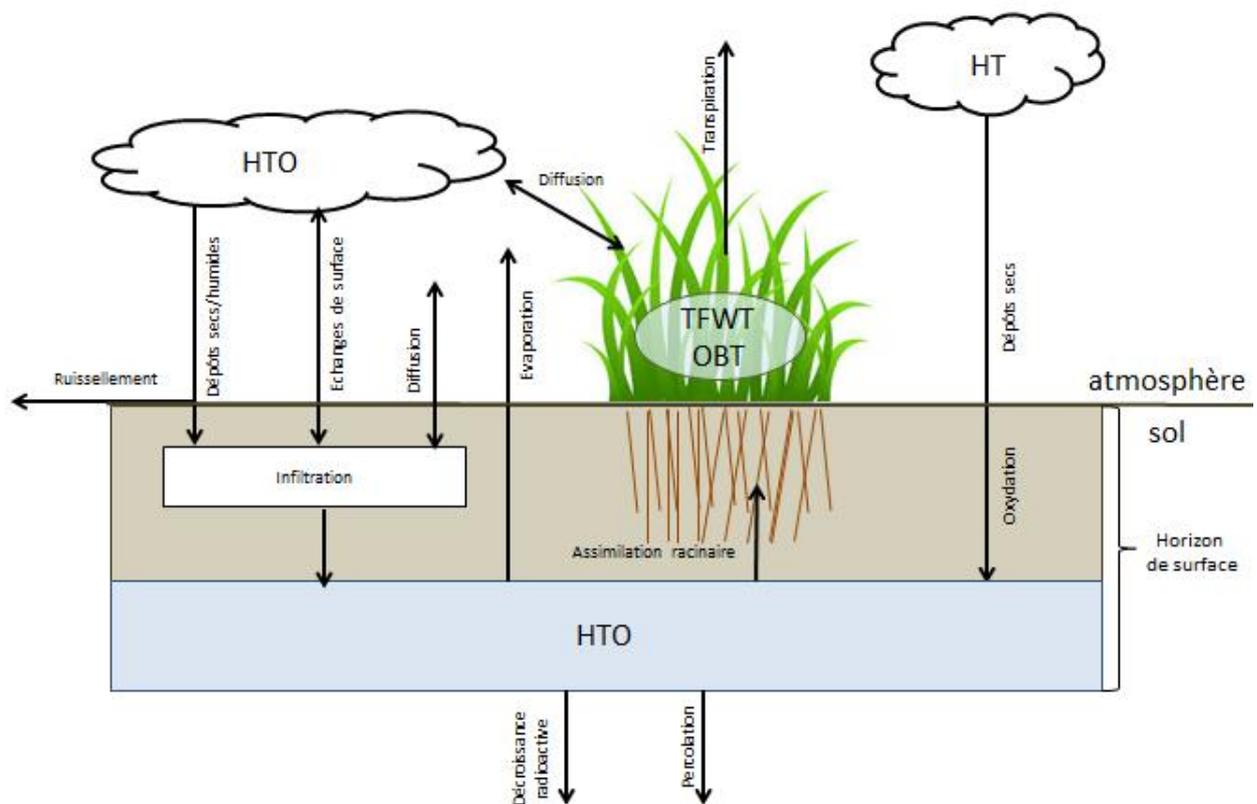


Figure I.16 : Représentation schématique des transferts du tritium aux interfaces air-sol-plante au sein d'un écosystème prairial.

Dans des conditions climatiques standard de pression atmosphérique et de température à 20°C, l'eau cellulaire végétale circule - à travers le **xylème** - des racines aux feuilles où elle est évacuée. Cependant l'apport de tritium au sein de la plante est principalement due à la contribution atmosphérique (Diabate et Strack, 1997 ; IAEA, 2007). Raskob (1995) estime que la diffusion foliaire est environ quatre fois plus importante que par voie raculaire pour intégrer le tritium sous forme **HTO** au sein du végétal. A contrario, une étude plus ancienne de McFarlane *et al.* (1979) affirme

que la contamination des végétaux au tritium est principalement dépendante de la concentration de l'eau tritiée dans les sols. Cette importance de la contribution du sol est récemment confirmée par une étude comparant des données expérimentales et des sorties de modèle (Ota *et al.*, 2017). Si la teneur en tritium dans les sols a pu être le facteur prépondérant pour la contamination des plantes dans les années 1970-1980, la diminution globale des concentrations en tritium dans l'environnement depuis lors tend à inverser cette tendance (Bacchetta, 2014).

La diffusion de gaz à travers les **stomates** est le principal mécanisme de marquage des plantes au tritium suite à une exposition au tritium d'origine atmosphérique. Cette vitesse d'échange est fonction de l'ouverture des **stomates**, de la physiologie de la plante (âge des feuilles, densité stomatale, stade de développement) et des conditions climatiques (température, humidité relative, luminosité) (Boyer *et al.*, 2009 ; Galeriu *et al.*, 2013 ; Bacchetta, 2014 ; Melintescu et Galeriu, 2017).

Le marquage ou l'épuration du **TFWT** par le **HTO** atmosphérique suit une loi exponentielle (Spencer, 1984 ; Belot, 1996 ; Boyer, 2009 ; Le Goff, 2013). La cinétique de d'équilibre entre **TFWT** et le **HTO** atmosphérique suit l'Équation I.13 et l'Équation I.14 suivant qu'il s'agisse d'une épuration du **TFWT** ou d'un marquage, respectivement.

$$(C_{TFWT}^{plante})_t = (C_{TFWT}^{plante})_{t_0} \cdot (e^{-\lambda t}) \quad \text{Équation I.13}$$

$$(C_{TFWT}^{plante})_t = (C_{TFWT}^{plante})_{\text{équilibre}} \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \quad \text{Équation I.14}$$

Avec $(C_{TFWT}^{plante})_t$ l'activité en tritium de l'eau tissulaire à un instant t (Bq.L⁻¹), $(C_{TFWT}^{plante})_{\text{équilibre}}$ l'activité en tritium de l'eau tissulaire après un temps de marquage suffisamment long pour atteindre un équilibre (Bq.L⁻¹), $(C_{TFWT}^{plante})_{t_0}$ l'activité tritium initiale de l'eau tissulaire (Bq.L⁻¹), t le temps écoulé depuis le début de l'exposition (heures) et λ la constante d'absorption du tritium au sein de l'eau tissulaire (heures⁻¹). Dans le cas d'une activité constante de **HTO** atmosphérique (C_{HTO}^{air} , en Bq.L⁻¹), $(C_{TFWT}^{plante})_{\text{équilibre}}$ est égale à C_{HTO}^{air} .

Le temps de demi-équilibre ($t_{1/2}$, en heure) est une constante souvent utilisée pour quantifier les cinétiques d'échange de tritium entre C_{HTO}^{air} et $(C_{TFWT}^{plante})_{\text{équilibre}}$, en raison de l'aspect exponentielle des équations (Fievet et Plet, 2003 ; Boyer, 2009). La constante $t_{1/2}$ est exprimé comme suit :

$$t_{1/2} = \frac{\ln(2)}{\lambda} \quad \text{Équation I.15}$$

Le Tableau I.6 synthétise une revue bibliographique de différentes valeurs expérimentales de $t_{1/2}$ en périodes diurne et nocturne. Les valeurs $t_{1/2}$ sont généralement inférieures ou égales à l'heure en période diurne, ce qui confirme cet équilibre rapide entre **HTO** et **TFWT** (évoqué § Le tritium dans l'eau tissulaire des organismes, p. 44). En période nocturne, cet équilibre semble plus lent. Cette

différence de cinétique d'échange est généralement justifiée par une ouverture stomatale plus faible la nuit que le jour (Boyer *et al.*, 2009 ; Kim *et al.*, 2012 ; Galeriu *et al.*, 2013 ; Bacchetta, 2014 ; Melintescu et Galeriu, 2017).

Cependant l'ouverture des **stomates** est fonction de la transpiration végétale. La transpiration végétale nocturne est inférieure à la transpiration diurne mais peut atteindre un même ordre de grandeur (Caird *et al.*, 2007 ; Shen et Liu, 2016). De plus les rejets atmosphériques en HTO peuvent être plus forts la nuit que le jour (Melintescu et Galeriu, 2017). Suivant les conditions expérimentales, l'assimilation nocturne de HTO atmosphérique peut donc être aussi forte la nuit que le jour (Boyer *et al.*, 2009 ; Galeriu *et al.*, 2013).

Tableau I.6 : Temps de demi-équilibre ($t_{1/2}$, min) entre la concentration en eau libre du végétal et la vapeur d'eau tritiée atmosphérique obtenus expérimentalement pour différentes espèces végétales.

Espèce végétale	Période d'exposition	Durée exposition (h)	$t_{1/2}$ (min)	Référence
pomme de terre (<i>Solanum tuberosum</i> L.) et vigne (<i>Vitis vinifera</i> L.)	diurne	4	30	Guenot et Belot, 1984 (in Boyer 2009)
laitue jeune (<i>Lactuca sativa</i> L.)	diurne	24	1344	Boyer (2009)
laitue mature (<i>Lactuca sativa</i> L.)	diurne	24	174	Boyer (2009)
laitue pré-montaison (<i>Lactuca sativa</i> L.)	diurne	24	90	Boyer (2009)
chou (<i>Brassica oleracea</i> L.)	diurne	/	53	Brudenell <i>et al.</i> , 1997 (in Boyer 2009)
luzerne (<i>Medicago hispida</i> L.)	diurne	/	46	Anspaugh <i>et al.</i> , 1997 (in Boyer 2009)
luzerne (<i>Medicago hispida</i> L.)	diurne	1	1	Koranda et Martin, 1971 (in Boyer 2009)
avoine (<i>Avena sativa</i> L.)	diurne	0,5	58	Koranda et Martin, 1971 (in Boyer 2009)

tournesol (<i>Helianthus annuus L.</i>)	diurne	0,5	20	Koranda et Martin, 1971 (in Boyer 2009)
maïs (<i>Zea mays L.</i>)	diurne	0,5	35	Koranda et Martin, 1971 (in Boyer 2009)
pin noir (<i>Pinus thunbergil</i>)	diurne	1	77	Koranda et Martin, 1971 (in Boyer 2009)
herbe (tige)	diurne	2	25	Kline et Stewart, 1974 (in Boyer 2009)
herbe (feuilles)	diurne	2	35	Kline et Stewart, 1974 (in Boyer 2009)
riz (épi) (<i>Oryza sativa L.</i>)	diurne	1	30	Keum <i>et al.</i> , 2006 (in Boyer 2009)
laitue (<i>Lactuca sativa L.</i>)	diurne	2,92	32	Lyengar <i>et al.</i> , 1981 (in Boyer 2009)
chou (<i>Brassica oleracea L.</i>)	diurne	2,92	45	Lyengar <i>et al.</i> , 1981 (in Boyer 2009)
piment (pousse) (<i>Capsicum frutescens L.</i>)	diurne	3,25	46	Lyengar <i>et al.</i> , 1981 (in Boyer 2009)
piment (racine) (<i>Capsicum frutescens L.</i>)	diurne	3,25	65	Lyengar <i>et al.</i> , 1981 (in Boyer 2009)
tournesol (<i>Helianthus annuus L.</i>)	diurne	0-4	45	Couchat <i>et al.</i> , 1983 (in Belot 1996)
herbe (tige)	nocturne	6,67	408	Kline et Stewart, 1974 (in Boyer 2009)
herbe (feuilles)	nocturne	36,33	2310	Kline et Stewart, 1974 (in Boyer 2009)
chou (<i>Brassica oleracea L.</i>)	nocturne	13	770	Brudenell <i>et al.</i> , 1997 (in Boyer 2009)
tournesol (<i>Helianthus</i>	nocturne	0-4	300	Couchat <i>et al.</i> , 1983 (in

<i>annuus L.</i>)				Belot 1996)
laitue jeune (<i>Lactuca sativa L.</i>)	nocturne	24	768	Boyer (2009)
laitue mature (<i>Lactuca sativa L.</i>)	nocturne	24	414	Boyer (2009)
laitue prémontaison (<i>Lactuca sativa L.</i>)	nocturne	24	438	Boyer (2009)

- **Intégration à la matière organique végétale**

L'eau cellulaire tritiée (Tissue Free Water Tritium ou **TFWT**) est la principale forme tritiée permettant l'incorporation du tritium sous forme organique (**OBT**) via la **photosynthèse** (Belot, 1986 ; Diabate et Strack, 1993 ; Belot *et al.*, 1996). Boyer (2009) rappelle que moins de 5 % de l'eau absorbée est finalement utilisée pour la croissance et le développement des végétaux, et une fraction moindre intervient directement dans les réactions biochimiques, notamment photosynthétiques (Hopkins, 1995). Au final, la fraction d'hydrogène ingéré convertie en matière organique est de 0,06 % à 0,3 % en moyenne en 20 minutes pour les plants en croissance (Kramer, 1969 ; Murphy, 1990).

- **Processus de production de neOBT à partir d'eau tritiée**

Il est important de rappeler que le **OBT** est constitué d'une fraction à cinétique d'échange rapide (**eOBT**) et d'une fraction à cinétique d'échange lente (**neOBT**) (cf. § Le tritium dans la matière organique, p. 44). Les processus et les cinétiques d'incorporation du tritium à la matière organique diffèrent selon la fraction de **OBT** considérée. La fraction **eOBT** résulte d'un équilibre rapide suite aux échanges isotopiques avec **TFWT** (Guenot et Belot, 1984 ; Diabaté et Strack, 1993 ; Belot *et al.*, 1996). La fraction **neOBT** est issue de mécanismes photosynthétiques et non-photosynthétiques. Le tritium présent dans la fraction **neOBT** est supposé lié à la molécule jusqu'à l'étape de dégradation moléculaire (Diabaté et Strack, 1993).

Mécanismes photosynthétiques

La **photosynthèse** permet la production de glucides, dont 80-85 % de **cellulose** et d'**amidon**, 10-15 % de **sucrose** et 5 % de glucose (Kim *et al.*, 2002). La **photosynthèse** - dont l'équation bilan est présentée Équation I.11 - est donc la principale voie d'incorporation du tritium au sein de structures moléculaires organiques (Belot, 1986 ; IRSN, 2009a ; ASN, 2010).

Les premières études réalisées sur la formation diurne et nocturne de **OBT** ont été réalisées par Moses et Calvin (1959), à partir d'une algue (*Chlorella Pyrenoidosa*) comme matériel végétal.

L'espèce *Chlorella* algae est exposée à de l'eau tritiée (HTO) présente dans la solution nutritive pendant 3 minutes, sous des conditions de lumière ou d'obscurité. Il découle de cette expérience que le tritium s'incorpore à la matière organique végétale, avec une cinétique diurne 3 fois plus importante qu'à l'obscurité. Dans la lignée de leur travaux, de nombreuses études utilisant comme traceurs radioactifs l'eau tritiée et le dioxyde de carbone marqué sont menées pour mieux comprendre les mécanismes photosynthétiques (Biddulph et Cory, 1957 ; Gage et Aronoff, 1960 ; Aronoff et Choi, 1963 ; Choi et Aronoff, 1966 ; Trip et Gorham, 1968a, b ; Thompson et Nelson, 1971 ; Peterson, 1982 ; Guenot et Belot, 1984).

Ces études confirment que la photosynthèse est le processus majeur d'assimilation du carbone et de l'hydrogène organique en position non échangeable. Ainsi, les atomes d'hydrogène et de tritium sont incorporés aux molécules organiques via diverses liaisons chimiques telles que : -C-H ou -C-T, -S-H ou -S-T, -N-H ou -N-T, -P-H ou -P-T (§ Intégration à la matière organique végétale, p. 82).

Mécanismes non-photosynthétiques

Le tissu végétal est dynamique, il évolue continuellement (Diabaté et Strack, 1997). Le tritium peut également être incorporé à la matière organique végétale suivant des mécanismes indépendants de la lumière, comme la respiration cellulaire et le cycle de Calvin, décrits précédemment (§ Intégration à la matière organique végétale, p. 82) (Moses et Calvin, 1959 ; Guenot et Belot, 1984 ; Belot, 1986 ; IAEA, 2007). Selon les études expérimentales existantes sur le marquage au tritium hors photosynthèse (conditions nocturnes) de végétaux, le taux de formation nocturne de **OBT** est plus faible que le taux de formation diurne de **OBT** d'un facteur 3 à 5 (Moses et Calvin, 1959 ; Thompson et Nelson, 1971 ; Diabaté et Strack, 1993, 1997 ; Galeriu et al., 2008).

Néanmoins, en situation réelle, la concentration nocturne en HTO atmosphérique peut être beaucoup plus importante que la concentration diurne (Galeriu 2013 ; Kim *et al.*, 2013a), conduisant à une production accrue de **OBT**. Sous certaines conditions la production nocturne de **OBT** peut être proche de la production diurne de **OBT** (Kim *et al.*, 2013a).

Ce manque de connaissances se traduit au niveau des modèles existants via une prise en compte très variable du processus d'incorporation de **OBT** d'un modèle à un autre (Barry *et al.*, 1998 ; Galeriu *et al.*, 2013). Certains modèles de calcul de dose de tritium dans les végétaux considèrent que l'incorporation nocturne de tritium au sein de la matière organiques végétale est nulle (Murphy, 1986 ; Ota et Nagai, 2011 ; Le Dizès *et al.*, 2013), tandis que d'autres prennent en considération la production de **OBT** nocturne (Raskob, 2002). La formation nocturne de **OBT** au sein des plantes est un phénomène partiellement connu méritant plus d'études (IAEA, 2014 ; Melintescu et Galeriu, 2017).

- **Facteurs d'influence**

La production de tritium organique est directement impactée par les facteurs limitants de la **photosynthèse** (cf. paragraphe précédent) : le climat et la physiologie végétale (Indeka, 1981 ; Arai

et al., 1985; Diabate et Strack, 1993; Amano *et al.*, 1995). Plusieurs études démontrent que l'incorporation du tritium sous forme **OBT** est dépendante du stade de croissance et de développement de la plante (Choi *et al.*, 2000 ; Atarashi-Andoh *et al.*, 2002 ; Choi *et al.*, 2002 ; Choi *et al.*, 2005). Typiquement, les jeunes feuilles produisent plus de **OBT** car leur activité photosynthétique est plus importante que celle des feuilles âgées (Amano *et al.*, 1995).

- **Accumulation préférentielle du tritium dans les compartiments organiques**

Le **fractionnement isotopique** est un processus physique présent lors du changement de phase d'une molécule d'eau, impliquant une différence du ratio tritium sur protium lors d'un changement de phase. Le **fractionnement isotopique** a une double origine physique : thermodynamique (les molécules les plus lourdes se concentrent dans la phase condensée) et cinétique (une différence de masse et de symétrie des molécules induit une différence de diffusivité moléculaire) (Risi, 2009).

Au sens plus large, la discrimination isotopique est une variation de la distribution d'un **isotope** dans un environnement. La discrimination isotopique du tritium par rapport à celle du protium est insignifiante à l'échelle de l'**écosystème** (McFarlane, 1976). Cependant, la littérature indique que cette discrimination isotopique n'est plus insignifiante à l'échelle d'un organisme ou d'un sol (McFarlane, 1976), en raison de la grande différence de masse de ces deux **isotopes** d'hydrogène (Belot *et al.*, 1996 ; Diabaté et Strack, 1993).

Pour la suite de cette étude, seule la discrimination des formes tritiées au sein d'un organisme est étudiée. Elle est définie comme le rapport d'activités entre **OBT** sur **TFWT**. Les réactions chimiques de molécules tritiées se produisent à des taux inférieurs que les réactions impliquant le protium. En conséquence, moins de tritium est incorporé dans les molécules organiques que l'hydrogène. Cependant, la liaison du tritium au carbone est plus difficile à rompre que les liaisons Carbone-Protium (Diabaté et Strack, 1993 ; Boyer *et al.*, 2009). Cette contradiction de processus d'enrichissement du tritium dans la matière organique est accentuée par la disparité des valeurs existantes dans la littérature pour la discrimination des formes tritiées **TFWT** et **OBT** (Melintescu et Galeriu, 2017). Cette variabilité est présente à la fois pour les données obtenues via des expérimentations *in situ* (Hisamatsu *et al.*, 1987, 1989 ; Inoue et Iwakura, 1990 ; Amano *et al.*, 1995 ; Kotzer et Workman, 1999 ; Davis *et al.*, 2002, 2005 ; Korolevych *et al.*, 2014) et dans des expériences de laboratoire (McFarlane 1976 ; Spencer et Dunstall, 1984 ; Kim et Baumgärtner, 1994 ; Baumgärtner *et al.*, 2001 ; Boyer 2009) - avec un ratio moyen de $1,92 \pm 1,42$ ($k = 2$) (Jean-Baptiste *et al.*, 2011) ou $1,32 \pm 0,83$ ($k = 2$) (Le Goff *et al.*, 2014). Cette disparité entraîne une incertitude dans les résultats issus des modèles de transfert de tritium qui utilisent la valeur de discrimination des formes tritiées pour estimer l'activité en **OBT** formé à partir de **TFWT**. Dans la littérature où l'équilibre entre **HTO** et **TFWT** est atteint, les rapports **OBT / TFWT** sont très variables. Les résultats mesurés varient de 0,55 à 2,88 selon la source (Tableau I.7).

Des études sur le rapport **OBT / TFWT** mettent en évidence l'importance des processus éco-physiologiques dans le calcul précis de l'activité en **OBT** des feuilles (Strack *et al.*, 1995 ; Ota

et al., 2011 ; Melintescu et Galeriu, 2017). Actuellement, seule la matière carbonée produite dans les feuilles et qui est transférée aux graines à la récolte (Translocation Leaf Index, Diabaté et Strack, 1997) est présente dans les modèles existants. Cette absence de considération dans les études précitées des transferts entre tous les organes témoigne qu'il n'est pas possible de développer un modèle rigoureux de formation de **OBT** (Strack *et al.*, 1995 ; Boyer *et al.*, 2009a, Melintescu et Galeriu, 2017).

Tableau I.7 : Variabilité des ratios d'activités **OBT/TFWT** issus d'expérimentations présents dans la littérature.

Famille	Espèce végétale	Organe	OBT/TFWT	Référence
Asteraceae	Lettuce	-	2,88	Boyer, 2009
	Lettuce	-	0,93	Davis <i>et al.</i> , 2002-2005
Brassicaceae	Radish	Root	0,67	
Fabaceae (Leguminosae)	Alfalfa	Leaves et stems	0,99	McFarlane, 1976
-	Grasses	-	0,73	Davis <i>et al.</i> , 2002-2005
Poaceae	Corn	-	0,60	Kim et Baumgärtner, 1994
	Barley	-	0,55	
	Hulled rice	-	1,27	
	Hulled rice	-	1,14	Inoue et Iwakura, 1990
	Paddy rice	-	0,71	Hisamatsu <i>et al.</i> , 1987-1989
Solanaceae	Tomato	Leaf (mature)	0,91	Spencer et Dunstall, 1984
	Tomato	Green fruit	2,04	
	Tomato	Leaf (young)	1,01	

- **Impact dosimétrique pour l'Homme**

L'impact dosimétrique du tritium organique intégré dans les plantes pour la consommation humaine ne doit pas être négligé en raison de son temps de résidence biologique plus long que l'eau tritiée

(Amano *et al.*, 1995). Boyer (2009) rappelle que les coefficients de dose efficaces pour un adulte sont de $4,2 \cdot 10^{-11}$ Sv.Bq⁻¹ en cas d'ingestion de tritium organique et de $1,8 \cdot 10^{-11}$ Sv.Bq⁻¹ pour l'absorption d'eau tritiée (ICRP, 1993).

Toutefois, les doses impliquées par l'ingestion de **OBT** restent discutables (Melintescu *et al.*, 2007 ; Galeriu *et al.*, 2008 ; Boyer, 2009). Les coefficients de dose efficaces pour l'ingestion de **OBT** ont été calculés sans prendre en compte la variabilité de la **demi-vie** de chaque type de molécule organique.

Le tritium incorporé à la fraction organique ne représente qu'une très petite fraction de la masse fraîche des végétaux (Diabate et Strack, 1993 ; Murphy, 1993). Cependant la contribution de **OBT** à la dose reçue serait de l'ordre de 20 à 30 % en cas d'exposition chronique et d'environ 60 % en cas d'exposition accidentelle (Guétat *et al.*, 2008).

I.3 Modélisation des transferts de tritium aux végétaux

I.3.1 Modélisation existante du transfert de tritium dans les végétaux et de son intégration dans la matière organique

Par définition, un modèle numérique correspond à la description d'un phénomène à partir de fonctions mathématiques. Dans le cadre du tritium, il est compliqué de décrire l'ensemble des phénomènes à l'interface air-sol- plante dans la mesure où cet élément **ubiquiste** est impliqué dans de nombreux mécanismes (cycle de l'eau, cycle du carbone). Les modèles existants utilisent des hypothèses simplificatrices, variables selon l'objectif et le contexte d'application d'un modèle, typiquement le type d'exposition (chronique ou accidentelle).

I.3.1.1 Généralité des modèles existants

- **Objectifs des modèles existants**

Le comportement de rejets tritiés dans l'environnement est complexe à prédire en raison de l'implication de l'hydrogène et ses **isotopes** dans de nombreuses réactions biochimiques, de la grande mobilité de cet élément et enfin de ses changements de formes chimiques. Une estimation de l'impact de rejets radioactifs dans l'environnement par une installation nucléaire est cependant indispensable pour en évaluer la sûreté pour la population. La modélisation des transferts de ces rejets et l'assimilation par les organismes biologiques est le moyen le plus rapide pour estimer l'impact d'une installation nucléaire sur son environnement.

- **Points communs des modèles existants**

La présente comparaison des différents modèles s'appuie sur plusieurs modèles existants - tels que TOCATTA- χ (Le Dizès *et al.*, 2017), SOLVEG (Ota et Nagai, 2011) et ECOREA (Keum *et al.*, 2006) - simulant les transferts de tritium au sein des végétaux et leur incorporation à la matière

organique (IAEA, 2014). Ces modèles s'appuient sur des expérimentations et présentent des similitudes dans leur conception.

- **Processus**

Les modèles de transferts de tritium d'origines atmosphérique et pédologique considèrent certains mécanismes éco-physiologiques communs comme la **photosynthèse**, la respiration, l'assimilation racinaire et la transpiration végétale.

- **Compartiments**

La plupart des modèles d'assimilation du tritium aux plantes considèrent à minima trois compartiments environnementaux : l'air, le sol et la végétation (IAEA, 2014). Selon les modèles, ces compartiments sont étudiés plus ou moins finement en termes de processus, avec des degrés de précision variable. Par exemple le sol peut être divisé en plusieurs couches plus ou moins épaisse (Ota *et al.*, 2007) ou considéré comme un seul **horizon** racinaire (Le Dizès *et al.*, 2017).

- **Comportement du tritium au sein des végétaux**

Généralement dans les modèles existants, le tritium organiquement lié à cinétique d'échange rapide (**eOBT**) est supposé être en équilibre avec l'eau tissulaire des plantes (**TFWT**). L'activité du tritium organique non échangeable (**neOBT**) varie quant à lui par production de matière organique, donc l'assimilation végétale du tritium dans **neOBT** est liée à la croissance des plantes.

• **Bilan des modèles existants**

Sur la base de groupes de réflexion internationaux tels que les programmes BIOMOVS (BIOsphere MOdel Validation Study) (Barry *et al.*, 1999), VAMP (Validation of Model Predictions), BIOMASS (BIOsphere Modeling and ASSESSment) (IAEA, 2003), EMRAS (Environmental Modeling for Radiation Safety) (Davis *et al.*, 2005 ; IAEA, 2008) et MODARIA I (Le Dizès *et al.*, 2017 ; Ota *et al.*, 2017), les points forts et les limites des modèles existants ont été mis en exergue. En comparaison avec des données expérimentales, les sorties des modèles sont plus satisfaisantes dans des situations d'équilibre que pour des conditions dynamiques. Ce constat peut s'expliquer par des données variables à court terme (facteurs environnementaux, activité en tritium dans les différents compartiments) impactant fortement les expositions accidentelles, mais moins les expositions chroniques du fait d'un lissage sur une longue période de la variabilité de ces données (Boyer, 2009). De plus il n'existe pas dans la littérature de jeu de données cohérents issus de l'observation sur la base d'un pas de temps horaire (ou infra-horaires) pour les concentrations atmosphériques.

1.3.1.2 Modèle mécaniste et complexe

Le modèle complexe SOLVEG-II - développé par l'Agence Japonaise de l'Energie Atomique (JAEA) - considère les processus de transport et d'échange de la chaleur, l'eau et le CO₂ dans un système

atmosphère-végétation-sol divisé en multicouches atmosphère-végétation-sol (Yamazawa, 2001 ; Ota et Nagai, 2011). Les processus considérés sont schématisés Figure I.17. Dans cette section, seuls les composants du modèle calculant les transferts de tritium sont décrits.

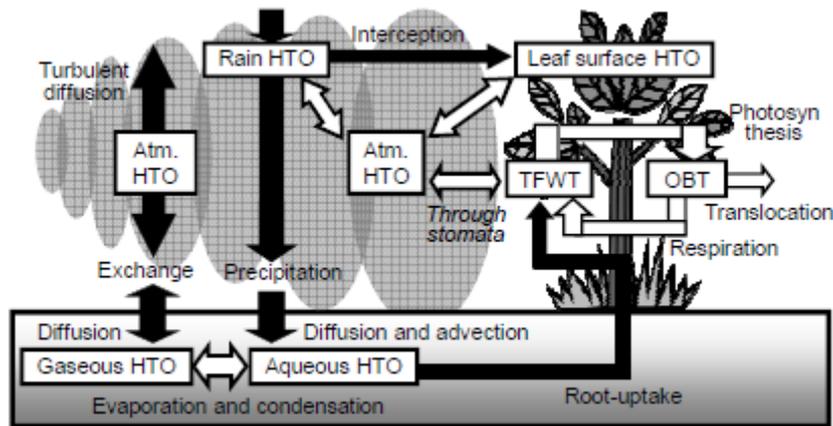


Figure I.17 : Echanges (flèches blanches) et transferts (flèches noires) terrestres de tritium considérés dans le modèle SOLVEG-II (issu de Ota et Nagai, 2011).

- **Atmosphère**

La concentration en HTO χ_a (Bq.m^{-3}) dans l'atmosphère au-dessus du couvert végétal est calculée par une équation de diffusion (Équation I.16), comme suit (Ota et Nagai, 2011) :

$$\frac{\delta\chi_a}{\delta t} = \frac{\delta}{\delta z} K \frac{\delta\chi_a}{\delta z} + \varphi \quad \text{Équation I.16}$$

Où t (s) est le temps, z (m) est la coordonnée verticale, φ est un terme d'échange de HTO entre l'air du couvert végétal et l'air de la feuille ($\text{Bq.m}^{-3}.\text{s}^{-1}$) et K ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$) est la diffusivité turbulente verticale. Le terme χ_a (Bq.m^{-3}) exprime les échanges stomatiques entre l'air du couvert végétal et la feuille.

- **Sol**

Le modèle sol de SOLVEG-II considère un terme de diffusion, d'advection et d'évaporation/condensation pour HTO aqueux et gazeux dans le sol (Yamazawa, 2001). L'équation pour l'HTO aqueux est exprimée comme suit (Ota et Nagai, 2011) :

$$\frac{\delta\eta_s\chi_{sw}}{\delta t} = -\frac{1}{\rho_w} \frac{\delta E_w\chi_{sw}}{\delta z} + \frac{\delta}{\delta z} \left(D_{sw} \frac{\delta\chi_{sw}}{\delta z} \right) - \hat{e}_b - \hat{e}_r \quad \text{Équation I.17}$$

Où η_s est la teneur en eau volumique de l'eau du sol ($\text{m}^3.\text{m}^{-3}$), χ_{sw} est la concentration volumique du HTO dans l'eau du sol (Bq.m^{-3}), ρ_w est la masse volumique de l'eau (kg.m^{-3}), E_w est le flux d'eau

liquide vertical dans le sol ($\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$), z est la coordonnée verticale (m), D_{sw} est le coefficient de diffusivité efficace de HTO avec l'eau du sol ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$), \hat{e}_b est l'évaporation/condensation de HTO du sol ($\text{Bq.m}^{-3}.\text{s}^{-1}$), \hat{e}_r est l'assimilation racinaire de HTO ($\text{Bq.m}^{-3}.\text{s}^{-1}$).

Le premier et le second terme du côté droit de l'équation expriment l'advection et la diffusion de HTO, et les deux derniers termes expriment l'évaporation/condensation et l'absorption racinaire en tant que puits ou sources. La teneur en eau du sol η_s et le flux d'eau vertical E_w sont calculés dans le modèle de sol de SOLVEG-II, pour lequel l'équation pour le transport d'eau liquide est de type Richard (Ota et Nagai, 2011). L'évaporation/condensation dans l'Équation I.18 est exprimé comme suit :

$$\hat{e}_b = \frac{1}{r_b} \left(\chi_{sw} q_{sat}(T_s) \frac{\rho}{\rho_w} - \chi_{sa} \right) \quad \text{Équation I.18}$$

Où r_b est la résistance à l'évaporation (s.m^{-1}) déterminée empiriquement, $q_{sat}(T_s)$ est l'humidité spécifique du sol à la température du sol (kg.kg^{-1}), ρ est la densité de l'air (kg.m^{-3}). L'assimilation racinaire est exprimée par :

$$\hat{e}_r = \frac{\chi_{sw}}{\rho_w} R_r \int_{z_{cb}}^{z_{ct}} E_{tra}(z) dz \quad \text{Équation I.19}$$

Où le flux d'eau transpiré E_{tra} ($\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$) est calculé dans le sous-modèle CO_2 de la végétation (Ota *et al.*, 2011), R_r est la distribution verticale des racines (fraction comprise entre 0 et 1), z_{ct} et z_{cb} sont les hauteurs en haut et bas (respectivement) du couvert végétal (m). Le transfert de la vapeur HTO dans le sol est exprimé par une équation de diffusion et est lié au transfert de HTO via \hat{e}_b (Équation I.20) comme suit :

$$\frac{\delta((\eta_{sat} - \eta_s)\chi_{sa})}{\delta t} = \frac{\delta}{\delta z} \left(D_{sa} \frac{\delta \chi_{sa}}{\delta z} \right) + \hat{e}_b \quad \text{Équation I.20}$$

Où le coefficient de diffusivité efficace D_{sa} ($\text{m}^2.\text{s}^{-1}$) pour la vapeur HTO est calculé en fonction de η_s et η_{sat} (Yamazawa, 2001). η_{sat} correspond à la teneur en eau volumique du sol à saturation ($\text{m}^3.\text{m}^{-3}$).

- **Plante**

Le modèle de végétation (Ota et Nagai, 2011) calcule l'activité de l'eau cellulaire tritiée (TFWT) à l'aide d'un bilan en considérant les échanges de HTO et la formation de OBT, comme suit :

$$\frac{\delta \eta_v \chi_v}{\delta t} = E_{stom} + E_{root} + E_{phot} + E_{res} \quad \text{Équation I.21}$$

Où η_v ($\text{m}^3.\text{m}^{-2}$) est le volume de l'eau cellulaire de la feuille par unité de surface foliaire et χ_v (Bq.m^{-3}) est la concentration de TFWT dans l'eau cellulaire de la feuille. Les termes E_{stom} , E_{root} , E_{phot} et E_{res} ($\text{Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$) expriment respectivement les flux HTO obtenus par l'échange d'HTO entre l'air du

couvert végétal et l'eau cellulaire des feuilles, par assimilation racinaire, par assimilation photosynthétique du **TFWT** et enfin par la production de **TFWT** via la respiration de la plante.

L'échange d'**HTO** entre l'air du couvert végétal et l'eau cellulaire des feuilles s'exprime par une approche de résistance, comme suit :

$$E_{\text{stom}} = \rho \frac{1}{r_a + r_s} \left(\frac{\chi_a}{\rho} - q_{\text{sat}}(T_c) \frac{\chi_v}{\rho_w} \right) \quad \text{Équation I.22}$$

Où χ_v est la concentration en **TFWT** dans l'eau cellulaire des feuilles (Bq.m^{-3}), r_a (s.m^{-1}) est la résistance de la couche limite de la feuille, r_s (s.m^{-1}) est la résistance stomatique, et $q_{\text{sat}}(T_c)$ est l'humidité spécifique (kg.kg^{-1}) à la saturation à la température de la feuille T_c ($^{\circ}\text{C}$). La résistance de la couche limite de la feuille est supposée être dépendante des caractéristiques aérodynamiques des feuilles et de la vitesse du vent dans le couvert végétal. La résistance stomatique r_s est calculée en fonction de l'assimilation nette du CO_2 (Ota et Nagai, 2011), ce dernier étant calculé à partir le modèle d'assimilation de CO_2 photosynthétique de Farquhar (Farquhar *et al.*, 1980).

Le flux E_{root} pour l'assimilation racinaire est calculé à partir du terme \hat{e}_r décrit au niveau de l'Équation I.19 :

$$E_{\text{root}} = \int_{z_{\text{rb}}}^{z_{\text{rt}}} \hat{e}_r R_{\text{er}}(Z_s, Z) dz_s \quad \text{Équation I.23}$$

Avec z_{rt} et z_{rb} la profondeur en haut et bas (respectivement) de chaque **horizon** racinaire, $R_{\text{er}}(Z_s, Z)$ la fraction d'eau du sol à la profondeur de sol Z_s (m) qui transpire au niveau des feuilles à la hauteur Z (m).

Selon l'Équation I.12, il est supposé que 1 mole de CO_2 réagit avec 2 moles de H_2O via la **photosynthèse** (Équation I.11). L'assimilation photosynthétique de **TFWT** notée E_{phot} est calculée par :

$$E_{\text{phot}} = - \frac{\chi_v}{\rho_w} m_w f_{\text{An}} A_n \quad \text{Équation I.24}$$

Où $m_w = 0,018 \text{ kg.mol}^{-1}$ est la masse molaire de l'eau, $f_{\text{An}} = 0,78$ est le facteur de discrimination isotopique entre **HTO** et H_2O dans les réactions de **photosynthèse** (Diabaté et Strack, 1993), et A_n ($\text{molCO}_2.\text{m}^{-2}.\text{s}^{-1}$) est le taux d'assimilation photosynthétique du CO_2 par unité de surface calculée par le modèle de Farquhar, présent dans le modèle végétation de SOLVEG-II (Ota et Nagai, 2011).

Dans les réactions de respiration, la décomposition de 1/6 mole de glucose ($\text{C}_6\text{H}_{12}\text{O}_6$) donne 1 mole de H_2O . Par conséquent, la production de **TFWT**, E_{res} , associée à la respiration est modélisée comme suit :

$$E_{res} = S_{int} \frac{1}{6} m_g R_d \quad \text{Équation I.25}$$

Où S_{int} ($Bq.kg^{-1}$) est l'activité **OBT** contenue dans une masse unitaire de matière sèche dans un pool de glucides intermédiaires, m_g est le poids molaire du glucose ($0,18 \text{ kg.mol}^{-1}$) et R_d ($\text{mol}_{CO_2} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) est le taux de respiration par unité de surface foliaire calculé par le modèle de végétation.

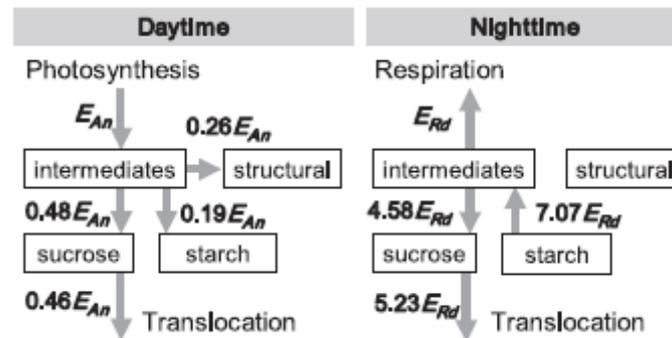


Figure I.18 : Modèle d'allocation et de translocation de carbohydrates utilisé dans le modèle SOLVEG-II. Les coefficients multiplicatifs des flux de carbohydrate E_{An} et E_{Rd} sont issus de Fondy et Geiger (1982) (d'après Ota et Nagai, 2011).

Afin de calculer la **translocation** du tritium assimilé, la dynamique de l'**OBT** foliaire suit un modèle de compartiment glucidique (Figure I.18), qui repose sur les observations des flux de glucides au sein d'une feuille source (Fondy et Geiger, 1982). Le modèle comporte quatre pools (Figure I.18) : intermédiaire, **amidon**, **sucrose**, structurel (Ota et Nagai, 2011). Les flux de glucides ($\text{kg.m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) entrent et sortent du pool intermédiaire. Ils sont calculés à partir de la **photosynthèse** et de la respiration comme suit :

$$E_{An} = \frac{1}{6} m_g A_n \quad \text{Équation I.26}$$

$$E_{Rd} = \frac{1}{6} m_g R_d \quad \text{Équation I.27}$$

Avec E_{An} le flux de carbohydrate entrant dans le compartiment intermédiaire (période diurne, en $\text{kg.m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$), E_{Rd} le flux de carbohydrate sortant du compartiment intermédiaire (période nocturne, en $\text{kg.m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$). Ici, le facteur $1/6$ correspond au rapport stœchiométrique des molécules de CO_2 et $C_6H_{12}O_6$ impliquées dans la **photosynthèse** et les réactions respiratoires (Ota et Nagai, 2011).

Le modèle SOLVEG-II suppose qu'une feuille est constituée d'eau cellulaire et de matière sèche, dont la matière sèche n'est constituée que de $C_6H_{12}O_6$ (Ota et Nagai, 2011). L'activité de **OBT** Q_{OBT}

(Bq.kg⁻¹) par masse de carbohydrate foliaire est calculée par la somme des activités de **OBT** et de carbohydrate dans les 4 compartiments, pondérée par leur masse respective :

$$Q_{\text{OBT}} = \frac{\sum S_i w_i}{\sum w_i} = \frac{S_{\text{int}} w_{\text{int}} + S_{\text{suc}} w_{\text{suc}} + S_{\text{sta}} w_{\text{sta}} + S_{\text{str}} w_{\text{str}}}{w_{\text{int}} + w_{\text{suc}} + w_{\text{sta}} + w_{\text{str}}} \quad \text{Équation I.28}$$

Où S_{int} , S_{sta} , S_{suc} , S_{str} sont l'activité massique de **OBT** dans le pool intermédiaire, l'**amidon**, le saccharose et la structure, respectivement (Bq.kg⁻¹). w_{int} , w_{sta} , w_{suc} , w_{str} sont les masses de carbohydrate dans le pool intermédiaire, **amidon**, saccharose et structurel, respectivement (kg.m⁻²).

Bien qu'un modèle aussi complexe ne soit pas un outil opérationnel, il s'agit d'un outil de recherche adapté pour comprendre le comportement global de tritium dans un environnement réel. Il peut également être utilisé pour clarifier le rôle de chaque processus et paramètre pour définir une stratégie de simplification de modèle sans perte significative de pouvoir prédictif (EMARS/IAEA).

1.3.2 **Projet VATO : de l'expérimentation à la modélisation**

1.3.2.1 Contexte

- **La plateforme de simulation SYMBIOSE**

Le projet SYMBIOSE, cofinancé par l'IRSN et EDF, est une plateforme de simulation du transfert d'un large éventail de **radionucléides** dans la biosphère et de calcul de l'impact dosimétrique sur l'homme. Cette plateforme modélise l'évolution spatio-temporelle du comportement de **radionucléides** au sein des principaux systèmes constitutifs d'un environnement continental. Les doses et débits de dose induits pour les populations humaines sont évalués à partir de rejets par voie atmosphérique, fluviale ou marine (Gonze *et al.*, 2011 ; IRSN, web).

Cet outil a pour vocation d'accompagner les études d'évaluation du risque radiologique pour une large gamme de problématiques : fonctionnement normal ou accidentel des installations nucléaires, démantèlement des installations, évaluation de sûreté des installations de stockage de déchets (IRSN, web).

- **Le projet VATO**

Afin d'enrichir la plateforme SYMBIOSE, les transferts de tritium dans les **écosystèmes** prairiaux sont étudiés dans le cadre du projet VATO, également cofinancé par l'IRSN et EDF. Le projet VATO - qui signifie VALidation de TOCATTa - a pour principal objectif de développer un modèle opérationnel de transfert de tritium dans un écosystème prairial : ce modèle conceptuel et mathématique s'appelle TOCATTa- χ (Le Dizès *et al.*, 2017), issu de TOCATTa (Le Dizès *et al.*, 2013) et implémenté dans SYMBIOSE.

Au cours de l'étude TOCATTA, il est apparu nécessaire de développer un modèle de transfert du carbone 14 et du tritium dans l'environnement terrestre sur la base d'une échelle infra-journalière pour prendre en compte des rejets fortement variables au cours du temps, et basé sur les principaux processus éco-physiologiques de l'écosystème prairial. Ainsi en complément du modèle TOCATTA, initialement développé par l'IRSN à l'échelle journalière, un modèle TOCATTA- χ a été développé pour estimer à pas de temps horaire les transferts de tritium et de carbone 14 au sein d'écosystèmes terrestres suite à des rejets atmosphériques continus ou ponctuels. Le projet VATO a permis de valider ce modèle en produisant un jeu de données cohérents issus de l'observation du devenir du carbone 14 et du tritium sous différentes formes dans les principaux compartiments de l'écosystème prairial - atmosphère, sol, herbe, ce dernier étant le premier maillon essentiel de la chaîne alimentaire humaine.

L'aspect opérationnel de TOCATTA- χ s'appuie sur un compromis entre :

- une puissance explicative et une précision prédictive dans diverses conditions expérimentales, telles que caractéristiques du modèle SOLVEG-II (Ota et Nagai, 2011) ;
- une facilité d'utilisation liée à une minimisation du nombre de compartiments et de paramètres d'entrées requis (Le Dizès *et al.*, 2017).

Dans le cadre du projet VATO, le modèle TOCATTA- χ a été confronté à un jeu de données issu de mesures *in situ* pendant 2 ans, de juin 2013 à juin 2015 (Le Dizès *et al.*, 2017). Ces mesures de terrain de tritium proviennent de la concentration d'activité ^3H dans l'air enregistrée par l'IRSN, les eaux souterraines et l'herbe, ainsi que les paramètres météorologiques, sur un terrain situé à proximité de l'usine de retraitement nucléaire AREVA NC La Hague (Le Dizès *et al.*, 2017 ; Maro *et al.*, 2017), comme cela a été fait dans le passé pour l'évaluation du transfert de ^{14}C dans l'herbe (Le Dizès *et al.*, 2012 ; Aulagnier *et al.*, 2013). L'objectif de cette parcelle expérimentale est d'améliorer le modèle et de poursuivre sa validation.

1.3.2.2 Description de la parcelle expérimentale

Afin de valider le modèle développé, il est nécessaire de procéder à une confrontation des sorties de ce modèle à des mesures expérimentales. Cependant, les expériences mettant en jeu le tritium sont difficiles à réaliser, notamment en ce qui concerne les expositions à long terme, impliquant des jeux de données expérimentales limitées concernant le tritium (Boyer, 2009).

Le projet VATO est constitué d'une parcelle expérimentale - appelée plateforme technique de l'IRSN à la Hague - située à proximité d'une installation nucléaire. Ce dispositif expérimental permet le suivi et l'acquisition à long terme des mesures de tritium dans un **écosystème** prairial soumis à des apports atmosphériques variables dans le temps. L'obtention des différentes concentrations en tritium mesurées dans les différents compartiments prairiaux au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague sont explicitées dans le chapitre suivant (cf. § III.1.5).

- **Localisation de la plateforme expérimentale**

L'usine de retraitement de combustible irradié AREVA NC 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 (Figure I.19). L'usine de retraitement libère du ^3H dans l'environnement à travers les deux principales piles de décharge des usines UP2-800 et UP3 (principaux émissaires) et à travers certains ateliers (émissions secondaires). Afin de déterminer les formes physico-chimiques de ^3H émises par les deux piles de décharge principales, six campagnes d'échantillonnage ont été menées dans un rayon de 1900 m de l'usine.

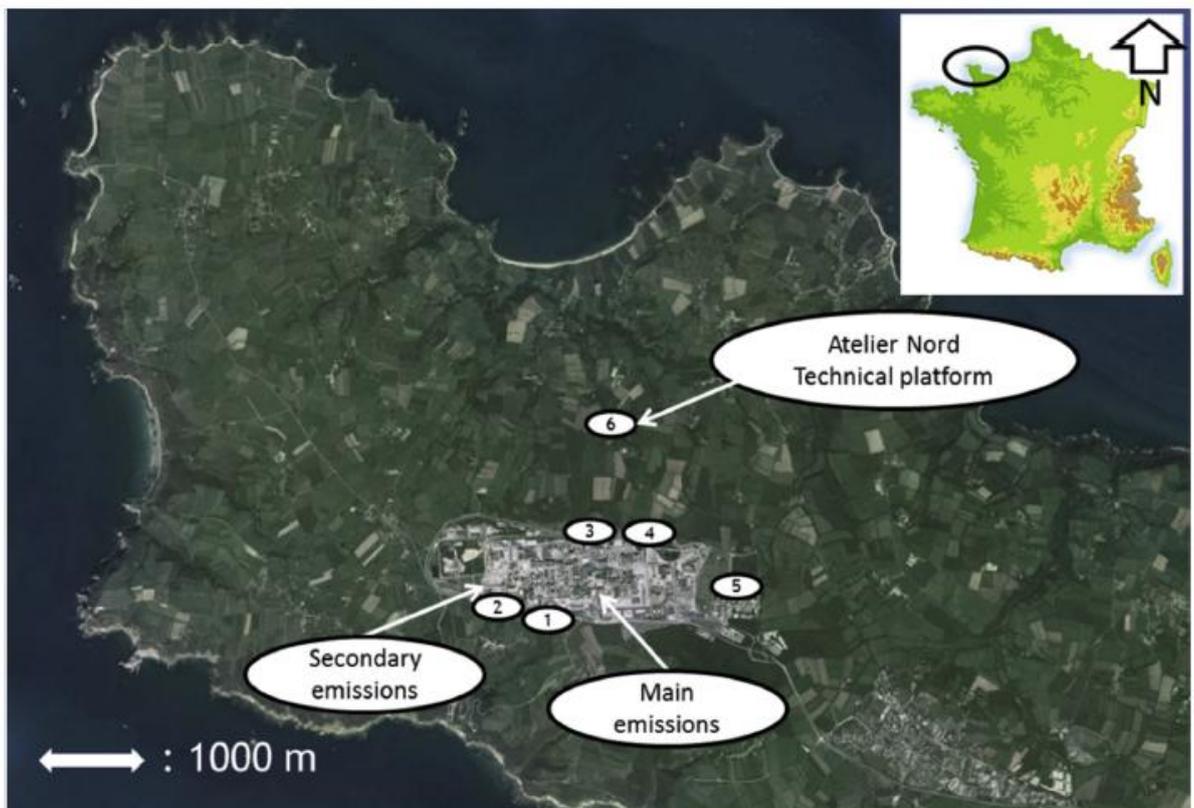


Figure I.19 : Localisation de la plateforme technique et des émissions principales et secondaires de l'usine AREVA NC La Hague, issu de Maro *et al.*, 2017. Les emplacements pour les mesures de la spéciation de ^3H dans l'air sont également affichés (les chiffres correspondant aux références dans le Tableau I.8).

Les concentrations de ^3H dans l'air et les eaux de pluie, ainsi que dans le ray-grass ont été mesurées sur la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague. Cette plateforme technique (Plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague, Lat. $49^{\circ}41'42''\text{N}$, Long. $1^{\circ}52'24''\text{W}$) se situe sous les vents dominants du sud-ouest et est donc fréquemment exposée aux émissions atmosphériques de l'usine de retraitement du combustible irradié AREVA NC La Hague (Figure I.20). Les émissaires principaux sont situés à une distance de 1900 m de la plateforme technique. Les conditions météorologiques sont mesurées sur cette plateforme technique au moyen d'une station Watchdog 2900 ET.

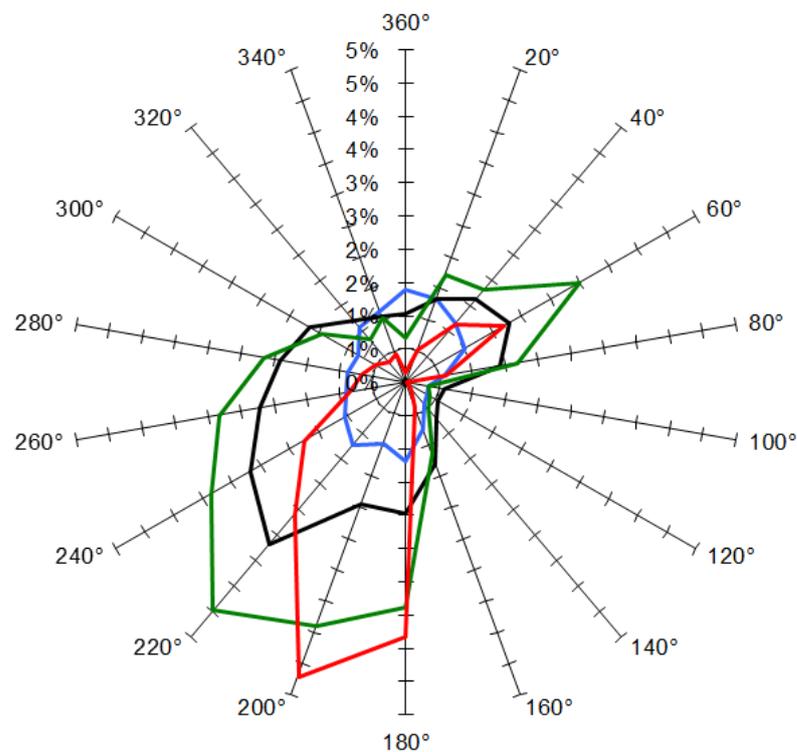


Figure I.20 : Rose des vents enregistrés au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague, de juin 2013 à août 2016. Pour le site de la plateforme expérimentale, la fréquence des directions d'origine du vent est reportée sur une rose des vents à 32 directions. La vitesse du vent est représentée par un code couleur : bleu pour les vitesses de vent inférieures à 3 m.s^{-1} , noir pour les vitesses de vent comprises entre 3 et 5 m.s^{-1} , vert pour les vitesses de vent comprises entre 5 et 8 m.s^{-1} , rouge pour les vitesses de vent supérieures à 8 m.s^{-1} .

- **Formes tritiées rejetées**

Au cours de campagnes de détection des formes tritiées rejetés dans l’atmosphère par l’usine AREVA NC-La Hague, HTO et HT ont été les seules formes physico-chimiques détectées au cours des campagnes menées par Maro *et al.*, 2017. La forme HT est prédominante (83 %) par rapport à la forme HTO. Les concentrations d’HTO et de HT variaient de 0,37 à 0,72 Bq.m⁻³ et de 1,2 à 4,1 Bq.m⁻³, respectivement (Tableau I.8).

Tableau I.8 : Concentrations en ³H mesurées en 2013 autour du site de La Hague, d’après Maro *et al.*, 2017. Le numéro d’identification représente le lieu de prélèvement, indiqué Figure I.19.

N° Identification (Figure I.19)	Date de prélèvement	T _{aérosol} (Bq.m ⁻³)	HTO (Bq.m ⁻³)	HT (Bq.m ⁻³)	T _{organique} (Bq.m ⁻³)
1	22/02/2013 10:20	<0,02	0,46 ± 0,01	1,2 ± 0,3	<0,4
2	22/02/2013 11:50	<0,02	0,37 ± 0,01	2,8 ± 0,5	<0,5
3	13/06/2016 10:15	<0,02	0,46 ± 0,02	2,0 ± 0,4	<0,4
4	13/06/2016 12:30	<0,02	0,48 ± 0,02	2,5 ± 0,5	<0,6
5	27/06/2013 14:27	<0,02	0,72 ± 0,02	4,1 ± 0,6	<0,9
6	10/12/2013 11:50	<0,02	0,40 ± 0,01	2,1 ± 0,4	<0,6
Moyenne		<0,02	0,50	2,5	<0,6

1.3.2.3 Le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré}}_{\text{thèse}}$

- **Description du modèle**

TOCATTA- $\chi_{\text{pré}}_{\text{thèse}}$ est un modèle dynamique à compartiment développé à l’IRSN en collaboration avec EDF pour l’herbe entretenue ou laissée en friche. Le modèle est utilisé dans la plateforme de modélisation SYMBIOSE pour simuler le transfert ³H (et ¹⁴C) dans les **écosystèmes** prairiaux exposés

aux émissions atmosphériques de ^3H (et ^{14}C) provenant d'installations nucléaires opérant dans des conditions normales ou accidentelles. Concernant le tritium, le modèle est testé par comparaison avec un ensemble étendu de mesures sur un terrain - couvrant la période de 2013 à 2017 - spécialement conçu à cet effet dans l'étude VATO (voir § Le projet VATO, p. 92).

- **Caractéristiques et hypothèses majeurs**

Le modèle a déjà été développé et testé sur une base horaire pour le transfert au pâturage du radiocarbone ^{14}C (Aulagnier *et al.*, 2012, 2013) et est en cours de développement pour le tritium, en tenant compte des variations aiguës des rejets de ^3H et de la météorologie. Le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré_thèse}}$ présente les principales caractéristiques et hypothèses suivantes :

- le modèle est piloté par des concentrations horaires de vapeur d'eau tritiée atmosphérique (HTO) et des données de saisie horaire pour le rayonnement, la température de l'air, l'humidité relative, la vitesse du vent et les précipitations ;
- au cours d'une période de temps infra-quotidienne, la croissance des parties aériennes et racinaires des plantes est calculée en relation avec les flux de carbone et d'azote et les densités de biomasse selon une version simplifiée du modèle éco-physiologique PASIM (Riedo *et al.*, 1998) comme décrit par Aulagnier *et al.* (2013) et adapté au modèle de radiocarbone ;
- la **photosynthèse** des feuilles est dérivée de l'approche PlantMod (Johnson, 2010), alors que l'indice de surface foliaire (LAI) et le schéma de rayonnement ont été estimés d'une manière simplifiée (Aulagnier *et al.*, 2012). Une approche physiologique plus fine est utilisée pour intégrer le LAI et les résistances dans les calculs de la vitesse d'échange aux interfaces feuille / air et sol / air.

- **Modèle conceptuel**

La modélisation concernant la plante dans TOCATTA- $\chi_{\text{pré_thèse}}$ considère trois compartiments : (i) le pool de substrats (sève ou matière sèche non structurale), (ii) la matière sèche structurale des parties aériennes et (iii) la matière sèche structurale racinaire (voir Tableau I.9). La matière sèche non structurale consiste par exemple en glucose, saccharose et amidon, alors que la MS structurale représente les composants structurels de la plante comme les parois cellulaires et le cytoplasme.

La tige, la gaine, le limbe et les lames ne sont pas considérées séparément dans ce modèle, seul la plante entière au-dessus du sol (c'est-à-dire la biomasse de la partie aérienne) et les parties racinaires sont considérées dans les calculs. D'autres simplifications ont été faites (Aulagnier *et al.*, 2013), comme par exemple l'âge ou le stade de développement de la plante qui ne sont pas pris en compte. L'intérieur du couvert végétal n'est divisé qu'en une seule couche, ce qui affecte à la fois le schéma de rayonnement et le calcul de la **photosynthèse** (Aulagnier *et al.*, 2013). En outre, le compartiment tritium dans le sol est considéré comme étant uniquement composé d'eau tritiée dissoute dans l'eau des pores du sol. Par conséquent, le modèle considère que l'unique couche de

sol est composée d'un unique compartiment d'eau - représenté comme **HTO** du sol (tableau 1). Cette fraction est sujette à une perte en tritium en raison de l'absorption racinaire. Auparavant au pas de temps journalier (Le Dizès *et al.*, 2013), le modèle TOCATTa tend vers une version horaire, TOCATTa- $\chi_{\text{pré_thèse}}$ (Le Dizès *et al.*, 2017) afin de reproduire au mieux les échanges rapides de tritium sous forme de TFWT au sein des végétaux.

- **Description des modules de TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$**

- **Module plante**

Ce modèle évalue l'évolution temporelle des stocks et des concentrations de **TFWT** et **OBT** dans les plantes agricoles, en réponse aux rejets atmosphériques d'**HTO** sous forme gazeuse des installations nucléaires et / ou à l'irrigation par aspersion avec de l'eau marquée en **HTO** sous forme liquide (Le Dizès *et al.*, 2013).

Données d'entrée

La donnée d'entrée principale dans TOCATTA est la concentration de vapeur d'eau tritiée (**HTO**) dans l'atmosphère de la couche de végétation. En particulier, les formes gazeuses **HT** et **CH₃T** ainsi que les processus de transport et de dispersion atmosphériques ne sont pas explicitement prises en compte. Par conséquent, les données d'entrée pour le modèle TOCATTA utilisées pour les applications opérationnelles dans la plateforme SYMBIOSE sont la concentration d'activité de **HTO** dans l'atmosphère de la végétation et / ou la concentration d'activité de **HTO** dans l'eau d'irrigation. Contrairement au transfert de carbone 14 pour lequel les voies atmosphériques et des sols contribuent au calcul de la concentration d'activité dans l'atmosphère du couvert végétal (voir Le Dizès *et al.*, 2012), cette dernière résulte uniquement de la contribution de la voie atmosphérique dans le cas du tritium. En particulier, la contribution potentielle du sol en tant que fournisseur potentiel d'**HTO** par volatilisation / diffusion à l'interface atmosphère sol / couvert végétal est supposée négligeable dans le calcul de la concentration d'activité de l'atmosphère du couvert végétal dans la version actuelle du modèle. Les données d'entrée du modèle TOCATTA sont l'activité de concentration de **HTO** dans l'atmosphère et l'activité de concentration de **HTO** dans la pluie et / ou dans l'eau d'irrigation, en fonction du temps (et de l'espace).

Formation nette de OBT

La formation nette de l'**OBT** - notée $TOBT_{P=Grass}^{NForm}(t)$ (mol.kg^{-1}) et associée essentiellement à la production photosynthétique - dans les parties de la plante est exprimée par l'équation suivante (Le Dizès *et al.*, 2017) :

$$TOBT_{P=Grass}^{NForm}(t) = \left[\frac{TC^{Photo}}{(\chi_{Shoot} + \chi_{Root})[^{12}C]_p} \cdot Weq \cdot ID_p \cdot [TFWT]_p^* \right] - TC^{loss} \quad \text{Équation 1.29}$$

Où : χ_{Shoot} et χ_{Root} ($\text{kg}_{MS} \cdot \text{m}^{-2}$) sont la densité de la biomasse sèche des parties aériennes et des racines, dépendant du temps ; $[^{12}C]_p$ ($\text{mol C.kg}^{-1}_{MS}$) est la concentration en carbone stable au sein de la matière sèche de la plante ; Weq (L.kg^{-1}_{MS}) est le facteur équivalent en eau de la fraction sèche de la plante ; $[TFWT]_p^*$ (mol.L^{-1}) est la concentration en **HTO** dans l'eau cellulaire des feuilles ; ID_p est un ratio de discrimination entre la formation de **OBT** et la formation d'hydrogène organiquement lié (**OBH**).

TC^{Photo} ($\text{molC}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) est le flux de carbone stable provenant de la photosynthèse du couvert végétal ; ce flux est dérivé du modèle de Johnson (Johnson, 2010), en fonction du flux lumineux, des concentrations de CO_2 et d' O_2 et de la température. Dans TOCATA- χ , les mêmes équations que dans PaSim ont été reprises, à l'exception de l'indice de surface foliaire (LAI) et du schéma de rayonnement simplifié (voir Aulagnier *et al.*, 2013).

TC^{loss} ($\text{mol}\cdot\text{kg}^{-1}$) correspond aux pertes de matières carbonées, calculées selon l'équation suivante (Le Dizès *et al.*, 2017) :

$$TC^{loss} = \left[\frac{(TC^{Resp} + TC^{Gro})}{(\chi_{Shoot} + \chi_{Root})[^{12}C]_p} \cdot [OBT]_p(t) \right] \quad \text{Équation I.30}$$

Où : $[OBT]_p$ ($\text{mol}\cdot\text{kg}^{-1}_{MS}$) est la concentration en **OB**T dans le compartiment sève de la plante ; TC^{Resp} et TC^{Gro} ($\text{molC}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) sont les flux de carbone stable provenant des processus de respiration et de croissance, respectivement.

Photosynthèse et croissance végétale

Les fonctions de croissance des parties structurales et racinaires sont calculées en relation avec les concentrations de carbone et d'azote dans le pool de substrats de la plante et les densités de biomasse selon une version simplifiée du modèle mécaniste PaSim dérivé du modèle Hurley Pasture (Riedo *et al.* 1998, cité par Aulagnier *et al.*, 2013). PaSim (Pasture Simulation) est un modèle biogéochimique, déterministe, mécaniste et dynamique de la production de matière sèche et du fonctionnement d'un **écosystème** prairial en termes de flux de carbone, d'azote, d'eau et d'énergie (Riedo *et al.*, 1998). Concernant l'assimilation de CO_2 par **photosynthèse** des plantes en **C3**, PaSim suit une approche basée sur les équations de Plant-Mod, le modèle développé par Johnson (2010) sur la **photosynthèse** et la respiration des plantes en réponse aux conditions environnementales. Dans le cadre d'une réaction photosynthétique à saturation lumineuse (Johnson, 2010) :

$$P_m = P_{m,ref} \cdot f_c(C) \cdot f_{P_m,TC}(T,C) \cdot f_{P_m,fp}(fp) \quad \text{Équation I.31}$$

Avec P_m le taux de **photosynthèse** foliaire à saturation lumineuse (à température optimale - 20°C pour les plantes en **C3** -, concentration en CO_2 ambiant, concentration enzymatique de référence), $P_{m,ref}$ le taux de **photosynthèse** foliaire à lumière saturante de référence, $f_c(C)$ est la fonction de réponse au CO_2 , $f_{P_m,TC}(T,C)$ est une fonction de réponse combiné au CO_2 et à la température, $f_{P_m,fp}$ est la réponse aux **enzymes** ou protéines de la plante, fp est la concentration en carbone des protéines.

Il est bien établi que la capacité photosynthétique des feuilles est influencée par les facteurs environnementaux au sein desquels les plantes sont cultivées, tels que le rayonnement, la température, la disponibilité d'azote et la concentration de CO_2 (Kull, 2002). La prise en compte de

l'acclimatation dans les modèles de calcul de **photosynthèse** à l'échelle du couvert végétal porte généralement sur l'acclimatation du potentiel photosynthétique à la lumière et sa variabilité selon la hauteur du couvert végétal (Johnson *et al.*, 2010). PlantMod suppose que la capacité photosynthétique des feuilles saturées de lumière pour les feuilles dans le couvert végétal est proportionnelle à l'atténuation de la lumière à cette position dans le couvert végétal (Charles-Edwards, 1981 cité dans Johnson *et al.*, 2010).

Les taux de **photosynthèse** brute et de maintien de la respiration de maintenance sont supposés être proportionnels à la concentration d'azote foliaire. La concentration moyenne d'azote au sein du couvert végétal a ensuite été évaluée, de telle sorte que la modélisation de la **photosynthèse** nette du couvert végétal soit maximisée pour un ensemble de conditions environnementales prescrits (Johnson *et al.*, 2010).

L'Équation I.31 dépend notamment de la vitesse de carboxylation maximale $V_{c\ max}$, décrite dans le modèle de Farquhar (Farquhar et Von Caemmerer, 1982). Ce paramètre est vérifié § III.1.1.1.

Absorption foliaire

L'échange de vapeur d'eau à travers les **stomates** est un processus de diffusion moléculaire. Par conséquent, les échanges de ^3H entre la végétation et l'atmosphère sont régis par un gradient de concentration à l'interface air-plante et ces échanges peuvent être modélisés par la relation de diffusion de Fick (Belot *et al.*, 1996). Selon la direction du flux, le dépôt ou la réémission se produit. Le flux d'eau tritiée de l'atmosphère du couvert végétal vers les cavités des **stomates** des feuilles ($THTO_{Air,P}^{Diff}$, $\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) est donc :

$$THTO_{Air,P}^{Diff} = \gamma \cdot V_{exc} \cdot \left([HTO]_{Air} - \frac{\rho_{sat}}{\beta} \cdot [TFWT]_p \right) \quad \text{Équation I.32}$$

Où : $[HTO]_{Air}$ ($\text{mol}\cdot\text{m}^{-3}$) et $[TFWT]_p$ ($\text{mol}\cdot\text{kg}^{-1}$) sont les concentrations d'HTO dans la vapeur d'eau du couvert végétal et dans l'eau de la plante, respectivement. ρ_{sat} ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$) est l'humidité de l'air saturée à la température des feuilles. Dans TOCATA- χ , la température de la végétation est approximée par la température de l'air au niveau de référence. Par conséquent, ρ_{sat} peut être calculé à partir de l'humidité relative et de l'humidité absolue au niveau de référence. V_{exc} ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) est la vitesse d'échange d'eau de l'atmosphère à la couverture végétale, formulée comme l'inverse de la somme des résistances stomatiques et de la couche limite. γ est le rapport entre la vitesse d'échange HTO et la vitesse d'échange d'eau (typiquement 0,95). β (-) est le rapport de la pression de vapeur d' H_2O et HTO (typiquement 1,1).

Assimilation racinaire

L'absorption de l'HTO par les racines des plantes est calculée selon une approche semi-mécaniste, selon laquelle l'absorption de l'HTO du sol est fonction d'échanges diffusifs, comme suit (Belot, 1996) :

$$THTO_{S,P}^{up} = V_{exs}(t) \cdot (\rho_{sat} - \rho_a) \cdot [HTO]_S \quad \text{Équation I.33}$$

Où $THTO_{S,P}^{up}$ (mol.m⁻².s⁻¹) est le flux de HTO absorbé par l'eau des pores du sol par les racines des plantes, $[HTO]_S$ (mol.L⁻¹) est la concentration de tritium dans l'eau des pores du sol, V_{exs} (m.s⁻¹) est la vitesse d'échange de la vapeur d'eau tritiée de l'atmosphère à la surface du sol - formulée comme l'inverse de la somme de la résistance de surface du couvert végétal et de la résistance aérodynamique entre le couvert et le sol -, ρ_{sat} (kg.m⁻³) est l'humidité de l'air saturée à la température de végétation, ρ_a (kg.m⁻³) est l'humidité absolue de l'air (à la hauteur de référence).

- **Module sol**

Le module « sol » de TOCATA vise à évaluer le comportement du tritium dans un sol agricole, contaminé par l'air via des rejets gazeux ou par irrigation par aspersion. Plus précisément, il évalue l'échange de vapeur d'eau tritiée à l'interface atmosphère / sol et l'évolution temporelle des stocks et des flux d'eau tritiée dans l'horizon du sol considéré.

Données d'entrée

En ce qui concerne le module « plante » de TOCATA- χ , les données d'entrée du module du sol sont l'activité du tritium dans la pluie et / ou l'eau d'irrigation par rapport au temps.

Dépôt humide au sol

Le tritium sous forme de HTO est facilement dissous dans les gouttes de pluie ou l'eau d'irrigation par aspersion et ensuite transféré vers le sol. Ce flux d'HTO atmosphérique entrant dans le sol est défini comme une fraction du flux d'entrée humide entrant dans le système solvant (par précipitation et / ou irrigation par aspersion). D'après l'hypothèse selon laquelle cette fraction correspond à une partie du dépôt humide qui n'est pas retenue par les plantes couvrant le sol, elle est estimée par l'équation suivante :

$$THTO_{Air,S}^{Win_Rain} = (1 - FT_p^{RCap}) \cdot TH3_{Air,P}^{Rain} \quad \text{Équation I.34}$$

$$THTO_{Air,S}^{Win_irr} = (1 - FT_p^{ICap}) \cdot TH3_{Air,P}^{Irr} \cdot p'_{HTO} \quad \text{Équation I.35}$$

Où : $THTO_{Air,S}^{Win_Rain}$ et $THTO_{Air,S}^{Win_irr}$ sont respectivement les flux d'eau tritiée déposée sur le sol par précipitation ou irrigation par aspersion (mol.m⁻².s⁻¹), $TH3_{Air,P}^{Rain}$ et $TH3_{Air,P}^{Irr}$ (mol m⁻².s⁻¹) sont les dépôts humides entrant dans le système sol par précipitation ou irrigation par aspersion, FT_p^{RCap} et FT_p^{ICap} (sans dimension) sont des fractions d'interception du flux de dépôt humide fourni par les précipitations et / ou l'irrigation, p'_{HTO} est la proportion de tritium dans l'eau d'irrigation sous forme d'eau tritiée.

Echanges de surface

Sur la base de l'hypothèse d'un équilibre thermodynamique entre la vapeur d'eau tritiée en contact avec le sol et l'eau liquide dans la couche supérieure du sol, le processus d'échange de HTO est dans TOCATTA- χ ($THTO_{Air,S}^{SExch}$, mol.m⁻².s⁻¹) exprimé par la formule suivante (Garland 1980) :

$$THTO_{Air,S}^{SExch} = V_{exs} \cdot \left([HTO]_{Air} - \frac{\rho_{satsurf}}{\beta} \cdot \frac{[HTO]_S}{\rho_w} \right) \quad \text{Équation I.36}$$

Où : $[HTO]_{Air}$ (mol.m⁻³) est la concentration de HTO dans l'atmosphère du couvert végétal, $[HTO]_S$ (mol.m⁻³ water) est la concentration de HTO dans la couche de sol (unique), ρ_w est la densité de l'eau liquide ($\rho_w = 1000$ kg.m⁻³). β (-) est le rapport de la pression de vapeur d'H₂O et HTO (typiquement 1,1). $\rho_{satsurf}$ (kg.m⁻³) est l'humidité de l'air saturée à la température de la surface du sol. C'est une fonction de la pression de vapeur de l'eau et de la pression de vapeur de saturation à la même température. Dans cette version du modèle TOCATTA- $\chi_{pré-thèse}$, la température de surface du sol est supposée égale à la température de l'air. V_{exs} (m.s⁻¹) est la vitesse d'échange de la vapeur d'eau tritiée entre l'atmosphère et la surface du sol. Cette vitesse d'échange est utilisée à la place d'une vitesse de dépôt pour estimer la contribution de la contamination au sol par dépôt sec (Belot *et al.*, 1996). Elle est formulée comme l'inverse de la somme de la résistance de surface du couvert végétal et de la résistance aérodynamique entre le couvert et le sol.

Assimilation racinaire

L'absorption de l'HTO du sol par les racines des plantes est décrite comme un transfert diffusif du tritium du sol aux racines des plantes (voir l'Équation I.7).

Migration

Le transfert de HTO dans les sols par migration verticale, généralement descendant de la zone d'enracinement aux horizons sous-jacents, correspond à la percolation dans le modèle TOCATTA- $\chi_{pré-thèse}$. Il est exprimé par l'équation suivante :

$$THTO_{S,\infty}^{Mig} = V_S^{Infil} \cdot [HTO]_S \quad \text{Équation I.37}$$

Où : $THTO_{S,\infty}^{Mig}$ est la perte par percolation de la fraction liquide de HTO du sol (m.s⁻¹), $[HTO]_S$ (mol.m⁻³) est la concentration de HTO dans l'eau des pores du sol, V_S^{Infil} (m.s⁻¹) est la vitesse d'infiltration d'eau dans le sol. Dans TOCATTA- $\chi_{pré-thèse}$, il est supposé être constant dans le temps. En particulier, le taux d'infiltration ne dépend ni de l'approvisionnement en eau ni de la pluie, ni de l'irrigation, ni du type de végétation et du sol (argile, limon, sable), l'état du sol (cultivé ou non) et la profondeur du sol (Le Dizès *et al.*, 2013).

1.3.2.4 Prédictions du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ dans le scénario de La Hague

A partir de données de tritium dans l'atmosphère et météorologiques enregistrées au niveau de la plateforme technique de la Hague de juin 2013 à juin 2016, le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ permet de prédire des concentrations en tritium théoriques dans les différents compartiments de l'environnement prairial. Ces prédictions sont confrontées aux données mesurées à partir d'échantillons prélevés sur la plateforme expérimentale. Cette comparaison entre les sorties du modèles TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ et les mesures *in situ* sont réalisées pour 3 compartiments : la fraction HTO liquide du sol, l'eau cellulaire tritiée du ray-grass (TFWT) et le tritium lié à la matière organique (OBT) de la plante.

- **Comparaison pour la fraction HTO du sol**

La Figure I.21 représente la comparaison entre les sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ et les mesures de la fraction HTO liquide du sol provenant de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague. Le modèle sous-estime systématiquement l'activité HTO du sol, avec une activité de HTO_{sol} modélisée comprise entre 0 et 9 Bq.L⁻¹. En comparaison, l'activité mesurée du HTO du sol est comprise entre 3 et 12 Bq.L⁻¹. La comparaison modèle-mesures témoigne donc d'une représentation inadéquate des activités en tritium dans la phase liquide de l'eau du sol par le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$, cette sous-représentation du rôle du sol serait amplifiée dans le cadre de scénarios avec irrigation par de le l'eau marquée en tritium.

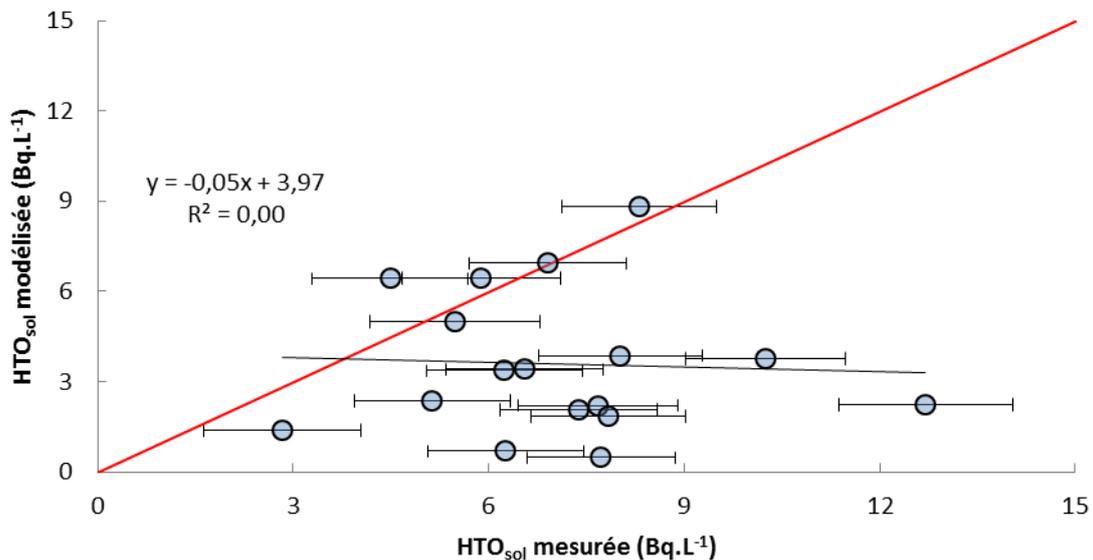


Figure I.21 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ avec les mesures provenant de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague, dans le compartiment HTO du sol. Le jeu de données correspond aux prélèvements semi-mensuels à mensuels réalisées de juin 2013 à juin 2015 (N=34) (d'après Le Dizès *et al.*, 2017 ; Maro *et al.*, 2017).

- **Comparaison pour la fraction TFWT**

La Figure I.22 représente la comparaison entre les sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ et les mesures de la fraction TFWT du ray-grass sol provenant de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague. Sur la base du point mesuré à 62 Bq.L^{-1} , le modèle témoigne d'une bonne représentativité des hautes activités en TFWT, où les dynamiques d'échanges sont rapides. Au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague, le tritium est d'une origine essentiellement atmosphérique. Il est donc possible de conclure que le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ reproduit bien les transferts atmosphériques du tritium à la plante (processus de diffusion air-plante essentiellement) (Le Dizès *et al.*, 2017).

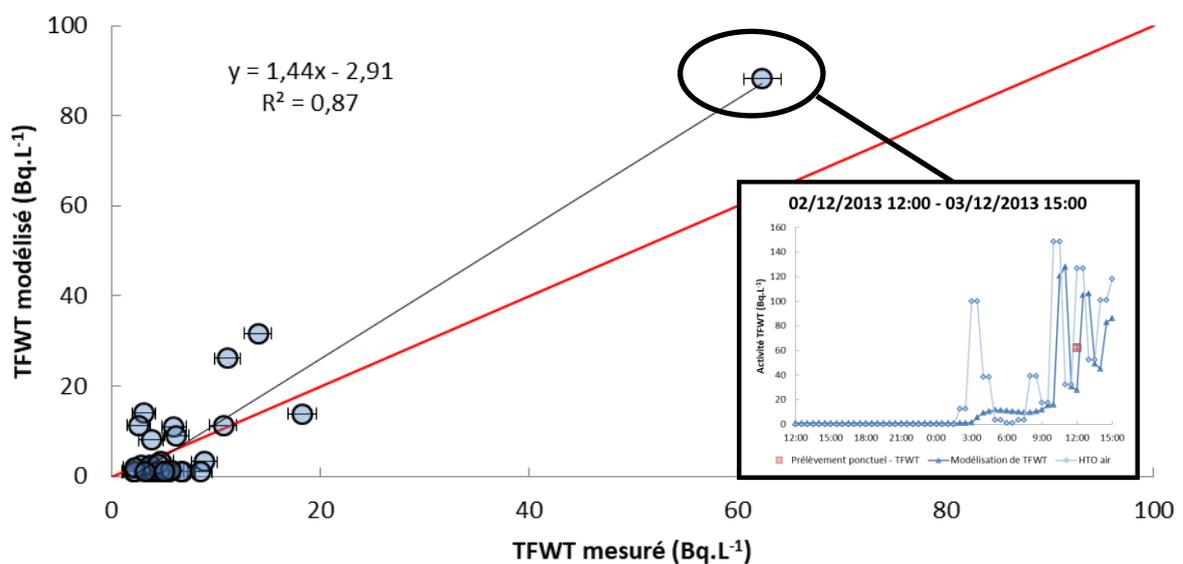
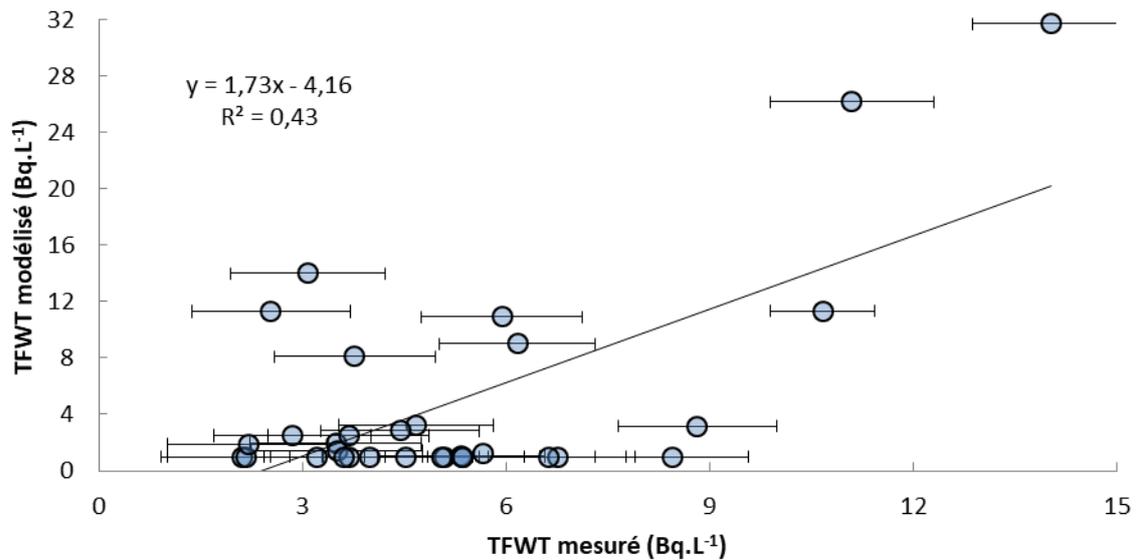


Figure I.22 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ avec l'ensemble des mesures provenant de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague, dans le compartiment TFWT du ray-grass. Le jeu de données correspond aux prélèvements semi-mensuels à mensuels réalisés de juin 2013 à juin 2015 (N=34) (d'après Le Dizès *et al.*, 2017 ; Maro *et al.*, 2017). L'encadré noir représente la variation temporelle de l'activité modélisée de TFWT pour le point mesuré à 62 Bq.L^{-1} (d'après Le Dizès *et al.*, 2017).

Cependant, concernant la comparaison modèle-mesures du **TFWT** pour des faibles activités (<15 Bq.L⁻¹), le modèle reproduit moins fidèlement les activités mesurées (Figure I.23) : le modèle sur-estime certaines activités de **TFWT** jusqu'à un facteur dix. Pour les données inférieures à 1 Bq.L⁻¹, le modèle les corrige en fixant une valeur minimale de **TFWT** de 1 Bq.L⁻¹. L'activité du sol mesurée étant comprise entre 3 et 12 Bq.L⁻¹ (Figure I.21), cette contribution de **HTO** du sol au **TFWT** des plantes (via l'assimilation racinaire) ne semble pas être mise en évidence dans les résultats de TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$.



- **Comparaison pour la fraction OBT**

La comparaison modèle-mesures (Figure I.24 et Tableau I.10) témoigne d'une représentation correcte des activités en tritium dans OBT. L'activité de OBT est ici exprimée en Bq.L^{-1} d'eau de combustion de la matière organique.

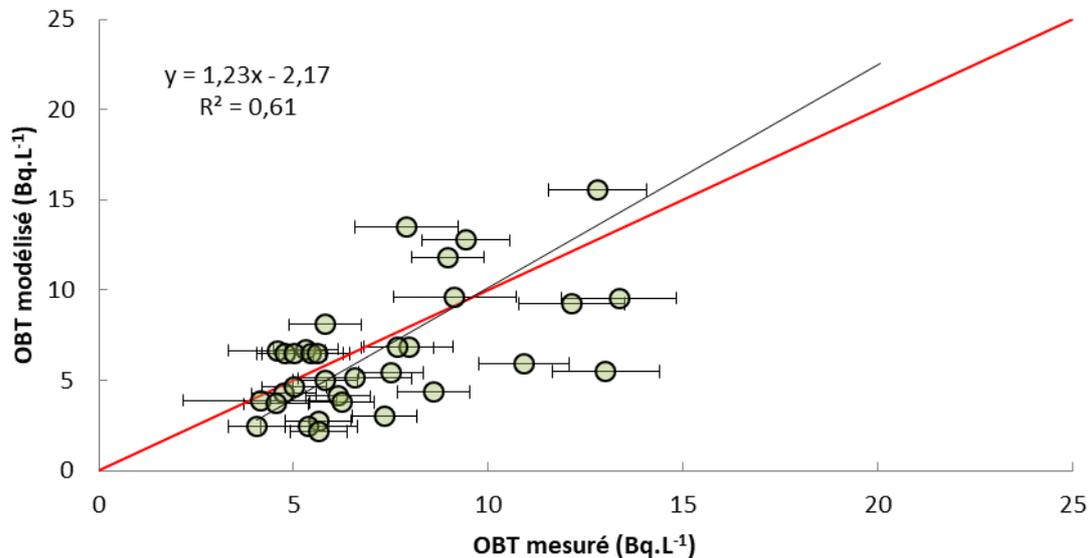


Figure I.24 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ avec les mesures provenant de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague, dans le compartiment OBT du ray-grass. Le jeu de données correspond aux prélèvements semi-mensuels à mensuels réalisés de juin 2013 à juin 2015 (N=34) (d'après Le Dizès *et al.*, 2017 ; Maro *et al.*, 2017).

- **Bilan du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$**

Ainsi, la comparaison entre les sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ et les mesures réalisées au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague (Tableau I.10) reflète une bonne concordance du modèle pour les compartiments OBT et TFWT de la plante lors de pic de HTO dans l'air. Cependant, les prédictions du modèle sont moins pertinentes dans les compartiments HTO du sol et TFWT en absence de pic de HTO dans la vapeur d'eau de l'air atmosphérique ambiant, correspondant à des rejets de faible activités ($<15 \text{ Bq.L}^{-1}$).

Tableau I.10 : Comparaison statistique par confrontation des activités simulées par le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ aux mesures de terrain, de juin 2013 à juin 2015. HTO_{sol} représente la fraction liquide d'eau tritiée dans le sol, TFWT représente l'eau cellulaire tritiée de la plante et OBT représente le tritium lié à la matière organique.

	$\text{HTO}_{\text{sol}}^1$ (Bq.L^{-1})	$\text{TFWT} - \text{BdF}^2$ (Bq.L^{-1})	TFWT^3 (Bq.L^{-1})	OBT^3 (Bq.L^{-1})
Equation régression	$y=-0,05x+3,97$	$y=1,73x-4,16$	$y=1,44x-2,91$	$Y=1,23x-2,17$
R^2	0,00	0,43	0,87	0,61
Ecart moyen relatif entre le modèle et les mesures (Bq.L^{-1})	4,72	5,87	7,24	2,37
Ecart-type du rapport modèle/mesure*	2,41	6,37	6,39	2,17
Moyenne du rapport modèle/mesure	0,56	0,91	0,92	0,93
Proportion de sorties modélisées dans la gamme d'incertitudes des données mesurées** (%)	24	13	12	24

Soit N le nombre d'échantillons mesurés. ¹ : N=23 ; ² : N=32 ; ³ : N=34. *écart-type du rapport modèle/mesure par rapport au rapport théorique $\text{modèle}_{\text{théorique}}/\text{mesure}_{\text{théorique}}$ (théoriquement égale à 1). **D'après la Figure I.21, la Figure I.22, la Figure I.23 et la Figure I.24.

CHAPITRE II. METHODOLOGIE GENERALE

En comparaison avec les mesures de terrain présentées précédemment dans le cadre de scénario de la Hague, le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ présente des incertitudes sur ses prédictions des activités de HTO du sol et TFWT pour des valeurs faibles d'activités, inférieures à 15 Bq.L^{-1} (cf. § 1.3.2.4). Le principal objectif de ce travail de thèse est d'améliorer le modèle existant en étudiant les processus clés du transfert de HTO au sein d'un écosystème prairial (Figure II.1). La méthodologie générale d'amélioration du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ peut se diviser en trois étapes (Figure II.2) :

- validation éco-physiologique du modèle existant.

Avant d'améliorer le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ concernant les transferts de tritium au sein d'un écosystème prairial, il est important de s'assurer que le modèle existant modélise correctement le fonctionnement hydrique et carboné du végétal. Cette validation est multi-échelle (Figure II.2), de la feuille au couvert végétal :

A l'échelle de la feuille :

Deux paramètres sont validés à l'échelle de la feuille : (i) la conductance stomatique qui conditionne les échanges gazeux au niveau foliaire et (ii) la photosynthèse, qui dépend de la vitesse de carboxylation maximale ($V_{c \text{ max}}$), paramètre-clé contrôlant la photosynthèse et donc l'assimilation de HTO dans OBT.

A l'échelle du couvert végétal :

A l'échelle du couvert végétal, la bonne représentativité de la croissance par le modèle est testée selon trois critères : (i) le modèle émet l'hypothèse que la croissance végétale n'est pas limitée par un déficit en azote dans le sol, donc cette hypothèse est vérifiée à partir de mesure *in situ* ; (ii) le développement des parties aériennes s'accompagne d'une variation temporelle de la surface des feuilles et de la masse sèche foliaire par unité de surface. Ces deux paramètres sont respectivement représentés par l'indice de surface foliaire (LAI) et la production de matière sèche ; (iii) le fonctionnement physiologique du végétal s'accompagne par des flux gazeux, conditionnés par l'ouverture des stomates au niveau foliaire. Certains flux gazeux à l'interface air-végétal et au sein du végétal sont vérifiés : ceux-ci incluent l'assimilation nette de CO_2 (au cours de la photosynthèse) et la perte en eau du végétal (essentiellement via la transpiration).

- amélioration de l'ancien modèle.

Une fois les processus éco-physiologiques validés, la seconde étape consiste à modifier ou implémenter certains modules de transfert de tritium, à partir d'expérimentations portant sur les incertitudes qui résident au niveau du comportement du tritium dans les compartiments sol et plante. Ces expérimentations sont réalisées en laboratoire et *in situ* (Figure II.2) :

Expérimentation en laboratoire : Au cours de cette thèse, trois points d'incertitudes rémanentes dans la littérature sont abordés :

- la formation de **HTO** dans le sol à partir de **HT** ;

Au niveau de la plateforme technique IRSN-la Hague, les rejets atmosphériques sont majoritairement constitués de tritium sous forme **HT** (cf. § 1.3.2.2). Le **HT** n'est pas biodisponible, mais son oxydation produit la forme **HTO** qui, elle, est biodisponible. La formation de **HTO** par oxydation bactérienne est étudiée avec une chambre d'oxydation afin d'implémenter un module d'oxydation bactérienne du **HT** dans le modèle TOCATTA- χ .

- la cinétique de transfert atmosphérique de **TFWT** et **eOBT** ;

L'objectif de cette étude est la détermination des périodes biologiques précises de **TFWT** et **eOBT**, afin de vérifier que les cinétiques de marquage de **TFWT** et **eOBT** des végétaux par le **HTO** d'origine atmosphérique - en période nocturne et diurne - sont en accord avec les données présentes dans la littérature.

- la discrimination des formes tritiées **TFWT** et **OBT** dans la matière organique végétale.

Les résultats issus de la littérature divergent sur la valeur du facteur de discrimination des formes tritiées **OBT/TFWT** lors d'une ambiance tritiée à l'équilibre, avec cependant une valeur moyenne proche de l'unité. Lors de la production de matière organique, le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ utilise par défaut un facteur **OBT/TFWT** égale à l'unité. Cependant cette valeur doit être déterminée plus précisément, d'où la réalisation de cultures hydroponiques au cours de cette thèse avec une ambiance tritiée à l'équilibre, permettant de confirmer (ou infirmer) l'absence de discrimination isotopique mesurable dans le végétal.

Expérimentations *in situ* : Au cours du processus d'amélioration de TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$, deux modules impactant le bilan de **HTO** dans le sol sont modifiés : il s'agit de l'assimilation racinaire du **HTO** du sol et la prise en compte des échanges diffusifs de **HTO** à la surface du sol dans l'activité atmosphérique de **HTO**. L'acquisition de mesures de **TFWT** et de **HTO** du sol via l'utilisation de lysimètres où l'activité en **HTO** du sol est contrôlée permet de tester la fiabilité des prédictions en **HTO** du sol par le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ suite à ces modifications apportées.

- validation du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$

Enfin, le dernier aspect de cette méthodologie d'amélioration du modèle TOCATTA- χ consiste à valider *in fine* les nouvelles sorties du modèle. La confrontation des mesures issues de la plateforme technique IRSN-La Hague obtenues pendant 3 ans avec les sorties du modèle dans les différents compartiments (teneur en eau du sol, **HTO** du sol, **TFWT** et **OBT** végétal) permet d'évaluer le nouveau modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ (Figure II.2).

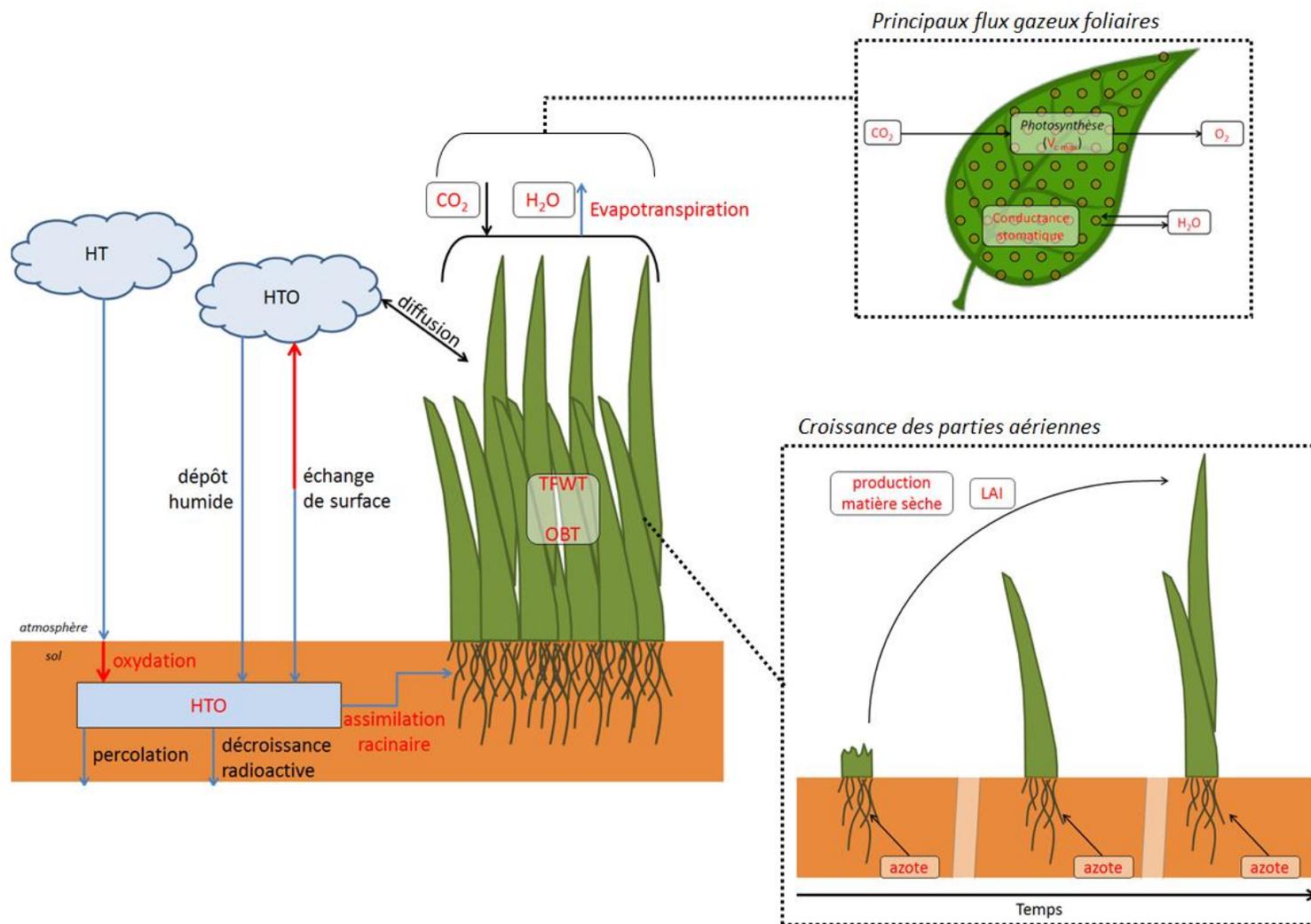


Figure II.1 : Représentation schématique des différents processus du modèle étudié au cours de cette thèse. Les flèches bleues et noires représentent les processus ou flux existant en amont de cette étude. Les paramètres et flèches en rouges correspondent aux processus ou flux améliorés ou validés au cours de cette étude.

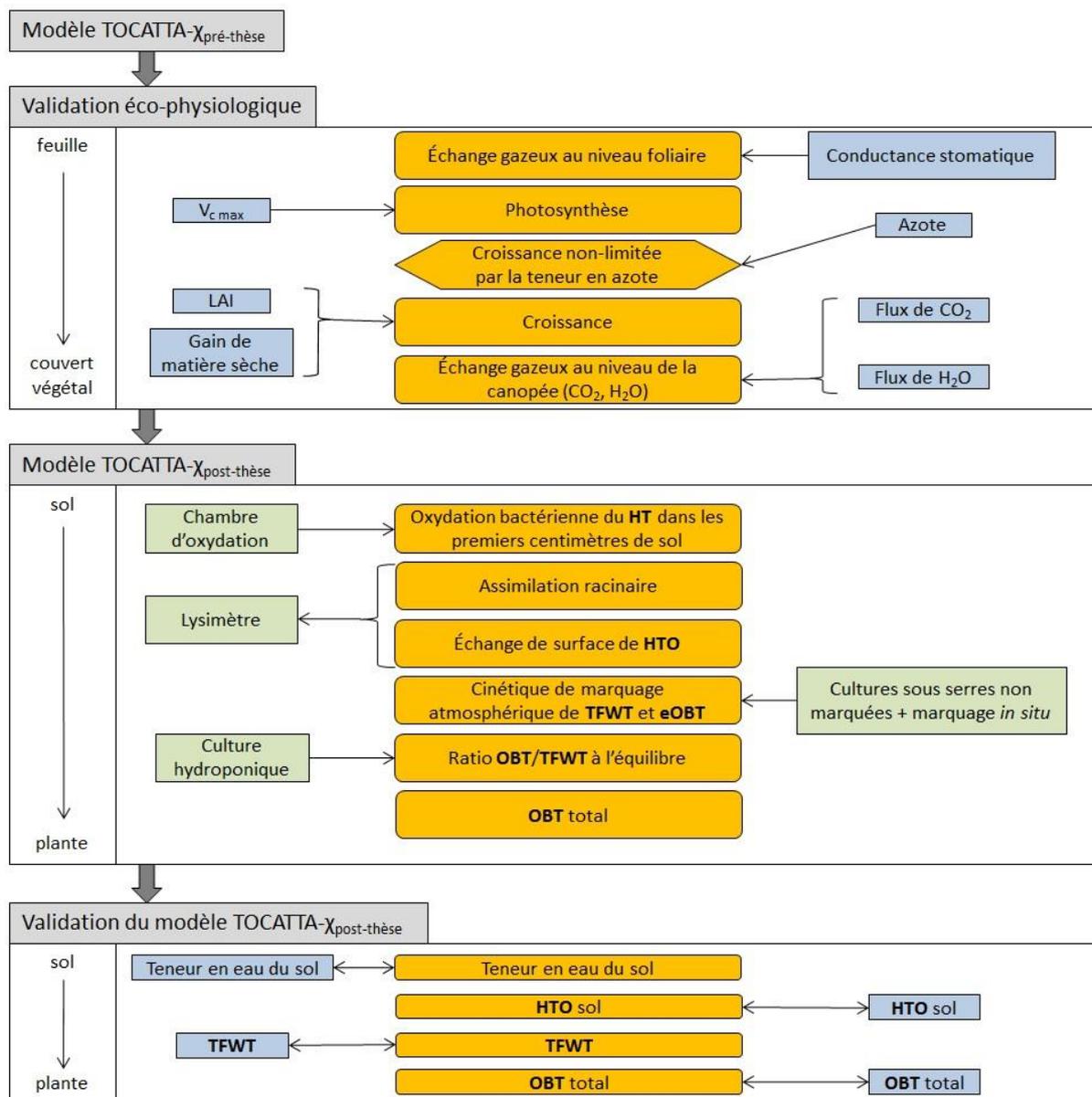


Figure II.2 : Représentation conceptuelle de la trame de conception et de validation du modèle TOCATTA- χ _{post-thèse}, appliquée au cours de cette thèse. Le code couleur appliqué à cette figure suit la logique suivante : un rectangle orange aux bords arrondis correspond à un module du modèle TOCATTA- χ _{pré/post-thèse} ; un hexagone orange correspond à une hypothèse du modèle TOCATTA- χ _{pré/post-thèse} ; un rectangle bleu correspond à des mesures *in situ* ; un rectangle vert correspond à une expérimentation de thèse (en laboratoire et *in situ*).

CHAPITRE III. MATERIEL ET METHODES

III.1 Validation du modèle TOCATTA- χ _{pré/post-thèse}

III.1.1 Analyse à l'échelle de la feuille

III.1.1.1 Validation de paramètres éco-physiologiques

La fiabilité des équations éco-physiologiques du modèle TOCATTA- χ est testée avec une vérification de deux paramètres :

- la vitesse de carboxylation maximale (modèle Plantmod de Johnson, 2010) ;
- la diffusion du CO₂ à l'interface atmosphère-plante au travers des **stomates** (modèle de Huntingford *et al.* (2015).

Les flux de CO₂ (photosynthèse, respiration) et de H₂O (évapotranspiration) simulés par le modèle sont confrontés à des mesures *in situ* issu d'un Li-Cor Li-6400 (Figure III.1), un appareil portatif de mesure des échanges gazeux foliaires (CO₂, H₂O).



Figure III.1 : Illustration d'un appareil de mesure des échanges gazeux foliaires (CO₂, H₂O) LI-6400 (Li-Cor).

- **Vitesse de carboxylation maximale**

La production de matière organique sèche dépend directement de l'assimilation nette du CO₂ par la plante (Équation I.11 et Équation I.12). Les mesures réalisées avec l'appareil Li-Cor LI-6400 sont fondées sur un modèle biochimique complexe de calcul de **photosynthèse** à l'échelle de la feuille : le modèle de Farquhar (Verbeeck *et al.*, 2008 ; Lenz *et al.*, 2010 ; Qian *et al.*, 2012).

- **Le modèle mécaniste de photosynthèse foliaire de Farquhar**

Les modèles biochimiques de **photosynthèse** foliaire présentent différents niveaux de complexité (Thornley, 1976 ; Farquhar *et al.*, 1980 ; Thornley et Johnson, 1990 ; Collatz *et al.*, 1991 ; von Caemmerer, 2000 ; Johnson, 2010). Cependant, le modèle mathématique de Farquhar *et al.* (1980) est le plus largement utilisé pour les plantes en C3 (Lousteau *et al.*, 1999 ; Johnson, 2010). Comme décrit précédemment (cf. § Croissance des végétaux, p. 65), l'enzyme Ribulose 1,5 Bi-Phosphate (**RuBP**) joue un rôle dans le processus de **photosynthèse**. Le modèle de Farquhar calcule l'assimilation végétale du CO₂ en fonction de trois facteurs limitants :

- la vitesse de carboxylation maximale (notée $V_{c\ max}$), applicable si la concentration de **RuBP** est saturante (Figure I.13) ;

- l'apport d'ATP et de NADPH via des réactions photochimiques (transferts d'électron), permettant la régénération de **RuBP** (Figure I.14) ;

- la vitesse d'exportation des trioses-phosphates. Ce paramètre n'est limitant que si la concentration en carbone est très élevée et si l'éclairement est saturant (von Caemmerer, 2000).

Le calcul de la **photosynthèse** par le modèle TOCATTA- $\chi_{pré_thèse}$ se base sur l'approche PASIM, elle-même basée sur Plantmod (Johnson, 2010), un modèle adapté aux calculs opérationnels simplifiés de **photosynthèse**. Le modèle Plantmod (Johnson, 2010) s'appuie sur l'hypothèse d'une saturation lumineuse ; ainsi les équations ne prennent pas en compte le contrôle de la régénération de **RuBP** par le transport d'électron. L'assimilation de carbone est limitée par la régénération de **RuBP**.

Dans le cadre de notre étude, seuls les flux de H₂O et de CO₂ sont étudiés. Ainsi les paramètres de vitesse de carboxylation maximale ($V_{c\ max}$) et de conductance stomatique (g_s) sont comparés à des mesures réalisées *in situ* avec le LI-6400.

- **Ajustement de la vitesse de carboxylation maximale ($V_{c\ max}$)**

D'après le modèle adopté par Farquhar et Von Caemmerer (1982), l'activité biochimique globale de la **photosynthèse**, lors de la phase claire et de la phase sombre (cf. § Croissance des végétaux, p. 65), peut être limitée par la disponibilité en **RuBP** lorsque sa régénération n'est pas assez rapide. Si le **RuBP** est saturant, l'activité de **photosynthèse** est considérée limitée par les propriétés cinétiques de la **Rubisco** (Piel, 2002).

L'assimilation nette de carbone, notée A_{net} ($\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$), est généralement exprimée comme suit (Lenz *et al.*, 2010) :

$$A_{net} = \min(A_c, A_j) \qquad \text{Équation III.1}$$

Avec A_c l'assimilation de carbone limitée par la **Rubisco** ($\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$), A_j l'assimilation de carbone limitée par la régénération de **RuBP** contrôlée par le transport d'électron ($\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$). A_c est calculé selon l'équation suivante (Medlyn *et al.*, 2002 ; Bernacchi *et al.*, 2013) :

$$A_c = V_{c\max} \cdot \left(\frac{C_i - \Gamma^*}{C_i + K_C \cdot \left(1 + \frac{O}{K_O} \right)} \right) - R_d \quad \text{Équation III.2}$$

Où $V_{c\max}$ est la vitesse maximale de carboxylation par la **Rubisco** ($\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$), C_i est la pression partielle de CO_2 au niveau de la **Rubisco** (Pa), K_C est la constante de Michaelis de la **Rubisco** pour le dioxyde de carbone (Pa), O est la pression partielle d'oxygène au niveau de la **Rubisco** (Pa), K_O est la constante d'inhibition (habituellement considérée comme la constante de Michaelis (Sharkey *et al.*, 2007)) de la **Rubisco** pour l'oxygène (Pa), Γ^* est le **point de compensation** photo-respiratoire (quantité d'énergie lumineuse où les échanges gazeux photosynthétiques sont égaux aux échanges gazeux liés à la respiration) (Pa), R_d est la respiration ($\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$).

En appliquant une approche de régression linéaire, il est possible d'estimer la vitesse de carboxylation maximale à partir de l'Équation III.2 où $V_{c\max}$ représente la pente et R_d l'interception de la droite de régression avec l'axe des ordonnées (Long et Bernacchi 2003).

- **Appareil de mesure Li-Cor Li-6400**

Le taux de **photosynthèse** net mesuré correspond à un taux d'absorption de CO_2 ($\mu\text{molCO}_2\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$). Théoriquement, il est possible de déterminer $V_{c\max}$ connaissant plusieurs valeurs de A_c et C_i (Équation III.2). La feuille utilisée pour la mesure est disposée dans une chambre d'assimilation où l'air injecté contient un niveau stable de CO_2 .

Description de la mesure (Li-Cor Li-6400)

La **photosynthèse** et la transpiration sont calculées comme le produit entre le flux d'air et une variation de concentration gazeuse (CO_2 pour la **photosynthèse** et H_2O pour la transpiration), le tout divisé par la surface d'échange (la surface foliaire présente dans la chambre de mesure). La variation gazeuse est déterminée par différence entre l'IRGA (Infra-Red Gaz Analyser) de la chambre de mesure et l'IRGA de la chambre de référence (Figure III.2).

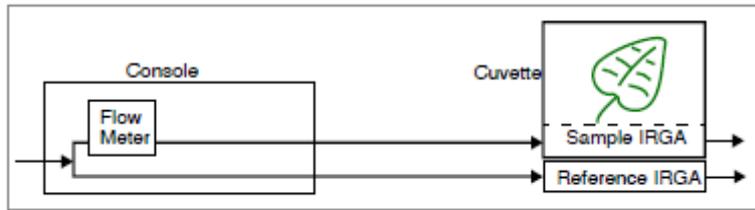


Figure III.2 : Représentation schématique du calcul des flux de H₂O et de CO₂ au niveau foliaire, issu de Li-Cor (1999).

Les échanges gazeux ont été mesurés avec un analyseur d'échange gazeux infrarouge en circuit ouvert : l'air présent au sein de la chambre de mesure est renouvelé (Figure III.3). Dans une première étape, les concentrations de CO₂ et d'H₂O de l'air entrant sont modifiées par un épurateur de CO₂ (magnésium perchlorate Mg(ClO₄)₂) et un déshydratant (drierite composée de sulfate de calcium CaSO₄) placé dans la console. Le contrôle de l'humidité de l'air est essentiel dans la mesure où l'ouverture des stomates est fonction notamment de l'humidité ambiante (Xu et Baldocchi, 2003). La seconde étape consiste à injecter du CO₂ pur, afin de disposer d'un air dont la concentration en CO₂ est fixée par l'utilisateur.

Après avoir été conditionné, l'air est pompé et son débit est contrôlé. Le flux d'air est alloué à 75 % à l'échantillon (chambre de mesure) et les 25 % restants à la référence. Les deux analyseurs infra-rouges mesurent le CO₂ et H₂O des deux flux d'air et, par différence, calculent les bilans de CO₂ et H₂O.

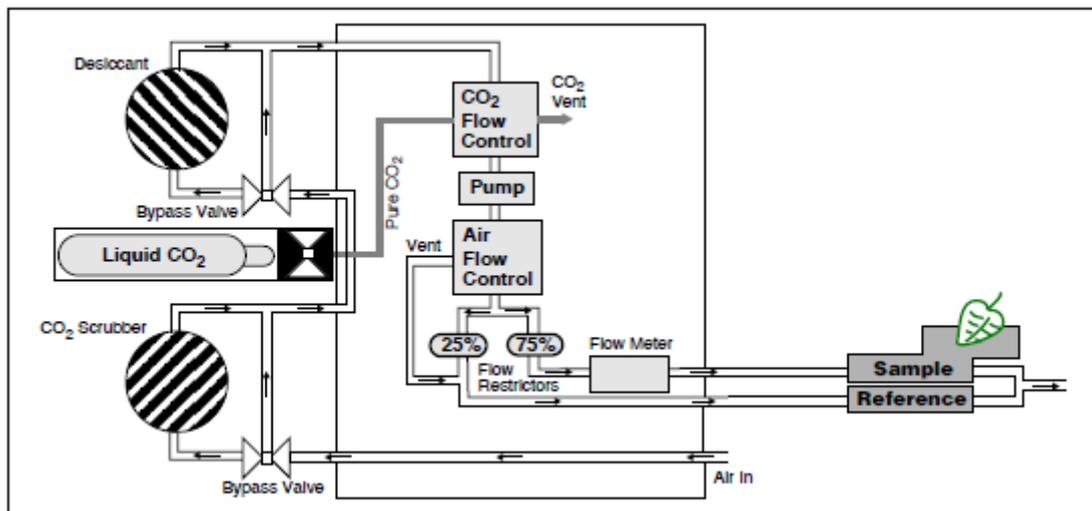


Figure III.3 : Représentation schématique des échanges gazeux mesurés à l'aide de LI-6400, issu de Li-Cor (1999).

Mesure de $V_{c \max}$

La première étape de détermination de $V_{c \max}$ consiste à mesurer, à l'aide du Li-6400, différentes valeurs d'assimilation nette (A_{net}) sous éclairage et température constants dans la chambre de mesure, mais avec une pression partielle en CO_2 au sein de la feuille dont les variations sont croissantes. Il en découle un jeu de données de type A_{net} en fonction de C_i , semblable à celui présenté (Équation III.3).

L'assimilation nette de CO_2 (A_{net}) et la fraction molaire de CO_2 au niveau des chambres sous stomatiques (C_i) ont été estimées pour une gamme de valeurs de CO_2 atmosphériques (C_a) imposée et constantes. Une fois les données expérimentales acquises, il reste à définir quels sont les points obtenus correspondant à A_c et ceux qui correspondent à A_j , en accord avec la Figure III.4. L'ajustement des courbes théoriques du modèle de Farquhar (1980) aux données expérimentales (courbe A- C_i) a été réalisé selon une équation de régression non linéaire (Sharkey *et al.*, 2007) par la méthode des moindres carrés, en utilisant la fonction « solveur » sous le logiciel Excel (Microsoft Office, Microsoft Inc, USA). Le paramètre $V_{c \max}$ est ainsi déterminé selon l'Équation III.2, en utilisant les valeurs des paramètres présentés Tableau III.1. Ces paramètres, dépendant de la température, sont ajustés à la température de 25°C (Sharkey *et al.*, 2007).

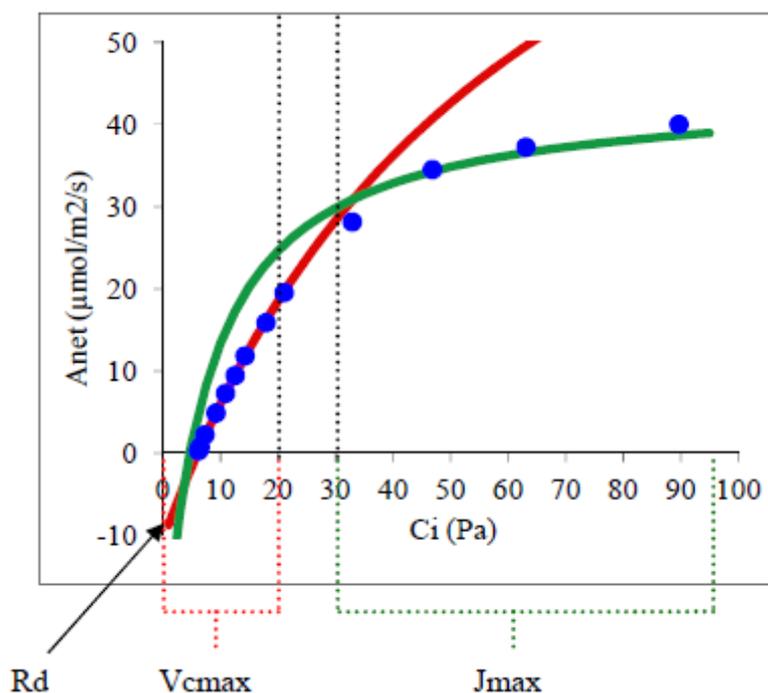


Figure III.4 : Ajustement des courbes de réponse (A_{net} , C_i) à partir de mesures de photosynthèse nette (A_{net} , $\mu\text{mol}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) pour différentes concentrations de CO_2 interne (C_i , Pa) (d'après Thomasset, 2016). Les points bleus représentent les différentes mesures expérimentales. La courbe rouge représente A_c limitée par $V_{c\max}$ (éclairage à $1000 \mu\text{mol photon}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) tandis que la courbe verte représente A_j limitée par la régénération de RuBP (Équation III.1).

Tableau III.1 : Valeurs des différents paramètres utilisés pour déterminer $V_{c\max}$ (Équation III.2) d'après Sharkey *et al.*, 2007).

Paramètre	Valeur (à 25 °C)	Unité
O	21	Pa
Γ^*	3,74	Pa
K_C	27,24	Pa
K_O	16,58	kPa

- **Calcul de la conductance stomatique**

- **Analogie entre le flux de H₂O et le flux de CO₂**

Deux types de conductances biologiques favorisent le passage d'un gaz présent dans l'atmosphère au site de réaction impliquant ce gaz, à l'intérieur de la plante : la conductance stomatique et la conductance du **mésophylle**.

Soit le cas du CO₂ : la conductance stomatique au CO₂ (notée $g_{s\ CO_2}$) représente la facilité avec laquelle le CO₂ diffuse entre l'atmosphère et les cavités stomatiques (cf. Figure I.10). La conductance du **mésophylle** au CO₂ est la mesure de la facilité de diffusion de CO₂ des cavités stomatiques jusqu'aux sites de carboxylation dans les chloroplastes (Flexas *et al.*, 2008, 2012). La conductance du **mésophylle** (cf. Figure I.10), et indirectement la conductance stomatique, jouent un rôle majeur dans la contrainte de la productivité photosynthétique (Niinemets *et al.*, 2009 ; Dumont, 2013 ; Tomás *et al.*, 2013).

Il existe une proportionnalité entre la conductance stomatique pour le flux de H₂O et pour le flux de CO₂, en lien avec le rapport des diffusivités moléculaires du CO₂ et de H₂O dans l'air. Le rapport $g_{s\ H_2O}/g_{s\ CO_2}$ utilisé dans Plantmod vaut 1,6 (Johnson, 2010), correspondant à la racine carré du rapport de la masse moléculaire du CO₂ sur la masse moléculaire du H₂O.

- **Mesure de la conductance stomatique**

Le calcul de la conductance stomatique de Huntingford *et al.* (2015), $g_{s\ CO_2}$, implémentée dans TOCATTA- $\chi_{\text{pré_thèse}}$, est comparé aux mesures de conductance obtenues avec le Li-6400. La conductance issue du Li-6400 est calculée à partir de la conductance foliaire totale à la vapeur d'eau (g_{tw} en mol H₂O.m⁻².s⁻¹) qui inclue la conductance stomatique et la conductance de la couche limite (Équation III.4 d'après Li-Cor, 1999).

$$g_{tw} = \frac{E \cdot \left(1000 - \frac{W_l + W_s}{2}\right)}{W_l - W_s} \quad \text{Équation III.4}$$

$$E = \frac{100 \cdot F \cdot (W_s + W_r)}{S \cdot (1000 - W_s)} \quad \text{Équation III.5}$$

Où E est le flux d'eau au niveau des feuilles (mol H₂O.m⁻².s⁻¹), F est le débit (μmol.s⁻¹), W_s et W_r sont des fractions de molécule d'eau de l'échantillon et de référence (mmol H₂O.mol air⁻¹), W_l est la concentration molaire de vapeur d'eau dans la feuille (mmol H₂O.mol air⁻¹), S est la surface foliaire (m²).

III.1.1.2 Campagne de mesure

L'appareil Li-6400 est emprunté aux collègues de l'INRA Lusignan. Les mesures sont réalisées au cours de la période de prêt, au niveau de la seconde feuille ligulée afin d'étudier la conductance stomatique des feuilles de même âge (Tableau III.2).

Tableau III.2 : Caractéristiques expérimentales lors des utilisations du Li-6400 à la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague. Les valeurs sont moyennées sur N données mesurées, avec entre crochet le minimum et le maximum de chaque série de données.

Date	Temp. Atm. (°C)	Temp. de la chambre de mesure (°C)	PAR de la chambre de mesure ($\mu\text{mol.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$)	Pression atm. (kPa)	Surface de feuille dans la chambre de mesure (cm^2)
25/07/2016 13h44-14h31 N=15	24,4 [23,7 - 25,2]	24,4 [23,5 - 25,4]	999,9 [999 - 1001]	101,2 [101,2 - 101,2]	0,9
29/07/2016 13h10-13h38 N=14	21,3 [19,9 - 22,9]	21,5 [19,8 - 23,0]	999,9 [999 - 1001]	100,4 [100,4 - 100,4]	1,6
01/08/2016 09h57-10h25 N=14	23,6 [23,3 - 24,2]	23,5 [23,1 - 24,3]	999,6 [999 - 1001]	101,1 [101,1 - 101,1]	0,7
30/08/2016 11h50-12h30 N=14	28,8 [26,9 - 29,9]	28,5 [26,8 - 29,5]	999,6 [999 - 1001]	101,5 [101,5 - 101,5]	1,8

III.1.2 Description pédologique et teneur en azote de la parcelle

III.1.2.1 Texture du sol

- **Importance de l'analyse texturale d'un sol**

La caractérisation d'un sol est indispensable pour comprendre son fonctionnement, notamment d'un point de vue hydrique concernant la rétention d'eau (infiltration, percolation, réserve utile, teneur en eau maximale et minimale). La texture d'un sol peut être déterminée à partir d'un triangle de texture (Figure I.6) et connaissant la répartition des différentes fractions qui constituent ce sol (argiles, limons, sables).

- **Méthode d'analyse**

Une analyse granulométrique est réalisée par un laboratoire extérieur (Laboratoire Agronomique de Normandie - LANo - ou le laboratoire d'analyse des Sol - LAS, INRA -) à partir d'un carottage de sol représentatif de la parcelle étudiée (Figure III.5).



Figure III.5 : Illustration d'un carottage de sol. L'échantillon prélevé s'étend à 20 cm de profondeur.

Tableau III.3 : Dénomination usuelle des classes granulométriques (d'après AFNOR NF X31-107).

Dénomination en 5 classes	Argile	Limons fins	Limons grossiers	Sables fins	Sables grossiers
Limites de taille (μm)	<2	2 à 50	20 à 50	50 à 200	200 à 2000
Dénomination en 3 classes	Argile	Limons totaux		Sables totaux	
Limites de taille (μm)	<2	2 à 50		50 à 2000	

Cette analyse granulométrique est réalisée sur 5 fractions variables selon la taille (Tableau III.3), suivant la méthode normalisée AFNOR NF X31-107. Après séparation de la terre fine (fractions inférieures à 2 mm) des éléments grossiers (graviers, cailloux, blocs) et destruction des ciments organiques par l'action de l'eau oxygénée (H_2O_2), la terre fine est dispersée dans l'eau additionnée d'un agent dispersant. Les particules vont ensuite lentement sédimenter en fonction de leur taille et de la température de l'eau. La teneur en argile et limon d'un sol est déterminée par des prélèvements réalisés à différents pas de temps permettant de collecter les particules restant en solution. Les fractions plus grossières (sables grossiers, sables fins et limons grossiers) sont

déterminées par tamisage, après lavage des fractions fines déterminées par sédimentation. La somme de ces 5 fractions granulométriques minérales est égale à 100 % (LANo, web ; LAS, web).

III.1.2.2 Teneur en azote

- **Importance de la teneur en azote du sol**

Un apport d'azote est généralement recommandé afin de produire de façon intensive tout en conservant un bon état végétal général (Cabaret et Seuret, 2004 ; GNIS-pédagogie, web ; Sampoux *et al.*, 2016). L'azote du sol joue un rôle essentiel dans la production photosynthétique et la croissance végétale (Maba 2007, Hopkins et Hüner, 2008) (cf. § Croissance des végétaux, p. 65).

Il s'avère donc nécessaire de s'assurer que la croissance du ray-grass au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague n'est pas perturbée par un déficit en azote. Au cours de cette étude, plusieurs prélèvements de feuilles de ray-grass sont réalisés de mai à septembre 2016 au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague, pour s'assurer que les teneurs en azote foliaire ne témoignent pas d'un déficit azoté du sol.

- **Méthode d'analyse**

La quantité d'azote dans l'échantillon foliaire est déterminée par un laboratoire externe (laboratoire Teyssier) selon la méthode Kjeldahl, qui peut se décomposer en trois étapes (Perrin, 2011, VWR, web) :

- la digestion : l'échantillon est minéralisé en milieu acide sulfurique. Il en résulte une solution de sulfate d'ammonium ;
- la distillation : l'ajout d'une base en excès permet de convertir le sel d'ammonium en ammoniac ;
- la titration : la teneur en azote dans un échantillon est calculée à partir de la quantité d'ammoniac présente dans la solution de destination. L'ammoniac est capturé avec un excès soigneusement mesuré de solution d'acide normalisé (titration en retour) ou une solution d'acide borique (titration directe).

Cette méthode d'analyse permet la mesure de l'azote total, ce qui correspond à la mesure de l'azote organique (contenu notamment dans les protéines) et l'azote ammoniacal ; cependant les formes oxydées, telles que les formes nitriques ou nitrates, ne sont pas considérées.

- **Gammes attendues**

La plupart des prairies permanentes présentent des teneurs en azote suffisantes pour une bonne croissance des graminées (prairies-GNIS, web). Selon une étude sur l'effet d'une dose croissante d'azote sur la production d'herbe (en tonne de matière sèche par hectare), la dose d'azote nécessaire pour atteindre la production maximale d'herbe dépasse les 120 kg d'azote.ha⁻¹ (Protin *et al.*, 2009).

L'ordre de grandeur des teneurs en azote foliaire total attendu pour les graminées est indiqué Tableau III.4 (Nozières *et al.*, 2007). Cette analyse porte sur différentes espèces végétales :

- les graminées, dont le ray-grass anglais qui est l'espèce majoritairement représentée dans le Tableau III.4 (représente 37 % du total des échantillons présents Tableau III.4), la luzerne (13 %), la fétuque (7 %), le dactyle (4 %), le ray-grass hybride (2 %), le ray-grass d'Italie (2 %), le brome (2 %) ;
- les légumineuses, dont le trèfle violet (5 %) et le trèfle blanc (2 %).

Tableau III.4 : Teneurs en azote foliaire total des fourrages verts (Nozières *et al.*, 2007).

	Nombre de données mesurées	Matières Azotées totales (g.kg ⁻¹ MS)
Graminées 1 ^{er} cycle	60	150 ± 52*
Graminées autres cycles	141	197 ± 61
Légumineuses 1 ^{er} cycle	43	185 ± 46
Légumineuses autres cycles	33	205 ± 49
Prairies permanentes 1 ^{er} cycle	31	158 ± 54
Prairies permanentes autres cycles	67	194 ± 42

*Les incertitudes rapportées dans ce tableau sont également issues de Nozières *et al.*, 2007.

III.1.3 Données météorologiques et hydriques

Afin d'alimenter les paramètres météorologiques du modèle, plusieurs données sont mesurées et stockées automatiquement dans un terminal d'enregistrement (station météorologique de type WatchDog 2000 series). A l'exception de la sonde mesurant la teneur en eau volumique, les capteurs de la station météorologique (Figure III.6) sont placés à 1,5 m au-dessus du sol et permettent d'acquérir des données à une fréquence de 30 min (Tableau III.5).



Figure III.6 : Illustration de la station météorologique utilisée au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague (WatchDog 2000 series).

Tableau III.5 : Précision de mesure des différents instruments météorologiques utilisés au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague.

Paramètre étudié	Disposition	Gamme de mesure	incertitude
Pression atmosphérique	1,5 m au-dessus du sol	660 à 810 mm-Hg	± 1,3 mm-Hg
Température atmosphérique	1,5 m au-dessus du sol	-20 à 50 °C	à -4 °C : ± 0,6 °C sinon : ± 1,2 °C
Humidité relative	1,5 m au-dessus du sol	10 à 90 %	à 25 °C : ± 3% sinon : ± 5%
Lumière PAR	1,5 m au-dessus du sol	0 à 2500 $\mu\text{mol.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$	± 5 %
Vitesse du vent	1,5 m au-dessus du sol	0-280 km.h ⁻¹	± 5 %
Direction du vent	1,5 m au-dessus du sol	2° d'incrément	± 7°
Précipitations	1,5 m au-dessus du sol	0,2 mm	± 2 %
Teneur en eau volumique du sol	0,2 m de profondeur	0 % à teneur en eau volumique maximale	± 3 %

La vitesse du vent est obtenue à partir d'un anémomètre (Figure III.6), tandis que le pluviomètre est de type auget basculeur : il s'agit d'un collecteur d'eau « balançoire » qui déverse son contenu lorsque l'eau recueillie dépasse 0,2 mm dans notre cas. A chaque balancement effectué, le terminal enregistre la quantité d'eau récoltée et l'heure de basculement. Ces résultats sont intégrés sur 30 minutes.

La teneur en eau du sol est mesurée avec une sonde diélectrique (Figure III.7). Le principe de la mesure consiste à mesurer la capacité d'un condensateur dont l'armature est définie par les électrodes. Le sol constitue alors le diélectrique (milieu isolant à l'échelle macroscopique) de ce condensateur. La mesure de cette capacité se fait en déterminant la fréquence de résonance d'un circuit RLC dont un des éléments est le condensateur sol-électrode (Dean *et al.*, 1987).



Figure III.7 : Illustration de la sonde type diélectrique utilisée.

III.1.4 Analyse à l'échelle du couvert

III.1.4.1 Mesure de l'indice de surface foliaire

- **Définition**

L'indice de surface foliaire (ou « Leaf Area Index » en anglais, LAI, $m^2 \cdot m^{-2}$ sol) est le rapport entre la demi surface foliaire totale d'une culture par une unité de surface au sol.

Il s'agit d'un paramètre important caractérisant la croissance végétale largement utilisé en modélisation. Le modèle TOCATT- χ reprend cette notion dans son module éco-physiologique. De ce fait une confrontation de la modélisation avec des mesures de terrain est nécessaire pour s'assurer de la bonne reproductibilité de la croissance végétale.

- **Appareils de mesure utilisés**

Au cours de cette étude, plusieurs méthodes de mesure du LAI sont appliquées afin de mesurer de façon rapide et efficace le LAI.

- **Planimètre de laboratoire**

Parmi la masse d'herbe prélevée au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague lors de la coupe mensuelle/semi-mensuelle, un échantillon frais (de 0,14 à 1,36 g)

est utilisé pour la mesure du LAI. Ces mesures en laboratoire à partir d'échantillons prélevés sur le terrain sont réalisées de mai 2016 à décembre 2016.

LI-3100C

L'appareil LI-3100C (Figure III.8) est conçu pour numériser rapidement la surface, la longueur et la largeur des feuilles. Il comporte deux courroies transporteuses transparentes qui tournent pour déplacer les feuilles sur un lit de balayage. Cet appareil enregistre la superficie des feuilles (individuelles) et calcule rapidement la surface cumulée pour un groupe de feuilles (Li-Cor, USA).



Figure III.8 : Illustration du planimètre LI-3100C.

Photocopieuse et programmation Matlab

Suite à un incident lors d'un transport, le LI-3100C disponible au laboratoire n'a pas pu être utilisé. Afin de réaliser une confrontation du LAI modélisé avec des données mesurées, un autre dispositif de mesure du LAI est établi.

Le principe de mesure reste cependant le même : il s'agit de numériser l'ensemble des feuilles dont la masse est d'environ 1 g, tout en prenant soin à ne pas superposer les feuilles. Le fichier numérique obtenu est converti en image monochrome (noir et blanc).

L'image monochrome des feuilles est ensuite traitée sous un logiciel Matlab développé à cette occasion (cf. annexe B.2), et dont la tâche consiste à compter le nombre de pixel noir d'une image donnée. Connaissant la surface d'une feuille A4 et la surface occupée sur cette feuille par les pixels noirs correspondant à la présence de feuilles, il est ainsi possible de déterminer la surface foliaire d'environ 1 g frais. Connaissant précisément la masse fraîche utilisée pour le calcul de la surface foliaire et la masse fraîche recueillie sur une parcelle de 2 m², il est alors possible, par interpolation linéaire, d'estimer la surface foliaire pour une surface au sol de 2 m² et donc le LAI au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague.

Planimètres de terrain

LAI-2000

Les données mesurées en laboratoire sont confrontées à des mesures de LAI obtenues *in situ* via un appareil Li-Cor LAI-2000 (Figure III.9). Ce matériel prêté par l'INRA de Lusignan est utilisé de juillet 2016 à septembre 2016.



Figure III.9 : Illustration du Planimètre LAI-2000.

Le LAI-2000 calcule l'indice de surface foliaire (LAI) à partir des mesures de rayonnement réalisées avec un capteur optique selon différents angles. La quantité de feuillage dans un végétal peut être déduite des mesures de la rapidité d'atténuation des rayonnements à travers le couvert végétal. Les mesures effectuées au-dessus du couvert végétal et au niveau du sol sont utilisées pour déterminer la fraction de lumière interceptée par le couvert végétal (Li-Cor, 1991 ; Villalobos *et al.*, 1995).

III.1.4.2 Mesures des flux de CO₂ et H₂O par méthode des corrélations turbulentes

- **Définition**

Par définition, le flux est le déplacement d'un paramètre d'intérêt par unité de surface et de temps. Dans le cadre d'un écoulement d'air au-dessus de la surface, Burba *et al.* (2013) simplifient ce système à un flux horizontal. Cet écoulement horizontal est constitué de nombreuses turbulences rotatives, ou vortex turbulents de taille variables, où chaque remous a une composante verticale et horizontale (Figure III.10). Il est possible de mesurer le mouvement vertical de ces turbulences rotatives à partir d'une tour de mesure qui effectue deux mesures simultanées à des hauteurs différentes.



Figure III.10 : Représentation de l'écoulement d'air au-dessus de la surface (Burba *et al.*, 2013).

La majeure partie du transport de chaleur, d'humidité et des gaz dans l'atmosphère est due à la turbulence (Burba et Anderson, 2010). Le calcul de flux turbulents (ou Eddy Covariance) consiste à mesurer les flux turbulents verticaux dans la couche de surface qui correspond à 10 % de la limite atmosphérique. Cette méthode analyse des données mesurées à haute-fréquence de vent, typiquement 10 Hz, et des données atmosphériques (Parent et Anctil, 2012). C'est une méthode statistique adaptée pour estimer un échange de chaleur ou de gaz, typiquement dans notre étude les flux de vapeur d'eau et de CO₂ (Peltola *et al.*, 2014).

- **Description de la méthode**

Il est possible de déterminer des flux de gaz ou de chaleur si, en plus de la vitesse d'échange de la substance d'intérêt, les variables suivantes sont connues : concentration en gaz, pression, température et humidité. Concrètement, si nous ne considérons qu'un seul point physique de la tour (Figure III.11) :

- au temps **time1**, la turbulence **eddy1** déplace une parcelle d'air **c1** vers le bas à une vitesse de vent **w1** ;
- puis au temps **time2**, la turbulence **eddy2** déplace **c2** vers le haut à la vitesse **w2**.

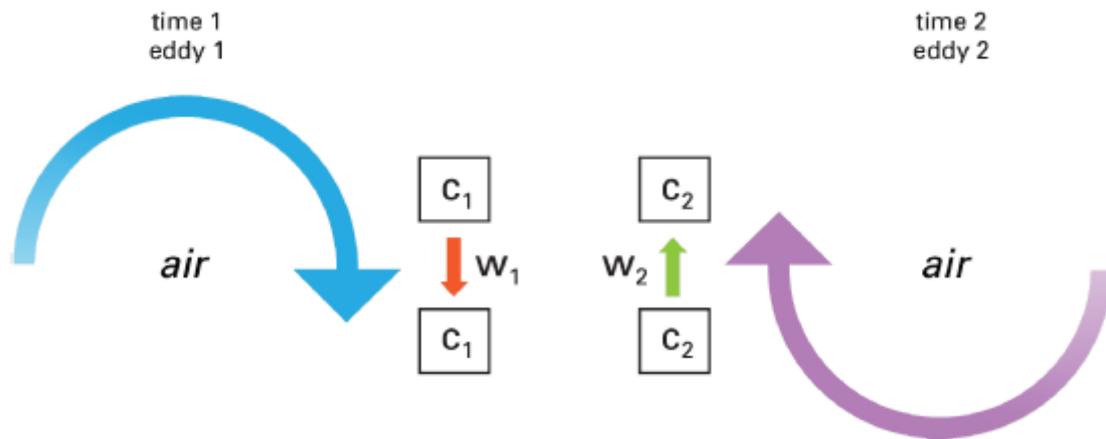


Figure III.11 : Description de deux turbulences à un point seul sur la tour de mesure (Burba *et al.*, 2013).

La représentation 3D du vent et d'autres variables (une quantité de mouvement comme la concentration en gaz ou la température) est décomposée en composants moyens et fluctuants (Burba et Anderson, 2010 ; Parent et Anctil, 2012). Le flux mesuré est proportionnel à la covariance entre le composant fluctuant du vent vertical et la composante fluctuante de la concentration en gaz.

En terme mathématiques, Burba *et al.* (2010) décrivent le flux d'intérêt en fonction de la densité de l'air, la vitesse verticale du vent ainsi que le taux de mélange du gaz d'intérêt (Équation III.11). Dans le cadre d'un flux turbulent, le flux vertical peut être présenté comme suit (Burba *et al.*, 2010) :

$$F_c = \overline{\rho_a \cdot w \cdot s} \quad \text{Équation III.6}$$

$$s = \frac{\rho_c}{\rho_a} \quad \text{Équation III.7}$$

Où F_c est le flux vertical de l'élément c ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$), ρ_a est la densité de l'air ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$), ρ_c est la densité de la substance d'intérêt c ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$), w la vitesse verticale du vent ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$) et s le ratio de mélange de la substance d'intérêt notée c ($/$). En appliquant la décomposition de Reynolds, l'équation précédente est alors exprimée en moyenne et déviation :

$$F_c = \overline{(\overline{\rho_a} + \rho_a')(\overline{w} + w')(\overline{s} + s')} \quad \text{Équation III.8}$$

En développant chaque produit de l'équation précédente, la déviation moyenne par rapport à la valeur moyenne est nulle, et l'équation précédente devient :

$$F_c = (\overline{\rho_a w s} + \overline{\rho_a w' s'} + \overline{\rho_a' w s'} + \overline{\rho_a' w' s} + \overline{\rho_a' w' s'}) \quad \text{Équation III.9}$$

En supposant que les densités de fluctuations sont négligeables, l'équation précédente devient :

$$F_c = (\overline{\rho_a w s} + \overline{\rho_a w' s'}) \quad \text{Équation III.10}$$

Selon l'hypothèse selon laquelle le flux vertical moyen est négligeable pour un terrain horizontal homogène (pas de divergence ou convergence), l'équation précédente devient :

$$F_c = \overline{\rho_a \cdot w' \cdot s'} \quad \text{Équation III.11}$$

La méthode traditionnelle de calcul de flux de turbulence estime le flux vertical turbulent à partir de mesures à haute-fréquences et des hypothèses suivantes :

- les mesures réalisées en un point sont représentatives des courants de vent ascendants ;
- les mesures sont réalisées dans la couche limite de surface ;
- la zone d'emprise est adéquate ou « footprint ». L'empreinte de la zone étudiée est fonction de la hauteur de mesure, la rugosité de surface ainsi que la sensibilité thermique. Cette zone augmente avec la hauteur de mesure, une baisse de la rugosité de surface ainsi qu'un changement de l'état instable à l'état stable du facteur de stabilité atmosphérique. Les flux étudiés doivent être mesurés seulement dans la zone d'intérêt afin d'être représentatifs de la parcelle étudiée ;
- les flux sont « complètement » turbulents. Les transferts verticaux sont entièrement réalisés par remous ;
- le terrain est horizontal et uniforme. La moyenne des fluctuations est nulle, les fluctuations de densités sont négligeables, tout comme la convergence ou la divergence de flux qui est négligeable ;
- les instruments peuvent détecter de très faibles changements à haute fréquence, de 5 à 20 Hz depuis les tours de mesure.

- **Appareils de mesure utilisés**

Dans le cadre de notre étude du couvert végétal de prairie, deux types de flux sont considérés : les flux d'eau (évaporation, transpiration) et les flux de CO₂ (respiration, **photosynthèse**). L'équipement expérimental de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague est constitué d'un appareil Li-Cor (LI-7200) et d'un anémomètre ultrasonique (Young 81000V), permettant la mesure de ces deux types de flux par Eddy Correlation (Figure III.12).

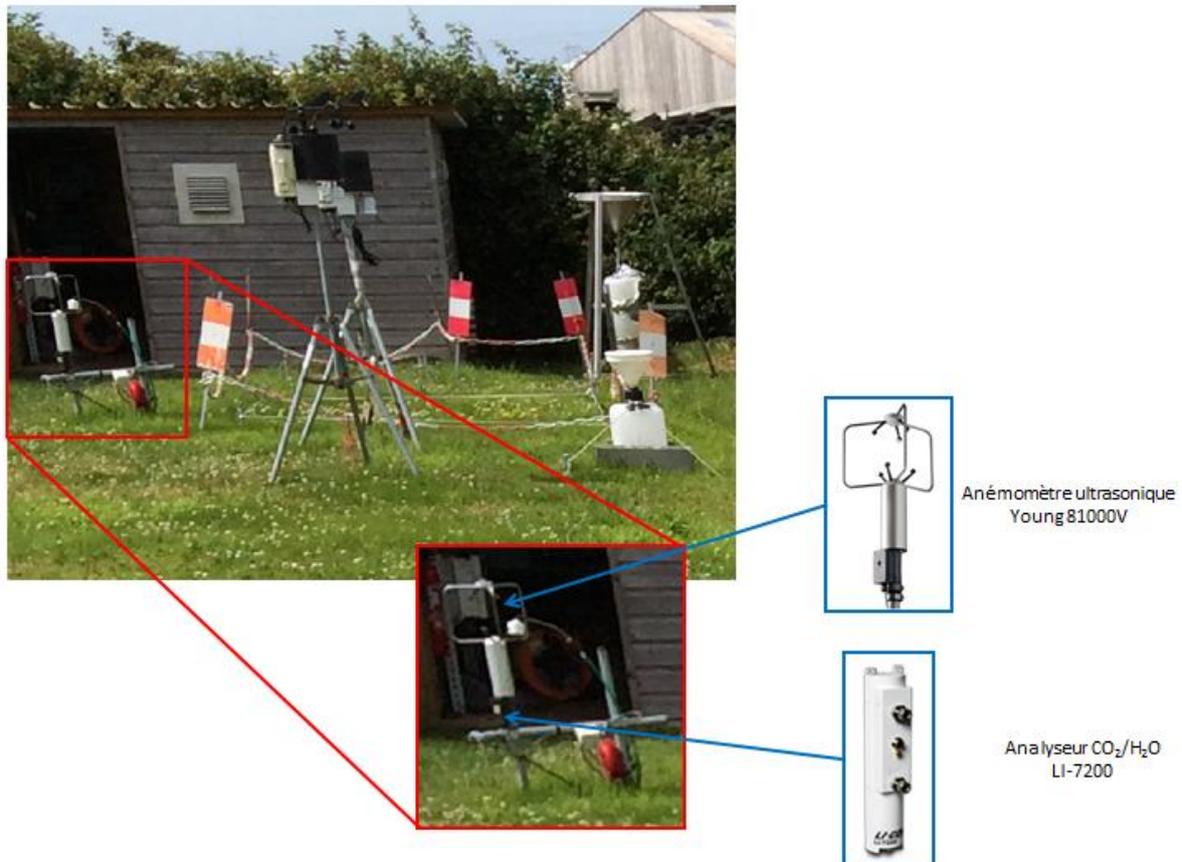


Figure III.12 : Illustration des instruments de mesures *in situ* utilisés pour déterminer les flux de CO₂ et de H₂O au niveau de la parcelle expérimentale.

Le principe de mesure par Eddy Correlation repose sur la mesure de deux paramètres principaux : la vitesse verticale du vent et la concentration dans l'atmosphère de H₂O ou CO₂.

- anémomètre ultrasonique Young 81000V

Deux couples de transducteurs sont alternativement émetteurs et récepteurs d'ondes ultrasonores. La mesure de la vitesse du vent repose sur la mesure de la différence des temps de transit des ondes émises induites par le flux d'air (LCJ Capteurs, France).

- analyseur CO₂/H₂O LI-7200

L'analyseur de CO₂/H₂O LI-7200 est un analyseur de gaz infrarouge non dispersif à grande vitesse et haute précision conçu pour des applications nécessitant des mesures rapides et fidèles de concentrations et de flux de CO₂ et H₂O (Li-Cor, USA).

Ces deux appareils enregistrent les données dans un fichier texte avec les concentrations - CO₂ et H₂O - exprimées en Volt, de 0 à 5 V. Des routines Fortran sont utilisées pour convertir les données en binaire afin de les utiliser avec un programme EdiRe (Damay, 2010).

- **Traitement des données de flux**

Le logiciel EdiRe permet de corriger les valeurs expérimentales de flux de turbulence (stabilité atmosphérique, limitations instrumentales, passage de véhicule à rejet carbonés). Pour utiliser EdiRe, un programme en langage Fortran est utilisé pour traiter les données issues de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague, et ainsi les rendre utilisables par le logiciel EdiRe. La correction des données expérimentales s'effectue en deux temps : la conversion des données mesurées puis la correction de ces données.

- **Conversion des données (routine FORTRAN)**

Les données expérimentales de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague sont utilisées par deux routines codées en Fortran (cf. annexe B.3) afin d'être utilisables par le logiciel EdiRe.

A partir d'une première routine, le programme Fortran traduit en langage binaire les mesures à une fréquence de 10 Hz nécessaire pour alimenter Edire. Par ailleurs, le programme permet de détecter les erreurs d'acquisitions. Prenons un fichier de mesures, dont chaque mesure est réalisée tous les 10 Hz. Dans un premier temps, le programme Fortran extrait les dates (heure, minute, seconde) pour chaque mesure. L'heure extraite correspond à l'heure indiquée par l'appareil de mesure, T_{app} . Dans un second temps le premier programme Fortran recalcule la date théorique $T_{théo}$ à partir du temps théorique au pas de temps précédent ($T_{théo-1}$), sachant que l'incrémentación est fixée à 10 Hz.

$$T_{théo} = T_{théo-1} + 10 \text{ Hz} \quad \text{Équation III.12}$$

L'erreur de l'appareil (**ERREUR**) correspond à la différence entre le temps affiché par l'appareil (T_{app}) et le temps de mesure théorique ($T_{théo}$).

$$\text{ERREUR} = T_{app} - T_{théo} \quad \text{Équation III.13}$$

Dans le cas où $\text{ERREUR} \geq (10\text{Hz} / 2)$, deux options sont considérées :

- si **ERREUR** < 10 Hz : Le temps de mesure T_{app} est remplacé par le temps théorique $T_{théo}$. La mesure est déclarée corrigée ;
- si **ERREUR** > 10 Hz : La valeur est considérée comme fausse. Le temps de cette mesure est fixé comme nouveau départ pour le temps théorique $T_{théo}$.

A présent si $\text{ERREUR} < (10 \text{ Hz} / 2)$, une comparaison est réalisée entre les données mesurées (les 3 vitesses composites du vent U, V et W ainsi que la température sonique) avec des valeurs tests de ces données mesurées. Ces valeurs tests sont fixées, et correspondent à un seuil maximal et minimal ($u_{test \max}$, $u_{test \min}$, $v_{test \max}$, $v_{test \min}$, etc.). Si une valeur mesurée n'est pas comprise entre les valeurs tests minimale et maximale (soit l'exemple de la variable U : $U < u_{test \min}$ ou $U > u_{test \max}$) alors la valeur mesurée est considérée comme fausse.

Puis les données issues de la première routine -au format texte- sont converties en binaires via une seconde routine afin d'être utilisable par le logiciel EdiRe.

- **Correction des données (EdiRe)**

Les données converties sont traitées sous le programme EdiRe, permettant d'appliquer trois corrections nécessaires à la bonne quantification des flux turbulents :

- correction de stabilité atmosphérique.

La mesure par Eddy Correlation repose sur l'hypothèse que l'air est turbulent au niveau de la zone de mesure, présente au niveau de la Couche Limite Atmosphérique (CLA). La CLA est définie comme étant la partie de la troposphère directement influencée par la surface terrestre (Stull, 1988). La partie de la couche limite directement en contact avec le sol est appelée couche de surface et représente environ 10 % de la hauteur de la CLA mélangée (Panovsky et Dutton, 1984). Dans la couche de surface, la turbulence de l'air (instable, neutre ou stable) ne dépend pas de chaque élément de rugosité mais d'une rugosité globale. Dans cette couche, les grandeurs caractéristiques de la turbulence sont décrites par la théorie de similitude de Monin-Obukhov (1954). L'hypothèse générale de cette théorie est que la variabilité de structure de la couche de surface peut se traduire par une variation de l'échelle des phénomènes. Les phénomènes sont alors identiques s'ils peuvent être représentés sous forme adimensionnelle (Damay, 2010). D'après Monin et Obukhov, les flux adimensionnés sont des fonctions du paramètre ζ (Équation III.14), qui est un paramètre de stabilité souvent utilisé (Damay 2010).

$$\zeta = \frac{z}{LMO} \quad \text{Équation III.14}$$

Avec z la hauteur de mesure (m) et LMO la longueur de Monin-Obukhov (m). Pour $\zeta < 0$ l'atmosphère est instable, lorsque $\zeta > 0$ l'atmosphère est stable. La neutralité est atteinte à $\zeta = 0$. LMO (Équation III.15) traduit une relation entre les processus dynamiques, thermiques et de flottabilité. LMO est proportionnelle à la hauteur de la couche de surface (Obukhov 1960 cité par Foken 1996).

$$LMO = \frac{u_*^2}{k \left(\frac{g}{T_0}\right) T_*} = \frac{-u_*^3}{k \left(\frac{g}{T_0}\right) \overline{w'T'}} \quad \text{Équation III.15}$$

Avec LMO la longueur de Monin-Obukhov (m), u_* la vitesse de frottement du vent ($m.s^{-1}$), $g.T_0^{-1}$ paramètre de flottabilité ($m.s^{-2}.K^{-1}$), w' la fluctuation turbulente verticale du vecteur vitesse ($m.s^{-1}$), T_* la température absolue virtuelle (K), T' la fluctuation de température (K) et k constante de von Kármán ($\approx 0,4$, sans dimension). Il est important de choisir une température moyenne appropriée (Maro, 2011). Le Tableau III.6 résume les différentes valeurs limites de $1/LMO$ pour différents couverts (maïs, herbe, sol nu).

Tableau III.6 : Classe de stabilité en fonction de l'inverse de la longueur de Monin-Obukhov sur différents couverts (Damay 2010). z_0 est un paramètre de rugosité du sol.

	Maïs $z_0 = 12 \text{ cm}$	Herbe $z_0 = 2 \text{ cm}$	Sol nu $z_0 = 0,1 \text{ cm}$
Instable	$1/LMO \leq -0,006$	$1/LMO \leq -0,012$	$1/LMO \leq -0,036$
Neutre	$-0,006 \leq 1/LMO \leq 0,004$	$-0,012 \leq 1/LMO \leq 0,013$	$-0,036 \leq 1/LMO \leq 0,037$
Stable	$0,004 \leq 1/LMO$	$0,013 \leq 1/LMO$	$0,037 \leq 1/LMO$

- correction co-spectrale.

Les flux calculés correspondent à une covariance entre un scalaire (concentration d'intérêt, dans notre cas CO_2 et H_2O) et la fluctuation de la vitesse verticale du vent w' . Les co-spectres sont une distribution par la fréquence de la covariance entre w' et un scalaire. Un co-spectre décrit la part de flux transportée à chaque fréquence (Burba et Anderson, 2010).

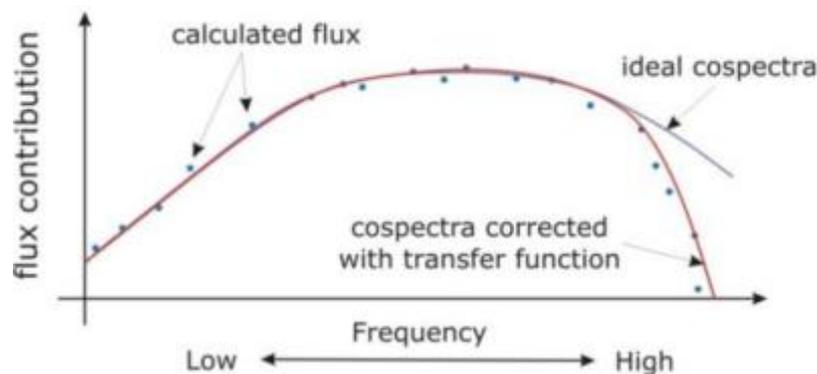


Figure III.13 : Représentation d'une courbe de co-spectre (Burba et Anderson, 2010).

Lors d'une mesure, il est important de prendre en compte l'atténuation de la covariance mesurée ou la perte de flux à haute fréquence. Ces atténuations peuvent être dues au temps de réponse des capteurs, à l'atténuation de tube de prélèvement, la séparation de capteur, etc. Les co-spectres mesurés sont localisés au-dessous des co-spectres idéaux, en particulier pour des fréquences plus hautes (Figure III.13). Les co-spectres idéaux peuvent être modélisés (Horst, 1997) ou obtenus par des co-spectres de flux de chaleur sensibles. Dans la mesure où les anémomètres ultrasoniques modernes sont capables d'échantillonnage très rapide, les erreurs sont relativement faibles.

En appliquant les corrections (la somme de fonctions de transfert) aux co-spectres mesurés, il est possible de calculer le flux correct. Les fonctions de transferts décrivent comment chacune de ces déviations affecterait des co-spectres idéaux et feraient baisser la courbe de co-spectres à chaque fréquence.

- correction de stationnarité (moyenne mobile).

Le passage d'une voiture à essence à proximité de l'appareil de mesure peut entraîner une augmentation forte et rapide dans le temps des mesures des flux de CO₂. Pour pallier ce problème, les données mesurées de flux à haute-fréquence sont moyennées sur 30 minutes car la turbulence atmosphérique est supposée fiable sur un pas de temps de 30 minutes (Mestayer, 2007). Une sous-moyenne de ces flux est réalisée toute les 5 minutes ; si une sous-moyenne de 5 minutes est supérieure à 30 % du flux moyenné sur 30 minutes, alors les données moyennées sur 30 minutes sont supprimées.

- correction de la zone d'étude.

En compléments de ces traitements décrits précédemment, deux autres corrections sont prises en compte liées à la zone d'étude :

- o la direction du vent : la zone de mesure étant partiellement entourée de haies, le vent provenant des haies transporte des molécules d'eau et de CO₂ issues de la transpiration et de la respiration de la haie voisine et non du ray-grass. Ainsi, seuls les flux acquis pour une direction de vent comprise entre 100° et 220° sont retenus, car ces flux ne sont pas impactés par le fonctionnement hydrique des haies (Figure III.14) ;
- o la stationnarité du vent. Considérons une donnée où la direction de vent est comprise entre 100° et 220° : si les directions de vent au pas de temps précédent et au pas de temps suivant (i.e. 30 minutes) ne sont pas comprises entre 100° et 220°, alors la donnée n'est pas retenue.

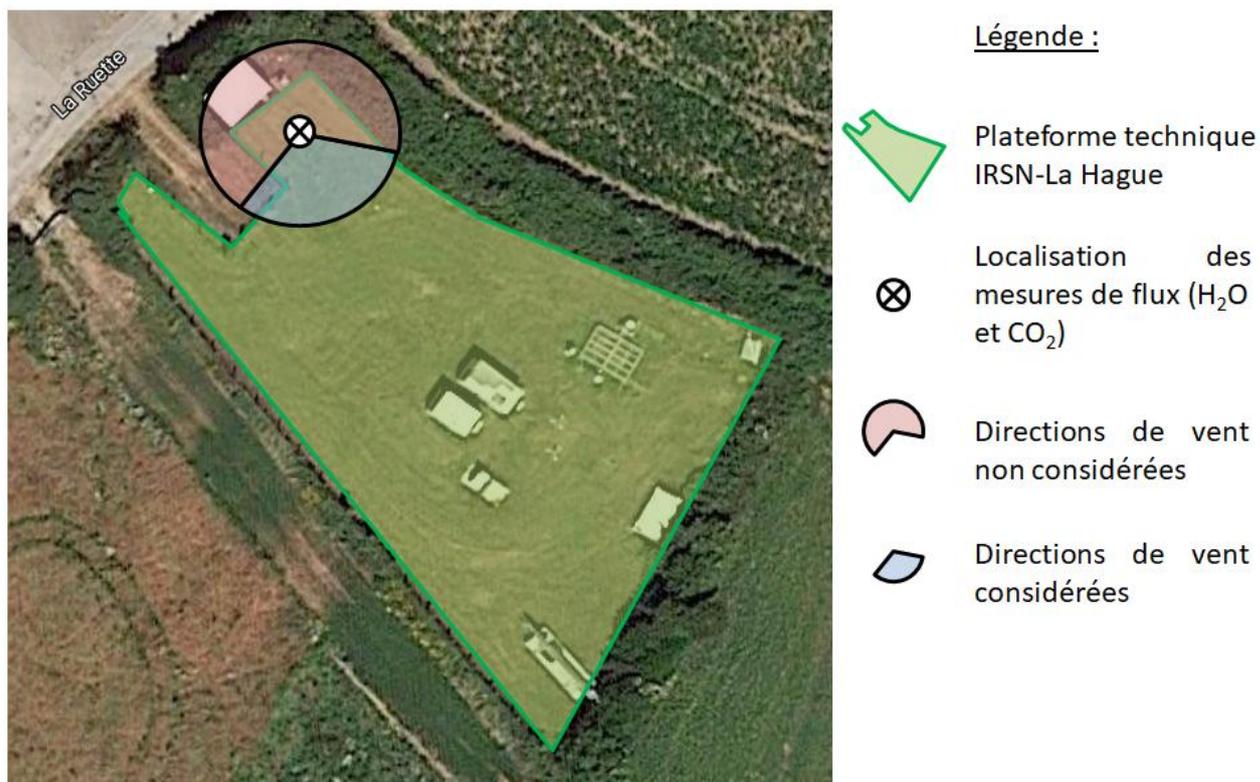


Figure III.14 : Illustration des directions de vent retenues pour la mesure de flux par la méthode des flux turbulents, à partir d'une vue satellite de la parcelle expérimentale.

III.1.5 Mesure du tritium dans les différents compartiments d'un écosystème prairial

Les prélèvements du tritium au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague ont été réalisés de juin 2013 à décembre 2016 dans le cadre du projet VATO. Au cours de ces trois ans d'acquisition de données et de mesures, les concentrations atmosphériques des formes HT et HTO sont obtenues à haute fréquence (pas de temps horaire) pour alimenter le modèle TOCATTA- χ . Les formes présentes dans l'environnement (HTO liquide lié aux précipitations, HTO du sol, TFWT et OBT au sein du ray-grass) sont déterminées régulièrement afin de confronter les sorties du modèle aux mesures de terrain (Tableau III.7).

Tableau III.7: Prélèvement des différentes formes tritiées présentes au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague.

Compartiment	Forme chimique	Méthode de prélèvement	Fréquence de prélèvement	Méthode de mesure
Atmosphère	HT	Barboteur MARC 7000	30 jours	Reconstruction ⁸⁵ Kr + scintillation liquide
	HTO (gaz)	H3R7000	48 heures	Reconstruction ⁸⁵ Kr + scintillation liquide
	HTO (liquide) (précipitation)	Préleveur automatique	48 heures	Reconstruction ⁸⁵ Kr + Scintillation liquide
Sol	HTO (liquide)	Préleveur automatique	48 heures	Scintillation liquide
Feuilles de Ray-grass	TFWT	Prélèvement manuel (coupe)	15 à 30 jours	Lyophilisation + scintillation liquide
	OBT	Prélèvement manuel (coupe)	15 à 30 jours	Lyophilisation + combustion + scintillation liquide

III.1.5.1 Formes atmosphériques gazeuses

- **Prélèvement et procédure de mesure de la concentration en HT présente dans l'air**

Pour mesurer les concentrations d'activité en HT dans l'air, les échantillons d'air sont collectés avec le système MARC 7000 (SDEC France). Le système MARC 7000 se compose de quatre biberons, les deux premiers biberons étant utilisés pour collecter HTO et les deux suivants pour collecter la forme HTO résultant de l'oxydation de HT et de composés organiques tritiés par un catalyseur composé de pastilles de palladium chauffées à 450°C dans un four tubulaire (Figure III.15). Il convient de noter que cette technologie ne permet pas de distinguer les formes tritiées HT des composés organiques tritiés (Maro *et al.*, 2017). Cependant, autour d'AREVA NC, seule la forme HT a été mesurée (Tableau I.8). Chaque mois, un échantillon de 10 cm³ est prélevé du collecteur (dans les biberons 3 et 4), puis envoyé au laboratoire. L'échantillon est ensuite mis en flacon, avec un ajout de 10 cm³ de liquide scintillant pour les mesures par comptage par scintillation liquide.

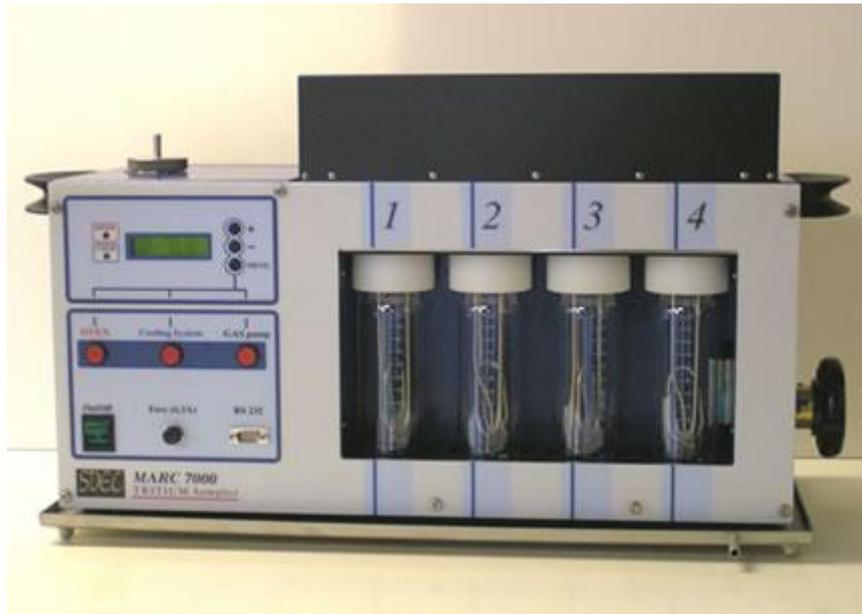


Figure III.15 : Photographie d'un système de prélèvement du HTO gazeux par barbotage (MARC 7000).

Les concentrations horaires de HT dans l'air découlent de mesures à intervalle mensuelle. Elles sont cependant reconstruites à une échelle plus fine à partir du ^{85}Kr . En effet, les éléments HT et ^{85}Kr sont rejetés de manière concomitante et uniquement par les deux cheminées principales UP2-800 et UP3 de l'usine AREVA NC-La Hague (Maro *et al.*, 2017). Ainsi, la mesure de l'activité du ^{85}Kr à haute fréquence (seconde) sur la plateforme technique, via l'utilisation d'un compteur proportionnel LB111, Berthold (Figure III.16), permet de reconstruire les concentrations horaires de HT au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague au pas de temps horaire. La méthode utilisée pour la reconstruction horaire est présente en annexe (cf. annexe B.4).



Figure III.16 : Photographie d'un compteur proportionnel à ^{85}Kr LB111, Berthold.

- **Prélèvement et procédure de mesure de la concentration en HTO présente dans l'air**

Les échantillons d'air prélevés pour mesurer les concentrations en activité HTO dans la vapeur d'eau de l'air sont recueillis toutes les 48 h. Ce système utilise l'appareil H3R7000 (SDEC France), qui collecte la vapeur d'eau de l'air au moyen d'un piège à froid (Figure III.17).



Figure III.17 : Photographie d'un système de prélèvement H3R7000 (PREVAIR).

Le H3R7000 est utilisé en combinaison avec un système d'échantillonnage séquentiel BL 2000 (Buhler). Pendant 55 minutes, le H3R7000 recueille la vapeur d'eau de l'air à l'aide d'un piège à froid, et après avoir réchauffé le piège à froid pendant 5 min, l'eau liquide est recueillie dans un conteneur de 10 L. Cette séquence de 1 h est répétée au fil du temps, de façon à ce qu'un échantillon moyen soit recueilli toutes les 48 h par le système BL 2000 (Figure III.18). Cette moyenne de 48 h était due à une limitation de la capacité de BL 2000 : l'appareil ne peut gérer que 24 bouteilles d'échantillon collecté, donc la récupération n'ayant lieu qu'une fois par mois, une période moyenne de 48 h est utilisée.



Figure III.18 : Illustration du système de prélèvement automatique BL 2000 (à droite), en complément du système de prélèvement H3R7000 de la vapeur d'eau de l'air (à gauche).

Enfin, toutes les 48 h, le conteneur de 10 L est vidé automatiquement et une nouvelle séquence de collecte commence. Un tube en verre est inséré à l'intérieur de chaque bouteille en plastique et fermé avec une balle de tennis de table (Figure III.19) pour éviter les contaminations croisées entre les échantillons. Le plafonnement par balle de tennis de table empêche les pertes de l'eau recueillie par évaporation. En outre, le système BL 2000 intègre une réfrigération à une température de 4°C.

Chaque mois, les échantillons sont récupérés (du système collecteur) et emmenés au laboratoire. Un volume de 10 cm³ d'eau est collecté dans chaque bouteille d'échantillonnage. L'échantillon est mis en flacon avec un ajout de 10 cm³ de liquide scintillant pour les mesures par comptage par scintillation liquide.



Figure III.19 : Illustration d'un flacon de prélèvement avec un bouchon flotteur.

Les concentrations de **HTO** dans l'air peuvent être estimées à pas de temps horaire à partir de trois paramètres : l'activité dans l'air du ⁸⁵Kr mesuré à haute fréquence, l'activité mensuelle rejeté de **HTO** de l'air, la direction du vent (cf. annexe B.4) et les mesures tous les deux jours. En effet, la vapeur d'eau tritiée (**HTO**) est relâchée par l'usine AREVA-NC non seulement par les deux principales cheminées UP2-800 et UP3 (émissions principales), qui sont concomitantes avec les rejets de ⁸⁵Kr, mais aussi dans une moindre mesure avec les rejets des usines D', STE2 et STE3 (émissions secondaires). Ces sources secondaires ne rejettent pas de ⁸⁵Kr (Maro *et al.*, 2017). Ces cheminées sont situées plus à l'ouest des bâtiments principaux (Figure I.19), donc leurs rejets impactent la plateforme technique lorsqu'au niveau de la plateforme technique le vent a pour origine 213°.

III.1.5.2 Formes liquides dans l'environnement

- **Prélèvement et procédure de mesure de la concentration en HTO présente dans l'eau de pluie**

Afin de mesurer les concentrations en activité d'HTO dans l'eau de pluie, les échantillons sont recueillis toutes les 48 h (si des événements pluvieux surviennent pendant cette période) avec un système similaire à celui décrit précédemment pour les concentrations en activité d'HTO dans la vapeur d'eau de l'air. Pour la collecte des eaux pluviales, le système est composé d'un pluviomètre de diamètre égale à 56 cm associé au système de collecte séquentielle BL 2000. Chaque mois, des échantillons sont prélevés du système collecteur et emmenés au laboratoire. Un volume de 10 cm³ d'eau est collecté de chaque bouteille d'échantillonnage, puis mis dans un flacon remplis de 10 cm³ de liquide scintillant pour les mesures par comptage par scintillation liquide.

La reconstruction au pas de temps horaire, en fonction de la concentration en ⁸⁵Kr et de la direction du vent, suit la même méthodologie que celle décrite au paragraphe précédent et de la concentration dans l'eau de pluie et de l'intensité des précipitations (cf. annexe B.4).

- **Prélèvement et procédure de mesure de la concentration en HTO présente dans le sol**

Le HTO de la fraction liquide du sol est prélevé automatiquement toutes les 48 h selon le dispositif BL 2000, décrit précédemment. Sur une surface au sol de 1 m², un drain placé à 0,20 m de profondeur permet de recueillir l'eau de percolation dans un réservoir sous-terrain (Figure III.20). Une vanne localisée sous le réservoir est ouverte toutes les 48 h, de façon à renouveler l'eau de percolation recueillie par le drain. Un préleveur automatique BL 2000 échantillonne tous les deux jours 50 mL de l'eau du drain, selon la méthode décrite par Maro *et al.* (2017). Ce prélèvement est réalisé avant que le réservoir souterrain évacue l'eau de percolation recueillie dans le sous-sol.

Chaque mois, des échantillons sont retirés du système collecteur et emmenés au laboratoire. Un volume de 10 cm³ d'eau est collecté de chaque bouteille d'échantillonnage, puis mis dans un flacon remplis de 10 cm³ de liquide scintillant pour les mesures par comptage par scintillation liquide.

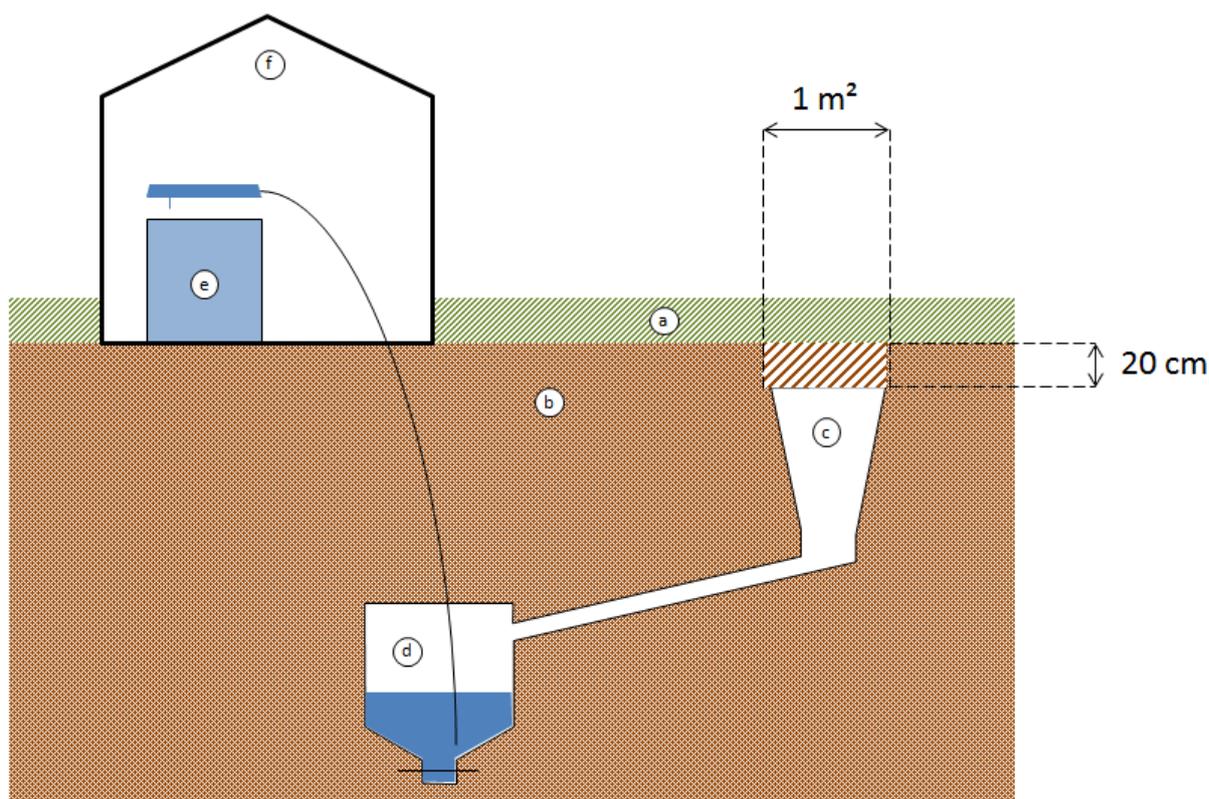


Figure III.20 : Représentation schématique du dispositif *in situ* de prélèvement automatique de HTO de l'eau liquide du sol. Avec (a) le couvert végétal ; (b) le sol ; (c) le drain ; (d) le réservoir d'eau du sol vidé toutes les 48 h ; (e) le préleveur automatique BL 2000 localisé dans le cabanon (f).

III.1.5.3 Formes présentes au sein de l'organisme végétal (TFWT et OBT)

Tous les 15 jours ou 30 jours (selon la vitesse de croissance de l'herbe), deux parcelles de 2 m² chacune (constituées de ray-grass, Figure III.21) sont coupées. L'herbe coupée est placée dans un sac vinyle qui est immédiatement scellé et stocké à l'obscurité dans un bac refroidisseur à une température de 4°C. Les coupes se produisent généralement le matin entre 9 heures et 11 heures UTC. La hauteur de coupe du ray-grass est en moyenne de 3 cm. Pendant le transport retour au laboratoire de Cherbourg, les échantillons sont conservés dans les mêmes conditions. De retour au laboratoire, le même jour, l'herbe est finement coupée avec des ciseaux métalliques et disposée sur des plateaux de **lyophilisation** en aluminium. Chaque plateau est placé dans un sac à vide en vinyle pour une congélation à -20°C. Cette phase préparatoire n'est réalisée qu'après avoir vérifié que le laboratoire n'est pas sous influence des rejets de tritium de l'usine AREVA NC La Hague (Maro *et al.*, 2017), qui peuvent éventuellement contaminer les échantillons par diffusion de la vapeur d'eau tritiée. En moyenne, le laboratoire est sous l'influence des rejets de tritium de l'usine AREVA NC La Hague 0,5 % du temps.



Figure III.21 : Photographie de la parcelle de ray-grass (plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague) où les prélèvements de d'herbe sont réalisés régulièrement.

La **lyophilisation** est réalisée selon la méthodologie proposée par Maro *et al.* (2017). Cette méthode est décrite ultérieurement dans le cadre des expériences réalisées dans cette étude (cf. § III.2.4). Les fractions **TFWT** et **OBT** sont mesurées selon les méthodes décrites précédemment (§ Formes chimiques tritiées dans les végétaux, p. 43).

III.2 Description du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$

III.2.1 Oxydation bactérienne du HT dans le sol

III.2.1.1 Démarche générale

L'objectif de cette étude est d'intégrer au modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ une équation d'oxydation du HT en HTO par les bactéries du sol. Ce processus est modélisé finement dans le cadre du modèle SOLVEG par une équipe de chercheur japonais (Ota *et al.*, 2007).

La vitesse d'oxydation du HT varie en fonction du type de sol (Conrad *et al.*, 1983, Golubev *et al.*, 2001). Plus précisément, cette oxydation est fonction de la température du sol ainsi que de la teneur en eau du sol, de la porosité et enfin de la distribution verticale des microorganismes oxydants (gradient de concentration bactérien) (Sweet *et al.*, 1981 ; Conrad *et al.*, 1983 ; Dunstall *et al.*, 1985 ; Bunnenberg *et al.*, 1986 ; Spencer *et al.*, 1994 ; Peterson *et al.*, 2002).

Dans le contexte de ce sujet de thèse, le principe consiste à utiliser des équations existantes d'oxydation du HT et modifier certaines valeurs de paramètres pour que ces équations d'oxydation soient applicables à notre site d'étude.

- **Modélisation existante**

Sur la base d'études en laboratoire d'oxydation du deutérium sous conditions contrôlées, Ota *et al.* (2007) proposent une équation empirique d'oxydation du HT en HTO dans les sols (Équation III.16). Chacun des termes et des unités présentes dans l'Équation III.16 à l'Équation III.22 sont décrites Tableau III.8.

$$v_{oxi} = v_{ref} \cdot f_w \cdot f_T \cdot f_z \cdot f_s \quad \text{Équation III.16}$$

Avec f_w la fonction de dépendance de la vitesse d'oxydation à la teneur en eau du sol :

$$f_w = \frac{v_{opt}}{v_{10\%}} \cdot \left(1 - \exp(-w_1 \cdot (\theta - \theta_1))\right) \cdot \left(1 - \exp(w_n \cdot (\theta - \theta_n))\right) \quad \text{Équation III.17}$$

Avec f_T la fonction de dépendance de la vitesse d'oxydation à la température du sol :

$$f_T = \frac{a_1}{v_{ref}} \cdot \exp\left(-\frac{a_2}{T}\right) \quad \text{Équation III.18}$$

Avec f_z la fonction de dépendance de la vitesse d'oxydation à la profondeur de sol :

$$f_z = \exp(-\lambda_z \cdot z) \quad \text{Équation III.19}$$

Avec f_s la fonction de dépendance de la vitesse d'oxydation à la concentration en HT du sol :

$$f_s = \frac{\chi}{\chi + \omega \cdot K_m} \quad \text{Équation III.20}$$

Où ω est :

$$\omega = c \cdot \frac{T_{stn}}{T} \quad \text{Équation III.21}$$

Et le paramètre de la réaction enzymatique de Michaëlis-Menten (K_m) est exprimé en fonction de la température :

$$K_m = b_1 \cdot \exp\left(-\frac{b_2}{T}\right) \quad \text{Équation III.22}$$

Les paramètres du modèle proposé par Ota *et al.* (2007) (rappelés Tableau III.8) sont basés sur l'étude d'un sol type andosol. Les andosols correspondent à des sols provenant de cendres

volcaniques. Ces sols de couleur sombre (en lien avec la présence de matière organique) renferment généralement une quantité significative d'aluminium et de fer (Baize et Girard, 2008).

Tableau III.8 : Description des différents paramètres et variables utilisés pour calculer la vitesse d'oxydation du HT en HTO.

Symbole	Signification	valeur	Unités	Références
a_1	constante	$1,8 \cdot 10^{-2}$	$\text{mol.kg}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$	Ota <i>et al.</i> , 2007
a_2	constante	$4,4 \cdot 10^3$	K	Ota <i>et al.</i> , 2007
b_1	constante	-	ppm	données expérimentales
b_2	constante	$3,7 \cdot 10^3$	K	Ota <i>et al.</i> , 2007
c	constante	$4,5 \cdot 10^{-3}$	$\text{mol.m}^{-3} \cdot \text{ppm}^{-1}$	Ota <i>et al.</i> , 2007
f_s	variable fonction de la concentration du substrat	-	-	Ota <i>et al.</i> , 2007
f_T	variable fonction de la température du sol	-	-	Ota <i>et al.</i> , 2007
f_w	variable fonction de la teneur en eau volumique du sol	-	-	Ota <i>et al.</i> , 2007
f_z	variable fonction de la profondeur de sol	-	-	Ota <i>et al.</i> , 2007
K_m	Paramètre de Michaelis-Menten	-	ppm	-
T	température du sol	-	K	-
T_{stn}	température de 1 mol d'air à 20° c et 1 atmosphère	273	K	Ota <i>et al.</i> , 2007
$v_{10\%}$	vitesse d'oxydation du D_2 à $\theta=10\%$	$5 \cdot 10^{-9}$	$\text{mol.kg}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$	Ota <i>et al.</i> , 2007
v_{oxi}	vitesse d'oxydation réelle HT	-	$\text{mol.kg}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$	-

V_{opt}	coefficient optimal pour D_2	$5,8.10^{-9}$	$mol.kg^{-1}.s^{-1}$	Ota <i>et al.</i> , 2007
V_{ref}	vitesse d'oxydation de référence de HT	$4,7.10^{-9}$	$mol.kg^{-1}.s^{-1}$	Ota <i>et al.</i> , 2007
w_1	coefficient pour D_2	28	-	Ota <i>et al.</i> , 2007
w_h	coefficient pour D_2	36	-	Ota <i>et al.</i> , 2007
z	profondeur de sol	-	m	-
θ	teneur en eau volumique du sol	-	$m^3.m^{-3}$	-
θ_1	teneur en eau volumique minimale du sol	5.10^{-2}	$m^3.m^{-3}$	données expérimentales
θ_h	teneur en eau volumique maximale du sol	$3,5.10^{-1}$	$m^3.m^{-3}$	données expérimentales
λ_z	constante	$1,4.10^1$	m^{-1}	Komuro <i>et al.</i> , 2002
χ	concentration en HT dans l'air du sol	-	$mol.m^{-3}$	-
ω	facteur de conversion	-	$mol.m^{-3}.ppm^{-1}$	Ota <i>et al.</i> , 2007

• Objectif de l'étude

Les sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{pré-thèse}$ concernant l'activité en tritium dans le sol - globalement sous-estimées par rapport aux mesures - peuvent être améliorées (cf. § 1.3.2.4). Dans le but d'améliorer le modèle existant et nos connaissances sur le processus d'oxydation bactérienne du HT dans le sol, une étude expérimentale est réalisée. Les objectifs de cette étude sont multiples :

- déterminer le paramètre K_m pour un sol commun en métropole française ;
- valider l'équation d'oxydation du HT en HTO en fonction de la profondeur ;
- déterminer la cinétique d'oxydation du HT en HTO en fonction du temps ;
- confronter les sorties du modèle avec des mesures *in situ* de HTO du sol.

L'importance du module d'oxydation bactérienne dans le calcul de HTO du sol est validée et sa contribution quantifiée avec une comparaison entre les mesures expérimentales et la modélisation.

III.2.1.2 Expérimentations

- **Prélèvement**

- *HT atmosphérique*

Les prélèvements de HT atmosphérique ont lieu à proximité de l'usine AREVA NC-La Hague (France), qui rejette du tritium sous forme HT et HTO (Maro *et al.*, 2017). Ces rejets sont concomitants avec les rejets de ^{85}Kr . Avec un capteur ^{85}Kr permettant la mesure du ^{85}Kr à haute fréquence, il nous est donc possible de détecter en temps réel la présence du panache de l'usine selon la méthode proposée par Maro *et al.* (2017). Le vent doit être stable (la direction et la force du vent doivent varier faiblement).

La période de cisaillement (qui correspond au rejet du ^3H) est d'environ 45 min, suivie de 15 min de changement de combustible. Dès que l'on observe la reprise du cisaillement (reprise des rejets de ^{85}Kr et de ^3H), Le prélèvement de HT est réalisé avec un compresseur d'air (Figure III.22).

Ce dernier permet de piéger l'air marqué de l'usine en éliminant par compression la vapeur d'eau de l'air (HTO). Ainsi, concernant les rejets tritiés, seule la forme HT est prélevée.



Figure III.22 : Illustration du prélèvement de HT au pied de l'usine AREVA-NC la Hague. Le prélèvement est réalisé avec des compresseurs d'air et un détecteur ^{85}Kr (image de droite).

- **Carottage de sol**

III.2.1.2...1 Conception

A partir de tubes PVC, des cylindres de différentes hauteurs (10 cm ou 25 cm) sont découpés. Deux trous -diamétralement opposés- sont percés à 2,5 cm d'une extrémité de ce tube. Ces trous permettent d'insérer une tige qui va faciliter l'extraction de la carotte au moment du prélèvement. Pour chaque expérimentation et lieu de prélèvement, trois types de carottes sont réalisées :

- une carotte témoin, afin de vérifier l'absence de HTO dans l'échantillon (activité en tritium du sol au bruit de fond) ;

- trois carottes de 5 cm d'épaisseur de sol, afin de déterminer en laboratoire l'oxydation bactérienne du HT dans les premiers centimètres de sols ;
- trois carottes de 20 cm d'épaisseur de sol, pour étudier en laboratoire l'oxydation bactérienne du HT dans la profondeur de sol où les racines sont le plus fortement présentes (Favaretto *et al.*, 2007 ; Malcolm *et al.*, 2014 ; Harrison *et al.*, 2017).

III.2.1.2...2 Prélèvement

Le sol utilisé pour les expériences de laboratoire est prélevé *in situ*, en dehors des zones d'influences des installations aux rejets tritiés. Le prélèvement est réalisé sur des terrains à aspect limoneux (le ressenti au toucher est un compromis entre un sol sableux et un sol argileux) à partir de carottiers en PVC de 10 cm de diamètre. Chaque carottier est enfoncé dans un sol à l'aide d'un marteau (Figure III.23). La carotte extraite est isolée de son environnement avec l'ajout d'un manchon (PVC) du côté « racine » du carottier (Figure III.23), et d'un parafilm côté « feuille » du carottier. La carotte, alors isolée des échanges avec l'air ambiant, est stockée dans une glacière le temps du transport puis dans un congélateur jusqu'à son utilisation pour les expérimentations en laboratoire.



Figure III.23 : Illustration d'un prélèvement de sol à l'aide d'un carottier. A gauche : enfoncement d'un carottier dans le sol pour prélèvement. A droite : manchon, placé à une extrémité du tube pour assurer son étanchéité.

Chaque sol prélevé (Tableau III.9) correspond à un sol agricole de type pâturage, dont le couvert végétal est du ray-grass. L'absence de culture intensive sur ces sols permet de faire l'hypothèse que ces sols sont riches en matière organique et azote. Nous considérons également que ces sols n'ont pas un pH acide en absence de forêt à proximité.

Tableau III.9 : Caractéristiques de carottage des sols utilisés pour les expériences en laboratoire.

N° d'expérimentation	Date de prélèvement	Lieu GPS (DMS)	Ville
1	04/04/16	48° 46'54.00"N 0° 40'43.800"W	Fresnes (France)
2	25/05/2016	49° 37'7.47"N 1° 21'7.569"W	Le Vast (France)
3	29/06/2016	49° 38'48.483"N 1° 38'41.516"W	Equeurdreville- Hainneville (France)

- **Chambre d'oxydation**

- **Description**

Le dispositif expérimental consiste en un sac étanche (Figure III.24) contenant des carottes de sol et du HT dans l'air du sac. Par mesure après un certain temps du HTO produit dans la carotte, il est possible de quantifier la cinétique d'oxydation du HT par les bactéries du sol.

Avant la mise en place des carottes dans le sac d'oxydation (Figure III.24), le carottier en PVC est redécoupé de façon à ce que ce dernier ne recouvre que la surface de sol (Figure III.25).



Figure III.24 : Illustration du dispositif expérimental d'oxydation du HT dans le sol.



Figure III.25 : Illustrations des carottes de sol utilisées dans le dispositif expérimental d'oxydation du HT dans le sol.

Le dispositif expérimental utilisé en laboratoire (Figure III.26) est constitué de trois éléments majeurs :

- la chambre d'oxydation : il s'agit d'un sac contenant les carottes de sols prélevés à l'extérieur (prélèvement décrit § III.2.1.2). Ce sac est constitué de plastique en TEDLAR® pour garantir son étanchéité. Les dimensions (300x400x500 mm³) permettent d'étudier l'oxydation de six carottes de sol par expérimentation. Après ouverture ou fermeture de la chambre d'oxydation, l'étanchéité du sac est assurée grâce à une pince clipante.

- l'injection de HT : l'injection continue d'air dans le dispositif expérimental est issue d'un prélèvement par compression dont la méthode est décrite § III.2.1.2. L'entrée d'air dans la chambre d'oxydation est régulée avec un débitmètre. Le sac décrit précédemment se gonfle au cours de l'injection jusqu'à atteindre une pression d'équilibre. Afin d'éviter toute contamination éventuelle du sac avec des traces de HTO, deux biberons sont utilisés en amont (« bubbling system ») pour piéger par affinité chimique le HTO potentiellement présent. Ainsi, seules les formes d'hydrogène HT et H₂O sont injectées en continu dans le sac. En aval du sac, un biberon permet d'empêcher l'air extérieur d'entrer dans le sac et d'évacuer le surplus d'air à l'intérieur de la chambre d'oxydation ;

- l'acquisition de différents paramètres expérimentaux : la présence de sondes placées dans une carotte témoin permet de suivre l'évolution de la température et la teneur en eau volumique au sein des carottes de la chambre d'oxydation. Un terminal LB123 placé contre le sac permet l'acquisition automatique de ⁸⁵Kr. La mesure en temps réelle du ⁸⁵Kr permet de suivre l'évolution du HT au sein du sac (Maro *et al.*, 2017). L'utilité du LB123 pour ce dispositif expérimental est double : contrôler l'étanchéité de la chambre d'oxydation (une perte du gaz injecté dans le sac se traduit par une baisse de l'activité ⁸⁵Kr enregistrée) et vérifier qu'il y a une mise à l'équilibre rapide au sein du sac (pas de variation de ⁸⁵Kr au cours du temps si ce dernier est à l'équilibre).

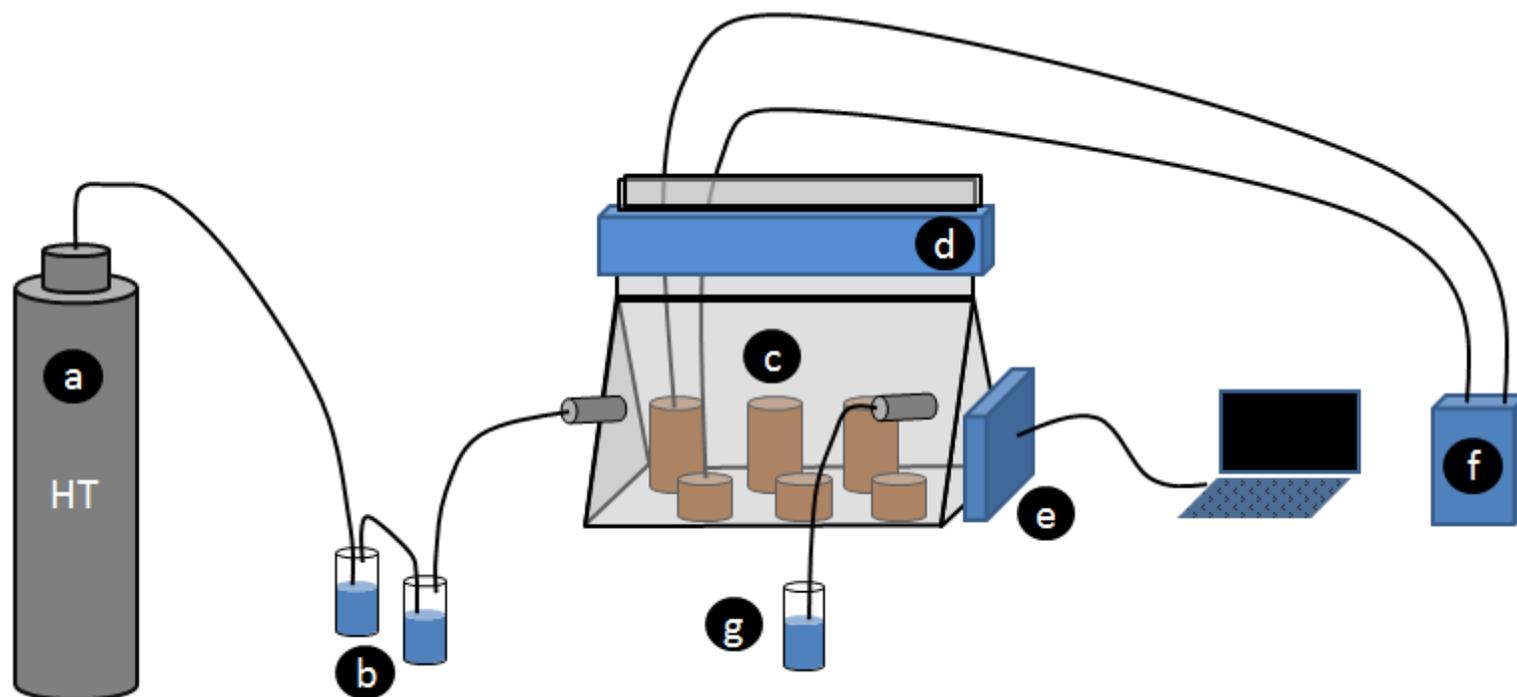


Figure III.26 : Représentation schématique du dispositif expérimental d'oxydation. a : bonbonne d'air HT (5 L sous 100 bars) ; b : biberons amont (piégeages des traces de HTO) ; c : carottes de sol (5-20 cm) ; d : pince clippante ; e : détecteur ^{85}Kr (LB123) ; f : station acquisition (température, teneur en eau volumique) ; g : biberon aval.

- **Sorties des carottes de la chambre d'oxydation**

Le laboratoire est situé à 17,53 km de l'usine AREVA NC La Hague (Figure III.27). Du fait de la proximité du laboratoire avec une installation nucléaire, certaines précautions sont prises en considération pour éviter ou corriger au mieux tout biais de contamination des échantillons. En fin d'expérimentation, le sac n'est ouvert que si le laboratoire n'est pas sous l'influence du panache de l'usine AREVA-NC. Cette influence potentielle est anticipée par la direction du vent et les rejets en ^{85}Kr , enregistré en temps réel (Maro *et al.*, 2017).



Figure III.27 : Situation du laboratoire par rapport à l'usine AREVA NC La Hague.

Lorsque l'expérience est terminée et l'influence de l'usine négligeable (i.e. direction du vent stable et d'origine différente de Nord-Ouest, activité enregistrée en tritium/ ^{85}Kr égale au bruit de fond), l'injection d'air dans le sac d'oxydation est suspendue, puis la pince clippante est retirée et les carottes extraites du sac. Les carottes sont filmées avec du parafilm, puis stockées temporairement dans une glacière. La glacière est ensuite placée dans le local approprié, où l'on coupe chaque carotte horizontalement en sous-carotte par un couteau métallique. Les différents échantillons obtenus sont disposés dans un plateau en aluminium (Figure III.28). Ce plateau est adapté au traitement par **lyophilisation** de par sa capacité aux échanges de chaleur et ses dimensions. Les plateaux sont disposés dans un sac plastique, soudés sous vide afin d'éviter toute contamination croisée par de l'air. L'échantillon doit être congelé dans un conteneur étanche à -80°C , selon certaines recommandations (DEI, 2008). Cette congélation permet d'optimiser le temps du traitement par **lyophilisation** ainsi que de limiter la décomposition de l'échantillon et tout échange avec l'air.



Figure III.28 : Illustration du processus du conditionnement en barquette des tranches de carottes de sol.

- **Mesure des formes tritiés**

- *HT*

Le HT prélevé dans l'air ambiant autour d'AREVA NC La Hague est mesuré par scintillation liquide, suite à une oxydation du HT en HTO par passage dans un barboteur (cf. § III.2.4.3).

- *HTO, TFWT*

Les échantillons sont ensuite placés au lyophilisateur pour extraire le HTO du sol. Pour chaque **lyophilisation**, on ne distingue pas les compartiments sol/feuille/racine. L'entrée et la sortie du lyophilisateur n'ont lieu que si le laboratoire n'est pas sous le panache de l'usine AREVA-NC (Maro *et al.*, 2017, cf. § III.2.4.3). L'appareil H3R7000 est démarré lors de la fin de la **lyophilisation**, afin de confirmer que l'air du laboratoire n'est pas marqué en tritium. L'eau des carottes (HTO) est récupérée après un certain temps de réchauffage, d'environ 1 heure. Les échantillons sont ensuite placés au lyophilisateur après 48 heures minimum de congélation. L'eau cellulaire (TFWT) est récupérée après 1 heure de réchauffage de la glace extraite de l'échantillon d'herbe lyophilisé.

La mesure par scintillation liquide est utilisée pour les échantillons tritiés liquides. La décroissance du tritium émet des particules qui vont exciter les molécules d'un liquide scintillant. Ces molécules scintillantes se dés excitent et émettent de la lumière détectable et quantifiable (Wood *et al.*, 1993 ; Cassette, 2004).

- **Paramètres étudiés**

- ***Etude 1: cinétique d'oxydation pour un sol commun en métropole***

Les roches ont trois origines possibles : sédimentaire, métamorphique ou magmatique. Ces origines conditionnent la nature et la texture du sol lors de sa formation. Le premier objectif est de

paramétrer l'équation d'oxydation du HT en HTO dans les sols (Équation III.16) pour que celle-ci soit applicable aux différents sols présents en métropole, en complément de l'étude de l'équipe japonaise sur les sols d'origine volcanique (Ota *et al.*, 2007).

- ***Etude 2: cinétique d'oxydation en fonction de la profondeur de sol***

L'étude de Ota *et al.* (2007) intègre une variation avec la profondeur (Équation III.19) de l'oxydation bactérienne du HT en HTO. Cette distribution bactérienne avec la profondeur (Figure I.8) peut varier avec les caractéristiques du sol, comme par exemple la vitesse de pénétration de l'oxygène. Nos expérimentations permettent de vérifier le domaine d'application de cette équation d'atténuation de l'oxydation du HT en fonction de la profondeur de sol.

- ***Etude 3: cinétique d'oxydation au cours du temps***

L'équation d'oxydation du HT proposée par Ota *et al.* (2007) n'intègre pas de paramètre traduisant une variabilité temporelle de la cinétique d'oxydation du HT. Pour des conditions d'expérimentation constantes, notre étude a pour objectif de vérifier l'hypothèse d'une cinétique de production de HTO dans le sol par oxydation linéaire avec le temps.

III.2.2 Transfert sol-plante (lysimètres)

III.2.2.1 Description

La plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague est équipée de deux lysimètres à toit amovible selon les conditions météorologiques (Figure III.29). Le toit amovible recouvre les lysimètres lorsque le temps est humide, via l'intermédiaire d'un capteur d'humidité. Ces lysimètres, de surface au sol de 1 m², correspondent à des bacs étanches de 25 cm de profondeur. Ces bacs sont remplis de sol de même nature pédologique que celui de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague (cf. § IV.1.2.1). L'ouverture de ces bacs au sommet permet un libre échange entre l'air et l'ensemble herbe et sol. Les lysimètres sont alimentés à leur base en eau de façon automatique, via une pompe et un réservoir externe de contenance 1000 L.



Figure III.29 : Illustration du lysimètre à toit découvrant par temps sec de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague.

III.2.2.2 Application aux transferts de tritium du modèle TOCATTA- χ

Le modèle TOCATTA- χ (décrit § 1.3.2.3) représente les processus qui régissent les transferts de tritium aux interfaces sol-air-plante. En accord avec les approches et hypothèses émises par Le Dizès *et al.* (2017), deux processus majeurs contribuent au marquage de l'eau libre des feuilles par le tritium (TFWT) :

- les échanges des activités en tritium entre l'eau cellulaire et la vapeur d'eau atmosphérique par diffusion de l'eau tritiée au travers des **stomates** des plantes. La résistance cuticulaire n'est pas considérée dans ces échanges car cette couche externe recouvrant les végétaux est imperméable. De plus dans le cadre des transferts des formes tritiées atmosphériques aux végétaux, la résistance stomatique prédomine sur les autres résistances du couvert végétal aux transferts de tritium sous forme gazeuse (Le Dizès *et al.*, 2017) ;

- l'assimilation racinaire de l'eau du sol, dont l'activité est fonction de l'infiltration des apports d'eau tritiée par précipitation.

A l'aide d'un capteur de pluie, les deux lysimètres sont recouverts automatiquement d'un toit en cas d'épisodes pluvieux, empêchant la pluie de rejoindre le sol et le ray-grass présent dans les lysimètres (Figure III.30). L'alimentation en eau des lysimètres est effectuée par un réservoir d'eau dont l'activité en tritium, constante dans le temps, est fixée à 110 Bq.L^{-1} . L'injection d'eau dans les lysimètres est réalisée toutes les 24 h à 48 h selon l'humidité du terrain.

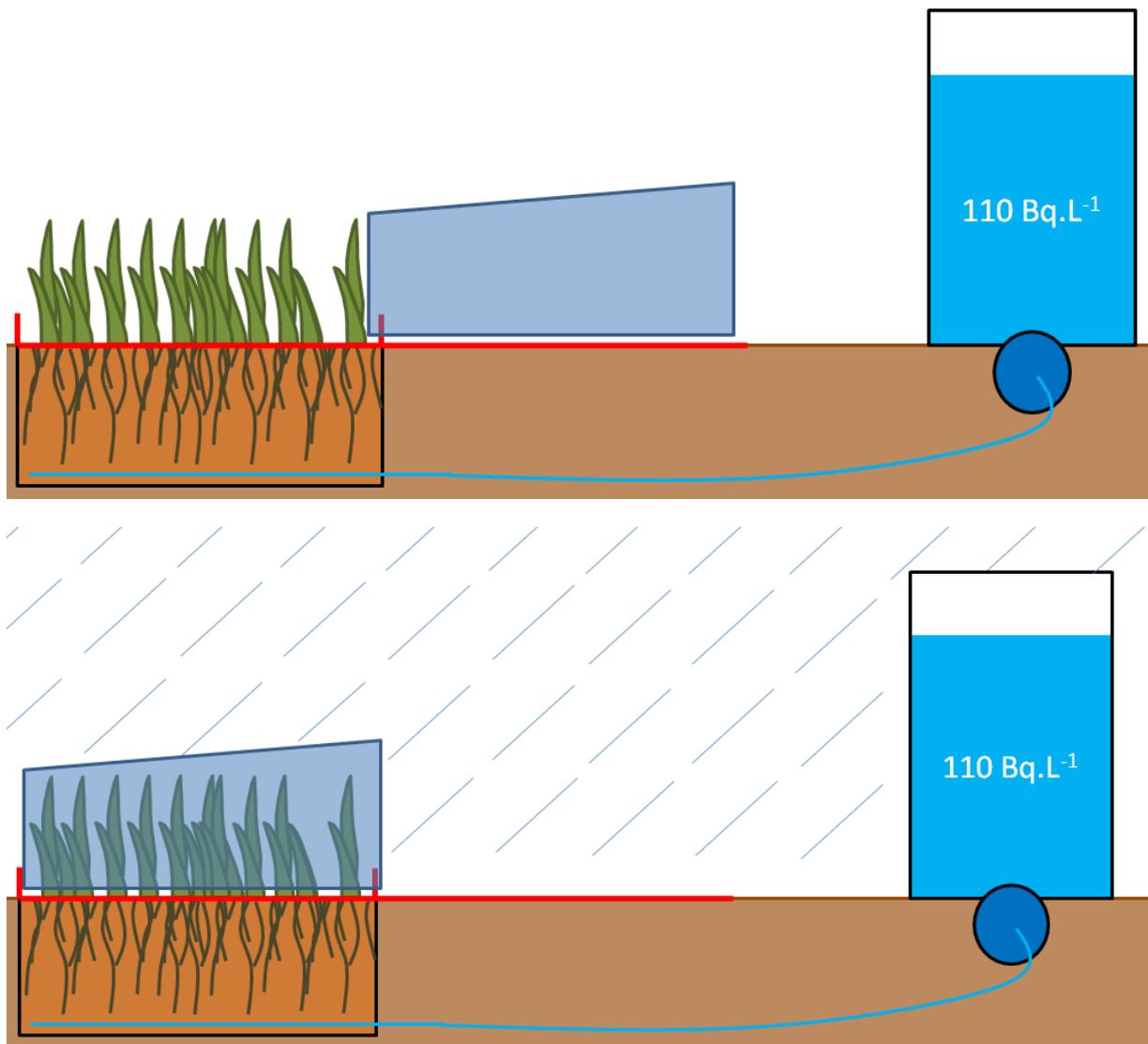


Figure III.30 : Représentation schématique du lysimètre à couverture automatique de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague. Le schéma du haut représente le lysimètre par temps ensoleillé et le schéma du bas représente le lysimètre par temps de pluie. L'alimentation en eau du lysimètre est effectuée par un réservoir d'eau à 110 Bq.L^{-1} .

Un prélèvement des parties aériennes du végétal, réalisé à fréquence mensuelle à semi-mensuelle, correspond à une coupe des feuilles pour la mesure de **TFWT** et **OBT**. La hauteur de coupe est de 3 cm pour une surface au sol de deux fois 1 m^2 . Les mesures de **TFWT** et **OBT**, réalisées au niveau des lysimètres de juin 2016 à juin 2017, permettent d'étudier la contribution au **TFWT** de l'atmosphère et de l'eau du sol hors influence de l'eau de pluie. Ces prélèvements de ray-grass s'accompagnent d'un carottage du sol des lysimètres, afin de mesurer l'activité de l'eau du sol au moment de la coupe.

Les conditions de stockage pour retour au laboratoire, de **lyophilisation** et de préparation à la mesure des échantillons prélevés au niveau des lysimètres sont identiques à celles décrites précédemment pour les échantillons de **TFWT**, **OBT** et carottes de sol issu des zones de prélèvement de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague (cf. § III.1.5.3).

III.2.3 Cinétiques de transfert végétal de la vapeur d'eau tritiée atmosphérique

III.2.3.1 Démarche générale

Le principal objectif de cette expérimentation consiste à déterminer des périodes biologiques exactes et vérifier que les cinétiques de marquage de **TFWT** et **eOBT** des végétaux par le **HTO** atmosphérique rejeté par l'usine AREVA NC La Hague (Maro *et al.*, 2017), en période nocturne et diurne, sont en accord avec les données présentes dans la littérature.

Le principe expérimental suit plusieurs étapes : (1) culture de ray-grass dans une ambiance non-marquée en tritium, (2) marquage pendant 1 heure avec **HTO** atmosphérique, (3) conditionnement (pour mesure ultérieure) après un temps de dépuración. Parmi les échantillons marqués, ce temps de dépuración est variable, de 0 minute à plus de 2 heures.

III.2.3.2 Expérimentations

- **Culture sous serre non marquée en tritium**

Une vingtaine de barquettes d'herbe de type ray-grass (même matériel végétal que celui décrit § Plant material used, p. 165) croît sous serre (Figure III.31) pendant 2 à 3 semaines. Chaque barquette contient environ 40 g de graine (poids frais).



Figure III.31 : Vue extérieure (photographie de gauche) et intérieure (photographie de droite) de la serre de culture.

Les barquettes d'herbe utilisées pour les expériences de marquages avec **HTO in situ** poussent dans la même serre que celle décrite précédemment pour la détermination du gain de masse sèche du

ray-grass dans les parties feuilles, graines et racines (cf. § Variation in ryegrass dehydrated mass over time, p. 165). Cependant dans la mesure où l'étude repose sur le marquage de végétaux au tritium, il est impératif que ces échantillons ne soient pas marqués au tritium au cours de leur croissance. Puisque le laboratoire peut être soumis aux rejets de l'usine AREVA NC-La Hague (Maro *et al.*, 2017), des mesures préventives sont adoptées. Pour éviter tout biais expérimental et s'assurer que l'herbe cultivée sous serre n'est pas marquée au tritium, un barboteur de grand volume est utilisé en association avec une pompe (Figure III.31). L'air extérieur à la serre est ainsi pompé puis injecté dans le barboteur (volume de 70 L, identique à celui utilisé dans la tente hydroponique (cf. § Tritium forms discrimination - hydroponic culture, p. 168)) qui contient de l'eau non marquée en tritium. Par dilution de la vapeur d'eau de l'air avec l'eau non marquée en tritium présente au sein du barboteur, l'air injecté dans la serre est saturé en vapeur d'eau non marquée en tritium.

De plus, pour s'assurer que ces précautions sont suffisantes pour obtenir des échantillons d'herbe non marqués, un échantillon blanc basé sur 2 barquettes d'herbe est réalisé avant chaque expérimentation.

- **Marquage des échantillons d'herbe**

Une tentative de marquage n'est réalisée que lorsque les conditions expérimentales sont favorables : direction du vent stable, vent suffisamment fort pour permettre le rabattement du panache de l'usine, pas de précipitation pour éviter les dépôts humides, usine en période de fonctionnement. Deux équipes constituées de deux personnes chacune sont mobilisées par expérience. Une première équipe s'occupe de localiser le panache tandis que la seconde s'occupe de la préparation des échantillons d'herbe. Ces deux équipes sont différenciées afin de ne pas marquer les échantillons de ray-grass lors de la recherche du panache.

Dès leur sortie de la serre, les barquettes d'herbe sont placées dans des sacs plastiques afin de limiter tout échange avec l'air ambiant lors du transport.

- **Recherche du panache de l'usine AREVA NC**

L'usine AREVA NC-La Hague traite le combustible nucléaire par cycle. Un cycle de cisailage avec émission de radionucléides, d'une durée moyenne de 30 minutes, et suivi d'une période de non rejets de 15 minutes correspondant au changement de combustible. Puisque les rejets de ^{85}Kr et de HTO sont concomitants (Maro *et al.*, 2017), la présence du panache est détecté avec l'appareil LB123. Le suivi en temps réel des chroniques des activités en ^{85}Kr (Figure III.32) sur un logiciel d'enregistrement permet de visualiser les périodes de cisaillement enregistrées et ainsi anticiper la période de reprise du cisaillement.

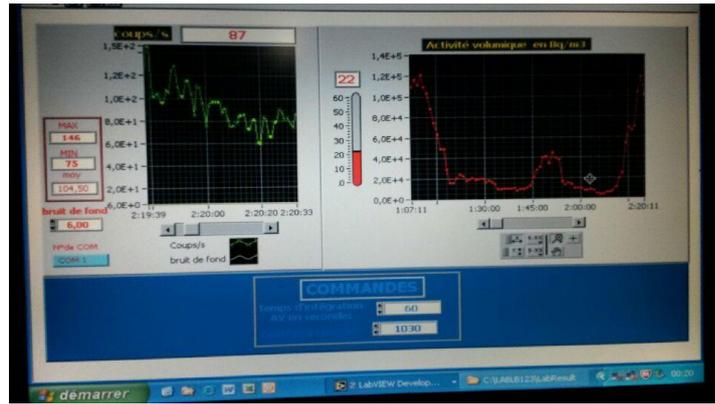


Figure III.32 : Illustration du suivi de la présence du panache. Le détecteur ^{85}Kr (LB123) est relié à un ordinateur (photographie de gauche). Les activités de ^{85}Kr sont présentées sous forme de chroniques afin d'anticiper la reprise d'un cycle de cisaillement de combustible radioactif par l'usine AREVA NC (photographie de droite).

Marquage in situ

Lorsque le panache est détecté, que le vent est stable (en termes d'intensité et de direction) et enfin qu'un cycle de cisailage reprend, l'équipe en charge des échantillons d'herbe rejoint l'équipe en charge de la traque du panache. Dès lors, les échantillons d'herbe sont exposés au panache (Figure III.33) et un cycle de H3R7000 (SDEC France) est programmé : 55 minutes de piège froid et 5 minutes de réchauffement. La phase de marquage correspond au cycle froid du H3R7000, c'est-à-dire 55 minutes après le début du marquage.



Figure III.33 : Illustration de l'exposition des barquettes d'herbe (photographie de gauche) au panache (photographie de droite) le temps d'un cycle d'une heure de H3R7000.

- ***Epuration in situ***

Dès la fin du cycle froid du H3R7000, les barquettes sont chargées aussi rapidement que possible dans le camion laboratoire, afin d'être emmenées dans une zone non marquée en tritium, où les vents provenant de l'usine AREVA NC-La Hague ne portent pas. Une phase d'épuration des

barquettes marquées au tritium suit la phase de marquage. Une fois arrivées au site d'épuration (situé à environ 10-15 minutes du lieu de marquage), un autre cycle de H3R7000 est réalisé au cours de cette phase d'épuration pour s'assurer que les échantillons ne sont pas exposés à une atmosphère marquée en tritium (Figure III.34).



Figure III.34 : Photographie des barquettes d'herbe lors de la phase d'épuration.

Le temps d'épuration de chaque barquette est variable, de 0 minute (conditionnement sur le lieu de marquage, juste après la fin du marquage) à plus de 2 heures selon l'expérimentation. Dès lors que la phase de marquage est terminée, un échantillon est conditionné : celui-ci correspond à la partie végétale aérienne de deux barquettes, soit environ 30 g de poids sec ou 150 g de poids frais.

Le conditionnement d'un échantillon est similaire au protocole décrit § III.2.4.3 : les échantillons sont coupés, placés dans des sacs plastiques, soudés sous vide puis stockés dans une glacière portable jusqu'au retour au laboratoire où les échantillons seront alors stockés au congélateur.

Afin d'éviter tout marquage non-désiré, le matériel utilisé pour le conditionnement des échantillons (soudeuse, glacière, sacs plastiques pour le conditionnement) est entreposé sur le lieu d'épuration lors de la phase de marquage.

- **Précautions lors du retour au laboratoire**

Une fois de retour au laboratoire, les échantillons scellés sous vide sont entreposés au congélateur du laboratoire. Par la suite, les fractions **TFWT** et **OBT** sont séparées à l'aide d'une **lyophilisation** puis les différents échantillons sont envoyés à la mesure. Les mêmes précautions que celles décrites § III.2.4.3 sont appliquées, à partir de la phase de stockage des échantillons dans le congélateur du laboratoire en préparation de la **lyophilisation** jusqu'à la mesure.

- **Nombre de campagne**

Au cours de cette étude sur la cinétique d'assimilation du tritium dans les végétaux par voie atmosphérique, cinq campagnes expérimentales sont réalisées en période nocturne et une campagne est réalisée en période diurne (Tableau III.10). En raison du caractère aléatoire des expérimentations de terrain (maintenances imprévues de l'usine, changement de l'intensité du vent non prédit par les modèles météorologiques), deux expérimentations nocturnes et une expérimentation diurne ont abouti (Tableau III.10), permettant une comparaison des cinétiques d'épuration avec les valeurs présentes dans la littérature (cf. § I.2.3.2).

Tableau III.10 : Détails sur les expérimentations réalisées pour l'étude de la cinétique d'assimilation du tritium dans les végétaux par voie atmosphérique.

N° d'expérimentation	Période	Date	Aboutissement du marquage par le panache
1	Nocturne	12/07 au 13/07 2016	OUI
2	Nocturne	31/08 au 01/09 2016	NON
3	Nocturne	07/09 au 08/09 2016	NON
4	Nocturne	08/12 au 09/12 2016	OUI
5	Nocturne	19/01 au 20/01 2017	NON
6	Diurne	26/01/ 2017	OUI

III.2.4 Discrimination des formes tritiées dans la matière organique végétale (from Renard *et al.*, 2017)

La discrimination des formes tritiées au sein d'un végétal est une variation de la distribution d'un isotope dans un environnement. La discrimination isotopique des formes du tritium par rapport à celle du protium est insignifiante à l'échelle de l'écosystème (McFarlane, 1976). Cependant, la littérature indique que cette discrimination isotopique n'est plus insignifiante à l'échelle d'un organisme ou d'un sol (McFarlane, 1976), en raison de la grande différence de masse de ces deux isotopes d'hydrogène (Belot *et al.*, 1996 ; Diabaté et Strack, 1993). Dans notre étude, la discrimination des formes végétales tritiées (**OBT** et **TFWT**) est définie comme le rapport entre **OBT** et **TFWT**. Dans la littérature, il existe une disparité majeure dans les valeurs attribuées à la discrimination des formes tritiées au sein des végétaux (Melintescu et Galeriu, 2017) - à la fois pour les résultats issus d'expérimentations *in situ* (Hisamatsu *et al.*, 1987, 1989 ; Inoue et Iwakura,

1990 ; Amano *et al.*, 1995 ; Kotzer et Workman, 1999 ; Davis *et al.*, 2002, 2005 ; Korolevych *et al.*, 2014) et issus d'expériences de laboratoire (McFarlane 1976 ; Spencer et Dunstall, 1984 ; Kim et Baumgärtner, 1994 ; Baumgärtner *et al.*, 2001 ; Boyer 2009) - avec un ratio moyen de $1,92 \pm 1,42$ ($k = 2$) (Jean-Baptiste *et al.*, 2011) ou $1,32 \pm 0,83$ ($k = 2$) (Le Goff *et al.*, 2014). Cette disparité entraîne une incertitude dans les résultats obtenus en utilisant des modèles de transfert de tritium qui utilisent la valeur de discrimination des formes tritiées pour estimer le **OBT** formé à partir de **TFWT**. Des études récentes sur le rapport **OBT** / **TFWT** mettent en évidence l'importance des processus éco-physiologiques dans le calcul de **OBT** des feuilles avec précision (Strack *et al.*, 1995 ; Ota *et al.*, 2011). À l'heure actuelle, seule la matière carbonatée produite au niveau des feuilles et qui est transférée aux graines à la récolte (Translocation Leaf Index, Diabaté et Strack, 1997) est présente dans les modèles existants. Cet échec à considérer les transferts entre tous les organes de la plante individuelle signifie qu'il n'est pas possible de créer un modèle rigoureux de **OBT** (Boyer *et al.*, 2009 ; Strack *et al.*, 1995).

III.2.4.1 General approach

Hydroponic cultures are grown from seed in a controlled atmosphere with constant tritium activity level for both HTO in atmospheric water vapour and HTO in liquid, to assess tritium forms discrimination in ryegrass (Figure III.35).

OBT activity in the seeds is different from HTO in the hydroponic box because the activity level of the neOBT fraction reflects activity in the environment in which it is grown. The seeds used for the cultures in the laboratory are commercially available seeds, from a farm with unknown tritiated environment. To factor in the processes of translocation and allocation of organic assimilates, an eco-physiological model is developed based on knowledge of photosynthetic assimilate flow and the allocation of matter. The model integrates fast exchange of tritium with the exchangeable fraction of OBT in the leaf, seed and root compartments.

Comparing the experimental results for tritium (TFWT and OBT in leaves, seeds and roots) with the results obtained from the eco-physiological model developed makes it possible to determine theoretical tritium forms discrimination in a plant. The model's predictive power is calculated on the basis of the relative mean deviation between the model predictions and the experimental data. This relative mean deviation is weighted by measurement uncertainties so that a measurement with a low degree of uncertainty would have greater impact than a less accurate measurement.

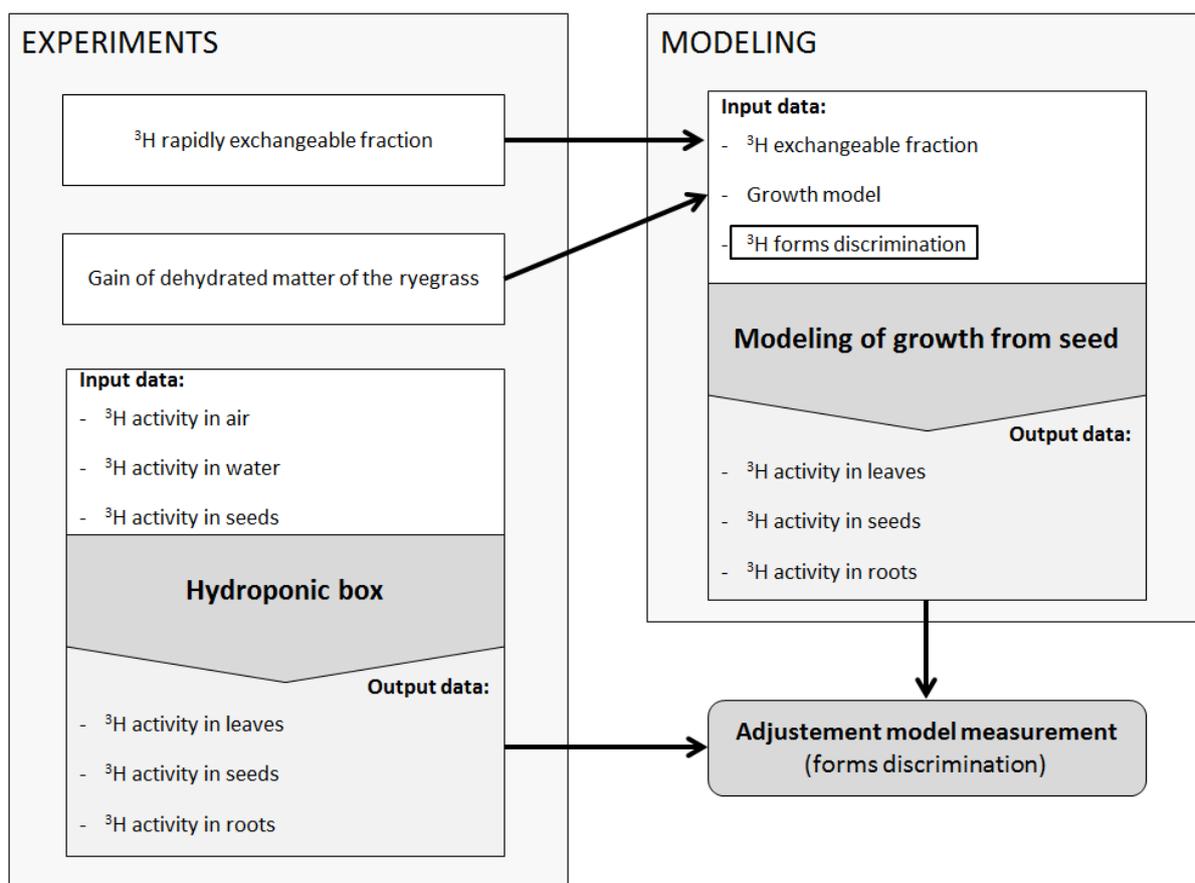


Figure III.35 : Conceptual representation of the method used to determine tritium forms discrimination in plant organic matter.

III.2.4.2 Eco- physiological experiment set-up

- **Plant material used**

The plant material used is an herbaceous plant of the Poaceae family, *Lolium perenne* L, called ryegrass. This plant is easy to grow and is representative of herbaceous plants found in grasslands. The batch of seeds used for the experiments contained various varieties: 20 % "NERUDA 1", 35 % "Fabian", 20 % "STRAVINSKY", 20 % "ESSENCE" and 5 % not specified. This plant is used in all the different experiments described below.

- **Variation in ryegrass dehydrated mass over time**

The aim of these cultures is to determine variation in the ryegrass dehydrated matter over time, to set the parameters for the equations used to calculate the variation in dehydrated mass of the seed, leaf and root organs (see Section Mathematical model, Equation III.37). The ryegrass seeds are placed in aluminium trays containing a base of non-tritiated water (activity less than 1 Bq.L^{-1}), in a greenhouse. Every 24 hours from the time of planting, one hundred individual plants are extracted from a tray and cut into the three organs: leaf, seed and root. A halogen moisture analyser (Metler

Toledo HB43-S) is used to measure the average mass of each organ of these hundred individual plants. Dehydrated mass measurement is stopped eighteen days after planting, due to the appearance of mould.

III.2.4.3 Experimental set-up for tritium

- **Proportion of tritium readily available for exchange**

The plant material used is the same as that described in Section III.2.4.3. The experiment is based on the principle of measuring enrichment by the presence of organically bound tritium in added water that is not initially tritiated. To begin with, the samples are tritium-labelled during a 24 hours period by agitation in the funnel (with 250 ml of labelled water at $4570 \pm 160 \text{ Bq.L}^{-1}$ and approximately 2 g and 50 g of dehydrated matter for leaf and seed respectively). The tritium-labelled organic samples are then freeze-dried, and the sample of dehydrated matter is then used for a second agitation in a new funnel for 24 hours with 500 mL non-labelled water (where the activity level of the water is less than 1 Bq.L^{-1} , it is assumed to be zero in the equations). Tableau III.11 shows the dehydrated mass of seeds and leaves used for tritium-labelling in ryegrass.

Tableau III.11 : Experimental parameters used to determine the eOBT fraction in ryegrass.

eOBT experiment	Sample	Mass (dehydrated weight, in g)
1	Seed	50,4
2	Seed - check a	50,0
	Seed - check b	50,0
3	Leaf	2,6
4	Leaf	2,7

An electric agitator is used to continuously agitate the 500 mL glass funnels containing water and the plant samples (leaves or seeds). The leaves used had been grown in the same non-tritium-labelled greenhouse as that mentioned above (in Section Variation in ryegrass dehydrated mass over time). Given that the roots are formed of organic compounds from the seed and the leaves, it is assumed that the exchangeable OBT (eOBT) fraction in the roots will be the same as the eOBT fraction in the leaves.

The experimental set-up is based on the following assumptions: (1) on one hand, the exchange kinetics of the neOBT fraction take long enough not to modify the neOBT activity during this experiment (neOBT independent of plant and ambient activity); on the other hand, the entire eOBT

fraction quickly attains equilibrium with the activity level of the water in the environment, provided the latter is present in sufficient quantities; (2) The experimental set-up is assumed to be hermetically-sealed against any loss of tritium activity. Equilibrium is attained only between two matrices, the water in the funnel and the fraction available for exchange in the grass sample. The fraction available for exchange in a sample (denoted as a) can therefore be determined as we know the mass of the plant sample (dehydrated weight), the mass percent fraction of hydrogen in organic matter and water, the activity of the tritium-labelled water, the activity of the initial rinse water, the activity of the water in the funnel after rinsing the tritium-labelled plant sample for 24 hours (Equation III.23).

$$Act_{funnel} = \frac{Act_{labelled\ water} \cdot (a \cdot m_{sample} \cdot H_{OM} \cdot WEF) + Act_{rinsed} \cdot (m_{rinse\ water} \cdot H_{water})}{a \cdot m_{sample} \cdot H_{OM} \cdot WEF + m_{rinse\ water} \cdot H_{water}} \quad \text{Equation III.23}$$

The fraction available for exchange in a sample (a) is then deduced as follows:

$$a = \frac{m_{rinse\ water} \cdot H_{water} \cdot (Act_{funnel} - Act_{rinsed})}{m_{sample} \cdot H_{OM} \cdot WEF \cdot (Act_{labelled\ water} - Act_{funnel})} \quad \text{Equation III.24}$$

The symbols used in the equations above are explained in

Table III.12.

A second method for determining eOBT is used to support the robustness of the protocol used to determine the exchangeable fraction. This involved two measurements of OBT using two different labelling environments (OBT₁ and OBT₂ respectively, Equation III.25):

- after 24 hours of labelling ($44,19 \pm 2,18 \text{ Bq.L}^{-1}$), three rinses, 24 hours exchange with activity of the water $<1 \text{ Bq.L}^{-1}$;
- after 24 hours of labelling ($<1 \text{ Bq.L}^{-1}$) followed by 24 hours of rinsing.

This gives the following system of equations:

$$\begin{cases} OBT_1 = a \cdot (eOBT_1) + (1 - a) \cdot neOBT_1 \\ OBT_2 = a \cdot (eOBT_2) + (1 - a) \cdot neOBT_2 \end{cases} \quad \text{Equation III.25}$$

neOBT is assumed to be constant since it is not exchangeable with its environment during the period of time in question. Solving this system of equations gives:

$$a = \frac{(OBT_2 - OBT_1)}{(eOBT_2 - eOBT_1)} \quad \text{Equation III.26}$$

Table III.12 : Variables and parameters used to calculate the fraction available for exchange.

Symbol	Meaning	Value	Units
a	Exchangeable fraction between 0 et 1	calculated	-
Act _{labelled water}	Activity of labelled water	4573±164	Bq.L ⁻¹
Act _{rinsed water}	Activity of rinsed water	<1	Bq.L ⁻¹
Act _{funnel}	Activity of water in the funnel, after rinsing	measured	Bq.L ⁻¹
H _{OM}	Mass percent fraction of hydrogen in organic matter (dehydrated weight)	0,06	-
H _{water}	Mass percent fraction of hydrogen in water	0,11	-
m _{sample}	Mass of the sample (dehydrated weight)	2-50	g DW
m _{rinse water}	Mass of the rinse water present in the funnel	250-300	g water
eOBT	Exchangeable fraction of Organically Bound Tritium	measured	Bq.L ⁻¹
neOBT	Non-exchangeable fraction of Organically Bound Tritium	measured	Bq.L ⁻¹
OBT	Organically Bound Tritium	measured	Bq.L ⁻¹
Weq	Water Equivalent Factor (from IAEA 2010)	0,55	L.kg ⁻¹

- **Tritium forms discrimination – hydroponic culture**

Hydroponic culture of ryegrass is used to obtain experiment-based values for TFWT and OBT in the plant, in a constant tritiated environment. The experimental set-up (Figure III.36) consists in a hydroponic box, two MARC7000 bubbling systems (SDEC France), a vinyl tent, a lighting system ("Solar tropic T8" and "Solar Natur T8", 36W, JBL Germany), a sensor data recording terminal, a 70 L can of tritiated water, and a vacuum sealing machine. The volume of the hydroponic box is 825x630x850 mm³. There are two parts to the set-up: a lower opaque part (natural High Density PolyEthylene or PE-HD) containing tritiated water (the "water compartment") and an upper clear part (clear Poly(Methyl MethAcrylate) or PMMA) so that the plants are exposed to the light from outside the hydroponic box (the "air compartment"). A two-tier sieve system (mesh of 2x2 mm²) rests on a float, inside the box. The porous material of the float is protected by a heat-sealed cover (Figure III.36). The growing box is leaktight thanks to a combination of toggle hooks and a 5 mm flat seal. The hydroponic box also has two valves, outside the box at the bottom of the container. The

first valve is used to drain the box and the second for regular sample taking. An NPK fertiliser solution is added in the "water compartment" to encourage plant growth (13 % total nitrogen (N) in the form of uric acid, 4,5 % water-soluble phosphorus pentoxide (P_2O_5), 7,5 % water-soluble potassium oxide (K_2O)). The water is pH neutral (pH = 7).

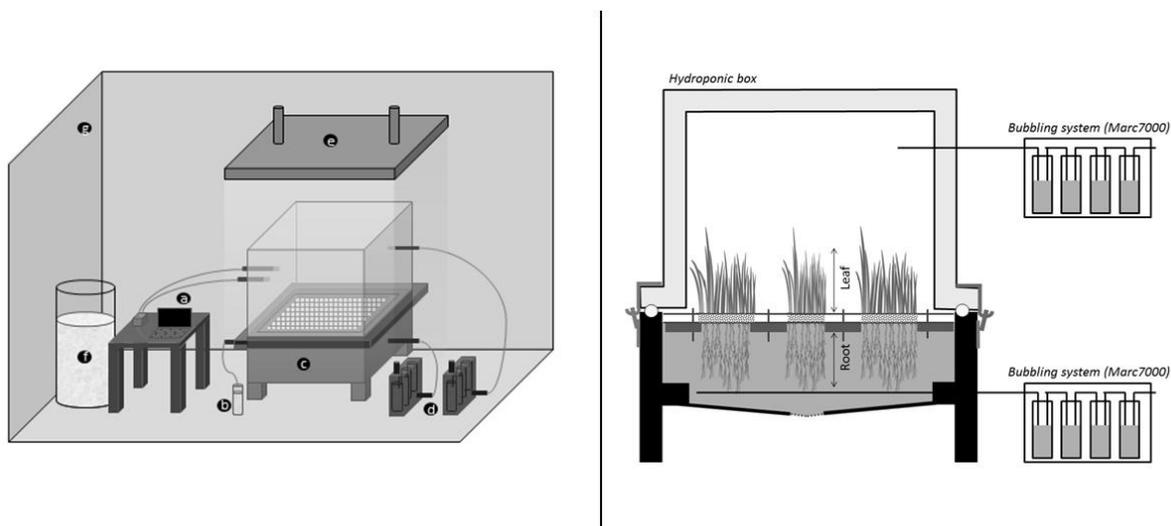


Figure III.36 : Schematic representation of the hydroponic box. On the left: Isometric view of the hydroponic growing device. The set-up consists of a data recorder -photosynthetically active radiation, temperature, relative humidity- [a], downstream bubbling system [b], hydroponic box [c], upstream bubbling system [d], light [e], bubbling can volume of 70L [f], protection tent [g]. On the right: Sectional view of the hydroponic box with the air injection system (Marc7000) in the "water" -root zone- and "air" -leaf zone- compartment.

Ambient air is injected into the hydroponic device to ensure the presence of gases (O_2 and CO_2) required for plant growth. This air from outside the hydroponic box is pumped by the MARC 7000 system: the air passes through four bottles containing water that has the same activity as the water in the hydroponic box (Figure III.36). The first two bottles collect the HTO in the air. The MARC 7000 oven is not activated so as not to oxidise the HT in the air and thereby enrich the last two bottles with HTO. Two MARC 7000 systems are used to inject air: the first injects air into the box's "water" compartment, while the second injects air into the box's "air" compartment. Air is injected uniformly into the "water" compartment by being passed through a perforated tube ring. The total volume of the box is 440 L and air is injected into the box by the two bubbling systems at a flowrate of $30 \text{ L}\cdot\text{h}^{-1}$ (Table III.13), so the air inside the box is renewed every 15 hours. The air injected in the box thus contains water vapour which has activity equal to the activity of the water in the box (liquid or gaseous). This system prevents any enrichment or dilution of HTO activity in the hydroponic culture environment by the activity in the water injected from outside the hydroponic system. The air exits via a valve system located above the "water" compartment, and ends up in the hydroponic box in a bottle containing unlabelled tritium water.

Sensors (Figure III.36) installed at mid-height in the "air" compartment record the following parameters inside the box at five or ten minute intervals: temperature, Photosynthetically Active Radiation (PAR), and relative humidity. The experimental apparatus is set up in a ventilated room. The temperature in the hydroponic box is kept at approximately 20°C. The temperature difference between daytime and night-time is around 1°C. Light energy comes from six neon lights placed one meter above the hydroponic box. Three of these neon lights are "natural" light sources, with a light spectrum similar to that emitted by the sun and with colour temperature of 9000K, while the other three are "tropical" light sources, with colour temperature of 4000K. All the neon lights reproduce the full light spectrum needed for photosynthesis. Due to the transpiration of the plants plus the hydroponic aspect of the growing system, relative humidity rapidly reaches 100 % of the water content in the air, i.e. the air is saturated with water. This threshold is reached in three days.

The different parameters related to six hydroponic cultures are given in Table III.14, while Table III.15 shows the different tritiated activity levels in the course of the six hydroponic experiments (for details see Appendix C1). To ensure that HTO activity is constant over time inside the hydroponic box, a sample of liquid water is taken from the "water" compartment at regular intervals (Table III.15). Tritium activity in the water in the bottles is also checked (Table III.15). In spite of the size of the growing box, the dehydrated weight of the roots obtained at the end of the growing process remains low (Table III.14), which impacts on the measurement of tritium bound in the plant root organic matter.

Table III.13 : Description of the parameters measured in the six hydroponic culture experiments. Where a parameter is variable over the course of an experiment, it is given by the arithmetic mean calculated using the N values recorded. Minimum and maximum values of these of N data series are given between square brackets. PAR stands for Photosynthetically Active Radiation.

Hydroponic experiment No.	Length of hydroponic culture (days)	PAR during daylight inside the box ($\mu\text{mol photons m}^{-2} \text{s}^{-1}$)	Relative humidity inside the box (%)	Temperature inside the box ($^{\circ}\text{C}$)	Injection rate from upstream bubbling system to "water" compartment of box (L.h^{-1})	Injection rate from upstream bubbling system to "air" compartment of box (L.h^{-1})	Time for exchange between water in bubbling system can and water vapour in the air in the tent (days)
1	18	23.7	99.7 [85.6-100.0]	22.2 [18.6 - 26.4]	30.0	20.0	18
2	18	23.7	98.5 [50.8-100.0]	20.5 [17.8-24.1]	30.0	0	1
3	22	23.7	100.0 [100.0-100.0]	20.3 [18.8 - 23.0]	30.0	0	7
4	18	23.7	99.8 [82.4-100.0]	20.7 [19.8 - 22.2]	30.0	0	4
5	14	23.7	100.0 [99.5-100.0]	20.8 [19.2 - 22.8]	30.0	0	4
6	15	23.7	99.8 [91.8-100.0]	22.1 [18.8 - 29.9]	20.0	10.0	3

Table III.14 : Description of dehydrated matter mass obtained at the end of the six hydroponic culture experiments. ^aThe symbol "-" means that there is no data available.

Hydroponic experiment No.	Mass of planted seed (DW, g)	Mass at end of experiment: leaf (DW, g)	Mass at end of experiment: seed (DW, g)	Mass at end of experiment: root (DW, g)
1	227.0	20.8	114.9	3.7
2	205.8	12.8	142.6	2.0
3	255.2	18.7	152.5	5.9
4	260.1	31.5	117.1	6.2
5	231.8	10.6	141.6	- ^a
6	245.9	20.5	115.2	-

Table III.15 : Different parameters relating to tritium used for sample labelling. N = number of tritium activity measured for a given experiment. Where activity is given in Bold in this table it means that N>1, determined using the arithmetic mean of the values measured N times, weighted by the uncertainty values for each measurement. OBT activity concentrations are measured from combustion water. ^aThe symbol "-" means that there is no data available.

Hydroponic experiment No.	Initial activity of the seed (Bq.L ⁻¹)	Activity of liquid water in the growing box (Bq.L ⁻¹)	Activity of upstream bubbling system, injection in "water" compartment of the hydroponic box (Bq.L ⁻¹)	Activity of upstream bubbling system, injection in "air" compartment of the hydroponic box (Bq.L ⁻¹)	Activity of bubbling system can (Bq.L ⁻¹)	Measured activity of OBT in Leaf (Bq.L ⁻¹)	Measured activity of OBT in Seed (Bq.L ⁻¹)	Measured activity of OBT in Root (Bq.L ⁻¹)
1	1.1 (± 0.7)	<1(N=2)	<1(N=2)	<1(N=3)	<1	1.6 ± 1.5	1.1 ± 0.6	<1
2	0.7 (± 0.7)	19.5 ± 1.1(N=12)	19.5 ± 1.5(N=4)	- ^a	21.0±1.1(N=2)	12.2±3.2	8.1±0.8	-
3	0.7 (± 0.7)	19.0 ± 1.5(N=2)	19.5±1.5(N=6)	-	20.0±1.5	12.5±2.2	8.3±0.8	11 ± 5
4	1.1 (± 0.7)	15.0 ± 1.0 (N=2)	15.6±1.0(N=6)	-	15.2±1.0	7.4±1.8	6.7 ± 0.7	10.8 ± 4.9
5	1.1 (± 0.7)	14.9 ± 1.5	14.0±1.5(N=5)	-	12.8±1.4	7.8±3.5	-	-
6	1.1 (± 0.7)	44.2 ± 2.2 (N=2)	44.8±2.2(N=4)	45.5±2.2(N=2)	45.0±1.8(N=2)	24.2±2.3	19.2± 1.2	-

- **Special precautions and adjustments applied**

IRSN's Cherbourg-Octeville Radioecology Laboratory (LRC) is 18 km away from the AREVA NC La Hague nuclear reprocessing plant. Due to the LRC's proximity to the AREVA NC plant, certain precautions have to be taken to prevent, or at least adjust for, any possible bias caused by contamination of samples. A vinyl tent is used to cover the hydroponic culture box (Figure III.36). Before opening the box, the tent is labelled to ensure that water vapour in the air (Table III.15), which can exchange rapidly with water in the plant TFWT, does not modify TFWT activity. First the air in the tent is dried using the H3R7000 system (SDEC France). Then a 70 L can (bubbling system can) containing tritiated water labelled at the required activity level is opened a few days before opening the box (Table III.13). Water vapour in the air, collected on the H3R7000 cold trap, is renewed with the labelled water from the large bubbling system. The vinyl tent limits the exchange of air between the inside of the tent and the rest of the laboratory. When the experiment is over, the hydroponic box is not opened until it had been ensured that the laboratory is not subject to the plume from the AREVA-NC plant. This potential influence can be forecast on the basis of wind direction and releases of Krypton-85, recorded in realtime at high frequency (Maro *et al.*, 2017).

The grass is cut using a metal scalpel. Grass stalks are divided into three compartments (Figure III.36): leaf (grass present above the upper tier of the sieve), root (grass present below the lower tier), and seed (grass present between the two tiers). The different samples obtained in 30 minutes are arranged separately in an aluminium tray. This type of aluminium tray is suitable for freeze-drying thanks to its heat-exchange capacities and its size. Each tray is placed in a plastic bag, vacuum sealed to prevent cross-contamination by the air. The sample is frozen in a leaktight container at -80°C, as recommended by the DEI (2008). Freezing optimises the freeze-drying process time and limits decomposition of the sample and any exchange with the air.

The samples are then placed in the freeze-dryer after being frozen for at least 48 hours, to separate TFWT from OBT by sublimation. Samples are only placed inside or removed from the freeze-dryer if the laboratory is not subject to the plume from the AREVA-NC plant (Maro *et al.*, 2017). Upon completing the freeze-drying process, an H3R7000 system is started up to confirm that the air inside the laboratory is not tritiated. TFWT is collected after one hour of reheating the ice extracted from the freeze-dried ryegrass sample.

In the case of OBT, the dehydrated matter is ground as soon as it is taken out of the device. The sample is then spread on an aluminium tray, and deliberately exposed to the ambient air for approximately twenty minutes to absorb enough water and become rehydrated to a certain plateau. The sample is weighed (Table III.14) and then isolated in a vacuum-sealed aluminium bag. Rehydration is quantified using a halogen moisture analyser (Table III.16). Isolation of the sample is completed at the same time as the cycle of the H3R7000 started at the beginning of the freeze-drying process (Table III.16). Knowing the percentage of water in the rehydrated sample and the mean activity of the water vapour in the air between the end of the freeze-drying process and

isolation in the aluminium bag, it is possible to correct for bias related to activity of the sample caused by processing the sample (Equation III.27). The meaning of each parameter is given in Table III.17 (Maro *et al.*, 2017).

Table III.16 : Measurement of rehydration of the freeze-dried samples and corrections made to OBT as per the method developed by Maro *et al.*, 2017. ^aThe symbol "-" means that there is no data available.

Matrix	Experiment No.	Rehydration (% of mass)	Activity of water vapour in the air (Bq.L ⁻¹)	OBT corrected (Bq.L ⁻¹)
Leaf	1	8.95	<1	1.8 ± 1.7
	2	3.31	2.4 ± 0.8	12.6 ± 3.3
	3	4.69	1.4 ± 0.8	13.2 ± 2.3
	4	5.58	<1.9	7.9 ± 1.9
	5	8.95	1.4 ± 0.8	8.7 ± 3.9
	6	7.01	2.2 ± 0.8	26.6 ± 2.5
Seed	1	6.25	2.2 ± 0.8	1.1 ± 0.6
	2	2.39	3.0 ± 0.8	8.1 ± 0.8
	3	1.75	<1.9	8.3 ± 0.8
	4	7.06	2.1 ± 0.8	7.1 ± 0.8
	5	12.11	2.6 ± 0.8	-
	6	2.40	3.5 ± 0.8	19.3 ± 1.2
Root	1	9.75	1.9 ± 0.8	<1
	2	7.77	1.0 ± 0.8	-
	3	7.50	1.9 ± 0.8	12 ± 6
	4	3.96	1.0 ± 0.8	11 ± 5
	5	-	<1	-
	6	-	<1	-

Table III.17 : List of parameters used for determining rehydration (see Equation III.27 to Equation III.30). OBT activity concentrations are measured from combustion water.

Symbol	Meaning	Value	Units
A_{H_2}	Molar mass of H ₂	2	g.mol ⁻¹
A_{H_2O}	Molar mass of H ₂ O	18	g.mol ⁻¹
C_{HTO}	Measured HTO concentration in the atmospheric water vapour inside the sample preparation workshop	measured	Bq.L ⁻¹
$C_M(OBT)$	Measured OBT concentration in the grass	measured	Bq.L ⁻¹
$C_R(OBT)$	Actual OBT concentration in the grass	calculated	Bq.L ⁻¹
C_{TFWT}	Measured TFWT concentration in the sample	measured	Bq.L ⁻¹
H_{DM}	Ratio between the mass of hydrogen in the dehydrated sample, and the total mass of the dehydrated sample	0.06	-
R_{FD}	Ratio between the mass of water remaining in the sample after freeze-drying, and the total mass of water formed during sample combustion	measured	-
R_{FDDM}	Ratio between the mass of water remaining after freeze-drying, and the total mass of the dehydrated sample	0.008	-
R_{FDR}	Ratio between the mass of water remaining in the sample after freeze-drying and resulting from rehydration of the dehydrated sample, and the total mass of water formed during sample combustion	measured	-
R_{TDM}	Ratio between the mass of water remaining in the sample after freeze-drying and resulting from rehydration of the dehydrated sample, and the total mass of the dehydrated sample	measured	-

$$C_R(OBT) = \frac{C_M(OBT) - (R_{FD} \cdot C_{TFWT}) - (R_R \cdot C_{HTO})}{(1 - R_{FDR})} \quad \text{Equation III.27}$$

Ratios RFD, RFDR and RR are expressed as follows (Maro et al., 2017):

$$R_{FD} = \frac{R_{FDDM}}{R_{TDM} + (1 - R_{TDM}) \cdot H_{DM} \cdot \frac{A_{H2O}}{A_{H2}}} \quad \text{Equation III.28}$$

$$R_{FDR} = \frac{R_{TDM}}{R_{TDM} + (1 - R_{TDM}) \cdot H_{DM} \cdot \frac{A_{H2O}}{A_{H2}}} \quad \text{Equation III.29}$$

$$R_R = \frac{R_{TDM} - R_{FDDM}}{R_{TDM} + (1 - R_{TDM}) \cdot H_{DM} \cdot \frac{A_{H2O}}{A_{H2}}} \quad \text{Equation III.30}$$

- **Measurement methods used**

After freeze-drying, the tritiated sample to be analysed may be either liquid (TFWT) or solid and dehydrated (OBT). Different measurement techniques are suitable depending on the type of environmental sample to be analysed. Tritiated samples in liquid form are measured using liquid scintillation. Tritium decay emits particles that put the molecules in a liquid scintillant in an excited state. These scintillating molecules become de-energized and emit light that can be detected and quantified (ASN, 2010, IRSN, 2014, Wood *et al.*, 1993), allowing measurement down to 1 Bq.L⁻¹ (Pointurier *et al.*, 2003).

Combustion of the freeze-dried sample enables the OBT to be extracted by catalytic oxidation of the combustion gases. Combustion occurs in two stages, pyrolysis in argon followed by oxidation in oxygen (IRSN, 2014). By measuring the percentage of hydrogen in the dehydrated sample it is possible to obtain the activity per kg of dehydrated matter. Another technique is to use Accelerator Mass Spectrometry to measure helium-3 (³He), a stable decay product of tritium (Jean-Baptiste *et al.*, 2010). The detection limits associated with this technique are much lower than those associated with other techniques for measuring tritium (IRSN, 2014), but this technique has not been used in this study because of the time-consuming measurement process.

III.2.4.4 Description of the growth model (allocation and translocation)

- **Conceptual model**

Organic matter is partly made up of hydrogen. Hydrogen and its isotopes therefore follow the carbon cycle. The model proposed is based on competition for carbohydrates between the plant's different organs (Escobar-Gutiérrez *et al.*, 1998). The young plant is thought of as a network in which carbonated assimilates circulate between three compartments (Figure III.37): seed, leaf and root. The basic demands are maintenance respiration, growth respiration, growth and storing carbon-rich reserves. The model estimates the increase in carbonated matter produced by photosynthesis in the leaves and its allocation within a young ryegrass plant to the leaf and root compartments.

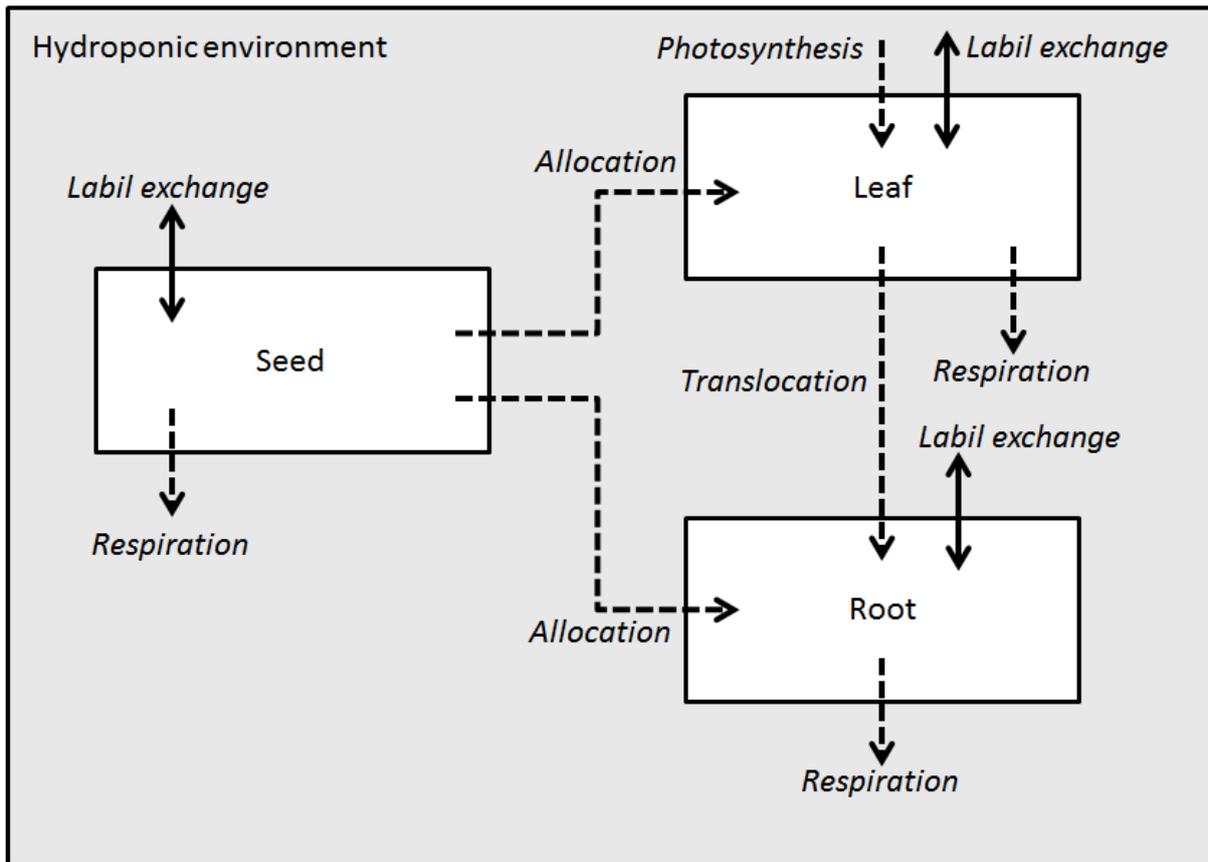


Figure III.37 : Compartments and mass transfer processes associated with hydrogen and carbon flow (dotted arrows) and hydrogen labile exchange (solid arrows) defined in the plant growth model.

Translocation (Figure III.37) is the process whereby organic assimilates produced by photosynthesis are transferred to organs other than the leaves. Allocation (Figure III.37) is the transfer of organic carbon present in the dehydrated matter of the seed to the dehydrated matter of the leaves and roots. According to Lacoite (2000), there are four modelling approaches to modelling allocation of carbonated matter within a plant (source-sink regulation): models involving empirically determined allocation coefficients, transport-resistance models (analogous to electricity), hierarchical or proportional models, and models based on the teleonomic principle. Given that this experimental study is based on experiments in a hydroponic environment (see Section III.2.4.3), plant growth is optimal. Although it is valid in limited environmental conditions, the teleonomic approach is used for this study because this modelling approach is the simplest to use to reproduce optimal plant growth typical of hydroponic culture. The forcing variable used is a growth rule.

- **Mathematical model**

The model is based on the mass conservation balance equations for an individual plant (Equation III.31) or each organ (leaf, seed or root) denoted as i (Equation III.32). The meaning of each symbol is given in Table III.18.

$$\frac{dPhoto}{dt} + \frac{dAlloc}{dt} = \frac{dMass_{Seed}}{dt} - \frac{dR_{Seed}}{dt} + \frac{dMass_{Leaf}}{dt} - \frac{dR_{Leaf}}{dt} + \frac{dMass_{Root}}{dt} - \frac{dR_{Root}}{dt} \quad \text{Equation III.31}$$

$$\left(\frac{dPhoto}{dt}\right)_i + \left(\frac{dAlloc}{dt}\right)_i - \left(\frac{dMass_i}{dt}\right)_i - \left(\frac{dR}{dt}\right)_i = 0 \quad \text{Equation III.32}$$

Assuming that all carbon assimilates not produced by photosynthesis come from the seed, Equation III.33 is used to estimate the mass of carbon matter transferred by allocation.

$$\frac{dAlloc}{dt} = -\frac{dMass_{Seed}}{dt} \quad \text{Equation III.33}$$

Matter produced by photosynthesis processes is defined as the difference between the increase in total mass of an individual plant and the mass of carbon produced by respiration (Equation III.34).

$$\left(\frac{dPhoto}{dt}\right) = \sum \left(\frac{dMass_i}{dt} - \frac{dR_i}{dt}\right) \quad \text{Equation III.34}$$

Table III.18 : Variables and parameters of the growth model.

Symbol	Definition	Value	Units	References
ϵ_{Seed}	Schnute equation parameter	0.023	mg	fitted
ϵ_{Leaf}	Schnute equation parameter	0.023	mg	fitted
ϵ_{Root}	Schnute equation parameter	0.000	mg	fitted
a_{Seed}	Schnute equation parameter	0.069	hr ⁻¹	fitted
a_{Leaf}	Schnute equation parameter	0.014	hr ⁻¹	fitted
a_{Root}	Schnute equation parameter	0.015	hr ⁻¹	fitted
Alloc	Organic matter from seed		mg	
b_{Seed}	Schnute equation parameter	16.942	-	fitted
b_{Leaf}	Schnute equation parameter	0.164	-	fitted
b_{Root}	Schnute equation parameter	0.722	-	fitted
c_{Seed}	Schnute equation parameter	2.222	mg	fitted
c_{Leaf}	Schnute equation parameter	0.000	mg	fitted

C_{Root}	Schnute equation parameter	0.000	mg	fitted
d_{Seed}	Schnute equation parameter	0.900	mg	fitted
d_{Leaf}	Schnute equation parameter	1.153	mg	fitted
d_{Root}	Schnute equation parameter	0.216	mg	fitted
m	Maintenance rate coefficient	0.016	-	Escobar-Gutiérrez <i>et al.</i> , 1998
Mass	Dehydrated matter mass of a given organ		mg	
P_{Leaf}	Fraction of carbonated assimilates produced by photosynthesis allocated in the leaves		-	
P_{Root}	Fraction of carbonated assimilates produced by photosynthesis allocated in the roots		-	
Photo	Organic matter formed by photosynthesis		mg	
Rg_{Seed}	Seed growth respiration		mg.seed ⁻¹	
Rg_{Leaf}	Leaf growth respiration		mg	
Rg_{Root}	Root growth respiration		mg	
R_{Seed}	Seed respiration		mg.seed ⁻¹	
R_{Leaf}	Leaf respiration		mg	
Rm_{Seed}	Seed maintenance respiration		mg.seed ⁻¹	
Rm_{Leaf}	Leaf maintenance respiration		mg	
Rm_{Root}	Root maintenance respiration		mg	
R_{Root}	Root respiration		mg	
t	Time since planting		hr	
X_1	Schnute equation parameter	0	hr	from lab experiments
$X_{2\ Seed}$	Schnute equation parameter	405.5	hr	from lab experiments
$X_{2\ Leaf}$	Schnute equation parameter	432.0	hr	from lab experiments
$X_{2\ Root}$	Schnute equation parameter	432.0	hr	from lab experiments

Y_G	Efficiency of substrate conversion to structure	0.75	-	Escobar-Gutiérrez <i>et al.</i> , 1998
-------	---	------	---	--

The model is based on the following assumptions:

- The increase in matter produced by photosynthesis only occurs during daytime. At night, there is no photosynthesis or plant growth, only maintenance respiration. It is also assumed that, in the case of ryegrass, photosynthesis begins five days after germination. This value is based on experimental observations, according to which green surfaces only appear on ryegrass leaves five days after planting in the hydroponic culture box.
- From the start of the photosynthesis processes (fifth day after planting), the increase in mass due to photosynthesis is modelled using the variations in mass of the leaf, seed and root compartments (Equation III.34).

Once the matter produced by photosynthesis and translocation has been defined for an individual plant, the distribution of carbonated matter (i.e. products of photosynthesis and carbonated matter from the seed) in each organ obeys Equation III.35 (Leaf) or Equation III.36 (Root).

$$p_{Leaf} = \frac{Mass_{Leaf}}{Mass_{Leaf} + Mass_{Root}} \quad \text{Equation III.35}$$

$$\frac{d p_{Root}}{dt} = 1 - \frac{d p_{Leaf}}{dt} \quad \text{Equation III.36}$$

The Schnute's growth model is used to determine changes over time, denoted as t , in the dehydrated mass of a plant organ (Schnute, 1981). The increase in dehydrated mass in the leaf, seed and root organs is modelled using Equation III.37, where j is the leaf, seed or root organ.

$$Mass_j = \left(c_j^{b_j} + (d_j^{b_j} - c_j^{b_j}) \cdot \frac{1 - e^{-a_j(t-X_1)}}{1 - e^{-a_j(X_{2j}-X_1)}} \right)^{\frac{1}{b_j}} + \varepsilon_j \quad \text{Equation III.37}$$

At the scale of an individual plant, it is assumed that any loss of carbonated matter is not due to respiration. Respiration is conventionally considered to be the sum of two functional components (Equation III.37): growth respiration (Equation III.39) and maintenance respiration (Equation III.40). Growth respiration is associated with the synthesis of new biomass, while maintenance respiration relates to maintenance of existing biomass. The parameters for these respiration equations are based on the study by Escobar-Gutiérrez *et al.* (1998), in which plant growth is modelled from the seed stage, and which focuses in particular on the processes of allocation and photosynthesis.

$$R_i = R_{g_i} + R_{m_i} \quad \text{Equation III.38}$$

$$R_{g_i} = \frac{1 - Y_G}{Y_G} \cdot \frac{dMass_i}{dt} \quad \text{Equation III.39}$$

$$R_{m_i} = m \cdot Mass_i \quad \text{Equation III.40}$$

III.2.5 Modélisation de la formation de OBT

Dans le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$, l'activité de **OBT** est calculée à partir d'un bilan des flux carbone (croissance par photosynthèse, respiration de croissance et respiration de maintenance, cf. Équation I.29 et Équation I.30). Le renouvellement du carbone au sein des feuilles de ray-grass est pris en compte à partir d'une moyenne glissante avec une fenêtre de 14 jours. Cette valeur est déterminée de façon empirique au niveau de la plateforme technique IRSN-la Hague pour une coupe mensuelle (Aulagnier *et al.*, 2012). Cependant la fenêtre de cette moyenne glissante est constante dans TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$, ce qui n'est pas adapté pour des scénarios de friche (absence de coupe) ou dans le cas de coupes très variables et très rapprochées dans le temps.

De plus dans PaSim, les parties aériennes d'un individu végétal sont divisées en plusieurs compartiments représentant les différentes feuilles plus ou moins âgées, selon 4 classes d'âge (Vuichard, 2005). Il existe un renouvellement de la matière organique au niveau des parties aériennes, correspondant aux transferts de biomasse aérienne existants entre ces compartiments de classe d'âges différents. Or dans le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré/post-thèse}}$, les parties aériennes d'un individu végétal sont représentées par un compartiment unique. De plus, il est supposé que l'herbe est jeune en raison de cette coupe mensuelle (ou semi-mensuelle) répétée. Ainsi, dans le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$, l'activité de **OBT** est calculée selon la même approche mécaniste que TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$, sans tenir compte cependant du renouvellement du carbone au sein des feuilles. A chaque pas de temps de calcul noté i , l'activité de **OBT** du végétal est calculée à partir du gain de masse sèche au pas de temps de calcul i . Cette modélisation de **OBT** suit les équations suivantes :

$$\frac{d(MS_{\text{végétale } i})}{dt} = \frac{d(MS_{\text{aérienne } i})}{dt} + \frac{d(MS_{\text{racinaire } i})}{dt} \quad \text{Equation III.41}$$

Avec MS la variation de matière sèche instantanée au pas de temps i ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$). $MS_{\text{végétale } i}$, $MS_{\text{aérienne } i}$ et $MS_{\text{racinaire } i}$ sont les variations de matière sèche au pas de temps i au niveau du végétal, des parties aériennes et racinaires, respectivement.

Entre chaque prélèvement et chaque pas de temps de calcul i , l'activité de **OBT** au sein du végétal au pas de temps i est calculée selon :

$$OBT_{a_i} = \frac{\sum \left(\frac{d(MS_{\text{végétale } i})}{dt} \cdot TFWT_i \cdot WEq \right)}{\sum \left(\frac{d(MS_{\text{végétale } i})}{dt} \right)} \quad \text{Equation III.42}$$

Où OBT_{a_i} est l'activité en tritium de la matière organique sèche au pas de temps i ($Bq.kg^{-1}$) ; $TFWT_i$ est l'activité de **TFWT** au pas de temps i ($Bq.L^{-1}$) ; WEq est un facteur « équivalent en eau » de la fraction sèche de la plante ($L.kg^{-1}$). $MS_{végétale i}$ désigne la biomasse sèche totale de la plante au pas de temps i (i.e. χ_{shoot} et χ_{root} décrits Équation I.29).

OBT_a est converti en $Bq.L^{-1}$ d'eau de combustion à partir de WEq :

$$OBT_{b_i} = OBT_{a_i} * WEq \quad \text{Equation III.43}$$

Pour rappel, **OBT** peut être décomposé en deux fractions (cf. § Le tritium dans la matière organique, p. 44), **eOBT** et **neOBT**. La répartition entre **eOBT** et **neOBT** dans le ray-grass est estimée ultérieurement (cf. § IV.2.4.2). Dans la mesure où il est fait l'hypothèse d'un équilibre entre **eOBT** et **TFWT**, l'activité de **OBT** végétal (**OBT**, en $Bq.L^{-1}$) est calculée selon cette équation :

$$OBT_i = TFWT_i \cdot (a) + OBT_{b_i} \cdot (1 - a) \quad \text{Equation III.44}$$

Où a est la fraction de **eOBT** (-).

Après chaque coupe, l'activité de **OBT** au niveau des parties aérienne est réinitialisée et nulle, et la biomasse sèche initiale de la plante ($MS_{végétale i}$) est fixée à sa valeur minimale (Aulagnier *et al.*, 2012).

CHAPITRE IV. RESULTATS

IV.1 Validation éco-physiologique du modèle TOCATTA- χ _{pré-thèse}

L'objectif de cette partie est de valider différents paramètres clefs de la croissance végétale (indice de surface foliaire, teneur en azote foliaire, flux d'eau et de CO₂, vitesse de carboxylation maximale, conductance stomatique) à différentes échelles : de la feuille de ray-grass au couvert végétal. Il ne s'agit pas ici d'étudier finement les différents aspects éco-physiologiques d'une prairie de ray-grass.

IV.1.1 Echelle de la feuille

IV.1.1.1 Conductance stomatique

- **Résultats**

La mesure de la conductance stomatique foliaires à l'eau notée $g_{s\ H_2O}$ en $\text{mol}_{\text{eau}} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, puis convertie en $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ dans le Tableau IV.1 et détaillée § III.1.1.1, permet une comparaison de $g_{s\ H_2O}$ avec la valeur obtenue selon l'équation de Huntingford (Huntingford *et al.*, 2015).

La mesure de la conductance stomatique réalisée par le Li-Cor 6200 permet d'obtenir une conductance exprimée en $\text{mol}_{\text{eau}} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. La conversion de cette conductance en $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ suit la loi des gaz parfaits (Équation IV.1) avec n le nombre de moles (mol), T_{air} la température de l'air (K), R la constante universelle des gaz parfaits ($\text{J} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{mol}^{-1}$), P_{atm} la pression atmosphérique (Pa) et V le volume (m^3).

$$\frac{n}{V} = \frac{P_{\text{atm}}}{R \cdot T_{\text{air}}} \quad \text{Équation IV.1}$$

Le modèle de Huntingford est applicable aux flux de H₂O et de CO₂, exprimés en $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$, avec un ratio de conversion H₂O/CO₂ égale à 1,6 (cf. § Analogie entre le flux de H₂O et le flux de CO₂, p. 120).

- **Discussion**

Les résultats obtenus expérimentalement par Li-Cor 6200 sont proches des résultats issus de la modélisation (Tableau IV.1). A l'exception de la comparaison modèle-mesures du 25 juillet 2016, les écarts moyens relatifs des autres données sont inférieurs à 50 %. Ces quelques mesures confortent la cohérence des calculs de conductance stomatique par le modèle TOCATTA- χ , puisque l'écart moyen relatif entre le modèle et les mesures *in situ* est de 103 % avec un écart relatif maximal de 327 % (N=4).

Tableau IV.1 : Présentation des valeurs de la conductance stomatique à l'eau ($g_{s\ H_2O}$, $m.s^{-1}$) et des conditions ambiantes de la feuille lors des mesures *in situ* et des calculs par le modèle TOCATTA- χ . PAR est le rayonnement actif pour la photosynthèse, P_{atm} est la pression atmosphérique, T_{air} est la température de l'air, R est la constante des gaz parfaits, n/V est le nombre de moles par unité de volume et $g_{s\ CO_2}$ est la conductance stomatique au CO_2 .

Date	Mesures Li-Cor 6200							Modélisation TOCATTA- χ (modèle de Huntingford <i>et al.</i> 2015)	
	PAR ($\mu mol.m^{-2}.s^{-1}$)	$g_{s\ H_2O}$ ($mol_{eau}.m^{-2}.s^{-1}$)	P_{atm} (Pa)	T_{air} (°K)	R ($J.mol^{-1}.K^{-1}$)	n/V ($mol.m^{-3}$)	$g_{s\ H_2O}$ ($m.s^{-1}$)	$g_{s\ CO_2}$ ($m.s^{-1}$)	$g_{s\ H_2O}$ ($m.s^{-1}$)
25/07/2016 14h00	1000	0,18	101200	297,15	8,31	40,98	4,47E-03	7,52E-04	1,20E-03
29/07/2016 13h30	1000	0,09	100400	294,65	8,31	41,00	2,19E-03	9,27E-04	1,48E-03
01/08/2016 10h45	1000	0,07	101100	296,65	8,31	41,01	1,62E-03	1,02E-03	1,64E-03
30/08/2016 13h00	1000	0,05	101500	301,3	8,31	40,54	1,11E-03	7,66E-04	1,23E-03

IV.1.1.2 Vitesse de carboxylation maximale

• Résultats

Pour notre étude, des courbes de réponses de l'assimilation nette de CO_2 (A_{net} , $\mu mol.m^{-2}.s^{-1}$) à la concentration intercellulaire en CO_2 (C_i , Pa) ont été réalisées sur des feuilles de ray-grass, afin d'estimer un des paramètres clés du calcul de la **photosynthèse** nette dans le modèle de Jonhson : le paramètre $V_{c\ max}$. La **photosynthèse** est essentiellement limitée par trois phénomènes biologiques (l'action de la RuBisCo, la régénération de RuBP et l'exportation des trioses-phosphates, cf. § I.2.3.1). La méthode de Sharkey *et al.*, 2007 permet de déterminer les paramètres majeurs influençant ces processus biologiques, connaissant plusieurs données A_{net} en fonction de C_i . Concernant $V_{c\ max}$, ce paramètre permet de déterminer l'activité de RuBisCo lorsque les deux autres phénomènes biologiques ne sont pas limitants (Figure IV.1).

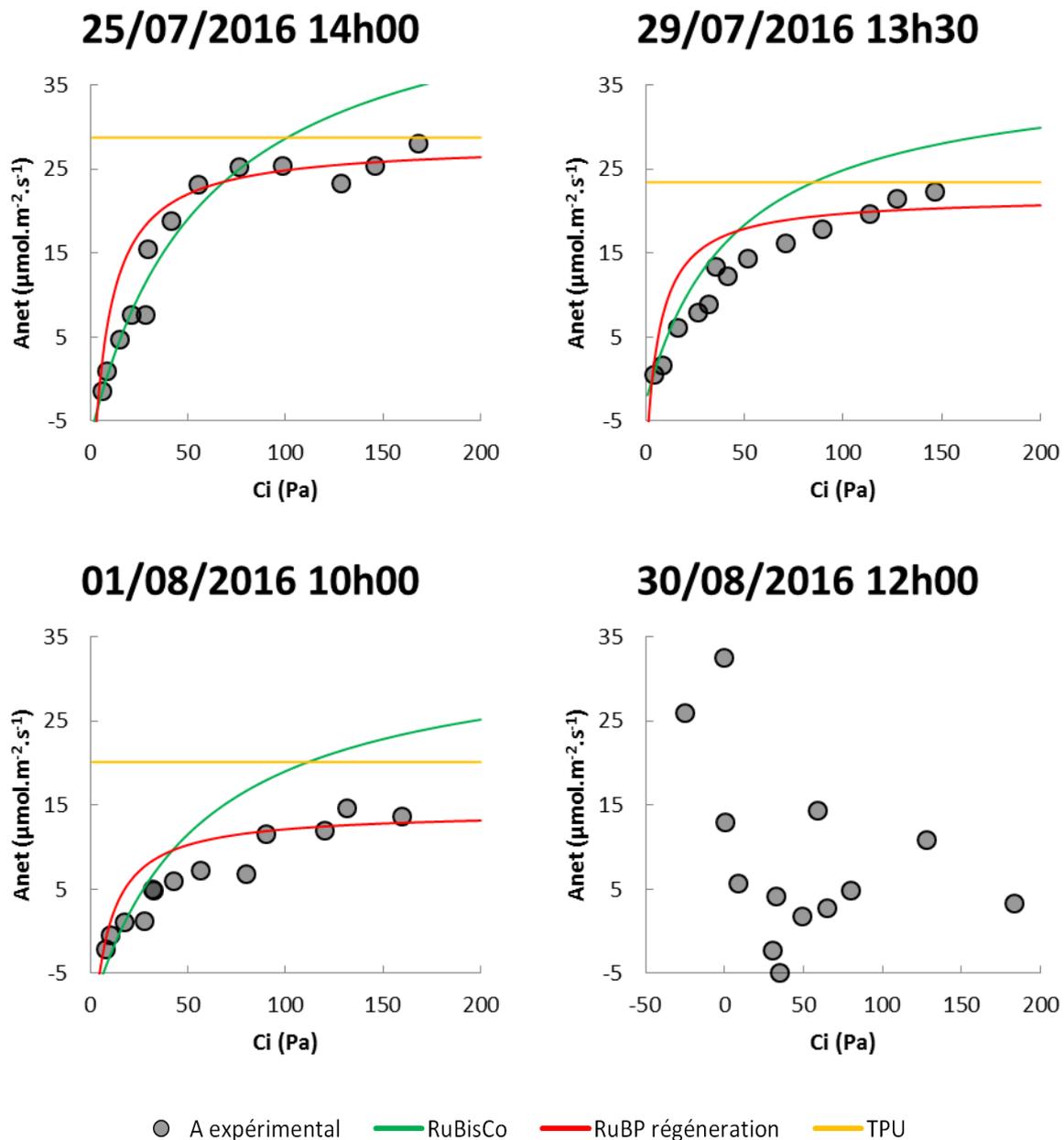


Figure IV.1 : Courbes de réponse de l'assimilation nette de CO₂ (A_{net}) à la concentration en CO₂ dans les espaces intercellulaires (C_i) obtenues *in situ* sur les feuilles de ray-grass au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague à différentes dates. TPU signifie « triose-phosphate ».

Ces courbes A/C_i sont obtenues par minimisation des erreurs entre les équations théoriques et les mesures *in situ*. La confrontation des $V_{c\ max}$ issus de mesures *in situ* avec les $V_{c\ max}$ calculés par le modèle TOCATTA- χ est présentée Tableau IV.2.

Tableau IV.2 : Présentation des valeurs du paramètre $V_{c \max}$ et des conditions ambiantes de la feuille lors des mesures *in situ* et des calculs par le modèle TOCATTA- χ . T_{leaf} est la température interne de la feuille, O_2 est la pression partielle de dioxygène au sein de la feuille et P_{atm} est la pression atmosphérique.

Date	Mesures Li-Cor 6200					Modélisation TOCATTA- χ
	T_{leaf} (°C)	P_{atm} (kPa)	O_2 (kPa)	$V_{c \max}$ à T_{leaf} (mol.m ⁻² .s ⁻¹)	$V_{c \max}$ à 25 °C (mol.m ⁻² .s ⁻¹)	$V_{c \max}$ (mol.m ⁻² .s ⁻¹)
25/07/2016 14h00	24,4	101,2	21	5,3.10 ⁻⁵	5,6.10 ⁻⁵	5,5.10 ⁻⁵
29/07/2016 13h30	21,5	100,4	21	3,7.10 ⁻⁵	5,1.10 ⁻⁵	5,0.10 ⁻⁵
01/08/2016 10h00	23,5	101,1	21	4,2.10 ⁻⁵	4,8.10 ⁻⁵	5,2.10 ⁻⁵
30/08/2016 12h00	28,53	101,4	21	-	-	6,6.10 ⁻⁵

• Discussion

L'ensemble des mesures expérimentales est réalisée sur les feuilles à seconde **ligulée**. Au cours de l'expérimentation (cf. Tableau IV.2), le paramètre T_{leaf} est fixé au plus proche de 25 °C car c'est à cette température que $V_{c \max}$ est le plus fort théoriquement (Sharkey *et al.*, 2007).

Les résultats obtenus expérimentalement par Li-Cor 6200 sont très proches des résultats issus de la modélisation ($V_{c \max}$ en gras, Tableau IV.2). Ces quelques mesures de $V_{c \max}$ confortent la cohérence des calculs de **photosynthèse** par le modèle TOCATTA- χ - au moins via le calcul de $V_{c \max}$ -, puisque l'écart moyen relatif entre le modèle et les mesures *in situ* est de 18 % avec un écart relatif maximal de 28 % (N=3).

IV.1.2 Echelle du couvert

IV.1.2.1 Caractéristique pédologique

Une double analyse granulométrique est réalisée sur des prélèvements de sol de la plateforme expérimentale IRSN-la Hague. Ces analyses sont effectuées par un laboratoire extérieur (LANo) selon la norme NF X31-107 (Tableau IV.3).

Tableau IV.3 : Analyse granulométrique sur le sol de la plateforme expérimentale IRSN-la Hague.

Dénomination	Argile	Limons fins	Limons grossiers	Sables fins	Sables grossiers
Fraction	%	%	%	%	%
Prélèvement 1	11,3	15,3	21,8	26,7	24,9
Prélèvement 2	13,7	14,8	23,4	27,6	20,5

En reportant ces différentes fractions granulométriques dans le triangle textural (cf. Figure I.6), le sol de la plateforme expérimentale IRSN-la Hague est identifié de type limoneux.

IV.1.2.2 Teneur en azote foliaire

• Résultats

L'azote est un macronutriment important dans les processus impliquant la croissance végétale (Gastal *et al.*, 1992 ; Duru et Calvière, 1996 ; Walker *et al.*, 2001). Pour s'assurer que l'herbe présente à la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague se développe dans un milieu contenant suffisamment d'azote pour ne pas perturber son développement, des mesures mensuelles de certaines caractéristiques foliaires sont réalisées de mai 2016 à mai 2017 sur la partie aérienne (feuilles) du ray-grass selon la méthode Kjeldahl (cf. § III.1.2.2), sur une zone de prélèvement de 4 à 8 m² (Tableau IV.4).

Tableau IV.4 : Caractéristiques des échantillons foliaires nécessaires aux mesures de teneur en azote foliaire. Les symboles PF et PS signifient respectivement « poids frais » et « poids sec ».

Date	PF au moment du prélèvement (g)	PS (g)	Ratio PS/PF	Zone de prélèvement (m ²)	PF par unité de surface (g.m ⁻²)
03/05/2016	283,7	70,2	0,25	8	35,5
16/06/2016	360,1	85,4	0,24	8	45,0
27/06/2016	547,5	114,8	0,21	8	68,4
13/07/2016	288,1	58,1	0,20	8	36,0

01/08/2016	518,1	136,3	0,26	8	64,8
30/08/2016	515,6	154,2	0,30	8	64,5
30/09/2016	486,7	100,2	0,21	8	60,8
27/10/2016	451,0	92,4	0,20	8	56,4
01/12/2016	358,4	79,9	0,22	8	44,8
05/01/2017	394,7	87,0	0,22	8	49,3
06/02/2017	59,1	15,6	0,26	4	14,8
07/03/2017	58,0	14,1	0,24	4	14,5
03/04/2017	421,0	81,0	0,19	4	105,3

Le suivi de la teneur en azote foliaire réalisé sur une année de mai 2016 à mai 2017 (Figure IV.2) n'a pas pu être réalisé d'octobre 2016 à janvier 2017 en raison d'une masse foliaire sèche trop faible pendant la saison hivernale pour effectuer une mesure.

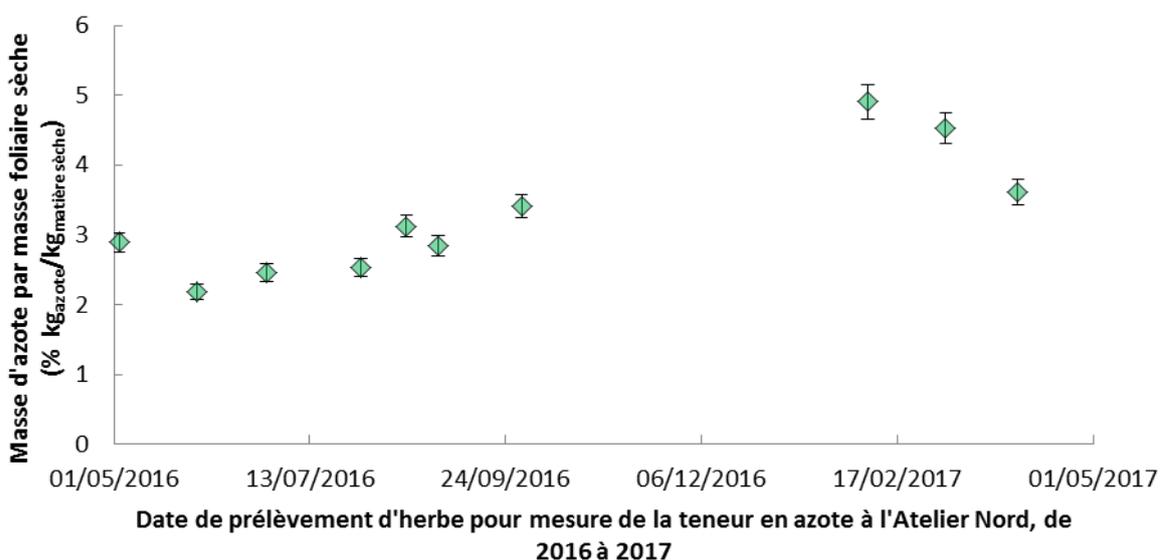


Figure IV.2 : Evolution temporelle de la teneur en azote ($\% \text{kg}_{\text{azote}}/\text{kg}_{\text{matière foliaire sèche}}$) mesurée dans les protéines des feuilles de ray-grass de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague (mai 2016 à mai 2017), selon la méthode Kjeldahl.

- **Discussion**

Les résultats de teneur en azote foliaire (Figure IV.2) varient mensuellement. Cette variation est cohérente avec les données qualitatives présentes dans la littérature. Par exemple dans le cadre des feuilles de vignes, la teneur en azote décroît de mars à juin, suivi d'un pallier de juin à septembre (Le Tacon et Toutain, 1973 ; Gaudillère *et al.*, 2003).

En plus du cycle de l'azote dans les sols, ces variations de teneur en azote foliaire ont été étudié pour les espèces fourragères pérennes en situation de fertilisation azotée non limitante (Huyghe, 2003). Au cours du cycle de croissance, la teneur en azote foliaire est reliée à la vitesse de production de matière sèche selon une courbe exponentielle décroissante (Figure IV.3). Cette courbe est valable quels que soient l'espèce, le cycle de croissance et l'année (Huyghe, 2003). En accord avec la Figure IV.3, plus la vitesse de production de biomasse sèche par unité de surface est faible, plus la **teneur critique en azote** (minimum d'azote que la culture doit prélever pour atteindre le maximum de biomasse) est forte. Autrement dit, l'assimilation maximale d'azote par les végétaux est proportionnelle à la vitesse de croissance ($\text{kg}_{\text{sec}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$). La dilution biologique de l'azote dans la plante lors de la production de biomasse a deux origines (Brassard, 2007) :

- le feuillage inférieur ombragé par le feuillage supérieur contient moins d'azote que ce dernier et la proportion de feuillage ombragé augmente avec l'augmentation de la biomasse ;
- le ratio concentration dans la feuille sur tige diminue tout au long de la croissance des plantes, en raison du développement de tissus de soutien. Or, la teneur en azote étant plus élevée dans les feuilles que dans les tiges, l'augmentation de la biomasse induit donc une dilution de la teneur en azote (Jarrige *et al.*, 1963 ; Lemaire *et al.*, 1992 ; Huyghe, 2003).

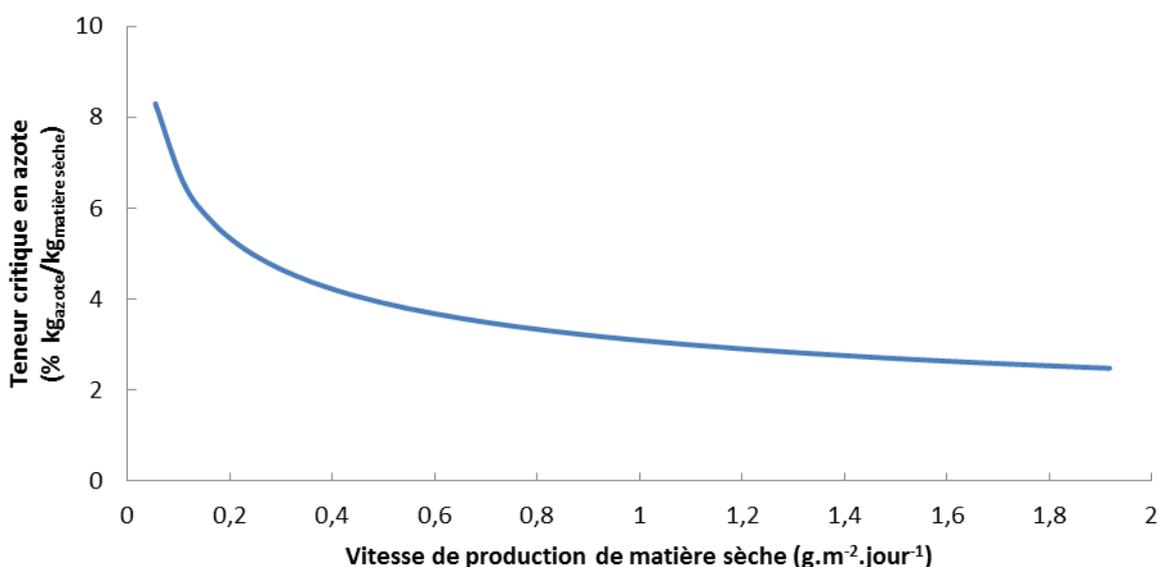


Figure IV.3 : Relation entre la vitesse de production de matière sèche par unité de surface et la teneur critique en azote foliaire chez les espèces en C3 (d'après Lemaire et Gastal, 1997).

En comparant la teneur en azote foliaire (Figure IV.2) avec la production de matière sèche foliaire (Figure IV.4) au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague, une corrélation inverse est observable entre ces deux graphiques : les périodes où la teneur en azote foliaire est forte (janvier 2017 à mars 2017) correspondent à une faible production de matière sèche foliaire. La Figure IV.3 illustre cette corrélation inverse observée.

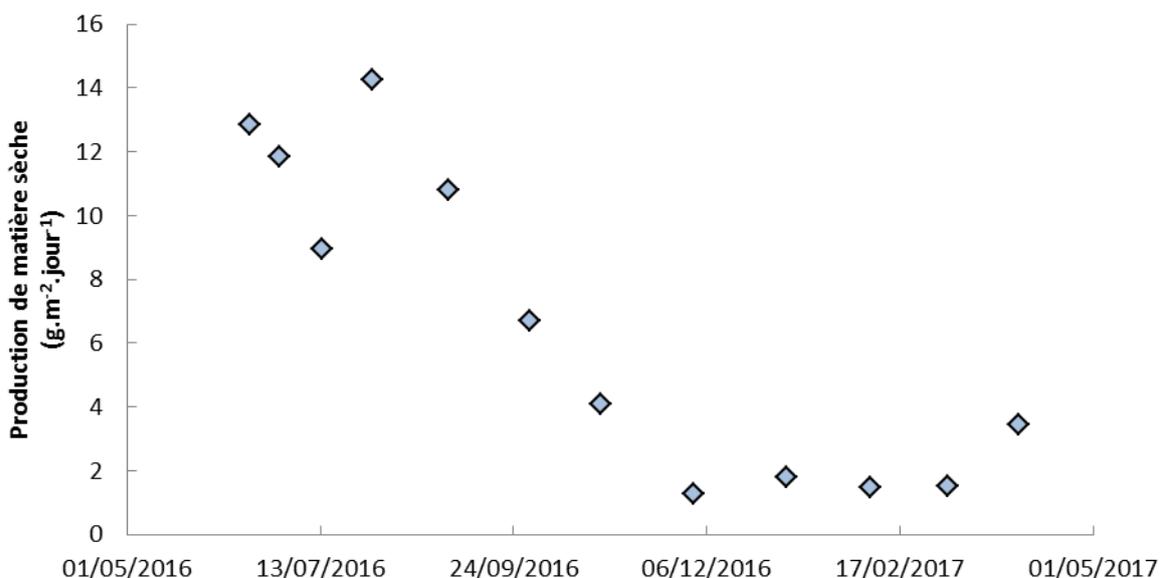


Figure IV.4 : Mesure de la production journalière de matière sèche des feuilles de ray-grass de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague ($\text{g}_{\text{poids sec.}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{jour}^{-1}$), de mai 2016 à mai 2017. Ces données sont issues des masses fraîches prélevées pour les mesures de **OBT** et **TFWT** et du ratio **PF/PS** du Tableau IV.4.

Dans la mesure où (1) les valeurs minimales de masse d'azote foliaire par masse de protéine (Figure IV.2) sont en accord avec les gammes attendues dans les prairies (Tableau III.4) et que (2) la variabilité annuelle de la teneur en azote dans les feuilles suit les variations décrites dans la littérature, il est possible de conclure, au moins qualitativement, que l'azote est présent en quantité suffisante au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague pour assurer d'une bonne croissance des végétaux. Cette non-limitation par la teneur en azote pour la croissance foliaire est déduite des résultats précédents : la confrontation des sorties du modèle avec les mesures pour le **LAI** est cohérente (Figure IV.5) bien que le modèle suppose qu'il n'y a pas de déficit en nutriments.

IV.1.2.3 Indice de surface foliaire

• Résultats

L'étude de la croissance foliaire à l'échelle macroscopique - via l'étude de l'indice de surface foliaire (LAI) - permet de s'assurer que le modèle TOCATTAX représente correctement le développement des parties végétales aériennes.

Le calcul du LAI est testé par comparaison avec deux types de mesures expérimentales (Figure IV.5) : le calcul surfacique d'un échantillon avec le logiciel Matlab (cf. annexe B.2) et les mesures *in situ* réalisées avec un LAI-2000 (cf. § III.1.4.1).

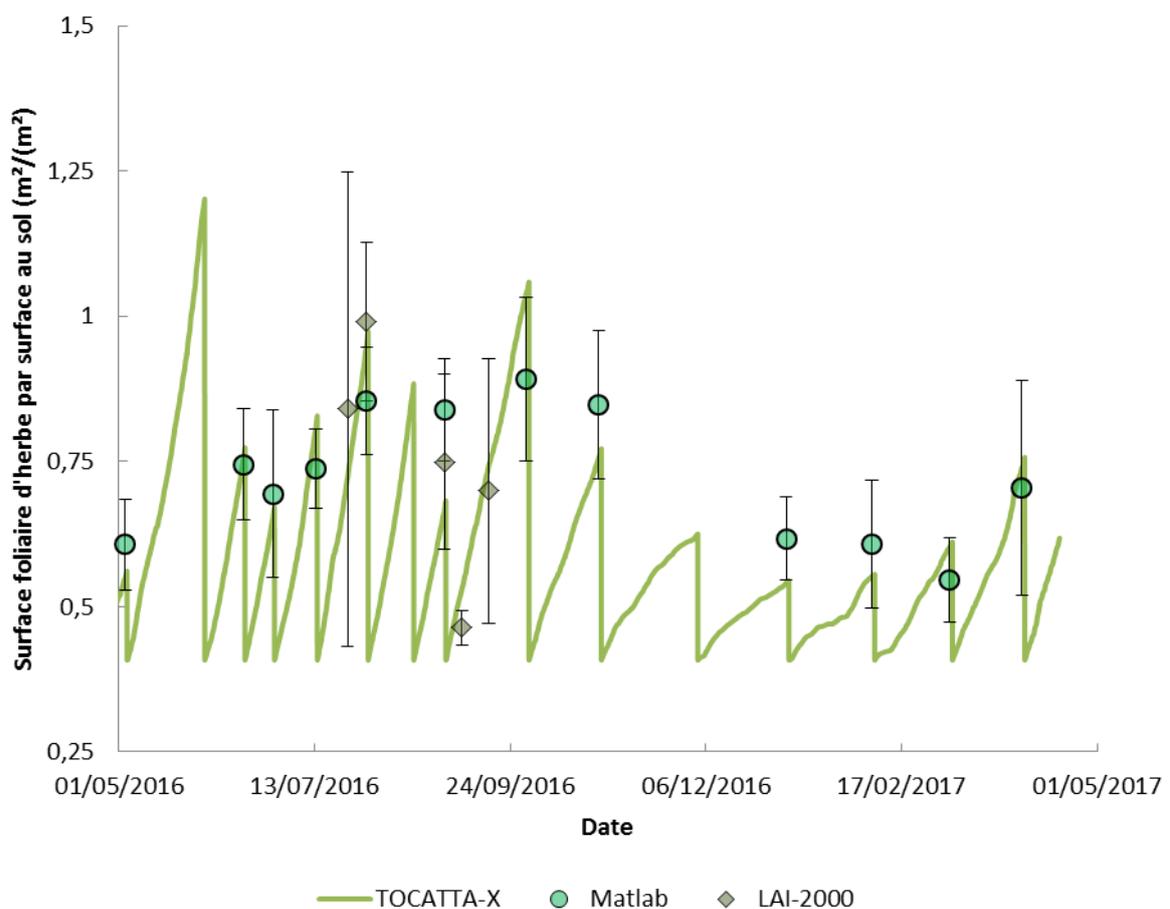


Figure IV.5 : Evolution annuelle de l'indice de surface foliaire (LAI, $m^2 \cdot m^{-2}$) des feuilles de ray-grass de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague (mai 2016 à mai 2017).

• Discussion

Les données de LAI obtenues par modélisation ou calcul surfacique Matlab résultent d'un calcul à partir de la biomasse sèche, en raison de la forte corrélation (positive) entre le poids sec et le LAI

(Lee et Heuvelink, 2003 ; Bell, 2008). L'incertitude de mesure de la masse sèche n'est cependant pas prise en compte dans le calcul de LAI. La surface foliaire spécifique (SFS ou SLA en anglais) correspond au rapport de la surface foliaire au poids sec de la feuille (exprimé en $\text{m}^2 \cdot \text{kg}_{\text{sec}}^{-1}$). Dans TOCATTA- χ , SLA vaut $30 \text{ m}^2 \cdot \text{kg}_{\text{sec}}^{-1}$ pour l'herbe (Graux *et al.*, 2011).

Les mesures de LAI obtenues via le programme Matlab sont réalisées à partir d'une fraction des prélèvements ponctuels d'herbe, utilisés initialement pour les mesures de OBТ et TFWT. Suite au prélèvement à la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague, l'ensemble des feuilles recueillies est mélangée, puis une aliquote de feuilles (correspondant à environ 50 feuilles) est utilisée pour la mesure de la surface foliaire (cf. § III.1.4.1). Ce prélèvement aléatoire peut être un biais dans la mesure où, proportionnellement à la surface totale de prélèvement, davantage de feuilles de grandes tailles peuvent être utilisées pour la mesure « Matlab » (et inversement). De plus, pour un jour donné, seule une mesure « Matlab » est réalisée : statistiquement, plusieurs mesures de LAI suivant la méthode « Matlab » avec différentes feuilles prélevées de façon aléatoire permettent d'estimer plus exactement le LAI.

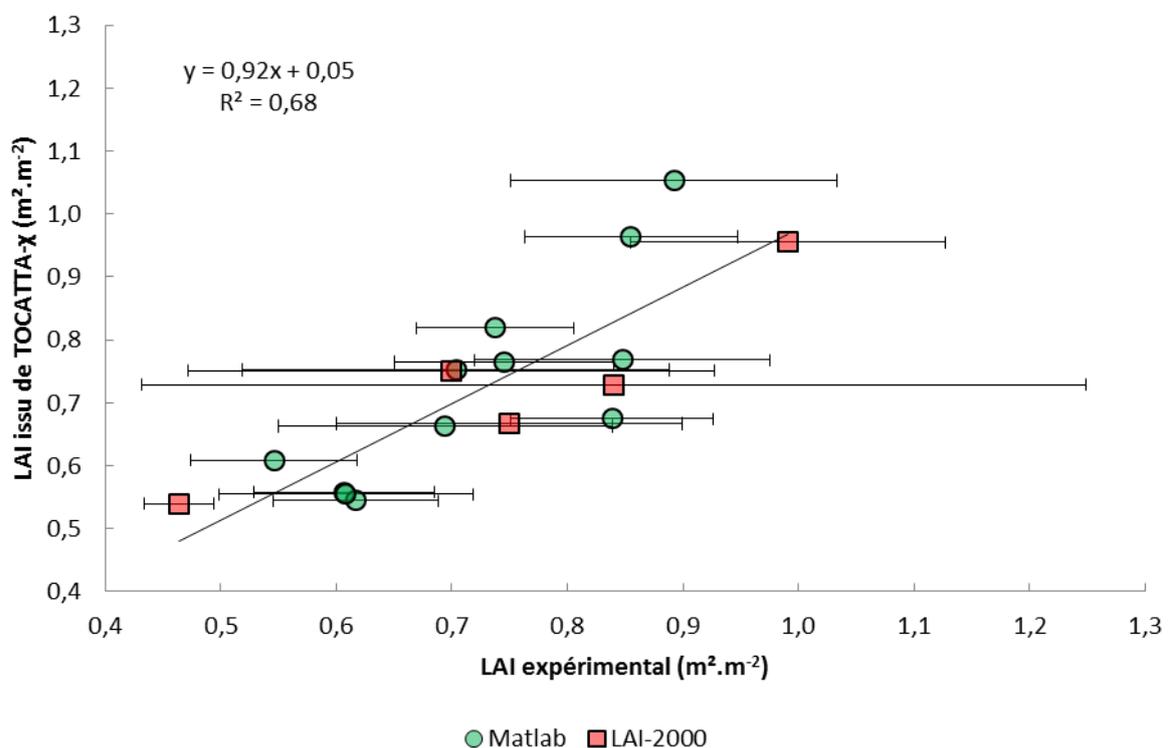


Figure IV.6 : Comparaison des mesures de LAI réalisées au niveau de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague via l'utilisation du code Matlab ou LAI-2000 et des prédictions du LAI par le modèle TOCATTA- χ (de mai 2016 à mai 2017). Les intervalles désignent les incertitudes liées à la mesure.

La comparaison des mesures expérimentales de LAI avec les sorties du modèle TOCATTA- χ (Figure IV.6) témoigne d'une corrélation satisfaisante entre le modèle et les mesures de LAI, avec un coefficient de corrélation $R^2=0,68$ et une droite de régression proche de 1 ($Y=0,92x+0,05$). Sur les 17 points de mesures, 65 % des prédictions du modèle sont dans la gamme d'incertitudes des données mesurées (selon la méthode « Matlab » ou avec le mesureur de surface foliaire LAI-2000). L'écart moyen relatif entre le modèle et les mesures est de $0,11 \text{ m}^2.\text{m}^{-2}$, avec un écart minimal relatif de $0,03 \text{ m}^2.\text{m}^{-2}$ et un écart maximal relatif de $0,24 \text{ m}^2.\text{m}^{-2}$.

IV.1.2.4 Production de matière sèche

- **Résultats**

Tout comme l'étude du LAI, l'étude de la production de matière sèche permet de s'assurer que le modèle TOCATTA- χ représente correctement le développement des parties végétales aériennes.

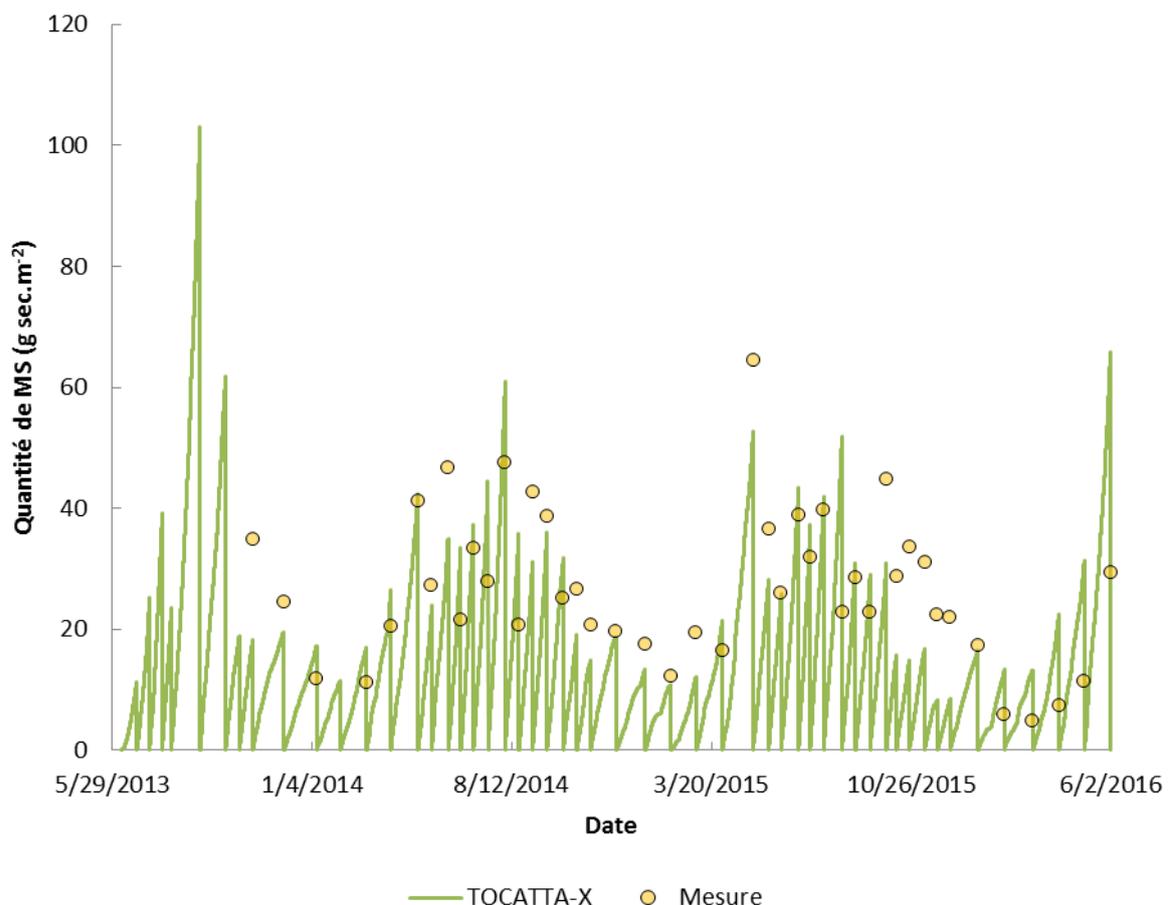


Figure IV.7 : Evolution de la quantité de matière sèche des parties aériennes du ray-grass de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague (juin 2013 à juin 2016).

Le calcul de la production de matière sèche est testée par comparaison des sorties du modèle avec les mesures de masse sèche des parties aériennes (Figure IV.5), réalisées lors des prélèvements réguliers au niveau de la plateforme technique IRSN-La Hague (cf. § 1.3.2.2). Les mesures de production de biomasse sèche aérienne du ray-grass au niveau de la plateforme technique sont obtenues par la pesée des masses sèches des parties aériennes du ray-grass, après lyophilisation de l'échantillon prélevé frais.

- **Discussion**

La zone de prélèvement de la plateforme technique IRSN-La Hague est de 4 m². Cependant, pour faciliter la coupe et permettre un gain de temps de prélèvement, deux personnes s'occupent de la coupe. La zone de 4 m² peut être subdivisée en deux zones de 2 m², que l'on appelle « zone blanche » et « zone rouge ». Les masses fraîches obtenues par pesée au laboratoire diffèrent selon la zone coupée (zone blanche ou zone rouge), bien que celles-ci soient juxtaposées (le plus grand écart de masse relevé entre ces deux zones est de l'ordre de 200 g frais). Cette variabilité spatiale de la production de matière sèche n'est pas prise en compte par le modèle.

Les incertitudes sur la quantité de matière sèche produite par unité de surface au sol ne sont pas renseignées car il existe une incertitude indéterminable sur l'origine de l'herbe lyophilisée. En effet, l'herbe fraîche prélevée provient soit de la zone rouge soit de la zone blanche, et au moment de la lyophilisation l'herbe utilisée est un mélange du prélèvement de la zone rouge et blanche. Puisque la masse prélevée présente une grande variabilité, il est seulement possible de déterminer une production de matière sèche moyenne, entre la production de matière sèche au niveau de la zone rouge et celle au niveau de la zone blanche.

La comparaison des mesures expérimentales de production de matière sèche avec les sorties du modèle TOCATTA- χ (Figure IV.6) témoigne d'une corrélation acceptable entre le modèle et les mesures de biomasse aérienne, avec un coefficient de corrélation $R^2=0,51$ et une droite de régression $Y=0,68x+0,34$, obtenu à partir de 43 points de mesures recueillis pendant 3 ans. En dépit de la variabilité spatiale de la production de matière sèche par unité de surface, les sorties du modèle présentent un ordre de grandeur cohérent avec les données mesurées moyennes (Figure IV.6).

La production de matière sèche varie en fonction de la fréquence de coupe (Gillet, 1981). En pâturage rationné, la production de matière sèche suit une tendance sigmoïdale (ce que reproduit le modèle de croissance présent dans TOCATTA- $\chi_{\text{pré/post thèse}}$). Cependant, en pâturage continu intensif, les coupes fréquentes impliquent des pousses à la base d'une plante (talles) plus nombreuses, petites et étalées. Dans ce dernier cas la lumière est donc mieux captée par le végétal, la croissance est maximisée et la production de matière sèche est linéaire entre les coupes répétées et proches dans le temps (Gillet, 1981). Nos conditions de coupes expérimentales s'apparentent à un pâturage continu et intensif : cette production linéaire de matière sèche entre

les coupes peut expliquer la sous-estimation de production de matière sèche du modèle vis-à-vis des mesures expérimentales.

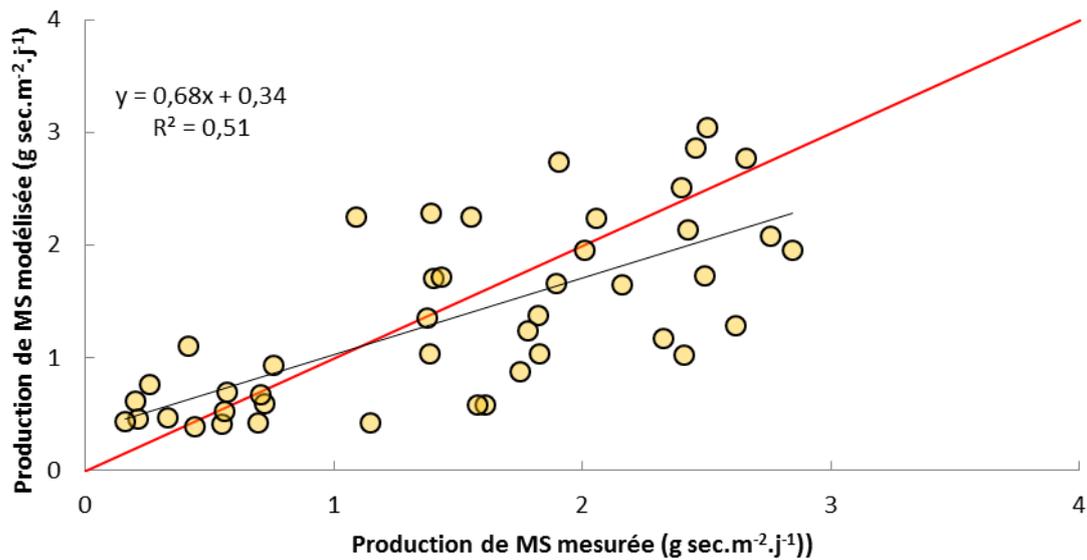


Figure IV.8 : Comparaison entre la modélisation et les mesures de la production de matière sèche (MS) des parties aériennes du ray-grass de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague (juin 2013 à juin 2016), N=43.

IV.1.2.5 Flux de H₂O

- **Résultats**

Les données expérimentales de flux d'eau du ray-grass sont obtenues par la méthode de flux turbulents, avec l'application de corrections décrites précédemment (cf. § Traitement des données de flux, 133).

La campagne de mesure réalisée du 01/05/2016 au 19/07/2016 permet l'acquisition de données *in situ*, comparable aux données issues du modèle TOCATTA- χ (Figure IV.9).

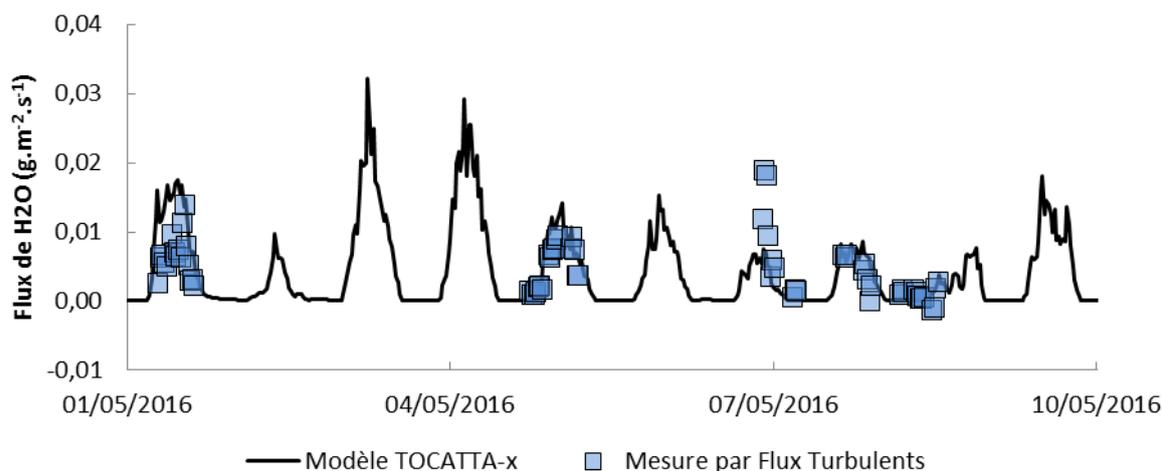


Figure IV.9 : Exemple de chroniques des flux de H₂O de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague du 01/05/2016 au 11/05/2016, issues du modèle TOCATTA- γ (sorties semi-horaires) et de mesures *in situ* (sorties semi-horaires) par la méthode des flux turbulents. Les données expérimentales ont été corrigées en fonction de la stationnarité et de la direction du vent (N=1498).

• Discussion

En 2014, une première comparaison des flux d'eau modélisés et acquis expérimentalement par la méthode des flux turbulents est réalisée (Renard, 2014). Cependant, cette comparaison n'a pu être validée dans la mesure où l'ensemble de la parcelle expérimentale n'était pas tondu en même temps que la zone de 8 m² : ces données ne sont pas exploitables car la zone d'emprise du capteur de concentration en H₂O et CO₂ intègre la zone 8 m² mais également une partie de la prairie qui n'était pas coupée en même temps que ces 8 m². Parmi ces données non-publiées, une dérive des mesures a été observée 1 mois après la mise en place de l'appareil de mesures par flux turbulents (Renard, 2014). Les données analysées en 2016 ne vont donc pas au-delà de 1 mois après la mise en place de l'appareil.

Bien que différentes corrections soient appliquées, certains biais subsistent :

- concernant les mesures expérimentales : la vitesse du vent n'est pas considérée dans nos corrections, malgré son impact sur la zone d'emprise de mesure par Eddy Correlation (Burba *et al.*, 2013). De plus, le cas d'une origine de vent comprise entre 100° et 220° - moyennée sur 30 minutes - avec des fluctuations du vent à un pas de temps inférieur à la demi-heure peuvent correspondre à des molécules d'eau apportées par le vent dont l'origine n'est ponctuellement pas comprise entre 100° et 220°.
- concernant la modélisation : le modèle de « Big Leaf » est très simple (hypothèse d'une feuille unique recouvrant le terrain), négligeant la transpiration du sol. De plus, l'hypothèse d'un couvert constitué à 100 % de ray-grass a été choisie, ce qui n'est pas exact dans l'absolu (présence de fleurs de type marguerites, etc.). Cependant, ce biais est considéré

négligeable dans la mesure où la surface de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague est essentiellement composée d'herbe. Enfin, seul le flux d'eau lié à la transpiration végétale est modélisé, le modèle ne calcule que les flux positifs (de la plante vers l'atmosphère).

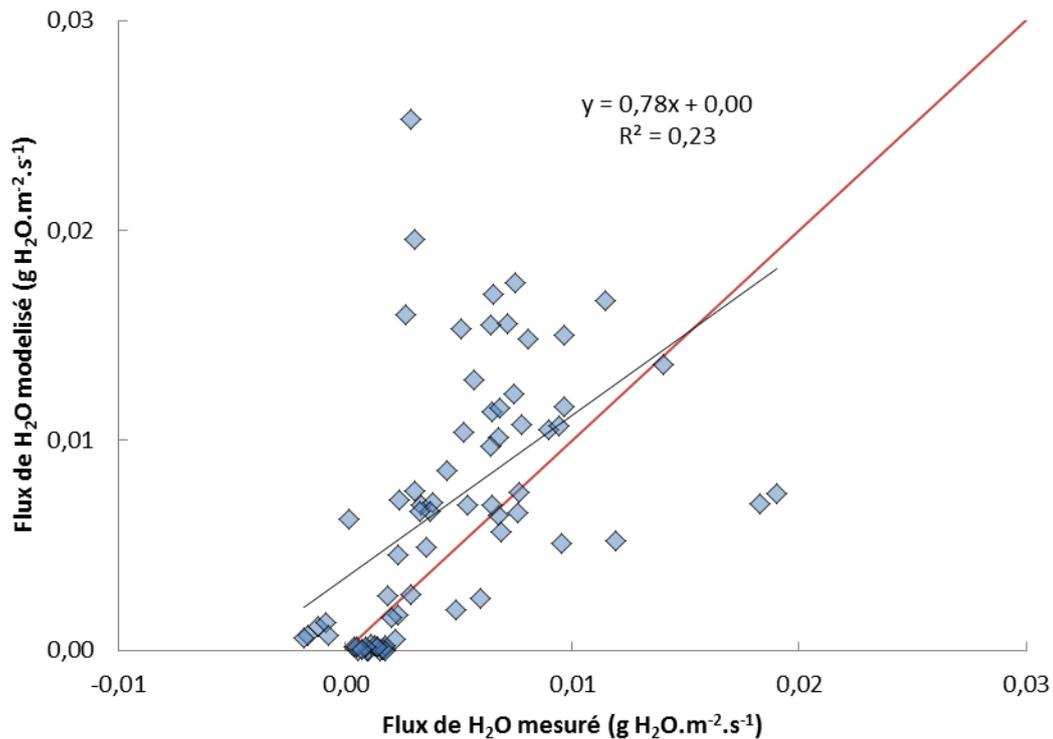


Figure IV.10 : Comparaison des flux d'évapotranspiration issu du modèle TOCATTA- χ avec les mesures de flux de H₂O réalisées à la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague du 1er mai 2016 au 30 mai 2016. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.

Bien que le coefficient de corrélation présentée Figure IV.10 soit faible ($R^2=0,23$), le modèle d'évapotranspiration est supposé fiable en raison d'une droite de régression entre les sorties du modèle TOCATTA- χ et des données expérimentales corrigées proche de $y=x$, d'un écart moyen relatif dont l'ordre de grandeur correspond à l'ordre de grandeur des données mesurées (Tableau IV.5).

Tableau IV.5 : Paramètres statistiques de la comparaison modèle/mesure des flux de H₂O au niveau de la parcelle de ray-grassde la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague.

Type de flux étudié	Nombre de mesures (avant corrections)	Données expérimentales exploitables (après corrections)	Equation de régression	R ²	Ecart moyen relatif (modèle - mesure)	Moyenne du rapport Mod/Mes
H ₂ O	1498	72	Y=0,78+0,00	0,23	6,50.10 ⁻³	1,93
CO ₂	3821	211	Y=0,69+0,00	0,60	1,53.10 ⁻³	1,06

IV.1.2.6 Flux de CO₂

• Résultats

La campagne de mesure réalisée du 01/05/2016 au 19/07/2016 permet l'acquisition de données *in situ*, comparable aux données issues du modèle TOCATTA- χ (Figure IV.11). Ces chroniques sont obtenues selon la même méthode que celle décrite précédemment (§ IV.1.2.5).

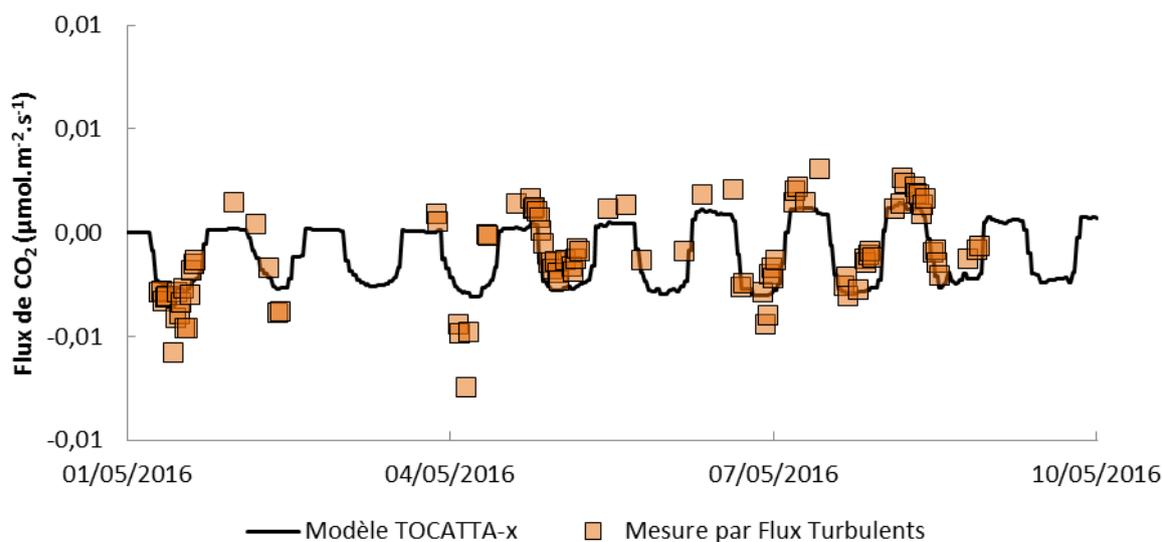


Figure IV.11 : Exemple de chroniques des flux de CO₂ ($\mu\text{mol.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$) de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague du 1^{er} mai 2016 au 11 mai 2016, issues du modèle TOCATTA- χ et de mesures *in situ* par la méthode des flux turbulents. Les données expérimentales ont été corrigé en fonction de la stationnarité et de la direction du vent (N=3821).

• Discussion

Le modèle de PlantMod utilisé dans les calculs photosynthétiques de TOCATTA- χ (Johnson, 2010) est issu d'une simplification du modèle de Farquhar *et al.* (1980), qui induit une moins bonne

corrélation qu'un modèle plus détaillé tel celui de Farquhar. Cependant, au regard des indications statistiques sur la corrélation modèle mesure des flux de CO₂ (Figure IV.12 et Tableau IV.5) et de la bonne représentation de la croissance (cf. § IV.1.2.3) - qui est liée à la **photosynthèse** est donc au flux net de CO₂ - le flux de carbone modélisé est cohérent avec les observations expérimentales. La sous-estimation générale des flux de CO₂ modélisés par rapport aux flux de CO₂ mesurés peut être justifiée par la différence de production de matière sèche entre un pâturage continu et intensif - reproduit expérimentalement - et un pâturage rationné (§ IV.1.2.4).

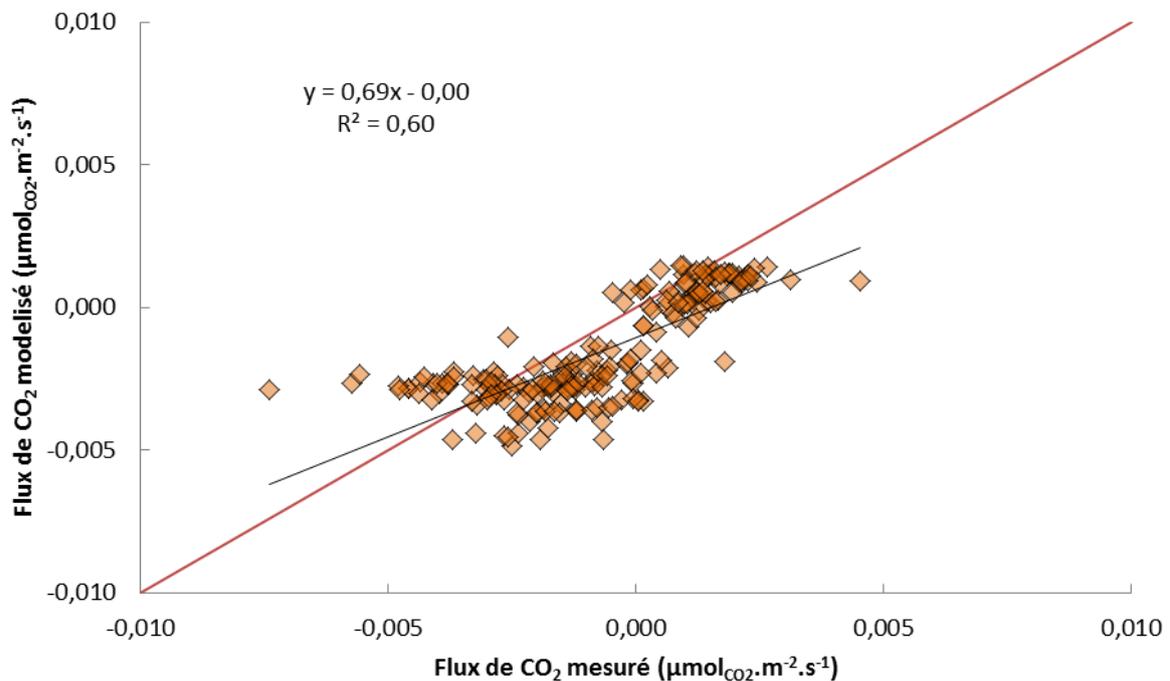


Figure IV.12 : Comparaison des flux net de CO₂(μmol_{CO2}.m⁻².s⁻¹) issus du modèle TOCATTA-χ avec les mesures de flux de CO₂ réalisées à la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague du 1 mai 2016 au 30 mai 2016. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.

IV.2 Description du modèle TOCATTA-χ_{post-thèse}

IV.2.1 Oxydation bactérienne du HT dans le sol

IV.2.1.1 Paramètres expérimentaux

Les caractéristiques granulométriques des sols prélevés sont reportés Tableau IV.6. Ces analyses sont effectuées par un laboratoire extérieur (INRA-Arras) selon les normes NF ISO 11464 et NF X 31-107. Les différentes fractions d'argiles, de limons totaux et de sables totaux obtenus permettent de déterminer le type de sol à partir du triangle textural (Figure I.6).

Tableau IV.6 : Caractéristiques granulométriques des différents sols utilisés pour les expériences en laboratoire pour l'étude de l'oxydation bactérienne du HT.

Expérimentation	Teneur en argile	Teneur en limons totaux	Teneur en sables totaux	Type de sol
-	$\text{kg}_{\text{argile}} \cdot \text{kg}_{\text{sol sec}}^{-1}$	$\text{kg}_{\text{limons}} \cdot \text{kg}_{\text{sol sec}}^{-1}$	$\text{kg}_{\text{sables}} \cdot \text{kg}_{\text{sol sec}}^{-1}$	-
1	0,189	0,567	0,244	Limon fin
2	0,183	0,476	0,341	Limon
3	0,090	0,399	0,511	Limon

Tableau IV.7 : Caractéristiques expérimentales mesurées lors des essais en laboratoire d'oxydation bactérienne du HT dans les premiers centimètres de sol.

Durée d'oxydation	Température de la salle d'oxydation	Débit d'injection de HT	Activité HT dans l'air du sac	Teneur en eau volumique sonde 1	Teneur en eau volumique sonde 2
-	°C	$\text{L} \cdot \text{min}^{-1}$	$\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$	$\% \text{ m}^3_{\text{eau}} \cdot \text{m}^{-3}_{\text{sol}}$	$\% \text{ m}^3_{\text{eau}} \cdot \text{m}^{-3}_{\text{sol}}$
<i>Expérimentation 1 (N = 9)*</i>					
Du 07/04/2016	$19,6 \pm 0,6$	0,17	$5,8 \pm 0,3$	$20,8 \pm 3$	$28,2 \pm 3$
au 20/04/2016	$(18,9-20,0)^*$	$(0,12-0,28)^*$		$(17,5-26,2)^*$	$(27,1-29,4)^*$
<i>Expérimentation 2 (N = 13)*</i>					
Du 27/05/2016	$20,3 \pm 0,6$	0,21	$1,1 \pm 0,1$	$6,0 \pm 3$	$5,3 \pm 3$
au 06/06/2016	$(18,8-22,5)^*$	$(0,09-0,28)^*$		$(5,0-7,2)^*$	$(5,0-5,7)^*$
<i>Expérimentation 3 (N = 16)*</i>					
Du 29/06/2016	$20,9 \pm 0,6$	0,16	$1,1 \pm 0,1$	$9,7 \pm 3$	$7,5 \pm 3$
au 20/07/2016	$(18,3-26,4)^*$	$(0,10-0,24)^*$		$(8,7-11,7)^*$	$(6,8-8,4)^*$

* : moyenne de N données des paramètres internes du sac d'oxydation, relevées régulièrement au cours des expérimentations.

Les paramètres expérimentaux internes à la chambre d'oxydation sont reportés Tableau IV.7. Les données sont notées régulièrement au cours de chacune des trois expériences. L'activité en HT de

l'air injecté dans le sac est mesurée avec un compteur proportionnel à gaz, à partir d'un échantillon d'air présent dans la bonbonne d'air.

Dans la mesure où le HT et le ^{85}Kr sont rejetés de façon concomitante par l'usine AREVA-NC La Hague (Maro *et al.*, 2017, cf. § III.1.5.1), il est possible de suivre en temps réel l'évolution de l'activité en HT au sein de la chambre d'oxydation (Figure IV.13) : le ^{85}Kr est mesuré automatiquement à haute fréquence (10 secondes) puis moyenné sur une heure. C'est le cas pour les expérimentations n°2 et n°3. Concernant l'expérimentation n°1, seules les mesures de ^{85}Kr relevées manuellement sont disponibles en raison d'un problème d'enregistrement automatique des données. L'évolution du ^{85}Kr est reportée Figure IV.13, un palier est atteint en une dizaine d'heure, ce qui correspond à une ambiance krypton (tritium) homogène au sein du sac.

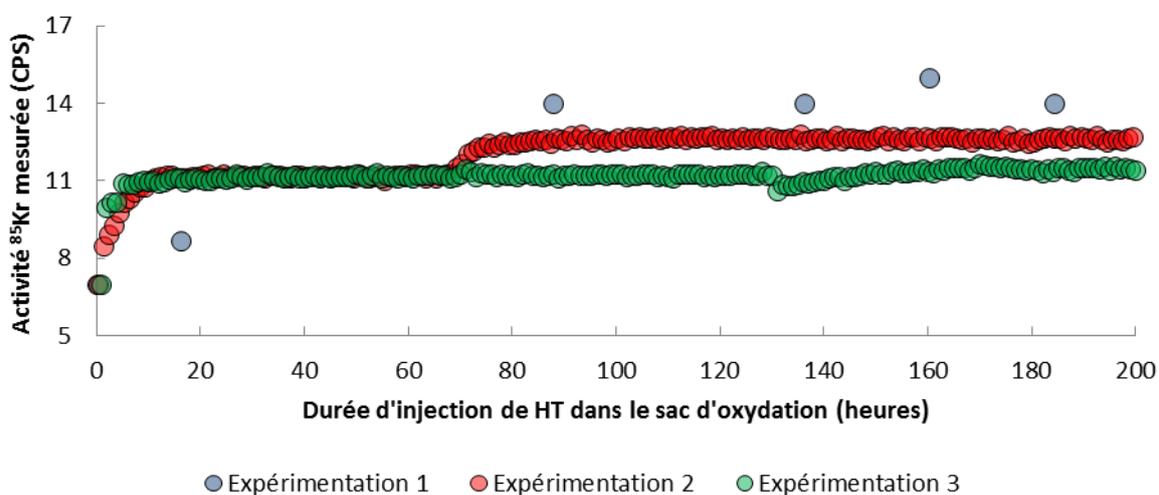


Figure IV.13 : Evolution du ^{85}Kr au cours des différentes expérimentations d'oxydation du HT par les bactéries du sol. Chaque point correspond à une mesure (expérimentation 1 : mesure ponctuelle, expérimentations 2 et 3 : mesure automatique (toutes les minutes) moyennée sur 1 heure). CPS signifie « Coups par Seconde ».

Bien que l'activité injectée en HT soit identique pour les expérimentations 2 et 3, les activités mesurées en ^{85}Kr dans le sac d'oxydation diffèrent selon l'expérience (Figure IV.13) car les débits d'injection d'air dans le sac sont différents (Tableau IV.7).

Afin de s'assurer qu'il n'y a pas d'apport de HTO au sein de la chambre d'oxydation, l'activité de HTO présent dans l'air injecté est mesurée au cours des différentes expérimentations d'oxydation du HT par les bactéries du sol (Tableau IV.8). Le HTO présent dans la bonbonne d'air est piégé par barbotage en amont de la chambre d'oxydation (Figure III.26). Les mesures confirment l'absence de HTO lors du piégeage du HT.

Tableau IV.8 : Activité du HTO présent dans l'air injecté dans la chambre d'oxydation.

Expérimentation	Activité du HTO présent dans l'air injecté
-	Bq.L ⁻¹
1	<1
2	<1
3	<1

Cependant il est important de rappeler que l'ambiance tritiée du laboratoire au moment de la **lyophilisation** n'est pas censée impacter le **HTO** issu de la **lyophilisation**, car ce dernier n'est présent que dans le compartiment étanche du lyophilisateur. L'eau issue de la **lyophilisation** (contenant le **HTO**) n'est exposée à son environnement que quelques secondes, le temps de verser le contenu liquide issu de la **lyophilisation** dans un flacon pour mesure.

IV.2.1.2 Variabilité spatiale de l'oxydation bactérienne du HT

- **Résultats**

Tableau IV.9 : Activité tritiée de l'eau du sol (HTO, Bq.L⁻¹) des carottes autoclavées soumises à une exposition constante de HT, selon les conditions de l'expérimentation n° 3.

	Durée d'exposition au HT	Activité du HT	Activité HTO
	jours	Bq.m ⁻³	Bq.L ⁻¹
Carotte de 5 cm N° 1	8	1,1 ± 0,1	<1
Carotte de 5 cm N° 2	8	1,1 ± 0,1	<1

Afin de s'assurer que l'activité mesurée de **HTO** dans le sol correspond à l'oxydation bactérienne, l'expérience est réalisée avec des carottes ayant subi une autoclave, la vapeur d'eau saturée sous pression permet leur stérilisation. L'activité des carottes de sol autoclavées (de 0 à 5 cm de profondeur) est mesurée après une exposition au HT selon les mêmes conditions que l'expérimentation n° 3. Les résultats de l'activité de l'eau du sol de ces carottes sans bactéries suite à une exposition au HT de 8 jours (Tableau IV.9) témoignent qu'il n'y a pas de production

mesurable de HTO dans ces conditions. Dans le cadre de nos conditions expérimentales, il est alors admis que seule la production bactérienne de HTO est mesurée.

La variabilité spatiale de la production de HTO dans les premiers centimètres de sol est étudiée avec la seconde expérimentation (cf. § Paramètres étudiés, p. 155). Les résultats obtenus sont reportés Tableau IV.10.

Tableau IV.10 : Activité en HTO de l'eau du sol mesurée à différentes profondeurs, selon les conditions de l'expérimentation n°2. Les parties aériennes correspondent à la partie foliaire du ray-grass.

Profondeur de la tranche de sol	Activité mesurée en HTO de l'eau du sol
cm	Bq.L ⁻¹
<i>Carotte - 1 (témoin)</i>	
0 - 5	<1
0 - 20	<1
<i>Carotte - 2</i>	
0 - 5	8,0 ± 0,9
0 - 3,3	8,5 ± 0,9
3,3 - 6,6	3,5 ± 0,8
6,7 - 10	1,3 ± 0,8
10 - 15	1,5 ± 0,8
15 - 20	<1
<i>Carotte - 3</i>	
0 - 5	8,8 ± 0,9
0 - 3,3	8,2 ± 0,9
3,3 - 6,6	4,6 ± 0,8
6,7 - 10	1,9 ± 0,8

10 - 15	<1
15 - 20	1,0 ± 0,8
<i>Carotte - 4</i>	
0 - 5	8,4 ± 0,9
0 - 3,3	8,4 ± 0,8
3,3 - 6,6	3,8 ± 0,8
6,7 - 10	1,4 ± 0,8
10 - 15	1,3 ± 0,8
15 - 20	<1
<i>Carottes 2,3 et 4</i>	
Parties aériennes (carottes de 5 cm)	7,5 ± 0,9
Parties aériennes (carottes de 20 cm)	8,0 ± 0,9

- **Discussion**

Les résultats précédents témoignent d'une relation directe entre la mesure de **HTO** dans le sol par oxydation bactérienne et la présence de bactéries (Tableau IV.9 et Tableau IV.10). La production de **HTO** relative à la profondeur de sol, reportée Figure IV.14, évolue spatialement comme la distribution spatiale de bactéries oxydantes, au regard des incertitudes. Il est possible de conclure que pour différents types de sol, l'évolution de la production de **HTO** suit l'évolution spatiale de la teneur en bactéries. Cette tendance se justifie par la pénétration de **HTO** et des gaz en général dans les sols qui est plus forte dans les 4 premiers cm (cf. § 1.2.2.2), d'où une teneur en bactéries et une production de **HTO** plus importante en surface.

L'activité **TFWT** mesurée au sein des feuilles correspond à l'activité du **HTO** mesurée dans les 5 premiers centimètres de sol (Tableau IV.10), car la densité racinaire y est plus importantes (Evans, 1978 ; Crush *et al.*, 2005 ; Crush *et al.*, 2010 ; Bonin *et al.*, 2013) et donc l'assimilation racinaire également. Dans ce scénario, l'activité **TFWT** des feuilles est le reflet du **HTO** de l'eau du sol à proximité de la surface.

L'air injecté dans le sac ne contient pas de **HTO** (Tableau IV.8), donc il est possible de s'attendre à une dilution du **TFWT** par diffusion foliaire. Cependant, l'humidité relative maximale à l'intérieur

du sac d'oxydation est rapidement atteinte car des gouttes d'eau apparaissent en moins de 24h sur les parois du sac et sur les feuilles. Ces gouttes proviennent de la transpiration du végétal, donc l'activité de l'eau transpirée correspond à l'activité du TFWT. L'activité de ces gouttes de transpiration se met en équilibre avec la vapeur d'eau injectée dans le sac et atténue ainsi la dilution foliaire attendue.

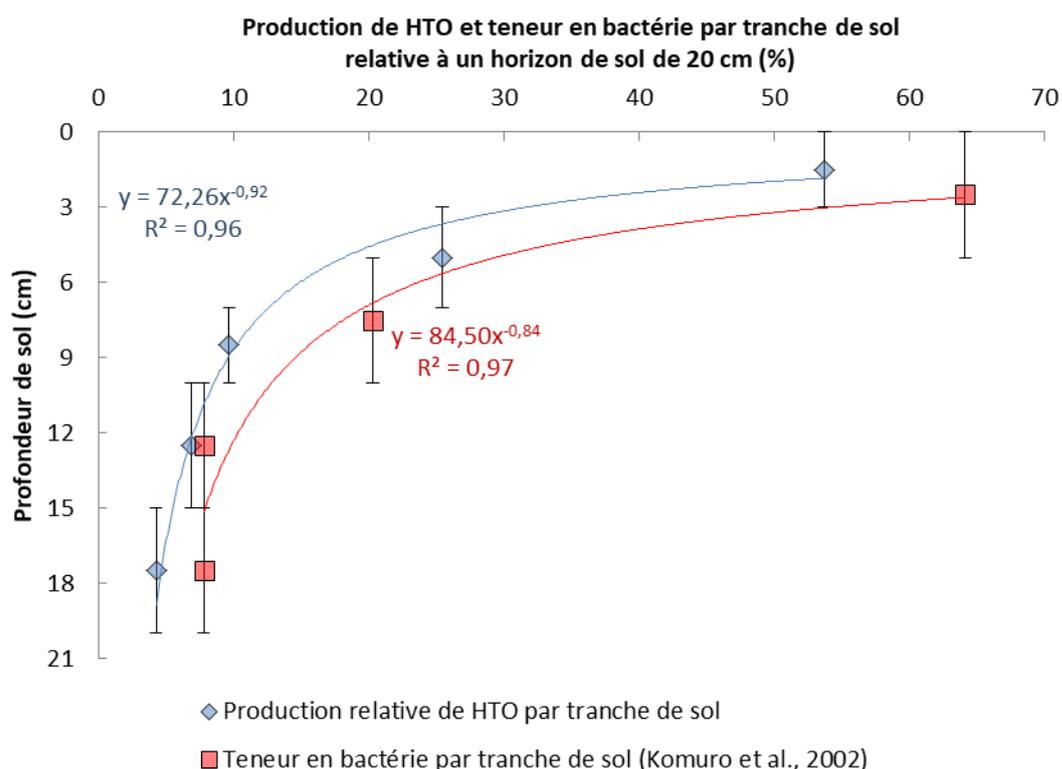


Figure IV.14 : Comparaison de la production de HTO obtenue expérimentalement par tranche de sol relative à la profondeur de sol utilisée (20 cm) avec l'évolution spatiale de la teneur en bactérie oxydante issue de Komuro *et al.*, 2002.

L'objectif de cette étude consiste à déterminer la vitesse d'oxydation dans un sol limoneux, sans approfondir les différents processus régissant les réactions bactériennes oxydantes tels que le pH du milieu pour les réactions enzymatiques (Ivanov *et al.*, 2010) ou encore certains composés gazeux affectants les réactions d'oxydations bactériennes (van Bodegom *et al.*, 2001 ; Klok *et al.*, 2012 ; Sullivan *et al.*, 2013 ; Mellbye *et al.*, 2016). Tout comme la diffusion foliaire, d'autres paramètres influençant l'activité HTO dans le sol ne sont pas quantifiés au cours de cette expérimentation : la pénétration par diffusion du HT et de l'oxygène dans les sols, la transpiration, l'évaporation, la compaction du sol (Tracy *et al.*, 2011), la quantification de la composition chimique de l'air et l'interaction de certains composés aériens sur les bactéries oxydantes, etc. Cependant, il est supposé dans cette étude que les sols utilisés ne présentent pas de perturbations particulières des

processus d'oxydation bactérienne (pas de perturbation par compaction, mauvaise aération du sol ou pH acide), et que l'activité du HT présent au sein du sac est en équilibre avec l'activité en HT au sein des carottes de sols.

IV.2.1.3 Variabilité temporelle de l'oxydation de HT

• Résultats

L'évolution de la production de HTO dans les premiers centimètres de sol est étudiée avec la troisième expérimentation (cf. § Paramètres étudiés, p. 155). Les résultats obtenus sont reportés Tableau IV.11, où l'activité mesurée notée en rouge est supposée inférieure à 1 Bq.L⁻¹, car :

- l'activité des deux autres « blancs » est au bruit de fond (<1 Bq.L⁻¹) ;
- l'activité des carottes autoclavées est inférieure à 1 Bq.L⁻¹.

Ce résultat peut être expliqué par une ambiance tritiée de la vapeur d'eau de l'air légèrement supérieure au bruit de fond lors de l'ouverture du lyophilisateur. Il suffit que la récupération du HTO issu de la **lyophilisation** soit un peu plus longue qu'habituellement, ou qu'au moment du dégivrage le vide soit rompu dans ce lyophilisateur pour que des échanges rapides interviennent avec la vapeur d'eau de l'air ; ce qui induirait un marquage du HTO récupéré dans le lyophilisateur.

Tableau IV.11 : Activité en HTO de l'eau du sol (Bq.L⁻¹) mesurée à différentes profondeurs selon les conditions de l'expérimentation n°3.

Profondeur de la tranche de sol	Activité mesurée HTO du sol
cm	Bq.L ⁻¹
<i>T0 (blanc)</i>	
0 - 5	1,7 ± 1,3
0 - 10	<1
10 - 20	<1
<i>T0 + 1 semaine (8 j)</i>	
0 - 5	1,5 ± 1,3
0 - 10	1,1 ± 1,3
10 - 20	<1

<i>T0 + 2 semaines (16 j)</i>	
0 - 5	4,2 ± 1,3
0 - 10	2,4 ± 1,3
10 - 20	<1
<i>T0 + 3 semaines (24 j)</i>	
0 - 5	6,6 ± 1,4
0 - 10	3,8 ± 1,3
10 - 20	<1

- **Discussion**

A partir du Tableau IV.11, la production de **HTO** par oxydation bactérienne (Bq de HTO.L⁻¹.semaine⁻¹) est déterminée après une à trois semaine(s) d'injection de **HT** dans la chambre d'oxydation (Tableau IV.12) selon les conditions de l'expérimentation n° 3.

D'un point de vue spatial, la production de **HTO** est d'autant plus forte que la surface de sol est proche, en accord avec la distribution bactérienne verticale (Figure IV.14). D'un point de vue temporel, la production bactérienne de **HTO** dans le sol par oxydation évolue de façon linéaire au cours des trois premières semaines. Ce résultat est en accord avec les résultats obtenus par Piché-Choquette *et al.* (2016), où le taux d'oxydation dans le sol du dihydrogène gazeux (H²) d'origine atmosphérique évolue de façon linéaire et constante au cours des 7 premiers jours d'expérimentation.

Tableau IV.12 : Activité HTO de l'eau du sol mesurée après des temps variables d'exposition au HT, selon l'expérimentation n°3.

Tranche de sol	Semaine	Production de HTO
cm		Bq de HTO.L ⁻¹ .semaine ⁻¹
	0 - 1	2,7*
0 - 5	1 - 2	2,7
	2 - 3	2,4
	0 - 1	1,1*
0 - 10	1 - 2	1,3
	2 - 3	1,4
	0 - 1	<1
10 - 20	1 - 2	<1
	2 - 3	<1

*Pour déterminer la production bactérienne de HTO lors de la première semaine expérimentale, il est assumé que l'activité HTO du sol est initialement nulle (Tableau IV.11).

IV.2.1.4 Variabilité texturale de l'oxydation de HT

- **Résultats**

La variabilité de l'oxydation de HT selon la texture du sol dans les premiers centimètres de sol est étudiée avec les expérimentations 1, 2 et 3 (cf. § Paramètres étudiés, p. 155). Les résultats obtenus de vitesse d'oxydation en fonction des différentes textures de sol sont reportés Tableau IV.13.

Tableau IV.13 : Activité de HTO de l'eau du sol mesurée dans différents types de sol après une exposition au HT.

Durée d'oxydation heure	Activité HTO - témoin		Activité HTO - oxydation						Activité HTO moyenne	
	c5*	c20**	c5-1	c5-2	c5-3	c20-1	c20-2	c20-3	c5	c20
	Bq.L ⁻¹	Bq.L ⁻¹	Bq.L ⁻¹	Bq.L ⁻¹	Bq.L ⁻¹	Bq.L ⁻¹	Bq.L ⁻¹	Bq.L ⁻¹	Bq.L ⁻¹	Bq.L ⁻¹
<i>Expérimentation 1</i>										
305,4	<1	<1	5,1 ± 0,9	6,2 ± 0,9	9,7 ± 0,9	2,9 ± 0,8	2,8 ± 0,8	2,6 ± 0,8	7,0 ± 0,9	2,8 ± 0,8
<i>Expérimentation 2***</i>										
314,2	<1	<1	8,0 ± 0,9	8,8 ± 0,9	8,4 ± 0,9	3,1 ± 0,8	3,2 ± 0,8	3,1 ± 0,8	8,4 ± 0,9	3,1 ± 0,8
<i>Expérimentation 3****</i>										
332,1	<1	<1	4,2 ± 1,3	-	-	1,2 ± 1,3	-	-	4,2 ± 1,3	1,2 ± 1,3

*c5 correspond à une carotte de 5cm de profondeur. **c20 correspond à une carotte de 20cm de profondeur.

***les données des carottes c20 correspondent à une moyenne des 5 tranches (

Tableau IV.10). **** les données des carottes c20 correspondent à une moyenne des 2 tranches (Tableau IV.11).

• Discussion

Le paramètre b1 est calculé à partir du paramètre Km des équations de Michaëlis-Menten (cf. § III.2.1.1) selon l'Équation III.22. Le Tableau IV.14 reporte les différentes valeurs de b1 obtenues expérimentalement ou déterminées à partir de la littérature. Dans ce dernier cas, seul le paramètre Km correspondant à l'oxydation du H₂ issu de l'environnement est utilisé pour déterminer b1.

Tableau IV.14 : Variabilité du paramètre b1 obtenu expérimentalement ou à partir de la littérature, en fonction de la texture de sol.

Source	Type de sol	Teneur en argile	Teneur en sable	b1	Km
-	-	$\text{kg}_{\text{argile}} \cdot \text{kg}_{\text{sol}}^{-1}$	$\text{kg}_{\text{sable}} \cdot \text{kg}_{\text{sol}}^{-1}$	ppm HT	ppm HT
Conrad <i>et al.</i> , 1983	Limon fin	0,18**	0,05**	$2,84 \cdot 10^6$ *	11,5
Conrad <i>et al.</i> , 1983	Limon fin	0,18**	0,05**	$4,12 \cdot 10^6$ *	16,7
Conrad <i>et al.</i> , 1983	Sable limoneux	0,03**	0,88**	$8,22 \cdot 10^6$ *	33,3
Conrad <i>et al.</i> , 1983	Sable limoneux	0,03**	0,88**	$6,86 \cdot 10^6$ *	27,8
Dong et Layzell, 2001	Sable	0,03*****	0,90*****	$9,92 \cdot 10^6$ *	40,2
Ota <i>et al.</i> , 2007	Sable***	0,03***	0,88***	$7,90 \cdot 10^6$	32
Piché-Choquette <i>et al.</i> , 2016	Limon sableux	0,10****	0,64****	$3,21 \cdot 10^6$ *	13
Expérimentation 1	Limon fin	0,19	0,24	$8,70 \cdot 10^5$	2,9
Expérimentation 2	Limon	0,18	0,34	$1,00 \cdot 10^5$	0,3
Expérimentation 3	Limon	0,09	0,51	$5,20 \cdot 10^5$	1,7

*La température est supposée égale à 25°C si non indiquée dans la littérature. ** Issu de Seiler *et al.*, 1977. *** Puisque le sol de cette étude est physiquement apparenté à celui décrit par Conrad et Seiler (1982), ce sol est considéré avec la même composition granulométrique. ****valeurs moyenne pour cette gamme granulométrique. ***** Le type de terrain est issu de Info-sols.ca et de la localisation avec Google Map du lieu de prélèvement indiqué dans la littérature. Le tiers de silice ajouté au mélange sol est assimilé à un sol 100 % de sableux.

Les valeurs de b1 obtenues dans le cadre de notre étude confirment l'importance de la texture de sol sur la production de HTO par oxydation bactérienne. Une spatialisation du paramètre b1 selon la texture du sol (Figure IV.15) est obtenue en reportant les données b1 du Tableau IV.14 dans le triangle textural présenté Figure I.6.

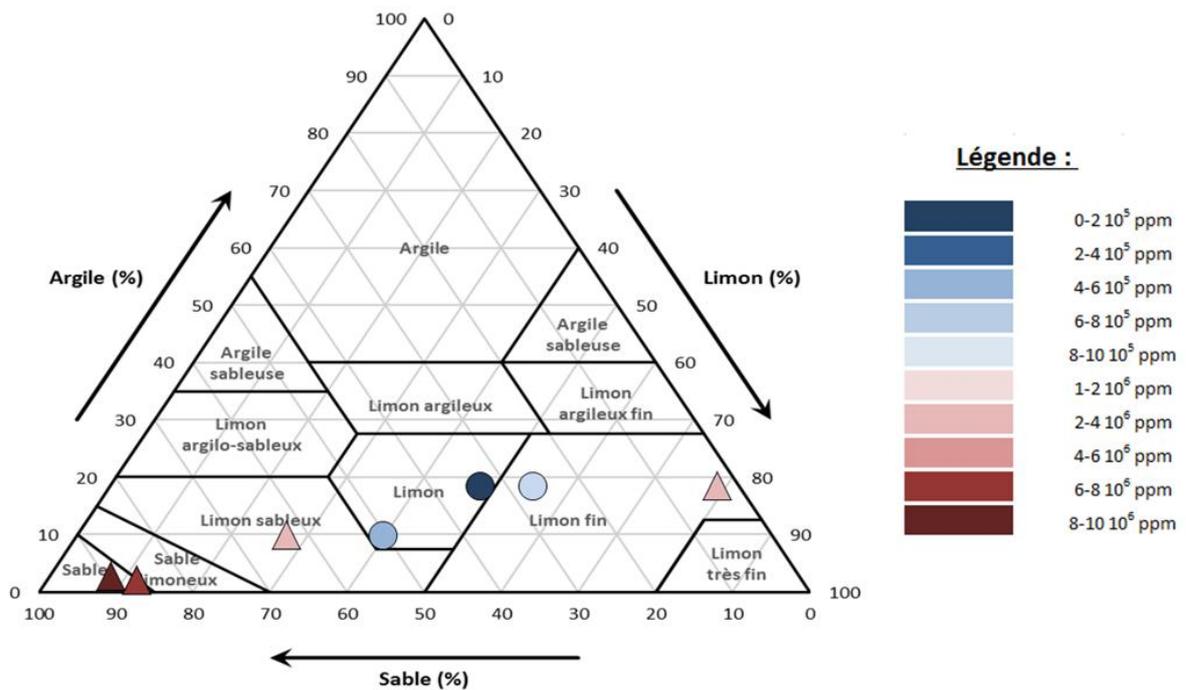


Figure IV.15 : Illustration de la variabilité du paramètre b1 (ppm HT) en fonction de la texture de sol. Les résultats issus de notre étude sont représentés par un cercle (sols décrits Tableau IV.6), les résultats issus de la littérature sont représentés par un triangle.

En accord avec les données reportées Figure IV.15, le paramètre b1 semble évoluer avec la teneur en sable selon une parabole avec un minimum atteint pour les sols limoneux. Cette tendance n'est cependant applicable que pour des teneurs en argile inférieure à 25 %, car il n'y a pas de données disponibles au-dessus de cette valeur.

La Figure IV.16 propose une équation permettant de déterminer le paramètre b1 à partir de la teneur en sable, pour des sols dont la teneur en argile est inférieure à 25 %. L'incertitude des données reportées Figure IV.16 correspondent à l'approximation de détermination du type de sol (Tableau IV.14). Typiquement, lorsque le type de sol est indiqué dans une étude mais pas ses fractions granulométriques, la valeur moyenne de la classe de sol est utilisée : il s'agit du pourcentage moyen de sable, d'argile et de limons pour cette gamme de sol.

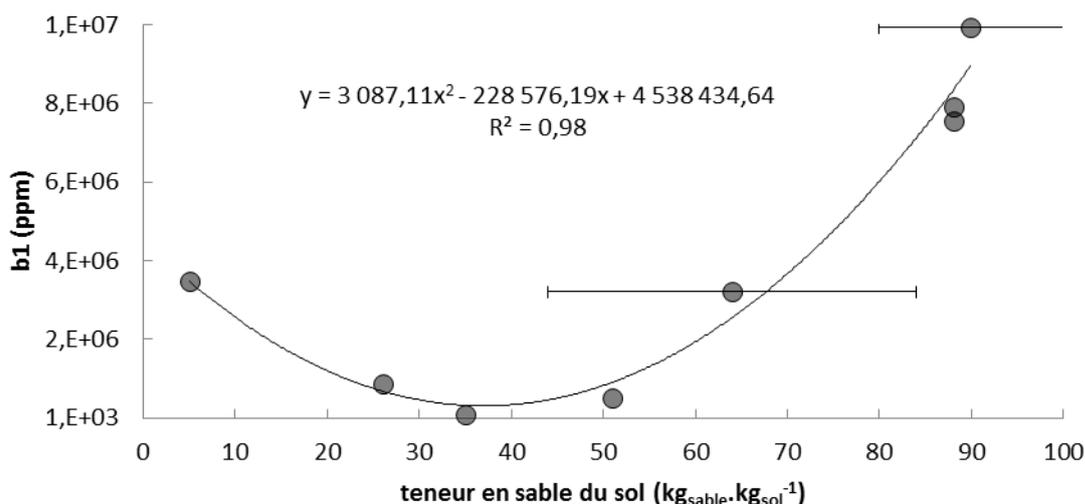


Figure IV.16 : Détermination du paramètre b1 (ppm HT) à partir de la texture de sol, pour des sols dont la teneur en argile est inférieure à 25 %. Parmi les valeurs de b1 reportées issues de la littérature (Tableau IV.14), si plusieurs valeurs de b1 sont présentes dans une étude pour un même type de sol alors la valeur de b1 retenue est une moyenne de ces données existantes.

Comme évoqué dans le § IV.2.1.2, les échanges diffusifs entre le HTO de la vapeur d'eau de l'air et le HTO de la vapeur d'eau du sol ne sont pas considérés. L'ambiance humide de l'air au sein de la chambre d'oxydation est issue de la transpiration végétale, avec une activité TFWT proche de l'activité de la vapeur d'eau de l'air du sol à proximité de la surface. De ce fait, il est assumé que les échanges diffusifs sont négligeables en terme de variation d'activité HTO ; autrement dit, le flux d'injection de vapeur d'eau de l'air est inférieur au flux d'évapotranspiration. De plus il n'y a pas de quantification des bactéries (ou autre microorganismes), ni d'études approfondies des paramètres du sol influençant l'activité bactérienne oxydante. Cette étude mérite d'être complétée à l'avenir. Il serait intéressant de déterminer le paramètre b1 pour des sols argileux, afin que l'équation d'oxydation bactérienne (Équation III.22) soit applicable pour tout type de sol.

IV.2.2 Transfert sol-plante (lysimètres)

IV.2.2.1 Résultats

Les lysimètres sont irrigués avec de l'eau marquée à $113,0 \pm 2,5 \text{ Bq.L}^{-1}$ (N=8). L'eau d'arrosage est directement injectée dans le sol des lysimètres, puis l'eau d'irrigation percole et rejoint un drain. L'activité de l'eau drainée (« eau recueillie sous le drain ») est cependant toujours inférieure ou égale à l'eau d'arrosage (Figure IV.17).

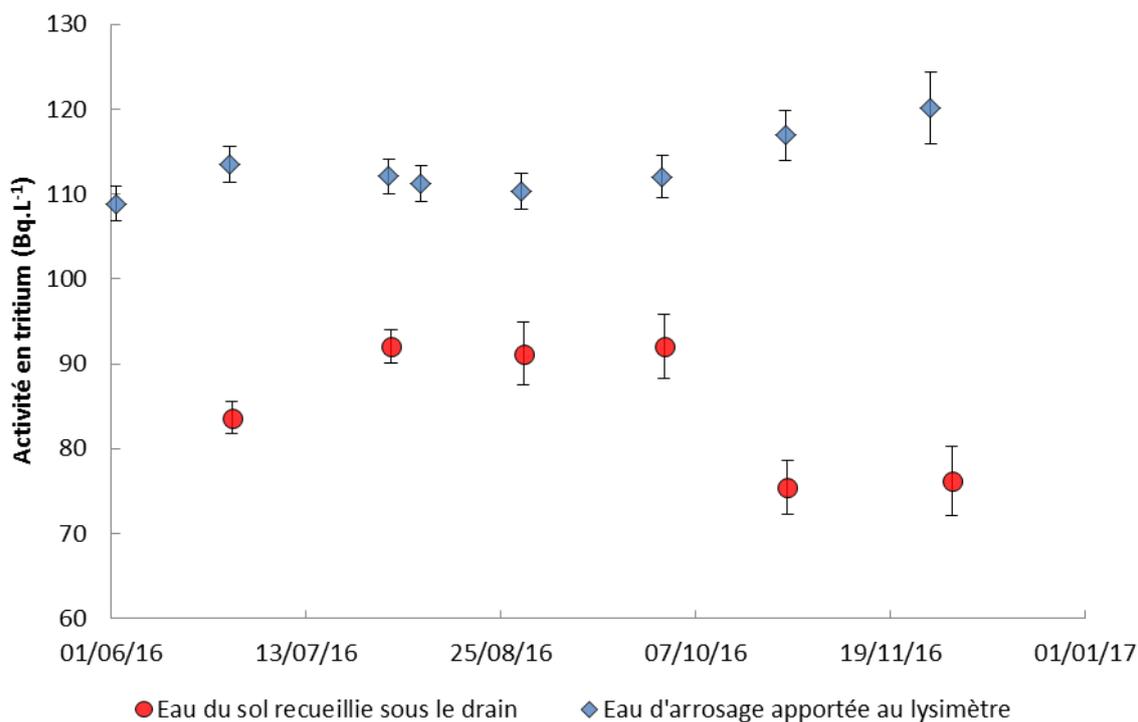


Figure IV.17 : Chronique temporelle de l'activité de l'eau d'arrosage et de l'eau de drainage des lysimètres.

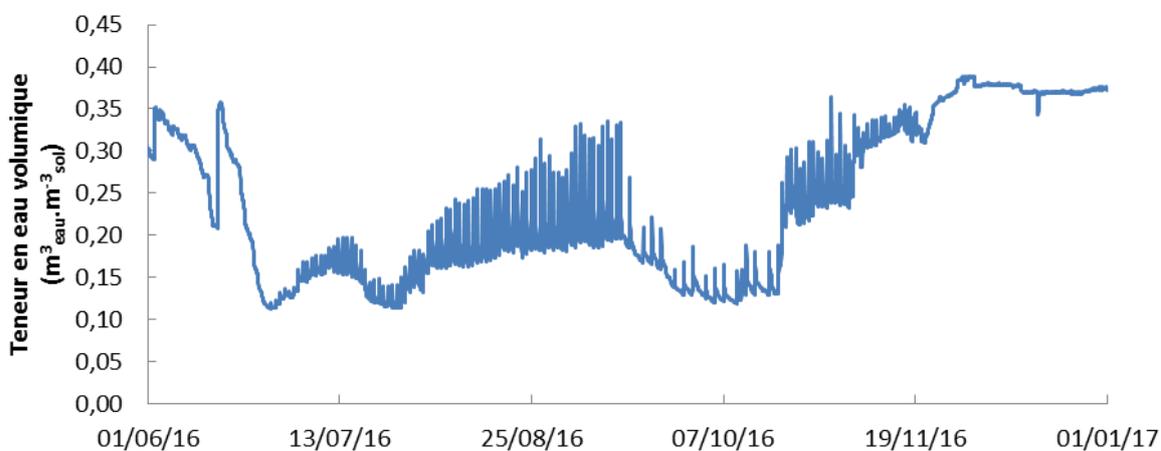


Figure IV.18 : Chronique temporelle des mesures de la teneur en eau du sol au niveau du ray-grass irrigué avec de l'eau marquée en tritium à 110 Bq.L⁻¹.

Afin de ne pas apporter un stress hydrique, l'eau d'arrosage est injectée régulièrement dans les lysimètres, toutes les 24 h ou 48 h selon la période. Pour la suite de cette étude, la période considérée correspond au pas de temps expérimental où l'eau injectée dans les lysimètres est marquée en tritium (110 Bq.L⁻¹) et où les mesures de teneur en eau du sol, **TFWT** et **HTO** du sol sont

disponibles. Cette période s'étend du 1^{er} juin 2016 au 31 décembre 2016. Au cours de cette période, la teneur en eau volumique des lysimètres varie entre 0,11 et 0,39 m³_{eau}·m⁻³_{sol} (Figure IV.18).

L'activité en tritium du sol (noté « HTO sol », Tableau IV.15) est mesurée par carottage du sol, de 0 à 20 cm de profondeur. La mesure du TFWT (Tableau IV.15) est réalisée après le prélèvement des parties aériennes du ray-grass, dont le protocole est décrit précédemment (cf. § III.1.5.3).

Tableau IV.15 : Mesures du tritium sous forme d'eau libre dans les différents compartiments (TFWT de la plante ou HTO du sol) au sein des lysimètres de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague.

Date de prélèvement	TFWT	HTO sol	HTO air
-	Bq.L ⁻¹	Bq.L ⁻¹	Bq.m ⁻³
16/06/2016 11:30	12,8 ± 1,0	- ¹	0
16/06/2016 11:30	29,7 ± 1,3	-	0
27/06/2016 11:35	30,2 ± 1,3	83,6 ± 1,9	0
13/07/2016 08:00	37,3 ± 1,4	-	0,17
01/08/2016 09:25	42,4 ± 1,4	92,1 ± 1,9	0,74
18/08/2016 13:10	48,5 ± 2,4	-	0
18/08/2016 13:10	49,8 ± 2,5	-	0
30/08/2016 11:10	49,4 ± 2,4	91,2 ± 3,7	0
12/09/2016 13:36	72,0 ± 3,1	-	0
30/09/2016 09:00	24,5 ± 1,7	92,1 ± 3,8	0,04
27/10/2016 12:07	22,9 ± 1,6	75,5 ± 3,1	0
02/12/2016 13:08	19,6 ± 1,4	76,2 ± 4,1	0

¹ : absence de mesures.

IV.2.2.2 Discussion

Du fait des échanges de surface, l'activité de l'eau du sol mesurée est inférieure au HTO de l'eau d'injection (110 Bq.L⁻¹) (Tableau IV.15) : il existe un échange de surface diffusif entre l'eau

atmosphérique et l'eau du sol, pris en compte dans le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ et exprimé selon l'équation d'échange diffusif de Belot *et al.* (1996) (Équation IV.2).

$$J = v_e \cdot (\rho_a C_a - \beta \rho_v C_{s0}) \quad \text{Équation IV.2}$$

Avec J le flux net de tritium ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$), C_a la concentration de tritium dans l'eau atmosphérique ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$), C_{s0} la concentration de tritium dans l'eau de la couche superficielle ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$), v_e la vitesse d'échange ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$), ρ_a la masse de vapeur d'eau par unité de volume d'air ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$), ρ_v la masse de vapeur d'eau saturante par unité de volume d'air ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$) et β l'inverse du facteur de séparation isotopique (-).

Dans le cadre de cette étude sur lysimètres, l'activité de l'eau atmosphérique n'est pas autant marquée en tritium que l'eau du sol des lysimètres. Ce flux diffusif sol-air contribue à marquer l'eau en tritium dans l'air situé à l'aplomb de la parcelle, qui va également rejoindre le compartiment **TFWT** via la diffusion foliaire. Le marquage ou l'enrichissement de la vapeur **HTO** de l'atmosphère à partir de la vapeur d'eau tritiée du sol via ce flux diffusif sol-air, non pris en compte dans TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$, est considéré dans le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$.

La contribution relative de l'eau tritiée du sol au **TFWT** est de 27 % à 79 % selon les conditions météorologiques. La température ambiante, la vitesse du vent et l'humidité influencent l'ouverture des **stomates**, ce qui impacte les échanges diffusifs du **TFWT** avec le **HTO** de l'air (Équation I.32).

Dans la mesure où la droite de régression linéaire entre le jeu de donnée modélisées et expérimentales est proche de 1 (Figure IV.19) et que l'écart moyen relatif est de 27 % (N=12) avec un écart relatif maximal de 61 % et un écart relatif minimal de 11 %, il est admis que la contribution du **HTO** du sol au **TFWT** est correctement représentée par le modèle.

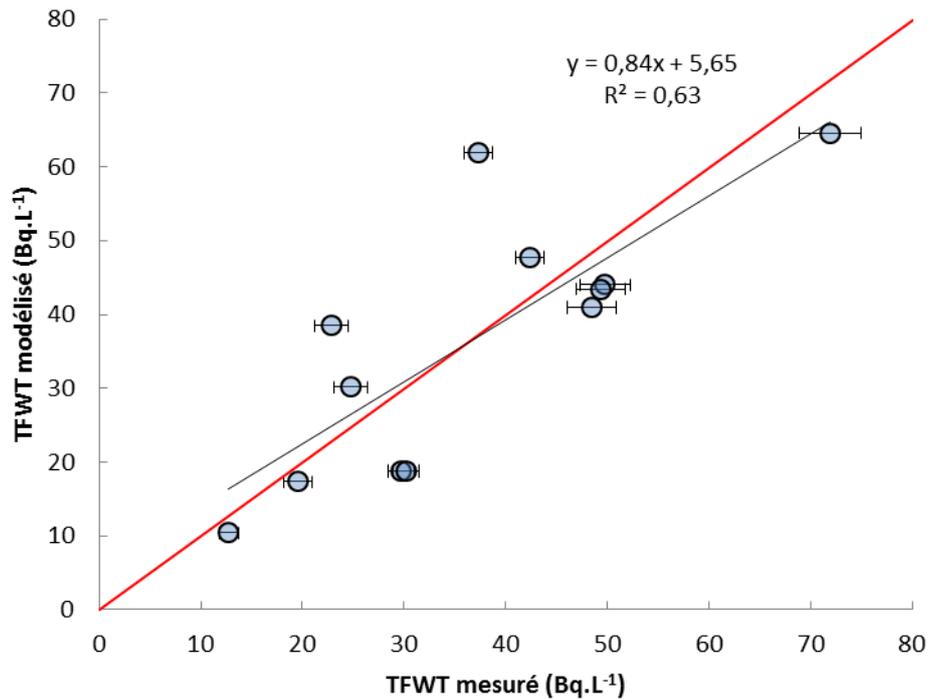


Figure IV.19 : Comparaison entre le modèle TOCATTA- $\gamma_{\text{post-thèse}}$ et les mesures *in situ* des activités TFWT pour des végétaux protégés de la pluie et irrigués avec de l'eau du sol marquée à 110 Bq.L⁻¹, du 16 juin 2016 au 31 décembre 2016 (N=20). La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.

IV.2.3 Cinétique de transfert végétal de la vapeur d'eau tritiée atmosphérique

IV.2.3.1 Résultats

• Expérimentation 1

Les conditions climatiques favorables (absence de pluie, direction de vent stable) ont permis la détection du panache de l'usine AREVA NC-La Hague la nuit du 12 au 13 juillet 2016 (Figure IV.20). La mesure du prélèvement de H3R7000 réalisé lors du marquage (i.e. de 23h47 à 00h42, TU) révèle une ambiance de marquage de l'air de $93,0 \pm 4,2$ Bq.L⁻¹. L'ambiance atmosphérique tritiée de la zone de dépuración - mesurée après prélèvement d'un cycle H3R7000 - est de $1,8 \pm 1,2$ Bq.L⁻¹, soit proche du bruit de fond. Cette dernière valeur est une moyenne de 6 cycles de prélèvement réalisés de 22h à 3h30 (TU).

12 au 13 juillet 2016

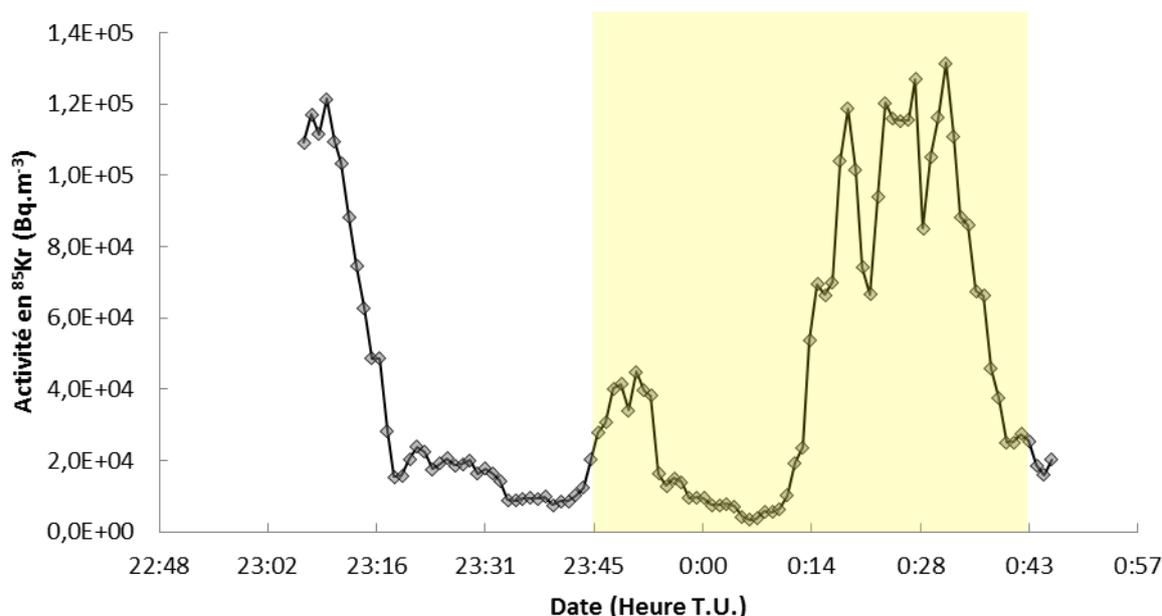


Figure IV.20 : Chroniques des activités de ^{85}Kr lors du marquage des barquettes de ray-grass sous le panache d'AREVA NC-La Hague la nuit du 12 au 13 juillet 2016. La période de marquage est symbolisée en jaune.

Suite au marquage de 55 minutes correspondant à un cycle de prélèvement du H3R7000, les barquettes de ray-grass sont amenées dans une zone non marquée en tritium pour la dépuración (cf. § III.2.3.1). Après traitement au laboratoire (cf. § Special precautions and adjustments applied, p. 174), la décroissance du tritium est observée dans les compartiments **TFWT** et **OBT** (Tableau IV.16).

A partir des données précédentes (Tableau IV.16), il est possible de calculer (1) le temps de demi-équilibre du **TFWT** avec le **HTO** atmosphérique (noté $t_{1/2 \text{ TFWT}}$) (2) le temps de demi-équilibre de **eOBT** avec **TFWT** (noté $t_{1/2 \text{ eOBT}}$) suivant les équations suivantes (Équation IV.3 et Équation IV.4) dans le cadre de **TFWT** et **eOBT**, respectivement). La fraction **eOBT** est déterminée selon la même méthode décrite précédemment (cf. § Proportion of tritium readily available for exchange, p. 166).

Tableau IV.16 : Evolution de l'activité en tritium du TFWT et OBT du ray-grass suite à un marquage de 55 minutes au tritium d'origine atmosphérique le 12 et 13 juillet 2016, de 23h47 à 00h42 (TU).

Temps de dépuraton après 55 minutes de marquage	Activité TFWT	H3R7000 - lyophilisation	Reprise en eau	Activité OBT corrigée
minute	Bq .L ⁻¹	Bq .L ⁻¹	%	Bq .L ⁻¹
Blanc	<1	2,1 ± 0,8	4,17	1,1 ± 1,0
0	10,9 ± 1,4	3,1 ± 1,3	13,12	2,6 ± 0,8
17	12,3 ± 1,5	3,1 ± 1,3	11,16	5,0 ± 0,8
30	6,5 ± 1,4	2,1 ± 1,3	14,09	3,4 ± 0,8
45	9,0 ± 1,4	2,1 ± 1,3	6,34	4,5 ± 2,1
60	6,1 ± 1,4	2,1 ± 1,3	4,43	2,7 ± 0,8
90	6,6 ± 1,4	2,1 ± 1,3	3,87	2,4 ± 1,0
120	7,2 ± 1,4	2,9 ± 1,3	3,61	3,9 ± 1,8
150	4,8 ± 1,4	2,9 ± 1,3	5,61	0,4 ± 0,6

$$TFWT_0 = TFWT_{-1} - (TFWT_{-1} \cdot (1 - e^{-\lambda_{TFWT} \Delta t})) \quad \text{Équation IV.3}$$

$$\begin{cases} \text{sieOBT}_{-1} < TFWT_0 : eOBT_0 = eOBT_{-1} + ((TFWT_0 - eOBT_{-1}) \cdot (1 - e^{-\lambda_{eOBT} \Delta t})) \\ \text{sieOBT}_{-1} > TFWT_0 : eOBT_0 = TFWT_0 + ((eOBT_{-1} - TFWT_0) \cdot e^{-\lambda_{eOBT} \Delta t}) \end{cases} \quad \text{Équation IV.4}$$

Avec $TFWT_0$ et $TFWT_{-1}$ l'activité du TFWT au pas de temps t et au pas de temps précédent, respectivement (Bq.L⁻¹) ; $eOBT_0$ et $eOBT_{-1}$ l'activité de eOBT au pas de temps t et au pas de temps précédent, respectivement (Bq.L⁻¹) ; λ_{TFWT} et λ_{eOBT} sont les constantes de demi-équilibre de TFWT avec le HTO atmosphérique et de eOBT avec TFWT, respectivement (Bq.L⁻¹). Δt correspond au pas de temps de la modélisation (Équation IV.3 et Équation IV.4), à savoir 1 minute.

Le temps de demi-équilibre, $t_{1/2}$ (minute), est exprimé selon l'Équation IV.5 :

$$t_{1/2} = \frac{\ln(2)}{\lambda} \quad \text{Équation IV.5}$$

Dans le cas du calcul de **TFWT**, seule une équation est utilisée car il ne s'agit que d'une dépuración. Cependant pour le calcul de **eOBT**, il est important de calculer la valeur de **eOBT** par rapport à **TFWT** pour un instant donné, car **eOBT** va se marquer ou être éliminé selon que ce dernier soit inférieur ou supérieur à **TFWT** en terme d'activité (Équation IV.4).

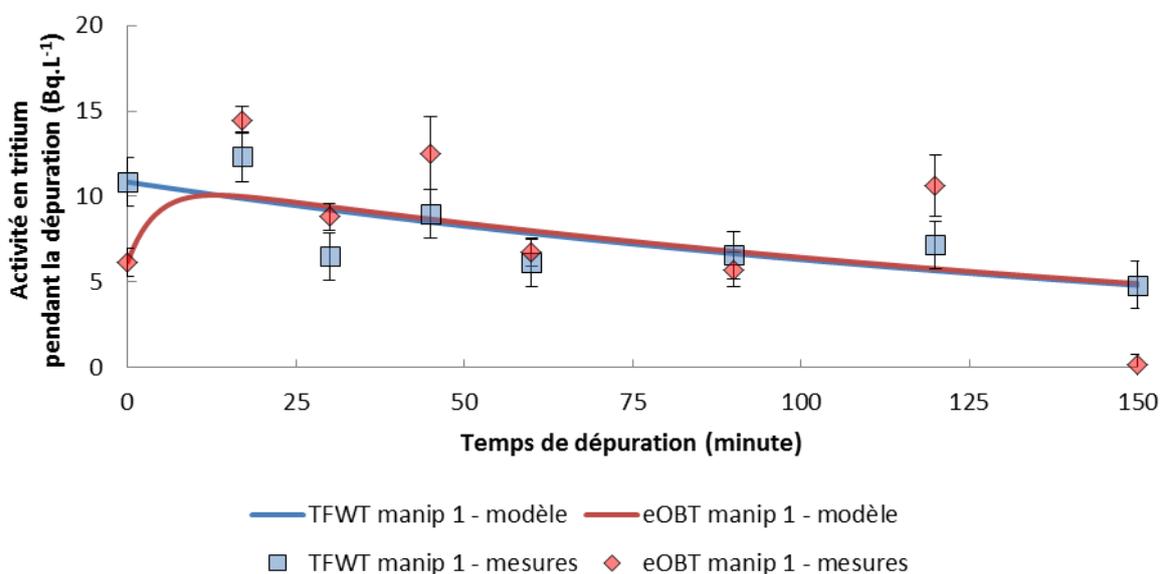


Figure IV.21 : Evolution de l'activité en tritium du **TFWT** et **OBT** du ray-grass suite à un marquage de 55 minutes au tritium d'origine atmosphérique le 12 et 13 juillet 2016.

Il est ainsi possible de déterminer $t_{\frac{1}{2}\text{TFWT}}$ et $t_{\frac{1}{2}\text{eOBT}}$ par minimisation des écarts entre les activités modélisées et mesurées de **eOBT** et **TFWT** (Figure IV.21). Le temps de demi-équilibre $t_{\frac{1}{2}\text{TFWT}}$ et $t_{\frac{1}{2}\text{eOBT}}$ obtenus sont respectivement de 128 minutes et 3 minutes.

- **Expérimentation 2**

Les conditions climatiques favorables (absence de pluie, direction de vent stable) ont permis la détection du panache de l'usine AREVA NC-La Hague la nuit du 9 décembre 2016 (Figure IV.22). La mesure du prélèvement de H3R7000 réalisé lors du marquage (i.e. de 01h20 à 02h15, TU) révèle une ambiance de marquage de $62,4 \pm 3,1 \text{ Bq.L}^{-1}$. L'ambiance atmosphérique tritiée de la zone de dépuración - mesurée après prélèvement d'un cycle H3R7000 - est de $2,4 \pm 1,3 \text{ Bq.L}^{-1}$, soit proche du bruit de fond. Cette dernière valeur est issue d'un prélèvement réalisé de 02h26 à 3h50 (TU).

9 décembre 2016

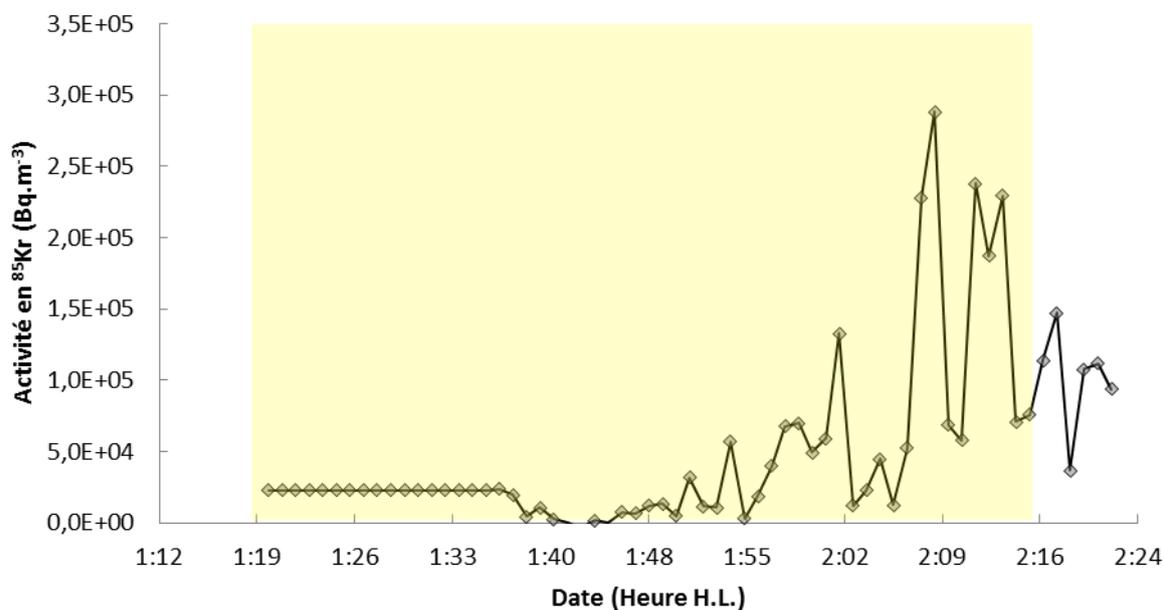


Figure IV.22 : Chroniques des activités ^{85}Kr lors du marquage des barquettes de ray-grass sous le panache d'AREVA NC-La Hague la nuit du 9 décembre 2016. La période de marquage est symbolisée en jaune.

Tableau IV.17 : Evolution de l'activité en tritium du TFWT et OBT du ray-grass suite à un marquage de 55 minutes au tritium d'origine atmosphérique le 9 décembre 2016, de 01h20 à 02h15 (TU).

Temps de dépuración	Activité TFWT	PREVAIR - lyophilisation	Reprise en eau	Activité OBT corrigée
minute	Bq .L ⁻¹	Bq .L ⁻¹	%	Bq .L ⁻¹
Blanc	1,7 ± 1,3	<1	4,17	<1
0	14,8 ± 1,5	<1	3,76	2,5 ± 1,9
10	13,3 ± 1,5	4,1 ± 2,9	3,46	<1 ± 2,1
20	13,3 ± 1,5	4,1 ± 2,9	3,61	3,0 ± 2,3
30	44,8 ± 2,4	8,0 ± 3,2	3,11	8,5 ± 2,2
40	43,1 ± 2,4	8,0 ± 3,2	3,10	7,3 ± 2,0
50	12,4 ± 1,5	<1	2,94	4,6 ± 2,1

Les différentes activités mesurées dans les compartiments **TFWT** et **OBT** sont reportées Tableau IV.17. Les valeurs particulièrement élevées de **TFWT** obtenues après 30 et 40 minutes de dépuración résultent d'un mauvais traitement en laboratoire : le compartiment de piégeage du **TFWT** du lyophilisateur a été mal nettoyé. Or ce dernier a été précédemment utilisé pour des échantillons fortement marqués en tritium (cf. § III.2.4.3). Les résidus du précédent lyophilisateur biaisent alors les données mesurées. Dans la mesure où ce biais n'est pas quantifiable, ces données (notées en rouges) ne sont pas exploitées.

A partir de l'Équation IV.3 et de l'Équation IV.4, il est possible de déterminer $t_{1/2\text{TFWT}}$ et $t_{1/2\text{eOBT}}$ par minimisation des écarts entre les activités modélisées et mesurées de **eOBT** et **TFWT** (Figure IV.23). Le temps de demi-équilibre $t_{1/2\text{TFWT}}$ et $t_{1/2\text{eOBT}}$ obtenus sont respectivement de 170 minutes et 53 minutes.

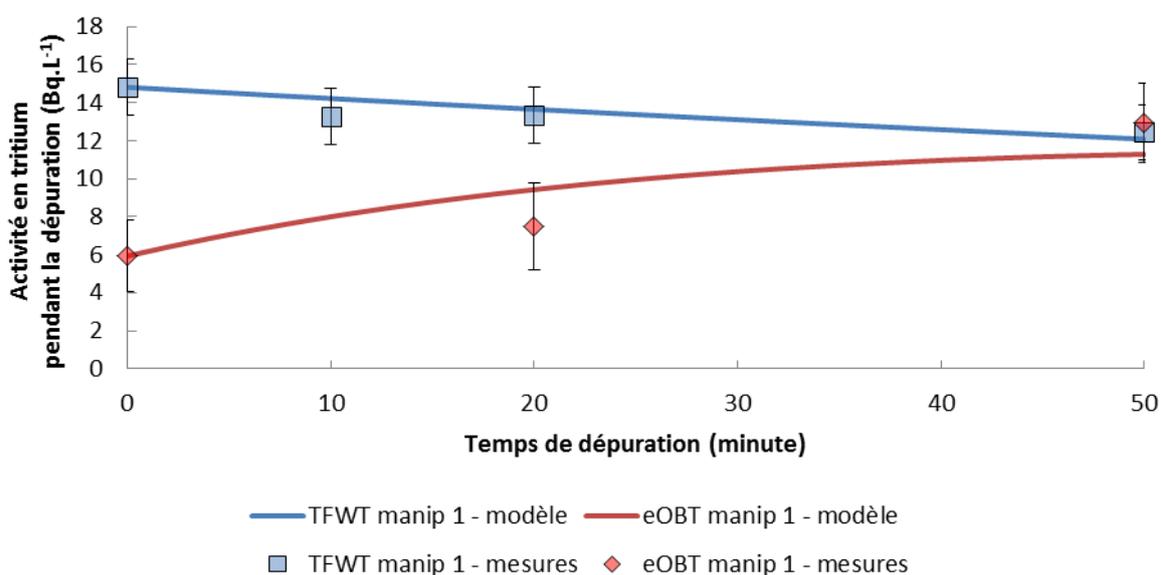


Figure IV.23 : Evolution de l'activité en tritium du **TFWT** et **OBT** du ray-grass suite à un marquage de 55 minutes au tritium d'origine atmosphérique le 9 décembre 2016.

• Expérimentation 3

Les conditions climatiques favorables (absence de pluie, direction de vent stable) ont permis la détection du panache de l'usine AREVA NC-La Hague l'après-midi du 26 janvier 2017 (Figure IV.24). La mesure du prélèvement de H3R7000 réalisé lors du marquage (i.e. de 14h15 à 15h10, TU) révèle une ambiance de marquage de $101,7 \pm 3,8$ Bq.L⁻¹. L'ambiance atmosphérique tritiée de la zone de dépuración - mesurée après prélèvement d'un cycle H3R7000 - est <1 Bq.L⁻¹, soit proche du bruit de fond. Cette dernière valeur est issue d'un prélèvement réalisé de 15h27 à 15h47 (TU). Suite à un souci technique, les données de ⁸⁵Kr lors du marquage n'ont pu être enregistrées (Figure IV.24).

26 janvier 2017

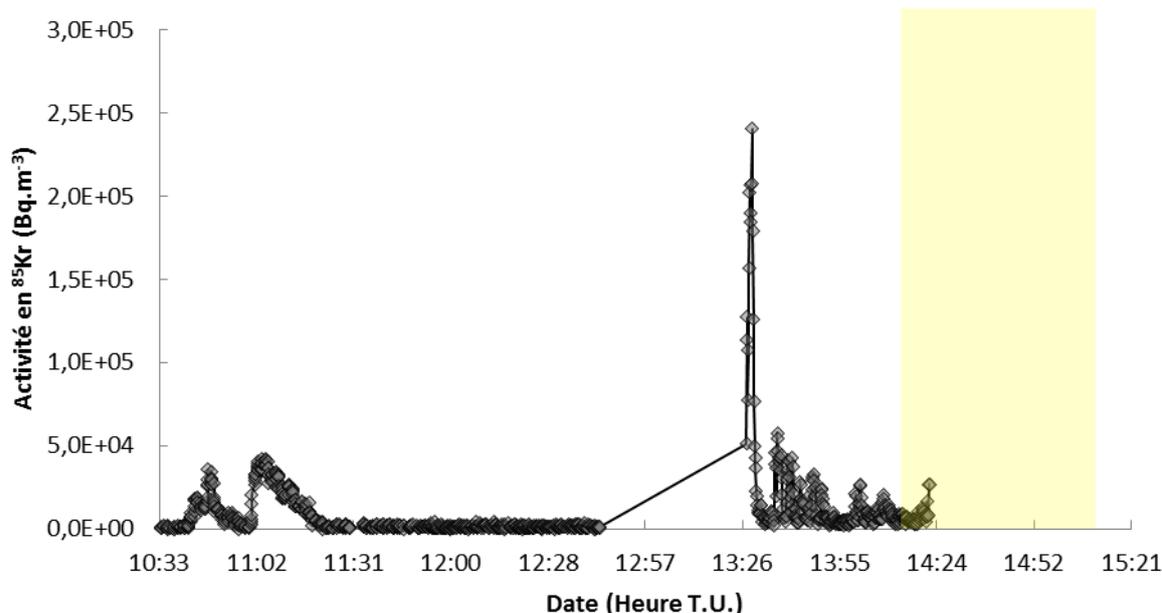


Figure IV.24 : Chroniques des activités ⁸⁵Kr lors du marquage des barquettes de ray-grass sous le panache d'AREVA NC-La Hague le 26 janvier 2017. La période de marquage est symbolisée en jaune.

Les différentes activités mesurées dans les compartiments **TFWT** et **OBT** sont reportées Tableau IV.18. Les valeurs de **TFWT** obtenues après 0 et 5 minutes de dépuración sont inférieures aux valeurs de **TFWT** qui suivent, ce qui n'est pas cohérent avec l'idée de dépuración du compartiment **TFWT**. Les valeurs de **TFWT** obtenues après 0 et 5 minutes de dépuración correspondent à la mise sous vide de la plante après sa coupe, car la soudeuse à vide est laissée sur le lieu de dépuración. Or la mise sous vide et l'isolation avec la soudeuse à vide n'est réalisée qu'à 15h20, soit 5 et 10 minutes après le moment de la coupe. Lors du trajet du lieu de marquage au lieu de dépuración, un mauvais conditionnement de ces barquettes peut justifier d'un échange rapide de l'air ambiant non marqué en tritium avec les échantillons obtenus après 0 minutes et 5 minutes de dépuración. Ces échantillons ne sont pas représentatifs de leur activité au moment de la coupe, et ce biais n'est pas corrigé avec nos données expérimentales mesurées : ces deux valeurs ne sont pas utilisées pour le calcul des temps de demi-équilibre (Figure IV.25).

A partir de l'Équation IV.3 et de l'Équation IV.4, il est possible de déterminer $t_{1/2\text{TFWT}}$ et $t_{1/2\text{eOBT}}$ par minimisation des écarts entre les activités modélisées et mesurées de **eOBT** et **TFWT** (Figure IV.25). Le temps de demi-équilibre $t_{1/2\text{TFWT}}$ et $t_{1/2\text{eOBT}}$ obtenus sont respectivement de 31 minutes et 35 minutes.

Tableau IV.18 : Evolution de l'activité en tritium du TFWT et OBT du ray-grass suite à un marquage de 55 minutes au tritium d'origine atmosphérique le 26 janvier 2017, de 14h15 à 15h10 (TU).

Temps de dépuración	Activité TFWT	PREVAIR - lyophilisation	Reprise en eau	Activité OBT corrigée
minute	Bq .L ⁻¹	Bq .L ⁻¹	%	Bq .L ⁻¹
Blanc	3,6 ± 1,4	1,7 ± 0,8	6,42	<1 ± 7,0
0	13,9 ± 1,0	1,0 ± 0,8	4,17	3,7 ± 1,1
5	12,8 ± 1,0	1,0 ± 0,8	4,44	2,5 ± 1,8
10	17,3 ± 1,1	<1	3,93	4,2 ± 2,0
15	14,2 ± 1,0	<1	4,86	4,6 ± 1,9
20	13,4 ± 1,0	1,4 ± 0,8	3,24	4,1 ± 1,9
25	13,7 ± 1,0	1,4 ± 0,8	14,49	5,8 ± 1,9
30	11,5 ± 1,0	1,7 ± 0,8	3,51	4,6 ± 2,1

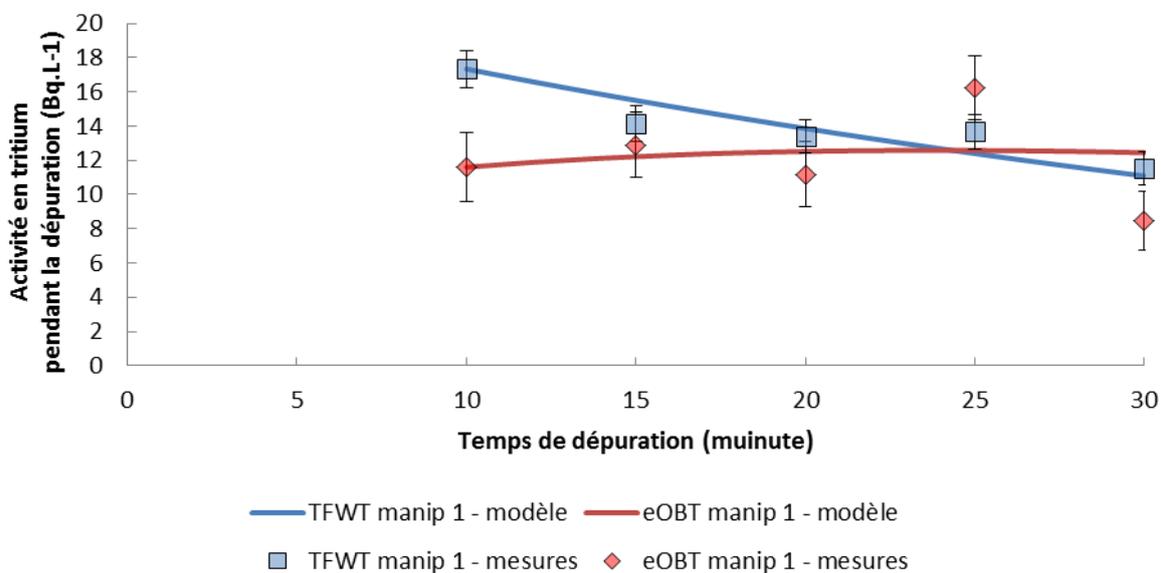


Figure IV.25 : Evolution de l'activité en tritium du TFWT et OBT du ray-grass suite à un marquage de 55 minutes au tritium d'origine atmosphérique le 26 janvier 2017.

IV.2.3.2 *Discussion*

La mise en équilibre du TFWT avec la vapeur de HTO atmosphérique est fonction de l'ouverture stomatique, qui est conditionnée par les conditions météorologiques (cf. § Croissance des végétaux, p. 65). La conductance stomatique calculée par le modèle de Huntingford $g_s \text{ CO}_2$ (cf. § III.1.1.1) représente l'ouverture stomatique dans le modèle TOCATT- γ . Le Tableau IV.19 regroupe les différents paramètres météorologiques et les variables calculées par le modèle de Huntingford au cours des trois expériences de cinétiques de marquage du TFWT et de eOBT.

Tableau IV.19 : Paramètres météorologiques et conductance stomatique de Huntingford g_s CO₂ modélisée au cours des trois expérimentations *in situ* de TFWT et eOBT.

Date	Température	Hygrométrie	Vitesse du vent	Conductance de Huntingford g_s CO ₂	Conductance de Huntingford moyenne	$t_{1/2TFWT}^*$
-	°C	-	m.s ⁻¹	m.s ⁻¹	m.s ⁻¹	minute
<i>Expérimentation 1</i>						
12/07/2016 23:00	13,7	0,79	0,56	5,86.10 ⁻⁴		
12/07/2016 23:30	13,7	0,79	0,56	5,86.10 ⁻⁴		
13/07/2016 00:00	13,7	0,78	0,56	5,86.10 ⁻⁴	5,86.10 ⁻⁴	128
13/07/2016 00:30	13,7	0,78	0,56	5,87.10 ⁻⁴		
13/07/2016 01:00	13,4	0,73	0,56	5,87.10 ⁻⁴		
<i>Expérimentation 2</i>						
09/12/2016 01:00	10,6	0,96	4,17	3,56.10 ⁻⁴		
09/12/2016 01:30	10,6	0,96	4,17	3,57.10 ⁻⁴		
09/12/2016 02:00	10,5	0,97	4,86	3,57.10 ⁻⁴	3,57.10 ⁻⁴	170
09/12/2016 02:30	10,5	0,97	4,86	3,57.10 ⁻⁴		
<i>Expérimentation 3</i>						
26/01/2017 14:00	3,8	0,59	1,04	2,56.10 ⁻²		
26/01/2017 14:30	3,8	0,59	1,04	2,56.10 ⁻²		
26/01/2017 15:00	4,5	0,58	0,83	3,18.10 ⁻²	2,86.10 ⁻²	31
26/01/2017 15:30	4,5	0,58	0,83	3,16.10 ⁻²		

*Temps de demi-équilibre entre TFWT et HTO atmosphérique, obtenu expérimentalement.

Lorsque la conductance stomatique de Huntingford modélisée est mise en relation avec le temps de demi-équilibre de **TFWT** avec le **HTO** atmosphérique, il en découle une relation de type logarithmique (Figure IV.26). Cependant cette courbe obtenue ne se base que sur 3 points, dont deux issus d'expérimentations nocturnes et l'autre d'une expérimentation diurne. Cette relation mérite d'être étudiée plus profondément, en réalisant notamment des expérimentations en période de crépuscule ou d'aube, afin de compléter les points manquants.

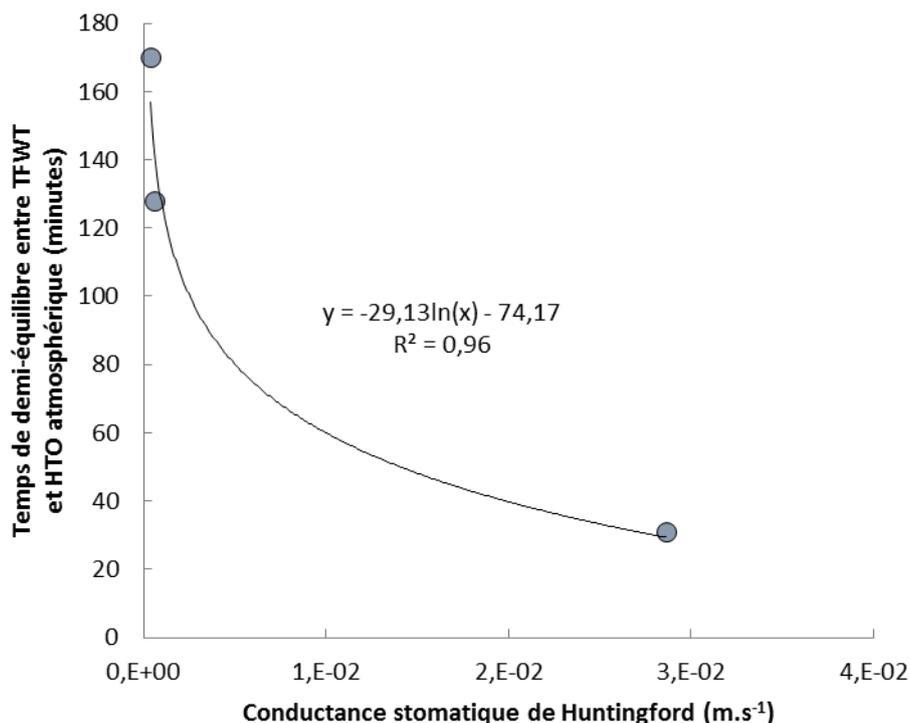


Figure IV.26 : Comparaison de la conductance stomatique de Huntingford avec le temps de demi-équilibre entre le **TFWT** et le **HTO** atmosphérique.

Au sujet du temps de demi-équilibre de **TFWT** avec le **HTO** atmosphérique, les valeurs obtenues confirment les données présentes dans la littérature (cf. § 1.2.3.2).

Concernant le temps de demi-équilibre de **eOBT** avec **TFWT**, cette relation est indépendante des conditions environnantes puisqu'il ne s'agit que d'échanges labiles (cf. § Formes chimiques tritiées dans les végétaux, p. 43). Parmi les différentes valeurs de $t_{1/2_{eOBT}}$ obtenues, deux valeurs sont proches de 30 minutes et une autre est bien inférieure, avec $t_{1/2_{eOBT}}$ égale à 3 minutes (Tableau IV.19). Cependant pour cette dernière valeur, il est important de noter que l'équilibre entre **TFWT** et **eOBT** est atteint rapidement (Figure IV.21) car en accord avec la chroniques de ^{85}Kr (Figure IV.20), le panache ne semble plus être présent avant la fin du temps de marquage.

IV.2.4 Discrimination des formes tritiées dans la matière organique végétale (from Renard *et al.*, 2017)

IV.2.4.1 Increase in ryegrass dehydrated matter

The parameters for the equations used to calculate variation in the dehydrated mass of seed, leaf and root organs (see Section Mathematical model, Schnute's model, Equation III.37) are set using the cultures described above (see Section III.2.4.2). Each dehydrated matter value measured is the mean mass (dehydrated weight) of one hundred samples of ryegrass grown in a controlled environment in a greenhouse (Figure IV.27, Figure IV.28 and Figure IV.29). The corrected parameters (see Section Mathematical model, Table III.12) are the result of iterative calculation minimising the sum of mean square error between experimental data and model output data. Relative mean deviation (expressed in mg) between the measured and calculated values is 0.13, 0.10, 0.03 for leaf, seed and root respectively.

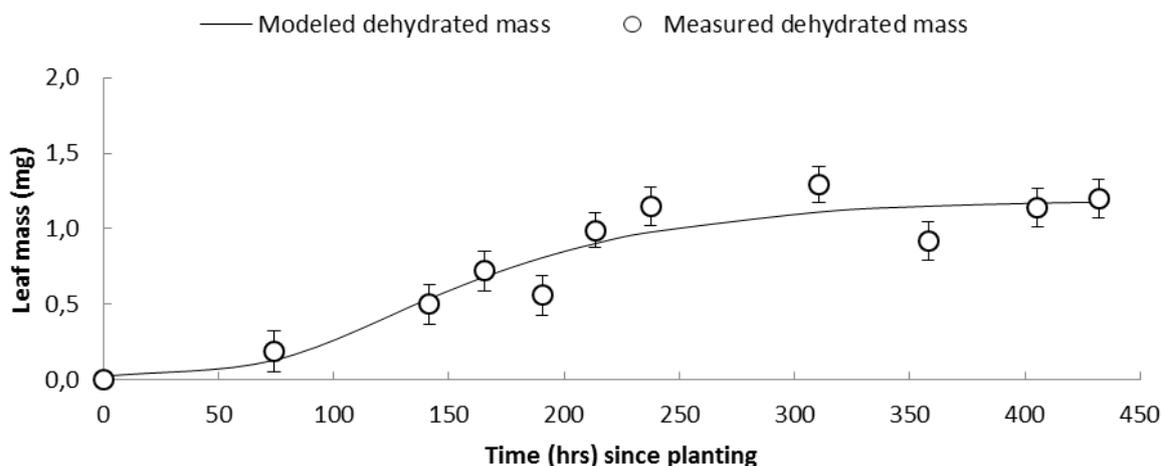


Figure IV.27 : Change over time in measured dehydrated mass (N=100) and modelled dehydrated mass for ryegrass leaf (mg DW). The error bar relates to uncertainty in measurements using a thermobalance.

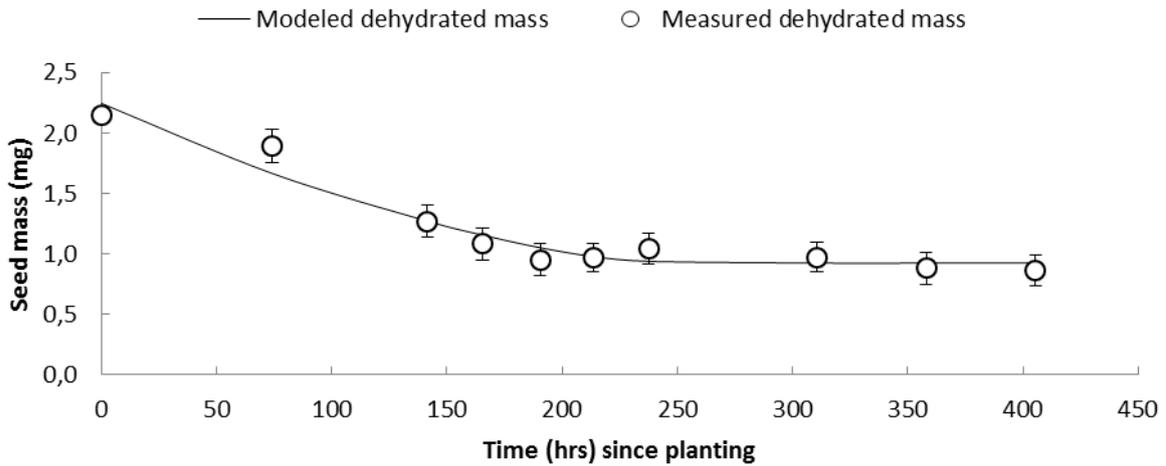


Figure IV.28 : Change over time in measured dehydrated mass (N=100) and modelled dehydrated mass for ryegrass seed (mg DW). The error bar relates to uncertainty in measurements using a thermobalance.

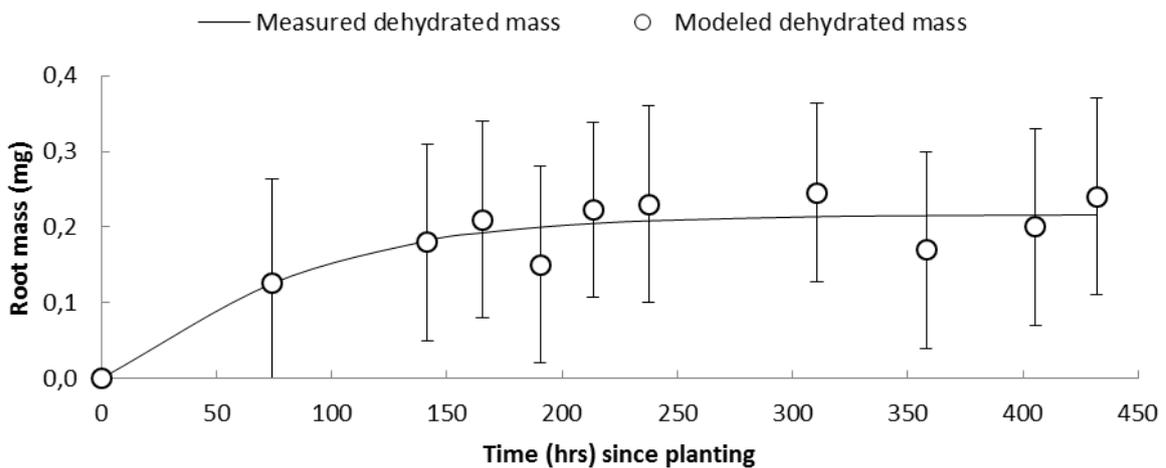


Figure IV.29 : Change over time in measured dehydrated mass (N=100) and modelled dehydrated mass for ryegrass root (mg DW). The error bar relates to uncertainty in measurements using a thermobalance.

IV.2.4.2 eOBT in leaf, seed and root

The permutation of tritium atoms is directly dependent on the atom to which the tritium atom is bound. The composition of the organic matter, which is dependent on metabolic processes, impacts on the eOBT fraction for a given compartment (leaf, seed, root). OBT in the seeds, measured as soon as the bag of commercial seeds is opened, is $0.8 \pm 0.6 \text{ Bq.L}^{-1}$ of combustion water. The metabolic processes at work in the seed differ from those at work in the leaves and roots, hence the eOBT fraction in seeds is different from the eOBT fraction in leaves (Table IV.20). However, insofar as the leaves and roots are made up of the same types of organic compounds - organic assimilates

produced by photosynthesis and allocation - the ratio of Leaf eOBT is assumed to be equal to the ratio of Root eOBT.

Table IV.20 : Exchangeable fractions of tritium in organic matter, in ryegrass leaves and seeds.

eOBT experiment No.	Sample	Initial activity of the sample (Bq.L ⁻¹)	Activity of labelled water (Bq.L ⁻¹)	Activity of the sample after 24 hrs labelling followed by 24 hrs of rinsing (Bq.L ⁻¹)	eOBT ratio (%)
1	Seed	0.8±0.6	4570 ±160	330.7 ± 3.8	39 ± 6
2	Seed - check	0.8±0.6	44.2 ± 2.2	17.7 ± 1.2	38 ± 6
		0.8±0.6	<1	0.8±0.6	
3	Leaf	<1	4570 ±160	10.4 ± 1.4	28.7 ±4.0
4	Leaf	<1	4570 ±160	8.8± 1.4	27.3±4.4

Both the methods applied to determine the eOBT fraction of OBT in seeds produced equivalent results in light of related uncertainties (Table IV.20). This check supports the robustness of the method presented to determine the eOBT fraction. Regarding calculation of the Leaf eOBT fraction, measurement uncertainty is reduced by maximising the deviation between initial tritium activity in the samples (zero activity) and labelling water with high tritium activity.

IV.2.4.3 Comparison between modelled and measured activities

The model presented is based on theoretical growth curves (Figure IV.30) which give a value for dehydrated mass per day. The representation of foliar growth and root growth does not differentiate between the plant's physiological processes (photosynthesis, recycling, respiration, senescence, ...), thus limiting the model outputs to a mean point per day of growth. This bias has no impact on our study carried out in a constant tritium environment.

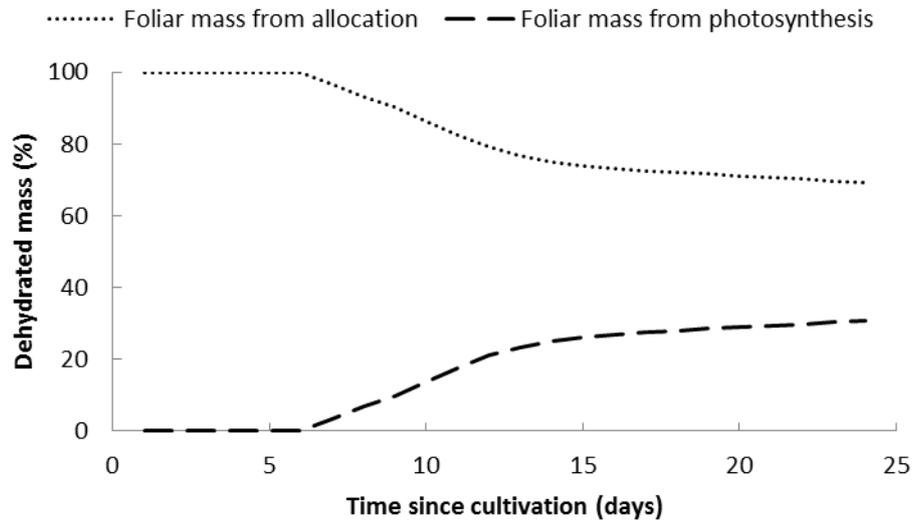


Figure IV.30 : Weight percentage in a ryegrass leaf. These model outputs (daily resolution) relate to the variation in foliar dehydrated mass resulting from allocation and photosynthesis processes, represented by dots and lines respectively.

The model presented considers OBT as the sum of the two components, eOBT and neOBT; however, OBT can further be broken down into OBT_{photo} (OBT resulting from photosynthesis) and OBT_{alloc} (OBT allocated from the seed). Comparing the model outputs with the results of the experiments (Figure IV.31) enables us to determine the ratio of OBT_{photo} to TFWT, a real indicator of forms discrimination since all the organic matter in OBT_{photo} is produced in exactly the same tritiated environment as TFWT.

Tritium activity in the seed compartment is constant over time due to the absence of translocation in this compartment. In the leaves and roots, OBT activity increases up to a plateau, relative to a mass variation of OBT_{photo} that has become negligible (Figure IV.30 - for details see Appendix C2).

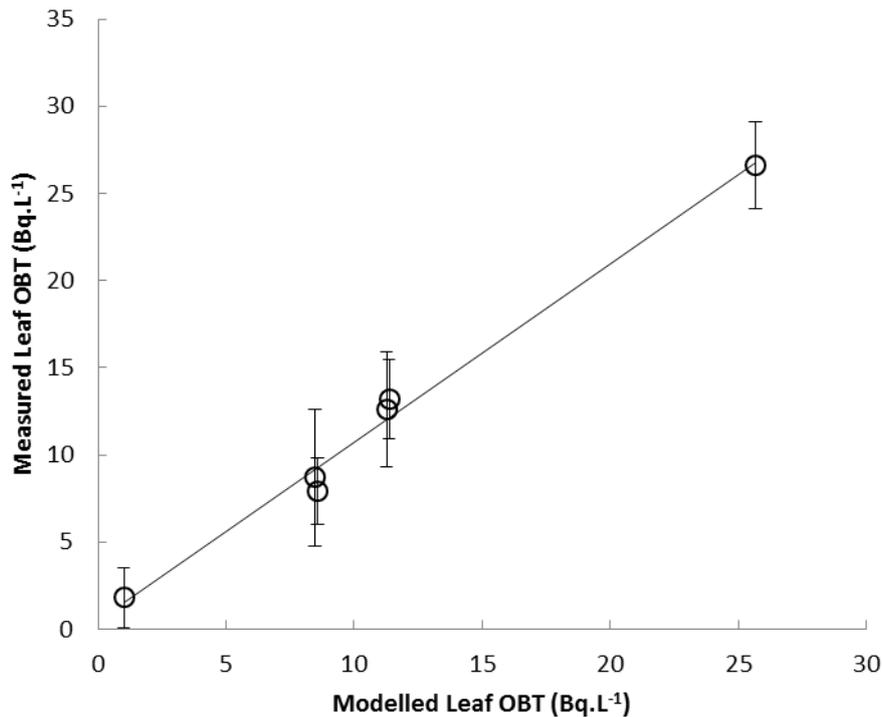


Figure IV.31 : Correlation between modelled activity and measured activity of Leaf OBT. Each circle represents measured OBT activity (with the related measurement uncertainty) for a Leaf OBT model output, corrected to allow for enhanced correction using the parameter of the OBT/TFWT model.

IV.2.4.4 Discussion

The ratio of tritium forms discrimination between OBT_{photo} and TFWT in ryegrass is determined by enhanced correction between the model outputs and the experiment measurements of Leaf OBT. Solver in Excel is used to minimise the relative mean deviation (between the model's predictions and the data measured during the six experiments) and indicates enhanced correction for a value in the $OBT_{photo}/TFWT$ forms discrimination parameter equal to 1.0 ± 0.1 , obtaining a minimum relative mean deviation of 1.17 Bq.L^{-1} . These results demonstrate that there is no tritium forms discrimination that can be measured over time for a constant growing environment according to measurement uncertainties.

Based on (1) the results of the hydroponic culture experiments with an HTO activity higher than the continental background level (1 Bq.L^{-1} , IRSN 2014) and (2) assuming an equilibrium between HTO (activity of water in the growing box) and TFWT, the mean Leaf OBT/TFWT ratio (where OBT is made up of OBT_{photo} and OBT_{alloc}) is 0.6 ± 0.2 (N=5). In the literature, OBT/TFWT ratios at the point where equilibrium is attained are highly variable, with recorded results varying from 0.55 to 2.88 depending on the source (Tableau IV.21).

Tableau IV.21 : Different experiment-based OBT/TFWT ratios in the literature.

Family	Plant species	organ	OBT/TFWT	Reference
Asteraceae	Lettuce	-	2.88	Boyer, 2009
	Lettuce	-	0.93	Davis <i>et al.</i> , 2002-2005
Brassicaceae	Radish	Root	0.67	
Fabaceae (Leguminosae)	Alfalfa	Leaves and stems	0.99	McFarlane, 1976
-	Grasses	-	0.73	Davis <i>et al.</i> , 2002-2005
Poaceae	Corn	-	0.60	Kim and Baumgärtner, 1994
	Barley	-	0.55	
	Hulled rice	-	1.27	Hisamatsu <i>et al.</i> , 1987-1989
	Hulled rice	-	1.14	Inoue and Iwakura, 1990
	Paddy rice	-	0.71	Hisamatsu <i>et al.</i> , 1987-1989
Solanaceae	Tomato	Leaf (mature)	0.91	Spencer and Dunstall, 1984
	Tomato	Green fruit	2.04	
	Tomato	Leaf (young)	1.01	

Such disparity in results in the literature may be explained by the failure to factor in the plant's physiological functions, especially the carbon cycle, in the allocation of assimilates. There are two possible approaches to interpreting the results for tritium forms discrimination in plants - in a controlled growing environment - in the literature:

- Forms discrimination of organically bound tritium < 1: failure to factor in initial activity of the seed can, if seed activity is less than TFWT, cause a dilution in activity in the leaves. Failure to control water vapour in the air - which may be labelled - in the laboratory can lead to an enrichment of TFWT or, on the contrary, a dilution of OBT and also bias the OBT/TFWT ratio;

- Forms discrimination of organically bound tritium > 1: when removing samples from freeze-drying, inadequate control of tritium activity in the laboratory environment can cause labelling - through rehydration of the dehydrated sample - and bias the measurement of OBT due to possible enrichment of the sample during processing.

Although results from the existing model are satisfactory, certain improvements can be suggested:

- Improve the resolution of the model outputs by using the empirical leaf and root growth model;
- Improve the estimate of tritium forms fractioning in organic matter: discrimination of organically bound tritium can be determined by applying more reliable uncertainties based on similar experiments with higher tritium activity levels;
- Improve the model predictions during the first days of growth: determining activity in leaf and root organic matter during the first days of growth - between planting in the hydroponic box and one week after germination - makes it possible to test the robustness of the growth model for transition from germination to the transition from heterotrophy to autotrophy. This type of study requires a larger growing surface area or higher tritium activity in the environment, with a view to obtaining significant measurements to offset the small amount of leaf and root mass produced during the first week;
- Use other plant matrices: the different OBT/TFWT ratios found in the literature are derived from different plant species. The study of the forms discrimination of organically bound tritium can be improved by studying other plant species (C4 and C3 plants). Wheat and lettuce seem to be interesting examples due to their fast growth and the significant dehydrated mass of their seeds relative to the dehydrated mass of the individual plant.

IV.3 Prédiction du modèle TOCATTA- χ _{post-thèse}

Les prédictions du modèle TOCATTA- χ sont confrontées aux données mesurées à partir d'échantillons prélevés sur le terrain expérimental IRSN-La Hague pour une période de juin 2013 à juin 2016. Cette comparaison entre les sorties du modèle TOCATTA- χ et les mesures *in situ* sont réalisées pour 3 compartiments : la fraction HTO liquide du sol, l'eau cellulaire tritiée (TFWT) et le tritium lié à la matière organique (OBT) de la plante.

IV.3.1 HTO dans le sol

IV.3.1.1 Evolution temporelle du HTO présent dans le sol sous forme liquide

- **Résultats du modèle pré-thèse**

Les résultats des simulations du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ sur trois ans (juin 2013 à juin 2016) sont comparés aux données expérimentales issues de la parcelle expérimentale IRSN-La Hague. Les mesures expérimentales de HTO du sol (forme liquide) sont obtenues par deux méthodes :

- les prélèvements ponctuels réalisés lors des prélèvements des parties aériennes et des carottes de sols pour mesurer les activités de tritium dans les différents compartiments de l'écosystème prairial (TFWT et OB_T de la plante et HTO de la phase liquide du sol, décrit § III.1.5) ;

- les mesures des échantillons obtenus toutes les 48 h avec le préleveur automatique d'eau drainée (cf. § III.1.5).

Les chroniques temporelles des activités HTO du sol modélisées par TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ et mesurées pendant 3 ans sont représentées Figure IV.32.

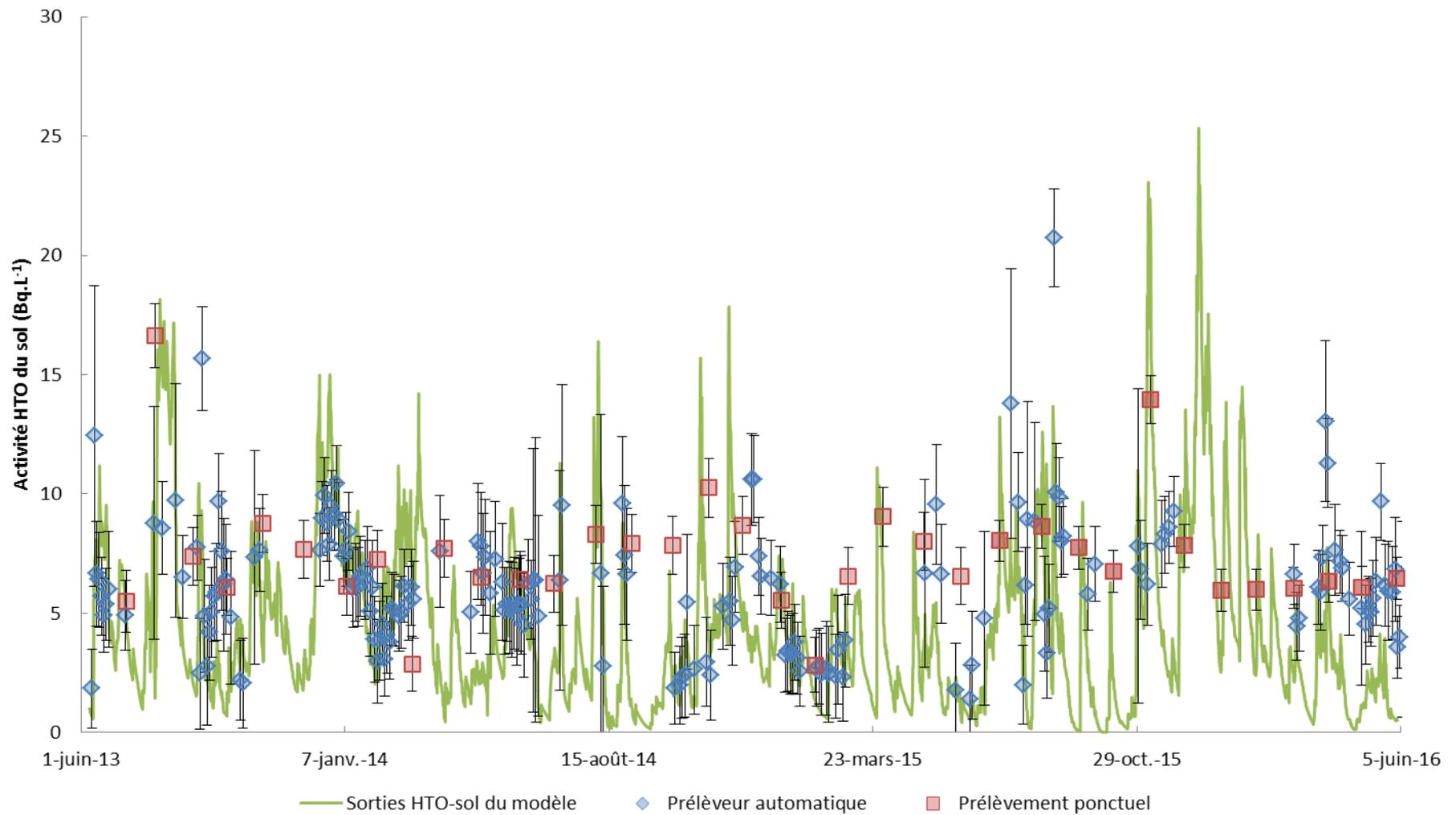


Figure IV.32 : Chroniques temporelles des sorties du modèle TOCATTA- χ _{pré-thèse} de l'activité de l'eau liquide du sol (Bq.L⁻¹) et des mesures *in situ* réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur la parcelle expérimentale IRSN-La Hague.

La comparaison des prédictions par le modèle de HTO du sol (phase liquide) avec les données expérimentales issus des préleveurs automatiques de l'eau drainée est représentée Figure IV.33. Les prélèvements d'eau de drainage sont intégrés sur 48 h, donc les sorties horaires du modèle sont moyennées sur les 48 h de prélèvement pour effectuer une comparaison cohérente. Sur cette comparaison réalisée sur 3 ans, 43 % des prédictions par le modèle sont dans la gamme d'incertitudes des données mesurées par prélèvement de l'eau de drainage (N=197).

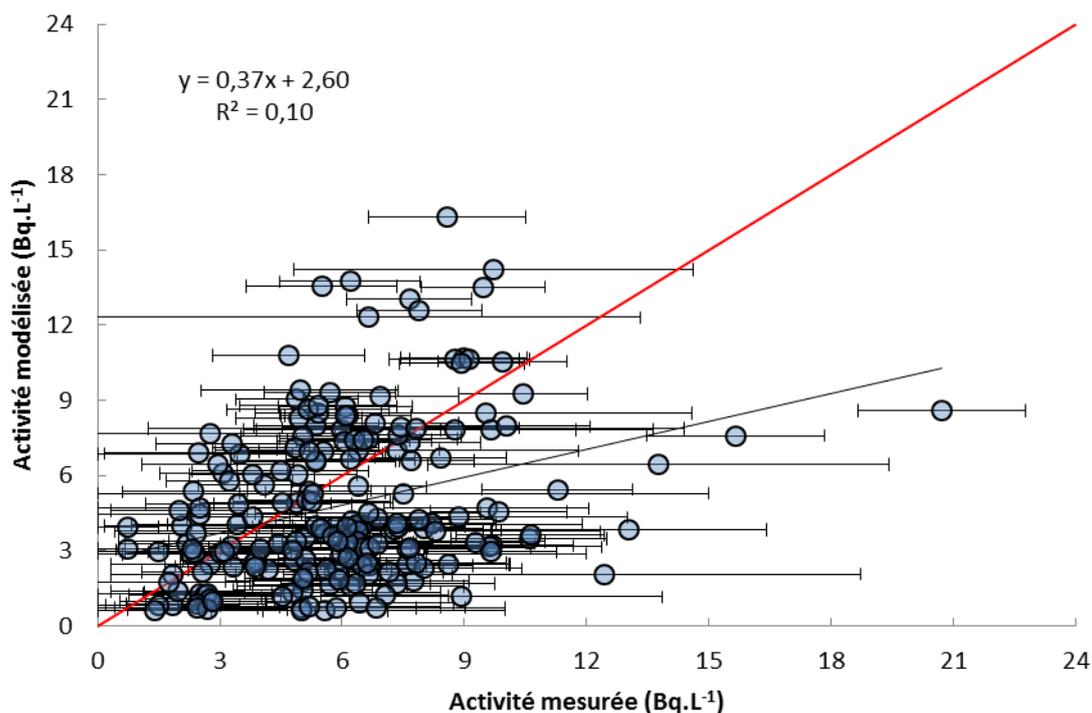


Figure IV.33 : Comparaison des sorties du modèle TOCATA- χ _{pré-thèse} de l'activité de l'eau liquide du sol (Bq.L⁻¹) avec mesures *in situ* issues des prélèvements automatiques de l'eau drainée du sol (N=197), réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur la parcelle expérimentale IRSN-La Hague. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.

La comparaison des prédictions de HTO du sol (phase liquide) avec les données expérimentales issus des préleveurs ponctuels des carottes de sol est représentée Figure IV.34. Si l'herbe est humide lors du prélèvement, les données ne sont pas utilisées pour la comparaison car les gouttelettes de rosée présentent une certaine activité en HTO, qui va s'ajouter au pool d'HTO liquide du sol lors de la lyophilisation de la carotte de sol. Même si cette humidité n'est pas censée être en contact avec le HTO du sol, la donnée n'est pas prise en compte afin d'éviter tout biais de comparaison. Ainsi, 27 % des données recueillies ponctuellement ne sont pas retenues pour la comparaison du HTO du sol mesuré et modélisé. Sur cette comparaison réalisée sur 3 ans, 23 % des prédictions par le modèle

sont dans la gamme d'incertitudes des données mesurés par prélèvement de l'eau de drainage (N=22).

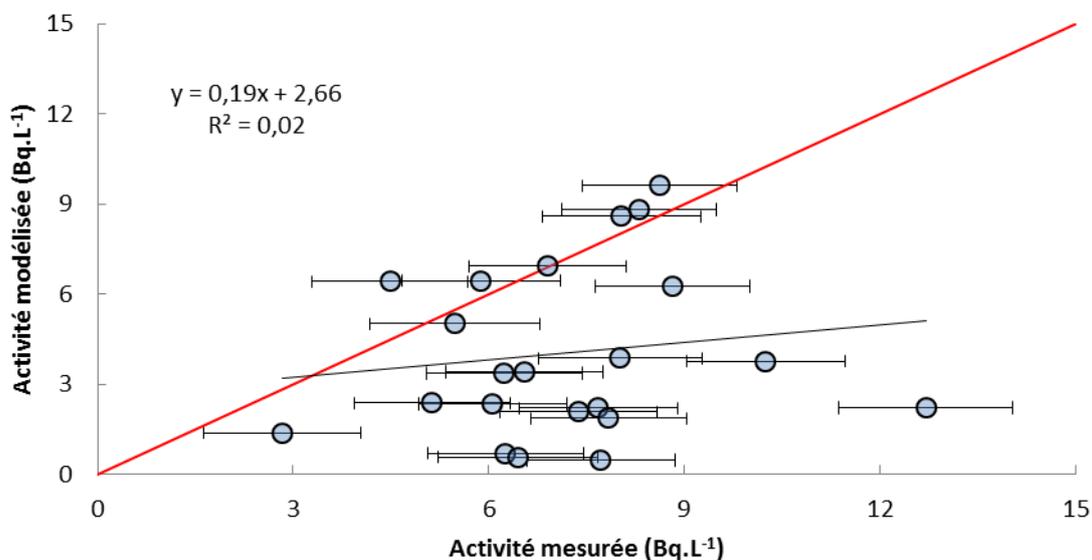


Figure IV.34 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ de l'activité de l'eau liquide du sol (Bq.L^{-1}) avec les mesures *in situ* issues des prélèvements ponctuels de carotte de sol (N=22), réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur la parcelle expérimentale IRSN-La Hague. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.

Les comparaisons entre les sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ et les mesures (automatiques (Figure IV.33) et ponctuelles (Figure IV.34)) de l'activité en HTO liquide du sol réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur la parcelle expérimentale IRSN-La Hague présentent des R^2 extrêmement faibles ($R^2=0,10$ et $R^2=0,02$ pour les Figure IV.33 et Figure IV.34, respectivement), avec une droite de régression « $Y=a.x+b$ » avec a significativement inférieur à 1. Ces résultats confirment que le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ sous-estime les activités en tritium dans la phase liquide de l'eau du sol, dans ce scénario marqué essentiellement par des rejets atmosphériques (cf. § 1.3.2.4). La contribution du sol permettant d'expliquer en partie l'activité du tritium au sein des plantes est donc sous-estimée dans le modèle.

- **Résultats du modèle post-thèse**

Les chroniques temporelles des activités HTO du sol modélisées par TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ et mesurées pendant 3 ans sont représentées Figure IV.35.

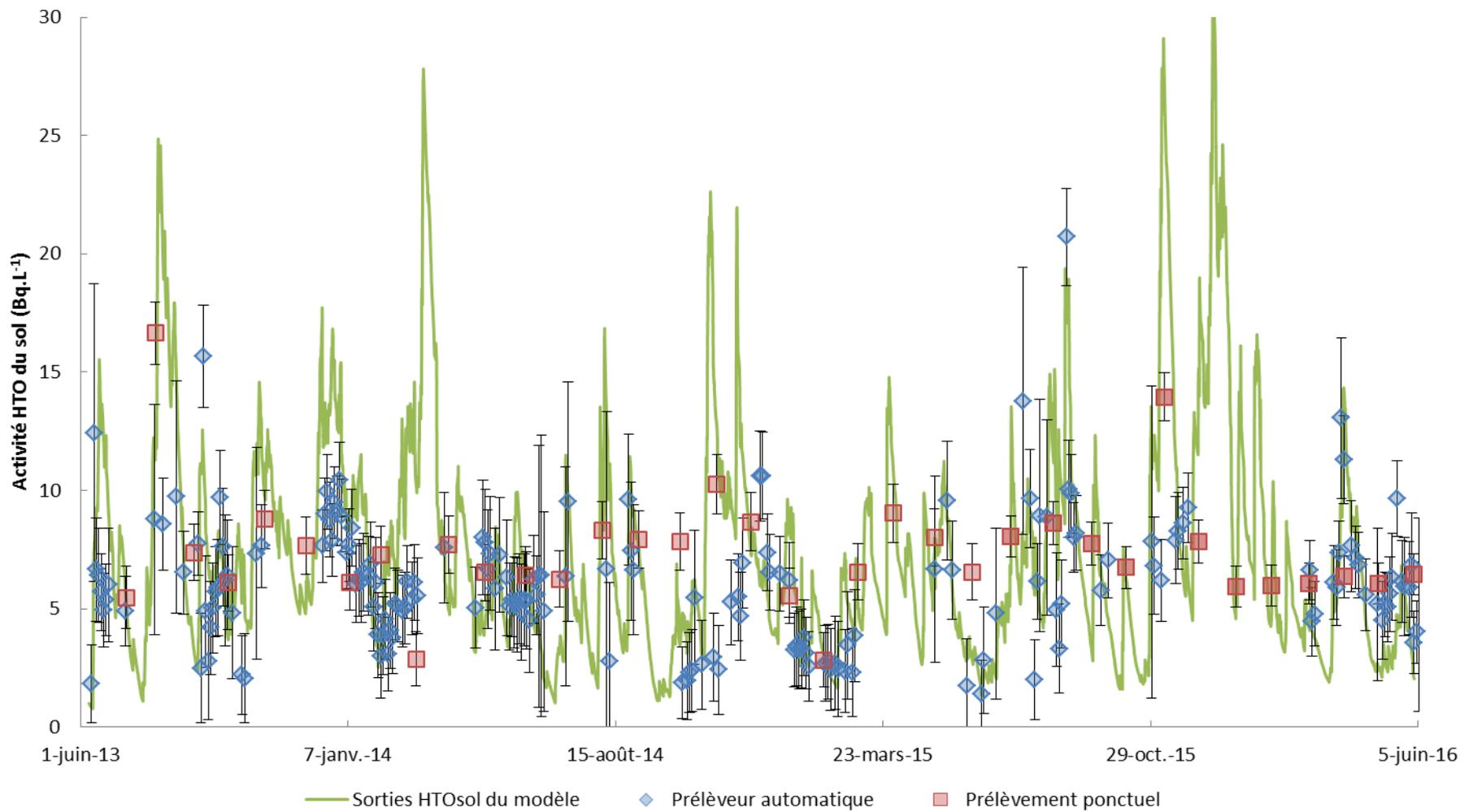


Figure IV.35 : Chroniques temporelles des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ de l'activité de l'eau liquide du sol (Bq.L⁻¹) et des mesures *in situ* réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur la parcelle expérimentale IRSN-La Hague.

La comparaison des prédictions par le modèle de HTO du sol (phase liquide) avec les données expérimentales issus des préleveurs automatiques de l'eau drainée est représentée Figure IV.36. Les prélèvements d'eau de drainage sont intégrés sur 48 h, donc les prédictions par le modèle sont moyennées sur les 48 h de prélèvement pour effectuer une comparaison cohérente. Sur cette comparaison réalisée sur 3 ans, 46 % des prédictions par le modèle sont dans la gamme d'incertitudes des données mesurées par prélèvement de l'eau de drainage (N=197).

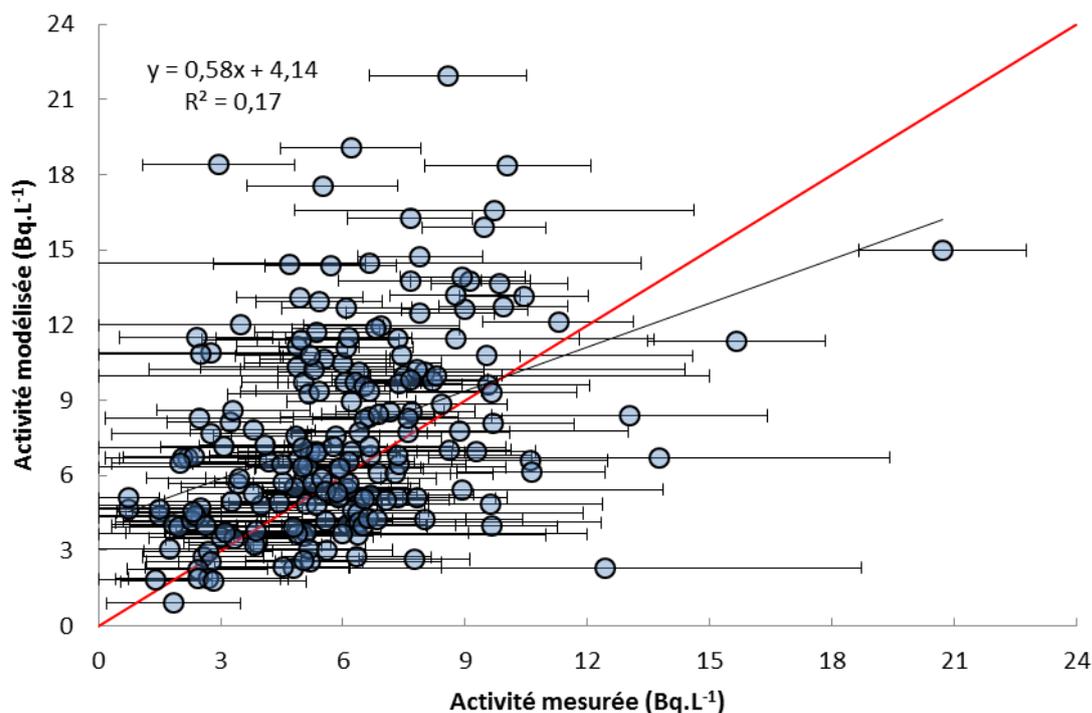


Figure IV.36 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ de l'activité de l'eau liquide du sol avec les mesures *in situ* issues des prélèvements automatiques de l'eau drainée du sol (N=197), réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.

La comparaison des prédictions par le modèle de HTO du sol (phase liquide) avec les données expérimentales issus des préleveurs ponctuels des carottes de sol est représentée Figure IV.37. Si l'herbe est humide lors du prélèvement, les données ne sont pas utilisées pour la comparaison pour les mêmes raisons décrites précédemment (§ IV.3.1.1). Sur cette comparaison réalisée sur 3 ans, 23 % des prédictions par le modèle sont dans la gamme d'incertitudes des données mesurées par prélèvement de l'eau de drainage (N=22).

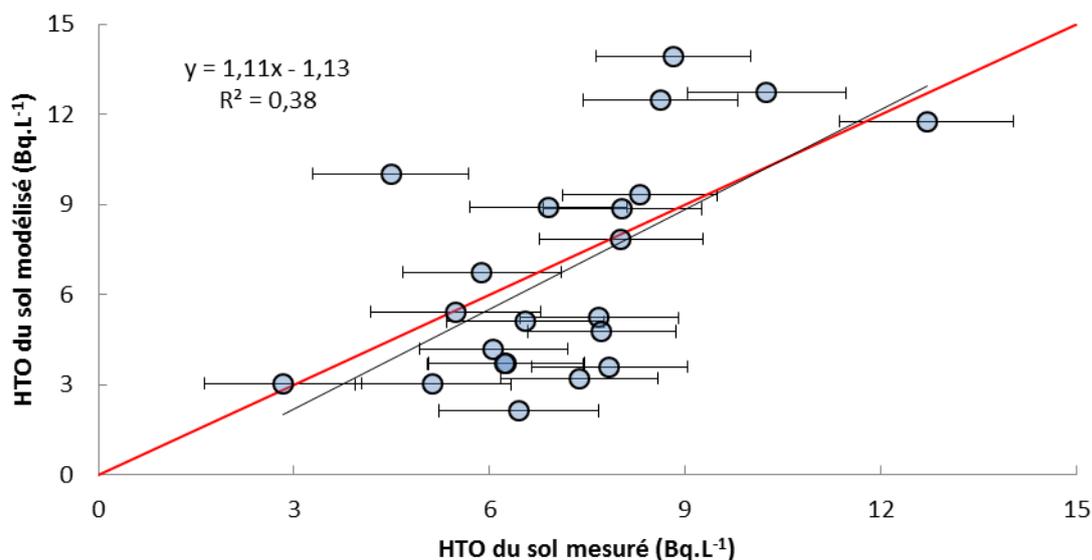


Figure IV.37 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ de l'activité de l'eau liquide du sol (Bq.L^{-1}) avec les mesures *in situ* issues des prélèvements ponctuels de carotte de sol (N=22), réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.

Les comparaisons entre les sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ et les mesures (automatiques (Figure IV.36) et ponctuelles (Figure IV.37)) de la fraction HTO liquide du sol réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague présentent des R^2 relativement faibles ($R^2=0,17$ et $R^2=0,38$ pour les Figure IV.36 et Figure IV.37, respectivement), avec une droite de régression « $Y=a.x+b$ » avec a significativement proche de 1 pour la comparaison avec les mesures ponctuelles (Figure IV.37). Ces résultats démontrent une amélioration de la modélisation par TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ des activités en tritium dans la phase liquide de l'eau du sol, par rapport à TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$. Cette amélioration de la modélisation du HTO dans le sol témoigne une meilleure prise en compte de la contribution du sol à la modélisation du bilan du tritium au sein des plantes sous TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$.

• Discussion

Les modifications apportées au modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ concernent uniquement certains processus du compartiment HTO liquide du sol, puisque ce dernier constitue un biais majeur de modélisation identifié (cf. § I.3.2.4). Les modules implémentés concernant trois points :

- la contribution à l'activité de HTO dans l'atmosphère du flux diffusif de HTO (sous forme de vapeur) entre du compartiment sol vers le compartiment air : ce flux diffusif, dont l'importance est mise en avant § IV.2.2, est décrit (Équation IV.2) ;

- l'oxydation bactérienne du HT dans les sols, dont l'équation est décrite § III.2.1.1 et l'application aux sols dont la teneur en argile est inférieure à 25 % est décrite § IV.2.1.4 ;
- l'assimilation racinaire du HTO dans la solution du sol. Le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ ne se base plus sur le flux d'échange diffusif entre les compartiments sol - air de type Belot (1996) (Équation I.32), mais s'appuie sur un équilibre du bilan d'eau au sein de la plante, entre le volume entrant (l'assimilation racinaire) et le volume sortant (l'évapotranspiration). Ce bilan est décrit Équation IV.6.

$$root_uptake = (ETR + \Delta G_{\text{water}}).HTO_{\text{sol}} \quad \text{Équation IV.6}$$

Avec $root_uptake$ l'assimilation racinaire du HTO liquide du sol ($\text{g}_{\text{eau}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$), ETR l'évapotranspiration réelle ($\text{g}_{\text{eau}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) et ΔG_{water} la variation de masse d'eau du végétal lié à la croissance ($\text{g}_{\text{eau}} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$). La modélisation de l'évapotranspiration est évaluée avec notre étude comparative des flux d'eau (§ IV.1.2.5), tandis que la croissance végétale est évaluée avec notre étude comparative des flux de CO_2 et la variation du LAI au cours du temps (§ IV.1.2.6 et § IV.1.2.3, respectivement).

IV.3.1.2 Evolution temporelle de la teneur en eau volumique du sol

Les chroniques temporelles de teneur en eau volumique du sol des modèles TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ et TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ sont représentées Figure IV.38 et Figure IV.39, respectivement.

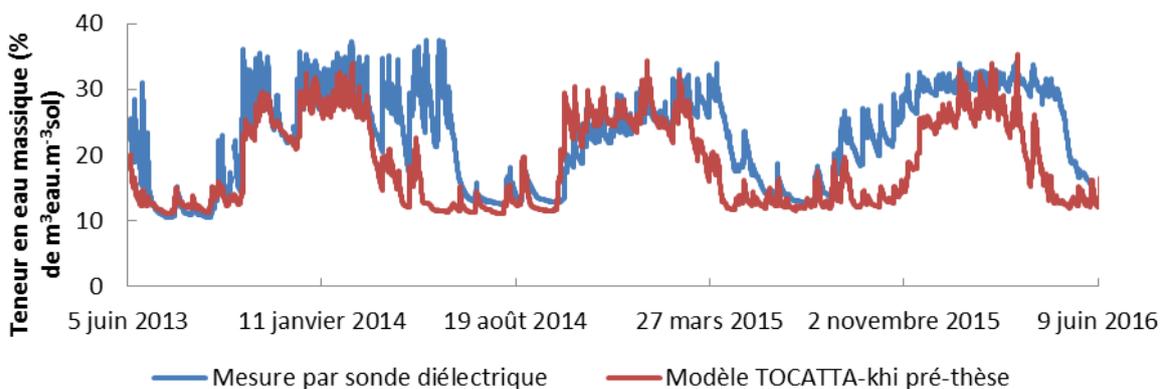


Figure IV.38 : Comparaison des sorties de la teneur en eau volumique ($\% \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-3}_{\text{sol}}$) du modèle pré-thèse avec les mesures par sonde diélectriques de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague, de juin 2013 à juin 2016.

Pour estimer le pouvoir prédictif d'ordre de grandeur du modèle, il est nécessaire de comparer les sorties du modèle avec les mesures ponctuelles, qui sont plus précises que celles obtenues par sonde diélectrique (Figure IV.40 et Figure IV.41). Ces données proviennent des mesures de poids

frais et de poids secs obtenues avant et après la **lyophilisation** des carottes de sol, utilisées pour obtenir le HTO liquide du sol.

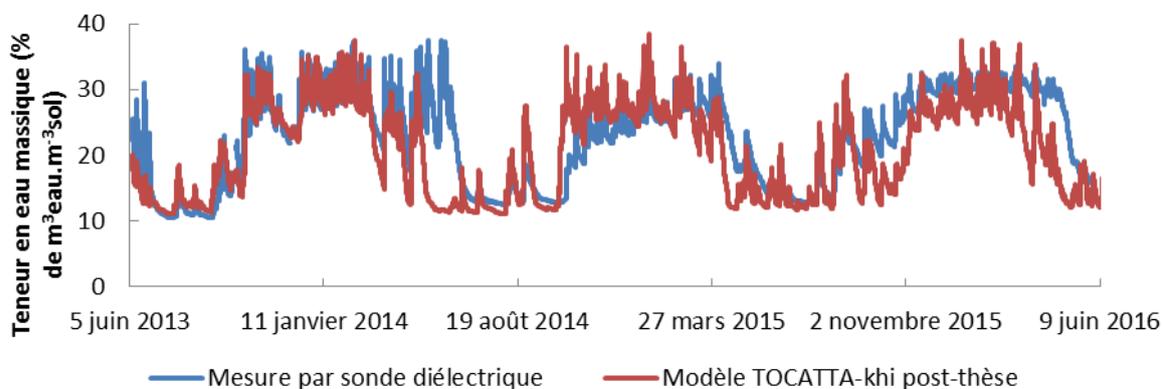


Figure IV.39 : Comparaison des sorties de la teneur en eau volumique ($\% \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-3}_{\text{sol}}$) du modèle post-thèse avec les mesures par sonde diélectriques de la plateforme technique expérimentale IRSN-La Hague, de juin 2013 à juin 2016.

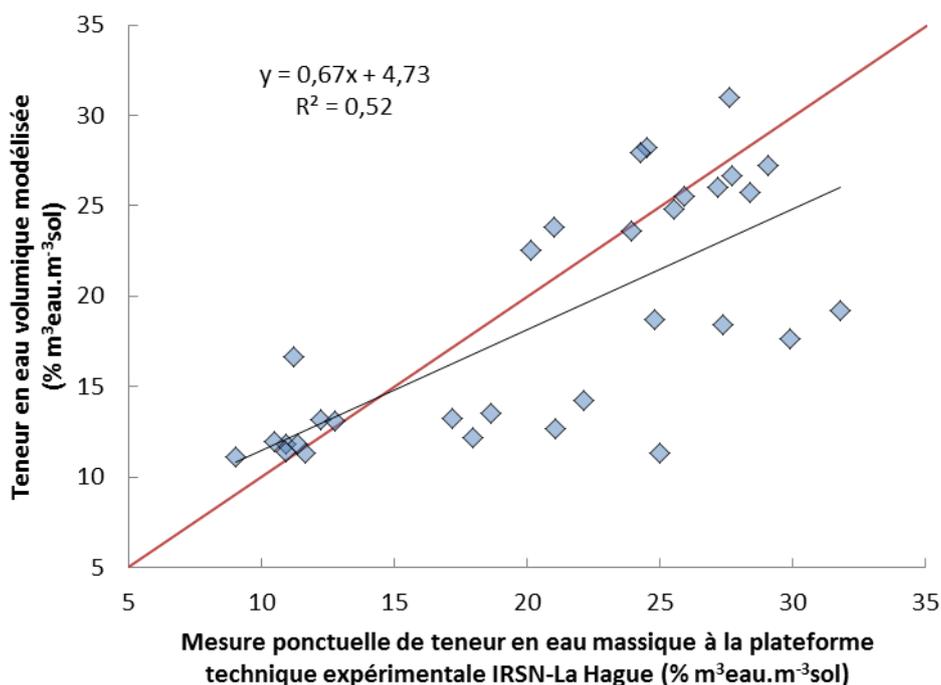


Figure IV.40 : Comparaison des sorties de teneur en eau volumique ($\% \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-3}_{\text{sol}}$) du modèle pré-thèse avec les mesures de teneur en eau obtenues par pesée de carottes avant et après lyophilisation, de juin 2013 à juin 2016. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.

Concernant les comparaisons des mesures aux sorties des modèles TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ et TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$, 50 % et 54 % des prédictions du modèle sont respectivement dans la gamme d'incertitude ($\pm 3\%$) des données mesurées (N=25913), ce qui traduit une bonne représentation des variations de la teneur en eau du sol (Figure IV.38 et Figure IV.41). Le coefficient de régression (R^2) du modèle avec les mesures ponctuelles vaut 0,53 et la droite de régression est proche de 1 avec $Y=0,67X+4,76$ pour le modèle pré-thèse (Figure IV.40). Concernant le modèle post-thèse (Figure IV.41), le coefficient de régression (R^2) du modèle avec les mesures ponctuelles vaut 0,58 et la droite de régression est proche de 1 avec $Y=0,74X+5,24$ ce qui traduit une bonne estimation de la teneur en eau volumique du sol (N=31). Il est donc possible de conclure que le modèle reproduit correctement les variations de la teneur en eau volumique du sol, bien que globalement il sous-estime l'évolution de cette teneur (Figure IV.38 et Figure IV.39). La modification du processus d'assimilation racinaire (cf. chapitre Méthodologie général), seul processus de TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ modifié impactant le bilan dans le sol, permet d'améliorer la modélisation de la teneur en eau dans le sol.

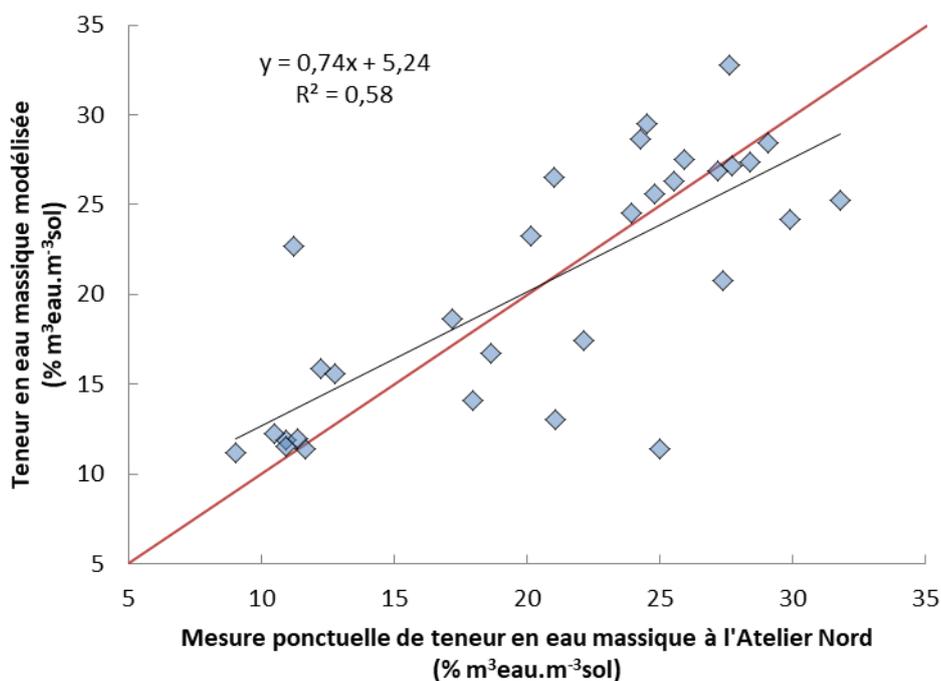


Figure IV.41 : Comparaison des sorties de teneur en eau volumique ($\% \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-3}_{\text{sol}}$) du modèle post-thèse avec les mesures de teneur en eau obtenues par pesée de carottes avant et après lyophilisation, de juin 2013 à juin 2016. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.

IV.3.2 TFWT dans la plante

IV.3.2.1 Résultats du modèle pré-thèse

Les chroniques temporelles des activités de TFWT du sol modélisées par TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ et mesurées pendant 3 ans sont représentées Figure IV.43.

La comparaison des prédictions par le modèle de TFWT avec l'ensemble des données expérimentales issues des prélèvements ponctuels est représentée Figure IV.42. La comparaison des prédictions par le modèle de TFWT avec les données expérimentales bas niveau (où l'activité est inférieure à 15 Bq.L⁻¹) issues des prélèvements ponctuels est représentée Figure IV.44. Au sujet de ces deux figures, 12 % (N=51) et 14 % (N=44) des prédictions par le modèle sont dans la gamme d'incertitude des données mesurées, pour TFWT (Figure IV.42) et TFWT bas-niveau (TFWT < 15 Bq.L⁻¹, Figure IV.44) respectivement.

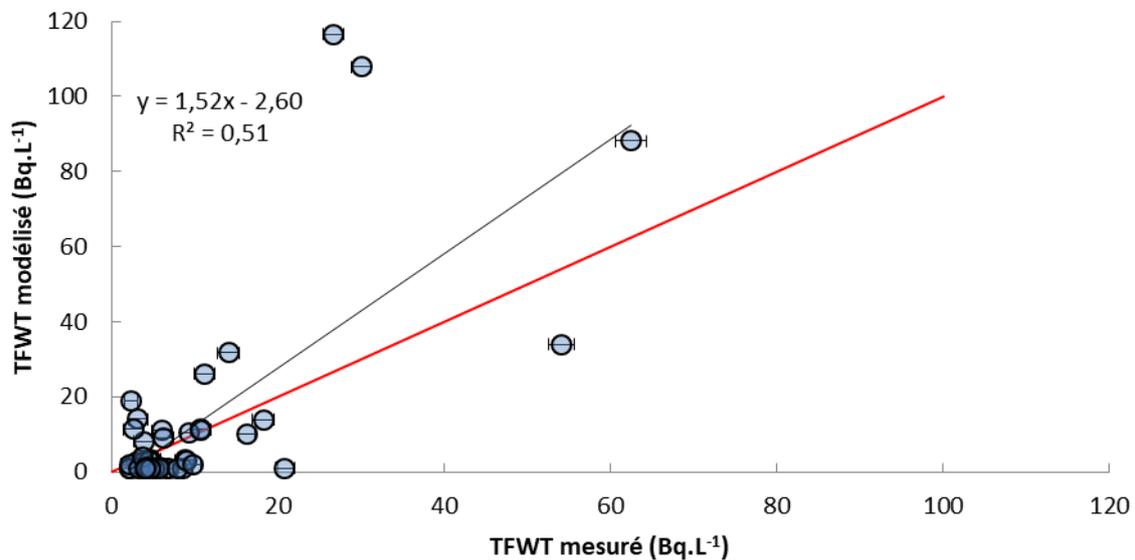


Figure IV.42 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ de TFWT avec les mesures *in situ* issues des prélèvements ponctuels, réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague (N=51). La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.

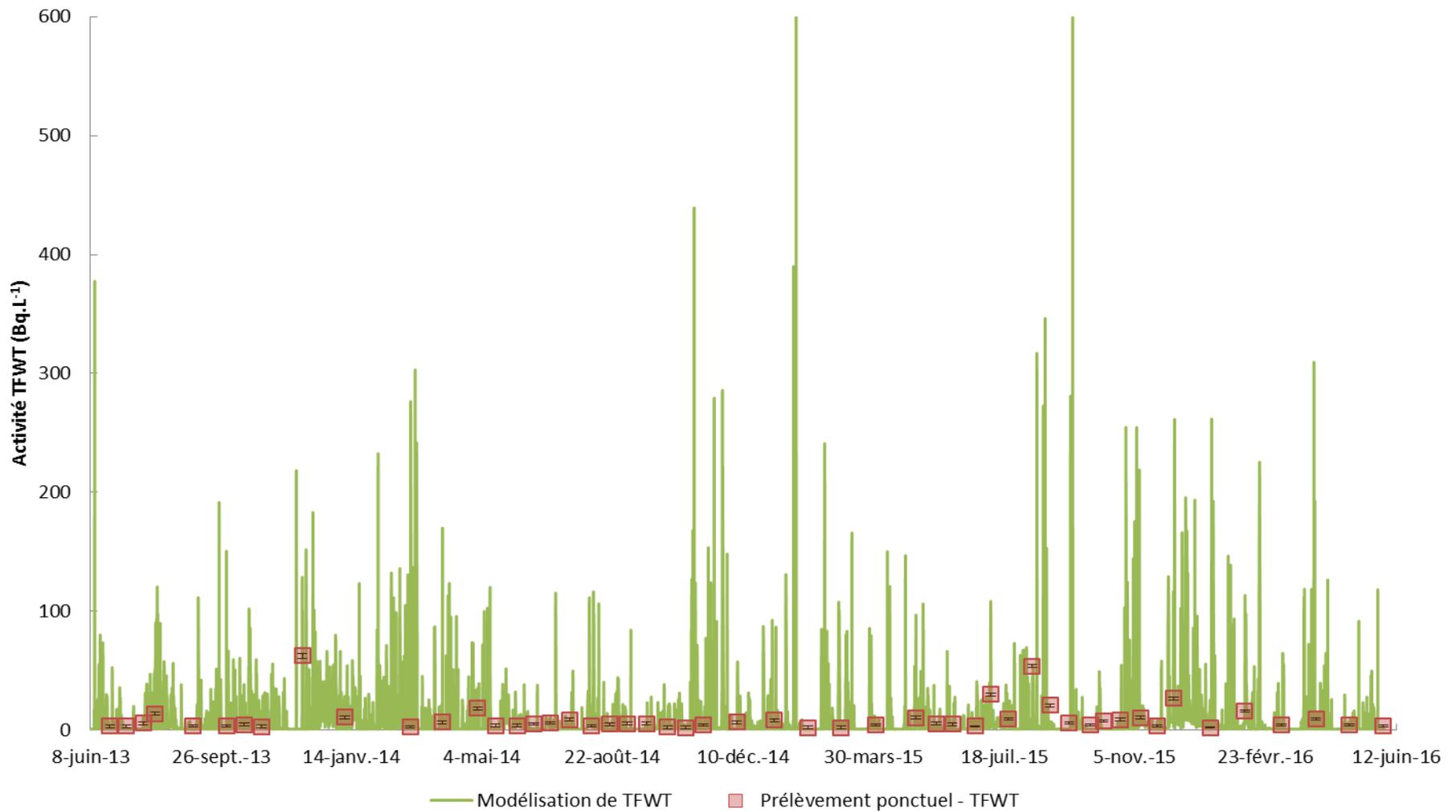


Figure IV.43 : Chroniques temporelles des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ de l'activité de l'eau cellulaire tritiée et des mesures *in situ* réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague.

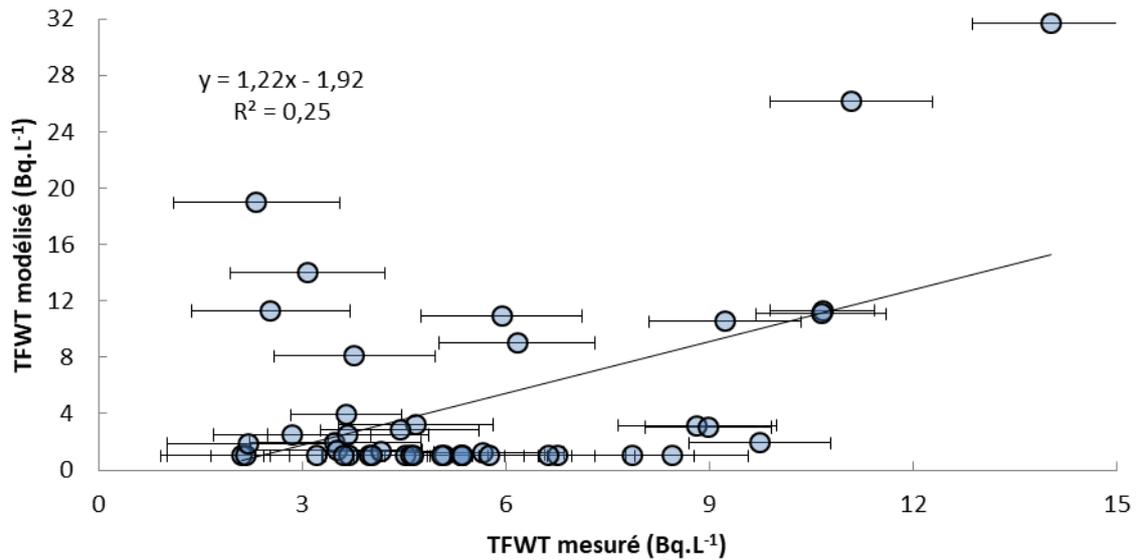


Figure IV.44 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ de TFWT avec les mesures *in situ* issues des prélèvements ponctuels inférieures à 15 Bq .L⁻¹, réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague (N=44). La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.

Le coefficient de corrélation (R^2) est plutôt faible pour la comparaison modèle - mesure bas niveau de juin 2013 à juin 2016 (Figure IV.44), alors que pour la comparaison de l'ensemble des données acquises de juin 2013 à juin 2015, $R^2 = 0,43$ (Figure I.23). Avec les données supplémentaires, la comparaison modèle - mesure du TFWT sur une période de 3 ans, de 2013 à 2016 conduit à un $R^2=0,51$ (Figure IV.42), plus faible que le celui obtenu lors de la comparaison modèle-mesures de juin 2013 à juin 2015 où $R^2=0,87$ (Figure I.22).

IV.3.2.2 Résultats du modèle post-thèse

Les chroniques temporelles des activités de TFWT du sol modélisées par TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ et des activités mesurées pendant 3 ans sont représentées Figure IV.45.

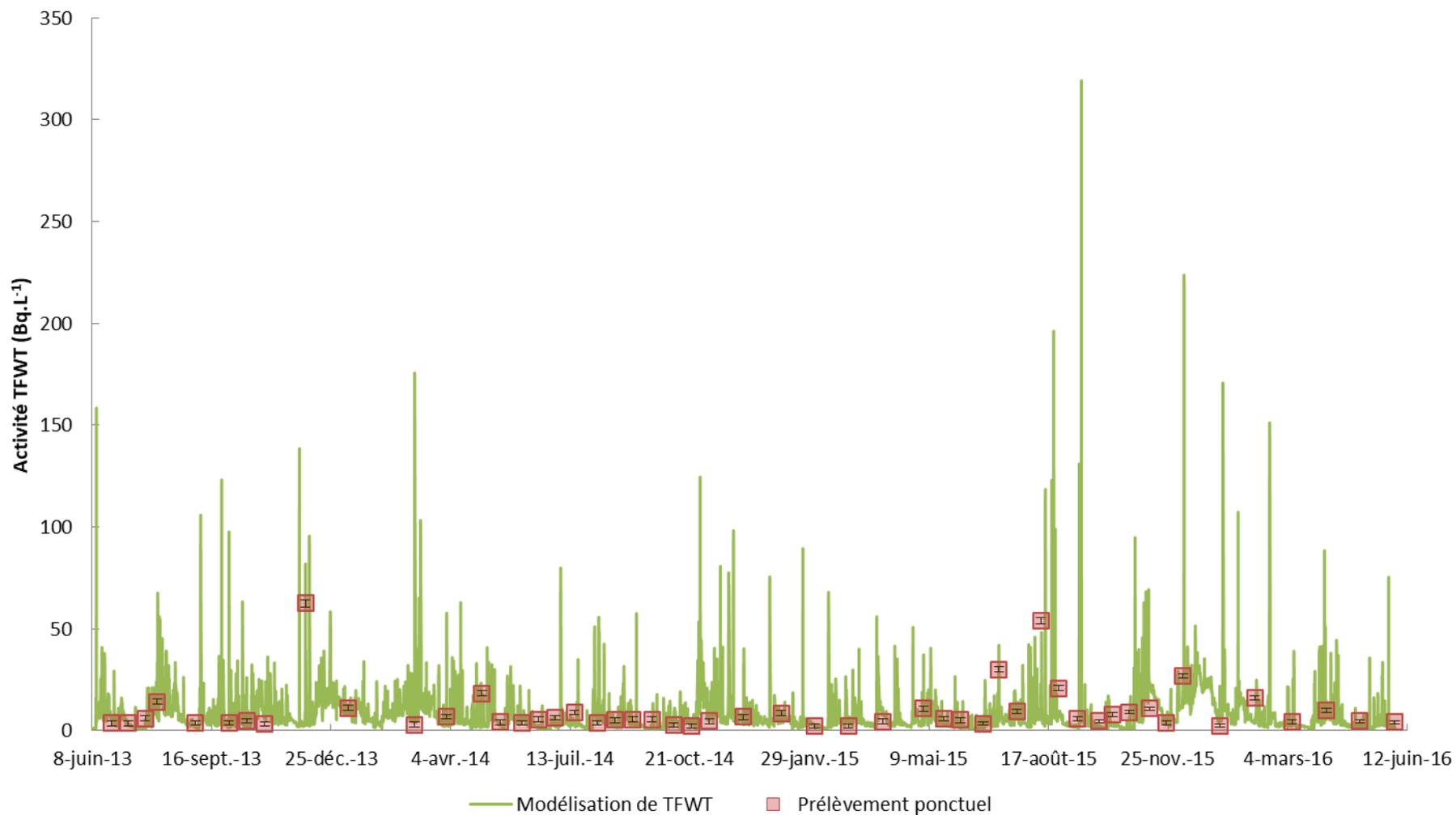


Figure IV.45 : Chroniques temporelles des sorties du modèle TOCATTA- $\gamma_{\text{post-thèse}}$ de l'activité de l'eau cellulaire tritiée et des mesures *in situ* réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague.

La comparaison des prédictions par le modèle de TFWT avec l'ensemble des données expérimentales issues des prélèvements ponctuels est représentée Figure IV.46. La comparaison des prédictions par le modèle de TFWT avec les données expérimentales bas niveau (où l'activité est inférieure à 15 Bq.L⁻¹) issues des prélèvements ponctuels est représentée Figure IV.47. Au sujet de ces deux figures, 24 % (N=51) et 25% (N=44) des prédictions du modèle sont dans la gamme d'incertitude des prédictions par le modèle, pour TFWT (Figure IV.46) et TFWT bas-niveau (TFWT<15 Bq.L⁻¹, Figure IV.47) respectivement.

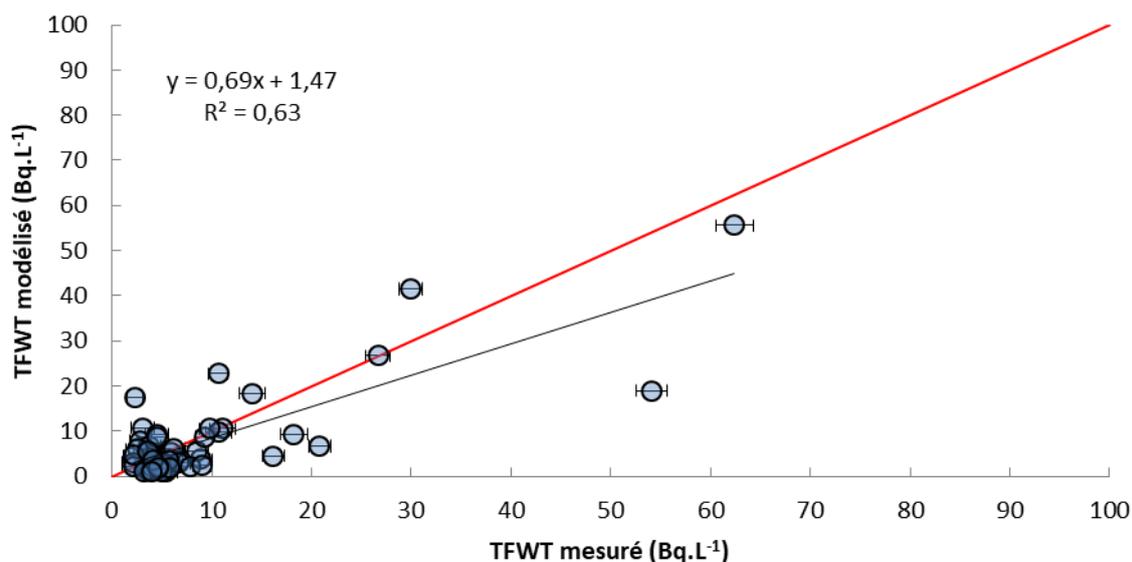


Figure IV.46 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTΑ- $\chi_{\text{post-thèse}}$ de TFWT avec les mesures *in situ* issues des prélèvements ponctuels, réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague (N=51). La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.

Le coefficient de corrélation (R^2) est acceptable pour la comparaison modèle-mesures bas niveau de juin 2013 à juin 2016 (Figure IV.47) en comparaison des résultats obtenus avec le modèle TOCATTΑ- $\chi_{\text{pré-thèse}}$; la droite de comparaison est significativement proche de la droite de régression théorique (Figure IV.44) et les données sont significativement moins dispersées. De ce fait, pour les faibles niveaux d'activités, la droite de régression de données issues du modèle « post-thèse » (Figure IV.46) est significativement plus proche de la droite de régression théorique que pour les données « pré-thèse » (Figure IV.42).

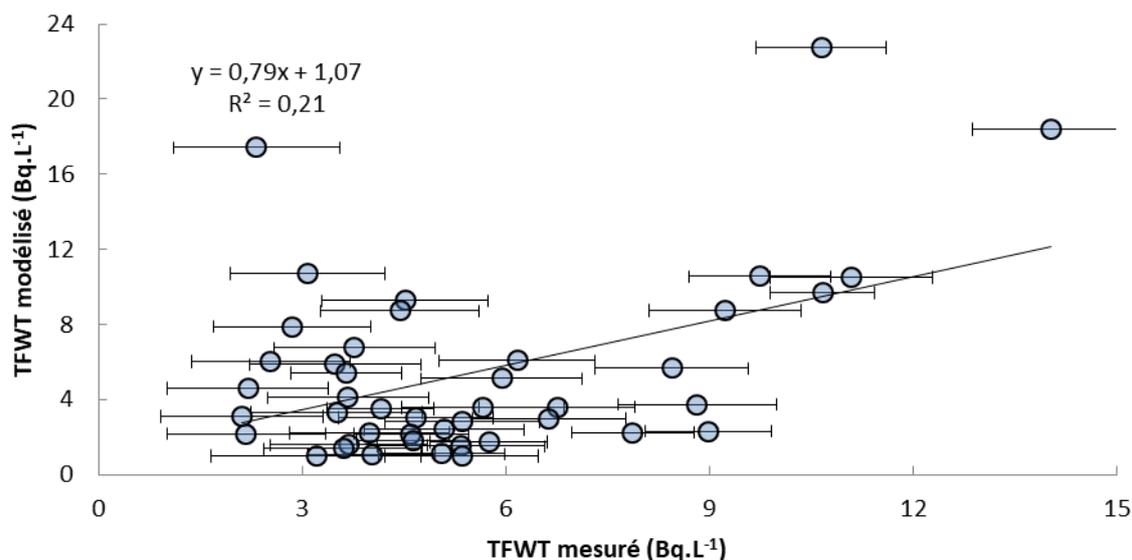


Figure IV.47 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTACH_{post-thèse} de TFWT avec les mesures *in situ* issues des prélèvements ponctuels inférieures à 15 Bq.L⁻¹, réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague (N=44). La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.

IV.3.2.3 Discussion

L'amélioration des prédictions de l'activité de HTO liquide du sol (§ IV.3.1.1) impacte directement la prédiction de TFWT, dans la mesure où le HTO liquide du sol - de par son transfert au sein de la plante via l'assimilation racinaire - participe au bilan de TFWT. Cependant l'amélioration de la modélisation du bilan d'eau - et donc de tritium - dans le sol n'impacte pas significativement les activités modélisées de TFWT haut-niveaux : ces derniers sont essentiellement contrôlés par la diffusion foliaire du HTO en provenance de l'atmosphère, notamment en réponse à un pic de HTO atmosphérique (Le Dizès *et al.*, 2017). Or seuls les rejets tritiés atmosphériques de l'usine AREVA-NC La Hague impactent le terrain expérimental IRSN-la Hague (Maro *et al.*, 2017). Le modèle post-thèse apporte donc probablement une plus-value dans le cas de scénarios d'irrigation.

IV.3.3 OBT dans la plante

IV.3.3.1 Résultats du modèle pré-thèse

Les chroniques temporelles des activités de OBT de la plante modélisées par TOCATTACH_{pré-thèse} et mesurées pendant 3 ans sont représentées Figure IV.48. Les chroniques temporelles de neOBT (Figure IV.49) sont issues d'un calcul selon l'équation proposée dans § IV.2.4.2, où eOBT est en équilibre avec TFWT (en accord avec § IV.2.3).

La comparaison des prédictions par le modèle de OBT avec l'ensemble des données expérimentales issues des prélèvements ponctuels est représentée Figure IV.50. La comparaison des prédictions de

neOBT par le modèle avec les données expérimentales issues des prélèvements ponctuels est représentée Figure IV.51. Au sujet de ces deux figures, 30 % (N=51) et 20 % (N=51) des prédictions par le modèle sont dans la gamme d'incertitude des prédictions par le modèle, pour **OBT** (Figure IV.50) et **neOBT** (Figure IV.51) respectivement.

Les comparaisons de l'ensemble des données acquises de juin 2013 à juin 2016 pour **OBT** et **neOBT** présentent des droites de régression relativement proches de la droite de régression théorique, la modélisation de **OBT** et **neOBT** est cohérente au regard des incertitudes de mesure.

IV.3.3.2 Résultats du modèle post-thèse

Les chroniques temporelles des activités de **OBT** de la plante du sol modélisées par TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ et mesurées pendant 3 ans sont représentées Figure IV.52. Les chroniques temporelles de **neOBT** (Figure IV.53) sont issues d'un calcul selon l'équation proposée dans § IV.2.4.2, où **eOBT** est en équilibre avec **TFWT** (en accord avec § IV.2.3).

La comparaison des prédictions par le modèle de **OBT** avec l'ensemble des données expérimentales issues des prélèvements ponctuels est représentée Figure IV.54. La comparaison des prédictions par le modèle de **neOBT** avec les données expérimentales issues des prélèvements ponctuels est représentée Figure IV.55. Au sujet de ces deux figures, 30 % (N=51) et 32 % (N=51) des prédictions par le modèle sont dans la gamme d'incertitude des données mesurées, pour **OBT** (Figure IV.54) et **neOBT** (Figure IV.55) respectivement.

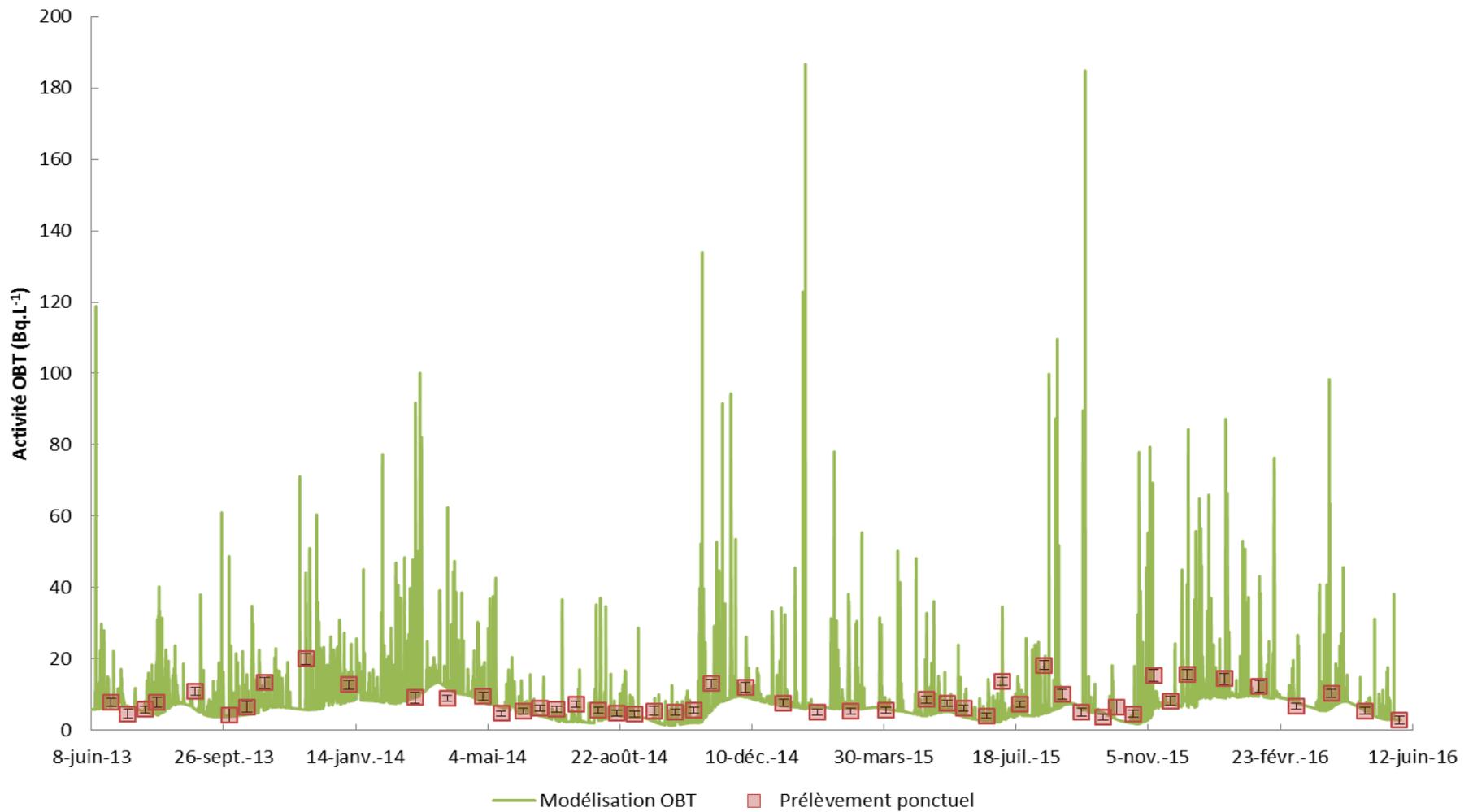


Figure IV.48 : Chroniques temporelles des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ de l'activité de **OBT** (Bq.L⁻¹) de la plante et des mesures *in situ* réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague.

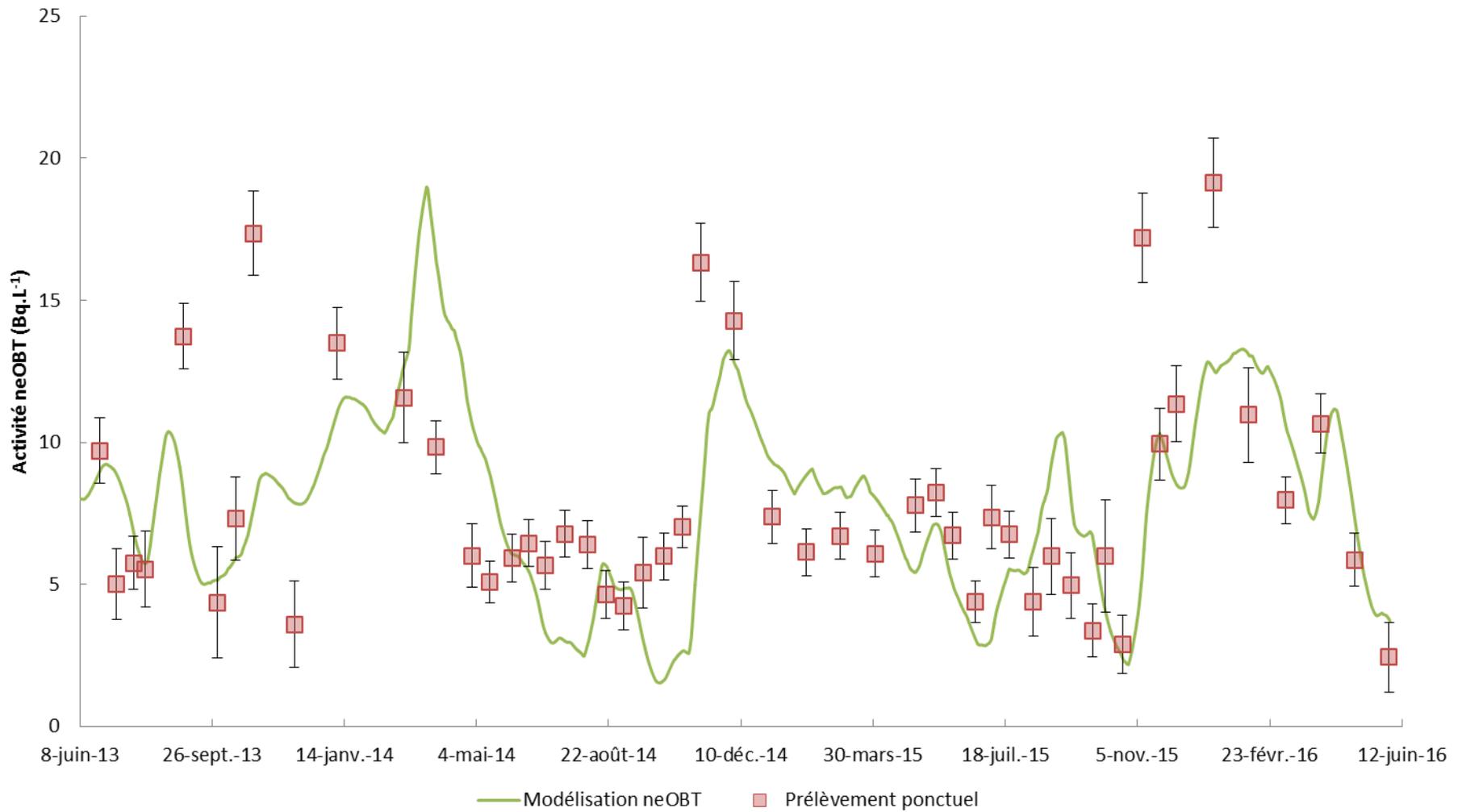


Figure IV.49 : Chroniques temporelles des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ de l'activité en neOBT(Bq.L⁻¹) et des mesures *in situ* réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague. La comparaison modèle-mesures pour la période de juin 2013 à juin 2015 est réalisée par Le Dizès *et al.* (2017).

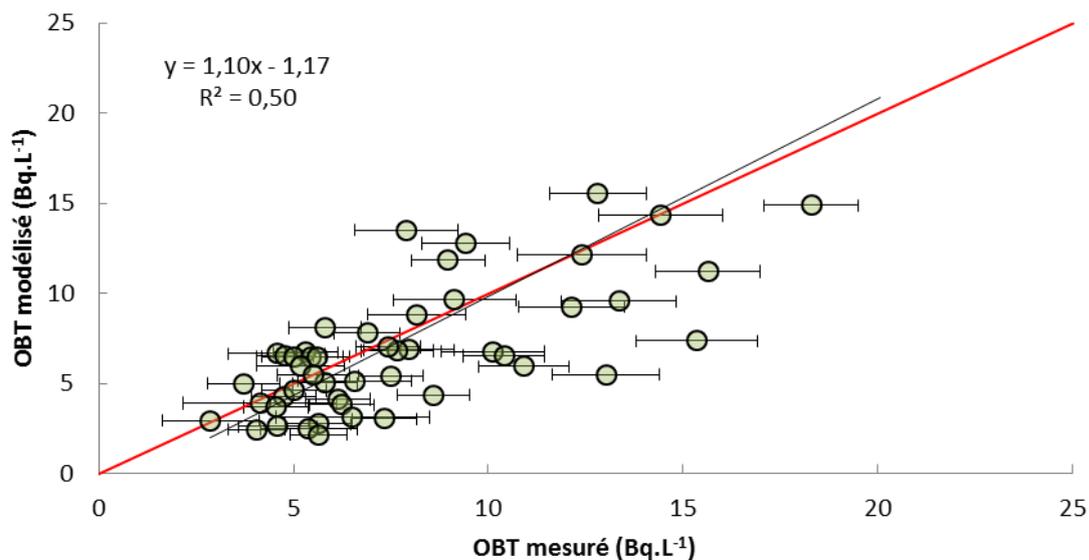


Figure IV.50 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ de OBT (Bq.L⁻¹) avec les mesures *in situ* issues des prélèvements ponctuels, réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague (N=51). La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.

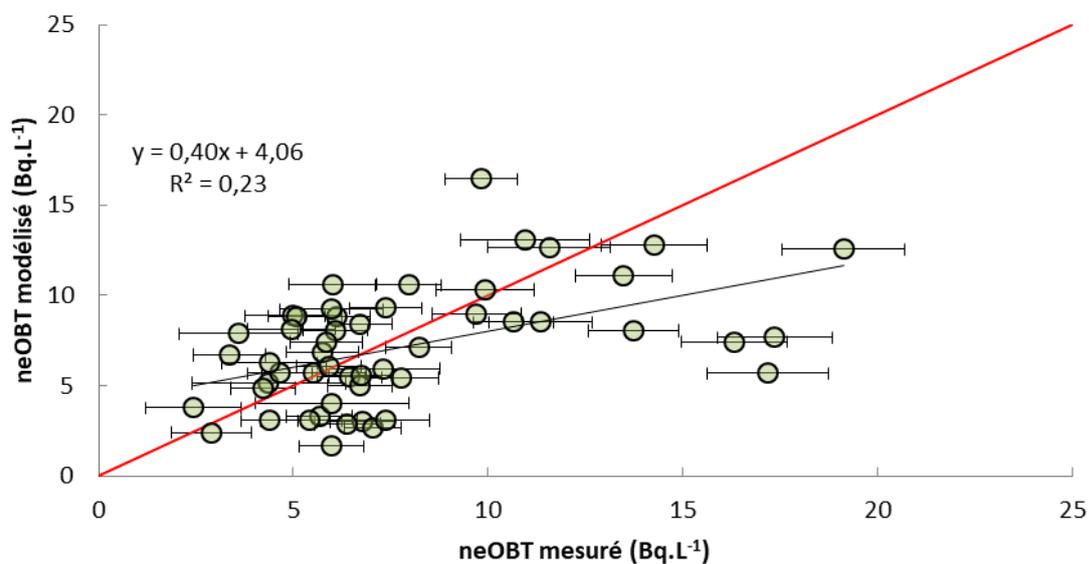


Figure IV.51 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ de neOBT (Bq.L⁻¹) avec les mesures *in situ* issues des prélèvements ponctuels, réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague (N=51). La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.

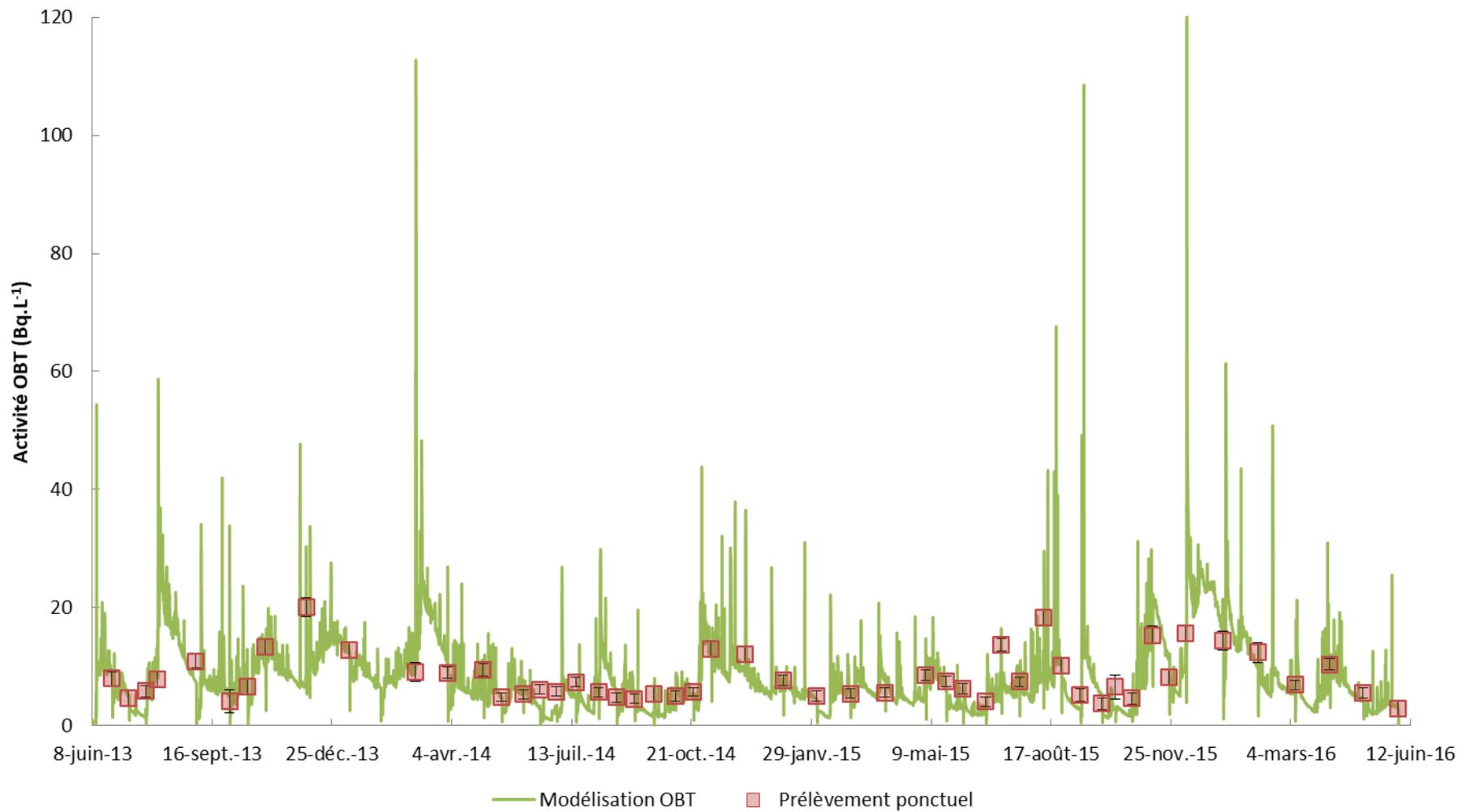


Figure IV.52 : Chroniques temporelles des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ de l'activité de OBТ (Bq.L⁻¹) et des mesures *in situ* réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague.

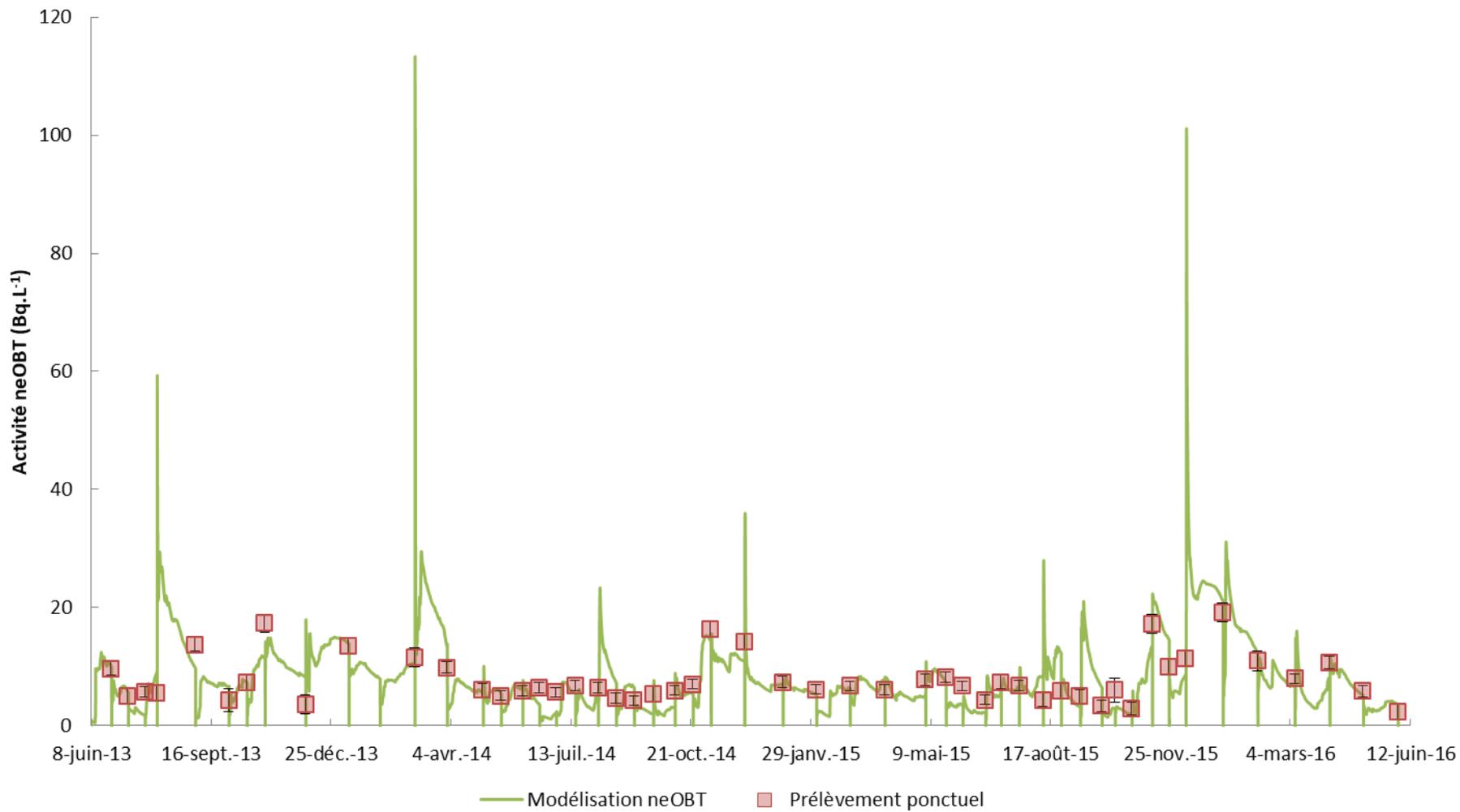


Figure IV.53 : Chroniques temporelles des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ de l'activité de neOBT (Bq.L⁻¹) et des mesures *in situ* réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague.

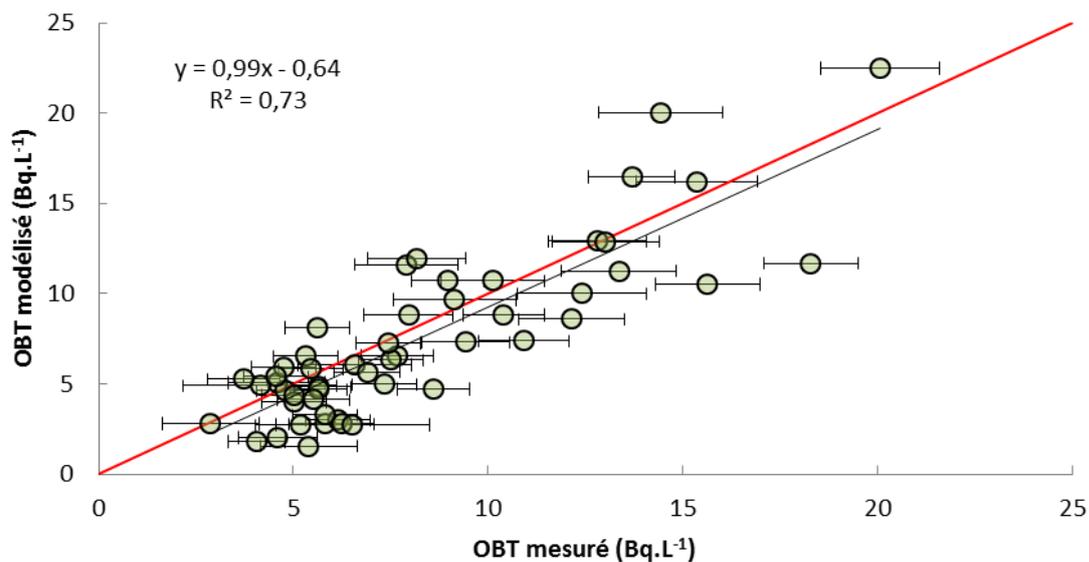


Figure IV.54 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ de **OBt** avec les mesures *in situ* issues des prélèvements ponctuels, réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.

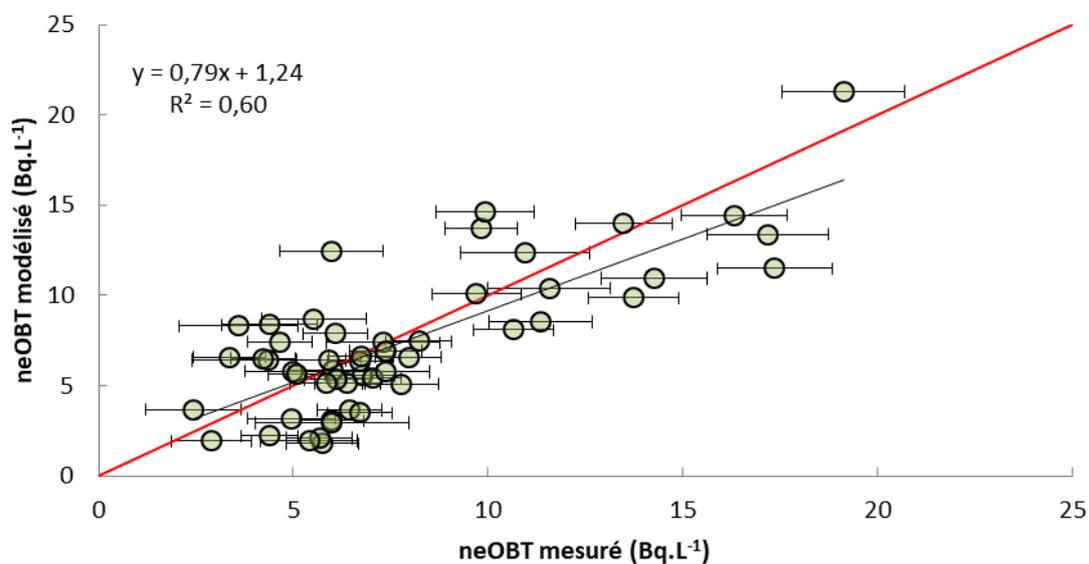


Figure IV.55 : Comparaison des sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ de **neOBt** avec les mesures *in situ* issues des prélèvements ponctuels, réalisées de juin 2013 à juin 2016 sur le terrain expérimental IRSN-La Hague. La droite rouge représente la droite de corrélation modèle - mesure idéale.

Les comparaisons de l'ensemble des données acquises de juin 2013 à juin 2016 pour **OBT** et **neOBT** présentent des droites de régression proches de la droite de régression théorique, la modélisation de **OBT** et **neOBT** est cohérente au regard des incertitudes de mesure.

IV.3.3.3 Discussion

Pour les deux modèles, les comparaisons modèles-mesures sont moins proches de la courbe théorique pour le **neOBT** par rapport à **OBT**. Ce résultat peut être expliqué par la méthode de détermination de **neOBT** expérimental (cf. § III.2.4.3), qui perd en précision du fait des incertitudes liées à **TFWT** et **OBT**.

Les différences entre les sorties **OBT** et **neOBT** des modèles $\text{TOCATT}\text{A-}\chi_{\text{post-thèse}}$ et $\text{TOCATT}\text{A-}\chi_{\text{pré-thèse}}$ découlent de la non-considération (dans $\text{TOCATT}\text{A-}\chi_{\text{post-thèse}}$) d'un calcul du renouvellement du carbone au sein du compartiment aérien du modèle $\text{TOCATT}\text{A-}\chi$, évoqué § III.2.5.

Dans le modèle $\text{TOCATT}\text{A-}\chi_{\text{pré-thèse}}$, les activités modélisées de **neOBT** à un instant donné sont lissées par la moyenne glissante dont la fenêtre est de 14 jours (Aulagnier *et al.*, 2013). Ce lissage des activités modélisées de **OBT** atténue les fortes variations de **TFWT** observable d'une heure à une autre.

Le modèle $\text{TOCATT}\text{A-}\chi_{\text{post-thèse}}$ ne considère plus ce lissage qui traduit implicitement le renouvellement de la matière organique du brin d'herbe. La modélisation de la variation de l'activité en **OBT** est directement indexée sur les prédictions de croissance (biomasse sèche) de l'individu végétal (cf. Equation III.42). Cette méthode de calcul de **OBT** repose sur deux hypothèses, valables dans notre cas d'étude : (1) la croissance (via la production de matière sèche) est correctement modélisée au cours de la période de croissance de la prairie et (2) en raison du temps de croissance limité par les coupes régulières et relativement fréquentes (30 jours de croissance maximum afin de reproduire le pâturage), l'herbe est considérée comme jeune (Gillet, 1981).

IV.3.4 Discussion générale

Les trois modules implémentés dans $\text{TOCATT}\text{A-}\chi_{\text{post-thèse}}$ se rapportent directement à la modélisation du compartiment **HTO** liquide du sol. La contribution relative de ces trois modules aux nouvelles prédictions de **HTO** liquide du sol est rapportée Tableau IV.22. L'assimilation d'eau racinaire non-diffusive, i.e. liée au flux d'évapotranspiration dans le système sol-plante, est le module qui contribue le plus aux modifications des résultats de modélisation de **HTO** liquide du sol, suivi du module d'oxydation bactérienne du **HT** dans le sol, puis de près par la contribution du flux diffusif sol-air de **HTO** gazeux à l'activité de la vapeur de **HTO** dans l'atmosphère à l'aplomb de la parcelle.

Tableau IV.22 : Contribution relative des trois processus implémentés ou modifiés dans la nouvelle version de TOCATTA- χ au calcul du HTO du sol, pour la période 2013-2016 (N=52321).

Informations statistiques	Oxydation bactérienne du HT	Contribution du flux diffusif sol-air pour HTO atmosphérique	Assimilation racinaire fonction de l'évapotranspiration
Contribution relative moyenne (%)	16,1	15,4	68,5
Ecart-type (%)	10,2	10,2	20,3
1 ^{er} quartile (%)	7,3	6,6	51,58
Quartile moyen (%)	15,5	14,6	69,95
3 ^{ème} quartile (%)	24,7	23,8	86,05

Dans le cadre des rejets atmosphériques de AREVA-NC La Hague, les sorties du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ sur les activités du TFWT sont cohérentes avec les activités mesurées de TFWT (Le Dizès *et al.*, 2017). Cependant, la comparaison des sorties de TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ présentées tout au long de cette partie et synthétisée Tableau IV.23, confirme que la représentation de la fraction HTO liquide du sol est le point faible majeur de TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ pour simuler l'impact d'activités atmosphériques de bas niveaux (< 15 Bq.L⁻¹). Cette sous-estimation de l'activité de TFWT bas niveaux peut s'expliquer par la représentation inappropriée du HTO du sol et par l'absence de transfert par absorption racinaire en fonction de l'évapotranspiration, qui peut contribuer à réduire l'activité de TFWT par dilution du TFWT via le HTO du sol. Ainsi, dans ce contexte spécifique du scénario de la Hague dont le terme source est principalement atmosphérique, le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ améliore les prédictions en TFWT pour les concentrations de bas niveau (< 15 Bq.L⁻¹) et les prédictions de OBT dans le cadre de coupes régulières.

Tableau IV.23 : Paramètres statistiques sur les comparaisons des modèles TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ et TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ avec les mesures réalisées sur le terrain expérimental de l'IRSN-AREVA NC La Hague, de 2013 à 2016.

Compartiment	Régression linéaire	Coefficient de corrélation	Ecart moyen relatif modèle - mesure	Ecart-type du rapport modèle/mesure	Rapport modèle-mesures moyen
-	-	-	Bq.L ⁻¹	Bq.L ⁻¹	-
TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$					
HTO sol*	y ^{***} =0,19x+2,66	0,02	4,45	2,67	0,59
TFWT BdF**	y=1,22x-1,92	0,25	6,01	9,82	0,96
TFWT*	y=1,52x+2,60	0,51	18,39	10,77	1,05
neOBT*	y=0,40x+4,06	0,23	4,41	3,29	1,02
OBT*	y=1,10x-1,17	0,50	4,06	2,88	0,94
TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$					
HTO sol*	y=1,13x-1,19	0,38	2,88	2,08	0,96
TFWT BdF**	y=0,79x+1,07	0,21	4,31	8,18	1,14
TFWT*	y=0,69x+1,47	0,63	7,20	8,29	1,08
neOBT*	y=0,79x+1,24	0,60	2,50	3,18	1,00
OBT*	y=0,99x+0,64	0,73	3,86	2,26	0,90

*Toutes activités confondues (N=51) ; **TFWT < 15 Bq.L⁻¹, N=44 données ; ***y correspond aux sorties du modèles et x correspond aux données mesurées.

CHAPITRE V. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Les objectifs de cette thèse, décrits dans l'introduction, sont (i) de valider les principaux paramètres éco-physiologiques du modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$, (ii) d'améliorer nos connaissances sur certains processus de transfert du tritium au sein des **écosystèmes** prairiaux et (iii) de valider le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ en confrontant les prédictions des activités de tritium dans les différents compartiments de l'environnement (HTO du sol, TFWT et OBT du végétal) aux mesures expérimentales régulièrement acquises au niveau d'une plateforme technique.

Les différentes mesures éco-physiologiques de terrain ont permis (1) d'effectuer une validation de certains paramètres utilisés dans le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$ (vitesse de carboxylation maximale, conductance stomatique, absence de déficit en azote) et (2) de réaliser une comparaison des prédictions du modèle avec les mesures de terrain. Ces comparaisons ont permis de justifier une modélisation satisfaisante de la croissance en surface foliaire du ray-grass, ainsi que des flux de H₂O et de CO₂ dans le continuum sol-plante-atmosphère.

Les différentes expériences réalisées partiellement en laboratoire ont permis d'améliorer nos connaissances - et d'en tirer les conclusions suivantes - sur trois aspects des transferts de tritium au sein des **écosystèmes** :

- Au sujet de l'étude du ratio **OBT/TFWT** sous ambiance tritiée contrôlée et constante :
 - le gain de matière sèche du ray-grass au niveau des compartiments « feuille », « racine », et « graine » est modélisé pour une culture sans stress de croissance, au cours des 18 jours suivant la germination de la graine ;
 - la contribution relative de la masse foliaire issue de la **translocation** de la masse produite par **photosynthèse** est identifiée au cours des 18 jours suivant la germination de la graine, dans le cadre de culture en laboratoire ;
 - la fraction de **eOBT** est déterminée pour les compartiments « feuille », « racine », et « graine » de ray-grass (respectivement $30,0 \pm 4,2$, $30,0 \pm 4,2$, 39 ± 6 , où ces résultats sont exprimées en %) ;
 - l'obtention du ratio **OBT/TFWT** ne permet pas de conclure à un enrichissement ou une dilution du **OBT** issu de la **photosynthèse** par rapport à **TFWT** ;
 - la variabilité des ratios **OBT/TFWT** présents dans la littérature a pu être expliquée, notamment via les précautions et les corrections spécifiques qui ont été appliquées lors de la préparation des échantillons végétaux à analyser (**TFWT** et **OBT**).
- Au sujet de l'étude de l'oxydation bactérienne du HT en HTO au sein du sol :
 - l'étude de la variabilité spatiale de l'oxydation de 0 à 20 cm de profondeur confirme les résultats issus de la littérature, selon lesquels l'oxydation se situe majoritairement à proximité de la surface de sol ;

- l'étude de la variabilité temporelle de l'oxydation de 0 à 24 jours conclut à une évolution linéaire et constante de l'oxydation pour cette période. Ce résultat est en accord avec les données issues de la littérature ;
- l'étude de la variabilité texturale de l'oxydation de HT jusqu'à 20 cm de profondeur permet d'appliquer l'équation d'oxydation bactérienne préexistante pour tout type de sol dont la teneur pondérale en argile est inférieure à 25 %.
- Au sujet de l'étude de la cinétique de marquage des végétaux à la vapeur d'eau tritiée atmosphérique : bien que la culture du ray-grass soit réalisée sous serre, le marquage est réalisé *in situ* et chaque expérimentation est soumise aux aléas du terrain et du climat. Les expérimentations qui ont pu être menées à leur terme permettent de déterminer des temps de demi-équilibre entre (1) le TFWT et le HTO atmosphérique et (2) le TFWT et eOBT au sein du végétal. Ces temps de demi-équilibre sont en accord avec les données de la littérature, à savoir moins d'une heure et de quelques minutes, respectivement. Une relation entre la conductance stomatique de Huntingford et le temps de demi-équilibre entre TFWT et HTO atmosphérique est également établie.

Les différentes mesures de tritium acquises sur le terrain ont permis (1) de vérifier la contribution du sol sur les activités de tritium au sein de la plante et (2) de réaliser une comparaison avec les prédictions du modèle. Ces comparaisons témoignent d'une meilleure prise en compte dans le modèle TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ des compartiments HTO du sol, TFWT et OBT du végétal dans le cas de rejets de faibles activités du HTO dans la vapeur d'eau de l'air ambiant, avec une modification de certains modules relatifs aux calculs de l'activité de HTO du sol et de l'activité de OBT par rapport à TOCATTA- $\chi_{\text{pré-thèse}}$. En particulier, l'amélioration des transferts de HTO par voie racinaire dans TOCATTA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ élargit le domaine d'application du modèle à des scénarios d'irrigation.

En résumé, sans tenir compte de ce qui a trait directement aux sorties du modèle, cette étude a amélioré nos connaissances sur les transferts de tritium dans l'environnement selon trois points principaux :

- Pour une culture sous ambiance constante en HTO (eau liquide et vapeur d'eau de l'air) pendant un temps de culture théoriquement infini, l'activité de l'eau de combustion tritiée de la matière organique tend à rejoindre l'activité du HTO ambiant. Il est important de prendre en compte que pour un temps de culture non-infini, l'activité de l'eau de combustion tritiée de la matière organique est impactée par l'activité de neOBT présent initialement dans la plante, avant la germination ;
- L'expression du paramètre d'affinité bactérienne au sol en fonction de la teneur en sable du sol, déterminée à partir d'expérimentations en laboratoire, améliore la modélisation existante dans la littérature de l'oxydation bactérienne du HT au niveau du sol. Cette dernière est à présent valable pour tous les sols dont la teneur massique en argile est inférieure à 25 % ;

- L'estimation du temps de demi-équilibre entre le **TFWT** et le **HTO** atmosphérique est évaluée dans le cadre du ray-grass. Une relation entre la conductance stomatique de Huntingford et le temps de demi-équilibre entre le **TFWT** et le **HTO** atmosphérique est établie. Cependant en raison des difficultés expérimentales évoquées au cours de ce manuscrit, cette relation basée sur seulement 3 points mérite d'être approfondie.

Les résultats obtenus au cours de cette thèse ouvrent cependant des questionnements autour de ces problématiques : comment se comporte le temps de demi-équilibre entre la vapeur d'eau atmosphérique tritiée et l'eau cellulaire tritiée d'un végétal lorsque la luminosité correspond à l'aube ou au crépuscule ? Comment évoluerait l'oxydation du **HT** en **HTO** par les bactéries du sol pour des sols dont la teneur massique en argile est supérieure à 25 % ? Que valent les sorties du modèle TOCATA- $\chi_{\text{post-thèse}}$ pour des matrices végétales autres que de type « ray-grass » ? Que valent les sorties du modèle pour des fréquences de coupes supérieures à 30 jours ? Que valent les sorties du modèle pour des scénarios d'irrigation conduisant potentiellement à un marquage du sol plus important que celui rencontré dans l'environnement de La Hague ? Ces questionnements ne seront pas traités dans le cadre du projet VATO dont la fin est marquée par l'achèvement de ce travail de thèse. Cependant quelques éléments de réponse seront peut-être apportés dans un proche avenir avec la poursuite de la collaboration entre l'IRSN et EDF sur les transferts de tritium dans le système air-sol-plante dans le cadre du projet LEGATO, qui consiste à étudier la modélisation des transferts de tritium dans les végétaux de type légumes-feuilles, tels que typiquement la laitue.

REFERENCES

- AFNOR, 2011. NF M 60-822-2 : Energie nucléaire - Mesure de la radioactivité dans les effluents et rejets gazeux, partie 2 : détermination de l'activité du tritium dans la solution de piégeage des effluents ou rejets d'effluents gazeux échantillonnés par la technique de barbotage.
- Alanic, G., Le Meignen, R., 2008. Mode opératoire pour la mesure des différentes fractions du tritium dans des échantillons biologiques, Rapport technique ENV SUR MERBCMO-08000468 A, 1-37
- Allen, R.G., Pruitt, W.O., Wright, J.L., Howell, T.A., Ventura, F., Snyder, R., Itenfisu, D., Steduto, P., Berengena, J., Yrisarry, J.B., 2006. A recommendation on standardized surface resistance for hourly calculation of reference ET o by the FAO56 Penman-Monteith method. *Agricultural Water Management* 81, 1-22.
- Amano, H., Atarashi, M., Noguchi, H., Ichimasa, Y., Ichimasa, M., 1995. Formation of organically bound tritium in plants during the 1994 chronic HT release experiment at Chalk River. *Fusion Technol.* 28, 803-808.
- Anspaugh, L., Koranda, J., Robison, W., Martin, J., 1971. The Dose to Man Via Food Chain Transfer Resulting from Exposure to Tritiated Water Vapor, Lawrence Livermore Laboratory, Rept. UCRL-73195.
- Arai, K., Takeda, H., Iwakura, T., 1985. Studies of the tritium Uptake in Some Edible Plants and Transfer to the Rat, rapport NIRS-M-52, p. 35-49.
- ASN (Autorité de Sureté Nucléaire), 2010. Livre blanc du tritium. https://www.asn.fr/sites/tritium/fichiers/Tritium_livre_blanc_integral_web.pdf (Consultée le 28/04/17).
- Aulagnier, C., Le Dizès, S., Maro, D., Hébert, D., Lardy, R., Martin, R., Gonze, M. A., 2012. Modelling the transfer of ¹⁴C from the atmosphere to grass: A case study in a grass field near AREVA-NC La Hague. *Journal of environmental radioactivity*, 112, 52-59.
- Aulagnier, C., Le Dizès, S., Maro, D., Hébert, D., Lardy, R., Martin, R., 2013. The TOCATT-x model for assessing ¹⁴C transfers to grass: an evaluation for atmospheric operational releases from nuclear facilities. *Journal of environmental radioactivity* 120, 81-93.
- Bacchetta, A., 2014. Analyse et spéciation du tritium dans des matrices environnementales. Université Pierre et Marie Curie-Paris VI.
- Baglan N., Alanic G., Pointurier F., 2005. Tritium determination at trace level: which strategy to determine accurately HTO and OBT in environmental samples? *Fusion science and technology* 48, 749-754.
- Baglan, N., Ansoberlo, E., Cossonnet, C., Fouhal, L., Deniau, I., Mokili, M., Henry, A., Fourré, E., Olivier, A., 2010. Métrologie du tritium dans différentes matrices: cas du tritium organiquement lié (TOL). *Radioprotection* 45, 369.

- Baize, D., Girard, M.-C., 2009. Référentiel pédologique 2008. Editions Quae.
- Balaine, N., Clough, T.J., Beare, M.H., Thomas, S.M., Meenken, E.D., 2016. Soil Gas Diffusivity Controls N O and N Emissions and their Ratio. *Soil Science Society of America Journal* 80, 529-540.
- Ball, B., Dobbie, K., Parker, J., Smith, K., 1997. The influence of gas transport and porosity on methane oxidation in soils. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 102, 23301-23308.
- Barber, J., Tran, P.D., 2013. From natural to artificial photosynthesis. *J. R. Soc. Interface* 10(81), 13-29.
- Barry, P., Watkins, B., Belot, Y., Davis, P., Edlund, O., Galeriu, D., Raskob, W., Russell, S., Togawa, O., 1998. Intercomparison of model predictions of tritium concentrations in soil and foods following acute airborne HTO exposure. *Journal of environmental Radioactivity* 42, 191-207.
- Baumgärtner, F., Kardinal, C., Müllen, G., 2001. Distribution of tritium between water and exchangeable hydrogen bridges of biomolecules. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 249 (2), 513-517.
- Bé, M., Chisté, V., Dulieu, C., Browne, E., Baglin, C., Chechev, V., Kuzmenko, N., Helmer, R., Kondev, F., MacMahon, D., 2006. Table of Radionuclides (vol. 3-A= 3 to 244). Monographie BIPM 5.
- Bell, B.P., 2008. Growth and water relations of native wheatgrass populations. Utah State University.
- Belot Y., 1986. Tritium in plants : a review. *Radiation Protection Dosimetry*, 16, pp. 101-105.
- Belot, Y., Roy, M., Métivier, H., 1996. Le tritium de l'environnement à l'Homme, Les éditions de physique. France.
- Bernacchi, C. J., Bagley, J. E., Serbin, S. P., Ruiz-Vera, U. M., Rosenthal, D. M., VanLoocke, A., 2013. Modelling C3 photosynthesis from the chloroplast to the ecosystem. *Plant, cell & environment*, 36(9), 1641-1657
- Bonin, C., Flores, J., Lal, R., Tracy, B., 2013. Root characteristics of perennial warm-season grasslands managed for grazing and biomass production. *Agronomy* 3, 508-523.
- Boyer, C., 2009. Etude des transferts du tritium atmosphérique chez la laitue : étude cinétique, état d'équilibre et intégration du tritium sous forme organique lors d'une exposition atmosphérique continue (in French), Thesis, Université de Franche-Comté.
- Boyer, C., Vichot, L., Fromm, M., Losset, Y., Tatin-Froux, F., Guétat, P., Badot, P.M., 2009. Tritium in plants: a review of current knowledge. *Environ. Exp. Bot.* 67, 34-51.
- Brassard, M., 2007. Développement d'outils diagnostiques de la nutrition azotée du maïs-grain pour une gestion optimale de l'engrais azoté. Mémoire de Maitrise. Université de Laval 10.
- Brudenell, A., Collins, C.D., Shaw, G., 1997. Dynamics of tritiated water (HTO) uptake and loss by crops after short-term atmospheric release. *Journal of Environmental Radioactivity* 36, 197-218.

Bunnenberg, C., Feinhals, J., & Wiener, B., 1986. Differences in the Behaviour of HTO and H₂O in Soil After Condensation from the Atmosphere and Conversion of HT to HTO and OBT in Soil Relative to Moisture Content and Pore Volume. *Radiation Protection Dosimetry*, 16(1-2), 83-87.

Burba, G., & Anderson, D., 2010. A brief practical guide to eddy covariance flux measurements: principles and workflow examples for scientific and industrial applications. Li-Cor Biosciences.

Burba, G., Madsen, R., Feese, K., 2013. Eddy covariance method for CO₂ emission measurements in ccus applications: principles, instrumentation and software. *Energy Procedia* 40, 329-336.

Cabaret, M.-M., Seuret, J.-M., 2004. Fertilisation des prairies. [http://www.bretagne.synagri.com/ca1/PJ.nsf/TECHPJPARCLEF/17527/\\$File/fertilisation%20NPK%20Prairies.pdf?OpenElement](http://www.bretagne.synagri.com/ca1/PJ.nsf/TECHPJPARCLEF/17527/$File/fertilisation%20NPK%20Prairies.pdf?OpenElement) (consultée le 28/09/2017).

Caird, M.A., Richards, J.H., Donovan, L.A., 2007. Nighttime stomatal conductance and transpiration in C₃ and C₄ plants. *Plant Physiology* 143, 4-10.

CARMIN, 2008a. <http://www-carmin.cea.fr/espace-pedagogique/rayonnements-ionisants-etsante/fiches-de-synthese/effets-aleatoires-tardifs/les-faibles-doses>.

Cassette, P., 2004. Mesures de radioactivité par scintillation liquide. Ed. Techniques Ingénieur.

Chevalier, J., 2012. Erosion. <http://www.mineralogie.fr/Erosion.html> (consultée le 30/05/2017).

Choi, Y.H., Lim, K.M., Lee, W.Y., Park, H.G., Choi, G.S., Keum, D.K., Lee, H., Kim, S.B., Lee, C.W., 2005. Tritium levels in Chinese cabbage and radish plants acutely exposed to HTO vapor at different growth stages. *Journal of Environmental Radioactivity*, 84: 79-94.

Clerc, H., Calando, J., Paillard, P., Gros, R., Hircq, B., 1988. The experimental determination of the oxidation rate of tritium in the atmosphere, *Radiation protection practice*.

Cline, J.F., 1953. Absorption and metabolism of tritium oxide and tritium gas by bean plants. *Plant Physiology*, 28: 717-723.

Collatz, G.J., Ball, J.T., Grivet, C., Berry, J.A., 1991. Physiological and environmental regulation of stomatal conductance, photosynthesis and transpiration: a model that includes a laminar boundary layer. *Agricultural and Forest Meteorology* 54, 107-136.

Comte A., 2005. Tritium, Fiche radiotoxicologique. pp. 10 p. CEA Carmin.

Conrad, R., & Seiler, W., 1981. Decomposition of atmospheric hydrogen by soil microorganisms and soil enzymes. *Soil Biology and Biochemistry*, 13(1), 43-49.

Conrad, R., Weber, M., Seiler, W., 1983. Kinetics and electron transport of soil hydrogenases catalyzing the oxidation of atmospheric hydrogen. *Soil Biology and Biochemistry* 15, 167-173.

- Conrad, R., 1996. Soil microorganisms as controllers of atmospheric trace gases (H₂, CO, CH₄, OCS, N₂O, and NO). *Microbiological reviews*, 60(4), 609-640.
- Couchat, P., Puard, M., Lasceve, G., 1983. Tritiated water vapor exchange in sunflowers. *Health physics* 45, 757-764.
- Crush, J., Waller, J., Care, D., 2005. Root distribution and nitrate interception in eleven temperate forage grasses. *Grass and Forage Science* 60, 385-392.
- Crush, J., Nichols, S., Ouyang, L., 2010. Adventitious root mass distribution in progeny of four perennial ryegrass (*Lolium perenne* L.) groups selected for root shape. *New Zealand Journal of Agricultural Research* 53, 193-200.
- Damay, P., 2010. Détermination expérimentale de la vitesse de dépôt sec des aérosols submicroniques en milieu naturel: influence de la granulométrie, des paramètres micrométéorologiques et du couvert, Thèse, INSA de Rouen.
- Davis, P.A., Kotzer, T.G., Workman, W.J.G., 2002. Environmental tritium concentrations due to continuous atmospheric sources. *Fusion Technol.* 41, 453-457.
- Davis, P.A., Kim, S.B., Chouhan, S.L., Workman, W.J.G., 2005. Observed and modeled tritium concentrations in the terrestrial food chain near a continuous atmospheric source. *Fusion Sci. Technol.* 48, 504-7.
- Dean, T. J., Bell, J. P., & Baty, A. J. B. (1987). Soil moisture measurement by an improved capacitance technique, Part I. Sensor design and performance. *Journal of Hydrology*, 93(1-2), 67-78.
- DEI, 2008. Le tritium dans l'environnement. Synthèse des connaissances. Report No IRSN/DEI 2008-06, Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire.
- Demmig-Adams, B., Adams lii, W., 1992. Photoprotection and other responses of plants to high light stress. *Annual review of plant biology* 43, 599-626.
- Diabaté, S, Strack, S., 1993. Organically bound tritium. *Health Phys.* 65, 698-712.
- Diabaté., S., Strack, S., 1997. Organically bound tritium in wheat after short-term exposure to atmospheric tritium under laboratory conditions. *J. Environ. Radioact.* 36(2-3), 157-175.
- Dong, Z., Layzell, D., 2001. H₂ oxidation, O₂ uptake and CO₂ fixation in hydrogen treated soils. *Plant and Soil* 229, 1-12.
- Duchaufour, P., 1990. La formation et l'évolution des complexes organo-minéraux dans les sols et leur rôle dans la pédogénèse. *Sci. Sol* 28, 273-284.
- Dumont, J., 2013. Rôle de la régulation stomatique et de la capacité de détoxification foliaire dans l'estimation d'un seuil de risque à l'ozone pour la végétation. Université de Lorraine.

- Dunstall, T., Ogram, G.L., Spencer, F., 1985. Elemental tritium deposition and conversion in the terrestrial environment. *Fusion Science and Technology* 8, 2551-2556.
- Duru, M., Calvière, I., 1996. Effets des niveaux de nutrition en phosphore et en azote et de la composition botanique de communautés prairiales sur l'accumulation de biomasse au printemps. *Agronomie* 16, 217-229.
- Edao, Y., Iwai, Y., Sato, K., & Hayashi, T., 2016. Experimental investigation on feasible bioreactor using mechanism of hydrogen oxidation of natural soil for detritiation system. *Applied Radiation and Isotopes*, 114, 40-44.
- Ehhalt, D., Rohrer, F., 2009. The tropospheric cycle of H₂: a critical review. *Tellus B* 61, 500-535.
- Eisenbud, M., Bennett, B., Blanco, R., Compere, E., Goldberg, E., Jacobs, D., Koranda, J., Moghisi, A., Rust, J., Soldat, J., Crandell, J., Bailey, C., Reinig, W., Grimes, W., Fearon, T., 1978. Tritium in the environment. National Council on Radiation Protection and Measurements, rapport NCRP 62.
- Ensminger, I., Busch, F., Huner, N., 2006. Photostasis and cold acclimation: sensing low temperature through photosynthesis. *Physiologia Plantarum* 126, 28-44.
- Escobar-Gutiérrez, A., Daudet, F.-A., Gaudillère, J.-P., Maillard, P., Frossard, J.-S., 1998. Modelling of allocation and balance of carbon in walnut (*Juglans regia* L.) seedlings during heterotrophy-autotrophy transition. *J. Theor. Biol.* 194, 29-47.
- Evans, P.S., 1978. Plant root distribution and water use patterns of some pasture and crop species. *New Zealand Journal of Agricultural Research* 21, 261-265.
- Fallon, R.D., 1982. Influences of pH, temperature, and moisture on gaseous tritium uptake in surface soils. *Applied and environmental microbiology* 44, 171-178.
- Farquhar, G.v., Caemmerer, S.v., Berry, J., 1980. A biochemical model of photosynthetic CO₂ assimilation in leaves of C₃ species. *Planta* 149, 78-90.
- Farquhar, G., Von Caemmerer, S., 1982. Modelling of photosynthetic response to environmental conditions, *Physiological plant ecology II*. Springer, pp. 549-587.
- Favaretto, N., Motta, A.C.V., Barcik, C., Lustosa, S.B.C., Comin, J.J., 2007. Shoot and root responses of *Trifolium vesiculosum* to boron fertilization in an acidic Brazilian soil. *Brazilian Archives of Biology and Technology* 50, 597-604.
- Fievet, B., Plet, D., 2003. Estimating biological half-lives of radionuclides in marine compartments from environmental time-series measurements. *Journal of Environmental Radioactivity* 65, 91-107.
- Flexas, J., Ribas-Carbo, M., DIAZ-ESPEJO, A., GalmES, J., Medrano, H., 2008. Mesophyll conductance to CO₂: current knowledge and future prospects. *Plant, Cell & Environment* 31, 602-621.

- Flexas, J., Barbour, M.M., Brendel, O., Cabrera, H.M., Carriquí, M., Díaz-Espejo, A., Douthe, C., Dreyer, E., Ferrio, J.P., Gago, J., 2012. Mesophyll diffusion conductance to CO₂: an unappreciated central player in photosynthesis. *Plant Science* 193, 70-84.
- Foerstel, H., 1986. Uptake of elementary tritium by the soil. *Radiation Protection Dosimetry*, 16 (1-2): 75-81.
- Foken, T., Wichura, B., 1996. Tools for quality assessment of surface-based flux measurements. *Agricultural and Forest Meteorology* 78, 83-105.
- Fondy, B.R., Geiger, D.R., 1982. Diurnal pattern of translocation and carbohydrate metabolism in source leaves of *Beta vulgaris* L. *Plant Physiology* 70, 671-676.
- Galeriu, D., 1994. Transfer parameters for routine release of HTO, incorporation of OBT. Atomic Energy of Canada report, AECL 11052.
- Galeriu, D., Davis, P., Raskob, W., Melintescu, A., 2008. Recent progresses in tritium radioecology and dosimetry. *Fusion Sci. Technol.* 54, 237-242.
- Galeriu, D., Melintescu, A., Strack, S., Atarashi-Andoh, M., Kim, S., 2013. An overview of organically bound tritium experiments in plants following a short atmospheric HTO exposure. *Journal of environmental radioactivity* 118, 40-56.
- Gallien, A., 2005. <http://svt.ac-dijon.fr/schemassvt/> (consultée le 28/09/2017).
- Garland, J., Ameen, M., 1979. Incorporation of tritium in grain plants. *Health Physics* 36, 35-38.
- Garland, J. A., 1980. The absorption and evaporation of tritiated water vapor by soil and grassland. *Water, Air, & Soil Pollution*, 13(3), 317-333.
- Gastal, F., Belanger, G., Lemaire, G., 1992. A model of the leaf extension rate of tall fescue in response to nitrogen and temperature. *Annals of botany* 70, 437-442.
- Gaudillere, J., Chantelot, E., Soyer, J., Molot, C., Milin, S., 2003. Leaf and must nitrogen content, two complementary indicators of grapevine nitrogen status. *Journal International des Sciences de la Vigne et du Vin (France)*.
- Gazal, S., Amiard, J., Caussade, B., Chenal, C., Hubert, F., Sene, M., 2010. Tritium. Today's and tomorrow's developments.
- Gillet, M., 1981. Physiologie de l'herbe et paturage. *Fourrages*, 85, 7-37.
- Glugla, M., Antipenkov, A., Beloglazov, S., Caldwell-Nichols, C., Cristescu, I., Cristescu, I., Day, C., Doerr, L., Girard, J.-P., Tada, E., 2007. The ITER tritium systems. *Fusion Engineering and Design* 82, 472-487.

GNIS-pédagogie, web. <http://www.gnis-pedagogie.org/index.php?numpage=225&numrub=6&numcateg=7&numsscateg=149> (consultée le 28/09/2017).

Golubev, A., Glagolev, M., Misatyuk, C., 2001. Studies of HTO transport and oxidation in unsaturated soil. ECORAD, Aix-en-Provence, France, September, 3-7.

Gonze, M., Murlon, C., Garcia-Sanchez, L., Le Dizès, S., Nicoulaud, V., Métivier, J., Simon-Cornu, M., Gerber, P., Vermorel, F., 2011. SYMBIOSE: A Simulation Platform for Performing Radiological Risk Assessments. Proceedings ICRER, 19-24.

Google map. <https://www.google.fr/maps> (consultée le 28/09/2017).

Graux, A., Lardy, R., Gaurut, M., Duclos, E., Klump, K., 2011. PaSim V5. 3 User's Guide, p. 80.

Grosse, A., Johnston, W., Wolfgang, R., Libby, W., 1951. Tritium in nature. *Science* 113, 1-2.

Guenot, J., 1984. Comportement du tritium dans les végétaux supérieurs. Rapp. CEA/France. CEA.

Guenot, J., Belot, Y., 1984. Assimilation of ^3H in photosynthesizing leaves exposed to HTO. *Health physics* 47, 849-855.

Guetat, P., Douche, C., Hubinois, J.C., 2008. Tritium and the environment: sources, measurement and transfer, in "Radiation protection no 152: Emerging Issues on Tritium and Low Energy Beta Emitters", EU scientific seminar 2007.

Guillien, Y., 1949. Gel et dégel du sol: les mécanismes morphologiques. *L'information géographique* 13, 104-116.

Guo, R., & Conrad, R., 2008. Extraction and characterization of soil hydrogenases oxidizing atmospheric hydrogen. *Soil Biology and Biochemistry*, 40(5), 1149-1154.

Harrison, M.T., Christie, K.M., Rawnsley, R.P., 2017. Assessing the reliability of dynamical and historical climate forecasts in simulating hindcast pasture growth rates. *Animal Production Science* 57, 1525-1535.

Hill, R.L., Johnson, J.R., 1993. Metabolism and dosimetry of tritium. *Health physics* 65, 628-647.

Hillel, D., 2004. Soil physics and soil physical characteristics. *Introduction to Environmental Soil Physics* (p. 3- 17), Elsevier, Academic Press, 2004

Hisamatsu, S., Takizawa, Y., Abe, T., Katsumata, T., 1987. Fallout ^3H ingestion in Akita, Japan. *Health Phys.* 53(3), 287-293.

Hisamatsu, S., Yoshikazu, I., Takizawa, Y., 1989. Tritium concentrations in some European foods. *J. Environ. Radioact.* 10, 251-255.

Hopkins, W.G., 1995. *Introduction to Plant Physiology*. John Wiley & Sons, Inc.

Hopkins, W., Hüner, N., 2008. *Introduction to Plant Physiology*, fourth ed. John Wiley & Sons Inc, Danvers.

- Horst, T. W., 1997. A simple formula for attenuation of eddy fluxes measured with first-order-response scalar sensors. *Boundary-Layer Meteorology*, 82(2), 219-233.
- Huang, J., Wu, P., & Zhao, X., 2013. Effects of rainfall intensity, underlying surface and slope gradient on soil infiltration under simulated rainfall experiments. *Catena*, 104, 93-102.
- Huntingford, C., Smith, D.M., Davies, W.J., Falk, R., Sitch, S., Mercado, L.M., 2015. Combining the [ABA] and net photosynthesis-based model equations of stomatal conductance. *Ecological Modelling* 300, 81-88.
- Huyghe, C., 2003. Les fourrages et la production de protéines. *Fourrages* 174, 145-162.
- IAEA (International Atomic Energy Agency), 1981. Tritium in some typical ecosystems. In Technical reports series, Vienna.
- IAEA, 2000. Chapter 3: Abundance and Fractionation of Stable Isotopes, in: IAEA (Eds.), *Environmental Isotopes in the Hydrological Cycle: Principles and Applications*. International Atomic Energy Agency Vienna. http://www-naweb.iaea.org/napc/ih/documents/global_cycle/Environmental%20Isotopes%20in%20the%20Hydrological%20Cycle%20Vol%201.pdf (consultée le 28/04/17).
- IAEA, 2007. Definition of Organically Bound Tritium (OBT), in “Environmental Modelling for Radiation Safety (EMRAS) program”. Tritium and C-14 Working Group. Vienna, Austria.
- IAEA, 2008. <http://www-ns.iaea.org/projects/emras/emras-tritium-wg.htm> (consultée le 28/09/2017).
- IAEA (International Atomic Energy Agency), 2014. Transfer of Tritium in the Environment after Accidental Releases from Nuclear Facilities. Report of Working Group 7. Tritium Accidents, in “Environmental Modelling for RAdiation Safety (EMRAS II) program”, TECDOC 1738, Vienna.
- Ichimasa, M., Ichimasa, Y., Azuma, Y., Komuro, M., Fujita, K., Akita, Y., 1988. Oxidation of molecular tritium by surface soils. *Journal of radiation research* 29, 144-151.
- Ichimasa, Y., Ichimasa, M., Jiang, H., Katsuno, K., Noguchi, H., Yokoyama, S., Amano, H., Atarashi, M., 1995. In vitro determination of HT oxidation activity and tritium concentration in soil and vegetation during the chronic HT release experiment at Chalk River. *Fusion technology*, 28(3P1), 877-882.
- Ichimasa, M., Suzuki, M., Obayashi, H., Sakuma, Y., Ichimasa, Y., 1999. In vitro determination of oxidation of atmospheric tritium gas in vegetation and soil in Ibaraki and Gifu, JAPAN. *Journal of Radiation Research*, 40: 243-251.
- ICRP, 1989. Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 1: ICRP Publication 56, *Annals of the ICRP* 20, Pergamon Press, Oxford.
- ICRP, 1993. Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides. Part 2: Ingestion dose coefficients. ICRP Publication 67, Elsevier Science Ltd, Oxford.

ICRP, 1995. Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides. Part 4: Inhalation dose coefficients. ICRP Publication 71, Elsevier Science Ltd, Oxford.

ICRP, 1996. Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides. Part 5: Compilation of ingestion and inhalation dose coefficients. Annals of the ICRP, volume 26, n° 1.

ICRP, 2007. Recommendations of the International Commission on radiological Protection. ICRP Publication 103, Annals of the ICRP 37 (2-4).

Indeka, L., 1981. Incorporation of tritiated water from the atmosphere into aqueous and organic components of plants. In: Jaworowski, Z., "Biological incorporation of tritium", pp. 21-27. CLOR-115/D, Central Laboratory for Radiological Protection, Warsaw, Poland.

Information géographiques sur les terres agricoles canadiennes. <http://info-sols.ca/> (consultée le 08/08/2017).

Inoue, Y., Iwakura, T., 1990. Tritium Concentration in Japanese Rice. J. Radiat. Res. 31, 311-323.

INRS, 2009. Tritium. Radioprotection : radionucléides. In ED 4303, pp. 10. INRS, Paris.

IRSN, web. La plateforme Symbiose. <http://www.irsn.fr/FR/Larecherche/outils-scientifiques/Codes-de-calcul/Code-SYMBIOSE/Pages/Plateforme-SYMBIOSE.aspx#.WczBhbJkiUk> (consultée le 28/09/17).

IRSN, 2009. Eléments de réflexion sur le risque sanitaire posé par le tritium. 24 p.

IRSN, 2014. Fiche radionucléide Tritium (in French). <http://www.irsn.fr/FR/Larecherche/publications-documentation/fiches-radionucleides/environnement/Pages/tritium-environnement.aspx#tr4> (consultée le 28/04/17).

IUSS WORKING GROUP WR, 2006. - World reference base for soil resources 2006. - World Soil Resources Reports No. 103, Rome: FAO.

Ivanov, I., Vidaković-Koch, T., Sundmacher, K., 2010. Recent advances in enzymatic fuel cells: experiments and modeling. Energies 3, 803-846.

Jarrige, R., Beaufort, M.-T., Le Gallo, C., 1963. Les constituants membranaires des plantes fourragères, Annales de Biologie Animale Biochimie Biophysique. EDP Sciences, pp. 143-190.

JBL, Germany. JBL Solar Natur T8 <https://www.jbl.de/?lang=en&mod=products&func=detail&id=2378> and JBL Solar Tropic T8 <https://www.jbl.de/?lang=en&mod=products&func=detail&id=2377> (consultée le 28/04/17).

Jean-Baptiste, P., Mantisi, F., Dapoigny, A., Stievenard, M., 1992. Design and performance of a mass spectrometric facility for measuring helium isotopes in natural waters and for low-level tritium determination by the ^3He ingrowth method. International journal of radiation applications and instrumentation. Part A. Applied radiation and isotopes 43, 881-891.

- Jean-Baptiste, P., Fourré, E., Dapoigny, A., Baumier, D., Baglan, N., Alanic, G., 2010. ^3He mass spectrometry for very low-level measurement of organic tritium in environmental samples. *Journal of environmental radioactivity* 101, 185-190.
- Jean-Baptiste, P., Fourré, E., Baumier, D., Dapoigny, A., 2011. Environmental OBT/TFWT ratios revisited. *Fusion Sci. Technol.* 60, 1248-1251.
- Johnson, I. R., 2010. *PlantMod: exploring the physiology of plant canopies*. Melbourne, Australia: IMJ Software, www.imj.com.au/software/plantmod.
- Jolivet, E., Moysé, A., 1982. Les types métaboliques végétaux du point de vue photosynthétique, in "La Photosynthèse", CR de l'Académie d'Agriculture de France, 68 (11): 859-871.
- Kaufman, S., Libby, W., 1954. The natural distribution of tritium. *Physical Review* 93, 1337.
- Keum, D.-K., Lee, H.-S., Kang, H.-S., Choi, Y.-H., Lee, C.-W., 2006. Prediction of tritium level in agricultural plants after short term exposure to HTO vapor and its comparison with experimental results. *Health physics* 90, 42-55.
- Kim, M.A., Baumgärtner, F., 1994. Equilibrium and non-equilibrium partition of tritium between organics and tissue water of different biological systems. *Appl. Radiat. Isot.* 45, 353-360.
- Kim, S. B., Workman, W. G., Korolevych, V., Davis, P. A., 2012. Field measurements of key parameters associated with nocturnal OBT formation in vegetables grown under Canadian conditions. *Journal of environmental radi J. Environ. Radioact.* 104, 94-100.
- Kim, S. B., Baglan, N., Davis, P. A., 2013. Current understanding of organically bound tritium (OBT) in the environment. *J. Environ. Radioact.* 126, 83-91.
- Kim, S., Korolevych, V., 2013. Quantification of exchangeable and non-exchangeable organically bound tritium (OBT) in vegetation. *Journal of environmental radioactivity* 118, 9-14.
- Kline, J., Stewart, M., 1974. Tritium uptake and loss in grass vegetation which has been exposed to an atmospheric source of tritiated water. *Health physics* 26, 567-573.
- Klok, J.B., van den Bosch, P.L., Buisman, C.J., Stams, A.J., Keesman, K.J., Janssen, A.J., 2012. Pathways of sulfide oxidation by haloalkaliphilic bacteria in limited-oxygen gas lift bioreactors. *Environmental science & technology* 46, 7581-7586.
- Koarashi, J., Amano, H., Andoh, M., Lida, T., Koma, T., 2001. A new method for determining HT deposition velocity and dependence of the velocity on environmental factors. *Radiation Protection Dosimetry*, 93 (3): 237-243.
- Komuro, M., Ichimasa, Y., Ichimasa, M., 2002. HT oxidation in soils in Ibaraki and isolation, identification of HT oxidizing soil bacteria. *Fusion science and technology* 41, 422-426.

- Koranda, J., Martin, J., 1973. The Movement of Tritium in Ecological Systems in" Tritium. Messenger Graphics, Phoenix Arizona.
- Korolevych, V.Y., Kim, S.B., Davis, P.A., 2014. OBT/HTO ratio in agricultural produce subject to routine atmospheric releases of tritium. *J. Environ. Radioact.* 129, 157-168.
- Korshennikov, A., Nikolskii, E.Y., Kuzmin, E., Ozawa, A., Morimoto, K., Tokanai, F., Kanungo, R., Tanihata, I., Timofeyuk, N., Golovkov, M., 2003. Experimental Evidence for the Existence of H 7 and for a Specific Structure of H e 8. *Physical review letters* 90, 082501.
- Kotzer, T, Workman, WG., 1999. Measurements of tritium (HTO, TFWT, OBT) in environmental samples at varying distances from a nuclear generating station. Report No. AECL-12029. Atomic Energy of Canada Limited, Chalk River.
- Kramer, P. J., 1969. Plant and soil water relationships: a modern synthesis. Plant and soil water relationships: a modern synthesis.
- Kramer, P.J., Boyer, J.S., 1995. Water relations of plants and soils. Academic press.
- Kull, O., 2002. Acclimation of photosynthesis in canopies: models and limitations. *Oecologia*, 133(3), 267-279.
- Lacointe, A., 2000. Carbon allocation among tree organs: A review of basic processes and representation in functional-structural tree models. *Ann. For. Sci.*, 57(5), 521-533.
- Lafarge, M., Durand, J.-L., 2013. Comment l'herbe pousse: développement végétatif, structures clonales et spatiales des graminées. Quae.
- Lang, A.R.G., Mason, S., 1960. Tritium exchange between cellulose and water: accessibility measurements and effects of cyclic drying. *Canadian Journal of Chemistry* 38, 373-387.
- LANO, Laboratoire Agronomique de Normandie. <http://www.lano.asso.fr/web/terres.html> (consultée le 28/09/2017).
- LAS, Laboratoire Analyse des Sols d'Arras. <http://institut.inra.fr/Organisation/Annuaire-des-sites/Agriculture/Agronomie/Sol/Analyse-de-terre/Laboratoire-d-analyses-des-sols-d-Arras> (consultée le 28/09/2017).
- Le Dizès, S., Maro, D., Hébert, D., Gonze, M.-A., Aulagnier, C., 2012. TOCATTA: a dynamic transfer model of ¹⁴C from the atmosphere to soil-plant systems. *Journal of environmental radioactivity* 105, 48-59.
- Le Dizès, S., Aulagnier, C., Henner, P., & Simon-Cornu, M., 2013. TOCATTA: a dynamic transfer model of ³H from the atmosphere to soil-plant systems. *Journal of environmental radioactivity*, 124, 191-204.

- Le Dizès, S., Aulagnier, C., Maro, D., Rozet, M., Vermorel, F., Hébert, D., Voiseux, C., Solier, L., Godinot, C., Fievet, B., 2017. The VATO project: Development and validation of a dynamic transfer model of tritium in grassland ecosystem. *Journal of Environmental Radioactivity* 171, 83-92.
- Le Goff P., 2013. Le tritium de l'Ecosystème à l'Homme - Etude des mécanismes et des constantes qui régissent les équilibres et différentes voies de transfert, Thèse, Université de Franche-Comté.
- Le Goff, P., Fromm, M., Vichot, L., Badot, P. M., & Guétat, P., 2014. Isotopic fractionation of tritium in biological systems. *Environment international*, 65, 116-126.
- Le Guen, B., 2008. Impact du tritium autour des centrales nucléaires EDF. *Radioprotection* 43, 467.
- Le Tacon, F., Toutain, F., 1973. Variations saisonnières et stationnelles de la teneur en éléments minéraux des feuilles de hêtre (*Fagus sylvatica*) dans l'Est de la France, *Annales des Sciences forestières*. EDP Sciences, pp. 1-29.
- Lee, J., Heuvelink, E., 2003. Simulation of leaf area development based on dry matter partitioning and specific leaf area for cut chrysanthemum. *Annals of Botany* 91, 319-327.
- Lemaire, G., Khaity, M., Onillon, B., Allirand, J.M., Chartier, M., Gosse, G., 1992. Dynamics of accumulation and partitioning of N in leaves, stems and roots of lucerne (*Medicago sativa* L.) in a dense canopy. *Annals of Botany* 70, 429-435.
- Lemaire, G., Gastal, F., 1997. N uptake and distribution in plant canopies, *Diagnosis of the nitrogen status in crops*. Springer, pp. 3-43.
- Lenz, K.E., Host, G.E., Roskoski, K., Noormets, A., Sôber, A., Karnosky, D.F., 2010. Analysis of a Farquhar-von Caemmerer-Berry leaf-level photosynthetic rate model for *Populus tremuloides* in the context of modeling and measurement limitations. *Environmental pollution* 158, 1015-1022.
- Libert, M., Sellier, R., Marty, V., Camaro, S., 2000. Development of hydrogen oxidizing bacteria using hydrogen from radiolysis or metal corrosion.
- Li-Cor, Inc. 1991. LAI-200 plant canopy analyser. Instruction manual. Li-Cor Inc., Lincoln, Nebraska, USA.
- Li-Cor, I., 1999. Using the LI-6400. Portable photosynthesis System., p. 846.
- Little, M., Wakeford, R., 2008. Systematic review of epidemiological studies of exposure to tritium. *Journal of Radiological Protection* 28, 9.
- Long, S. P., & Bernacchi, C. J., 2003. Gas exchange measurements, what can they tell us about the underlying limitations to photosynthesis? *Procedures and sources of error*. *Journal of experimental botany*, 54(392), 2393-2401.
- Loustau, D., Porté, A., Bosc, A., Sinoquet, H., Kruijt, B., 1999. Transpiration et photosynthèse du pin maritime: Approches de modélisation du niveau de l'aiguille à l'échelle du couvert. *Revue forestière française* 51, 266-280.

Maba, B., 2007. Identification des éléments nutritifs majeurs limitants et des stratégies appropriées de fertilisation sous culture de maïs dans l'Ogou-Est. Mémoire d'Ingénieur Agronome, ESA, 80 p. Université de Lomé, TOGO, Mémoire Online.

Malcolm, B., Cameron, K., Di, H., Edwards, G., Moir, J., 2014. The effect of four different pasture species compositions on nitrate leaching losses under high N loading. *Soil Use and Management* 30, 58-68.

Marin, M., Rene, F., 2000. Lyophilisation. *Techniques de l'ingénieur. Agroalimentaire 2*, F3240. 3241-F3240. 3211.

Maro D., 2012. 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, rapport ISRN/IRSN-2012/155.

Maro, D., Vermorel, F., Rozet, M., Aulagnier, C., Hébert, D., Le Dizès, S., Voiseux, C., Solier, L., Cossonnet, C., Godinot, C., 2017. The VATO project: An original methodology to study the transfer of tritium as HT and HTO in grassland ecosystem. *Journal of Environmental Radioactivity* 167, 235-248.

McFarlane, J.C., 1976. Tritium fractionation in plants. *Environ. Exp. Bot.* 16, 9-14.

measurement and transfer, in "Radiation protection no 152: Emerging Issues on Tritium and Low Energy Beta Emitters", EU scientific seminar 2007.

McFarlane, J. C., Rogers, R. D., & Bradley Jr, D. V., 1978. Environmental tritium oxidation in surface soil. *Environmental Science & Technology*, 12(5), 590-593.

Medlyn, B. E., Dreyer, E., Ellsworth, D., Forstreuter, M., Harley, P. C., Kirschbaum, M. U. F., Le Roux, X., Montpied, P., Strassmeyer, J., Walcroft, A., Wang, K., Lousteau, D., 2002. Temperature response of parameters of a biochemically based model of photosynthesis. II. A review of experimental data. *Plant, Cell & Environment*, 25(9), 1167-1179.

Melintescu, A., Galeriu, D., Takeda, H., 2007. Reassessment of tritium dose coefficients for the general public. *Radiation protection dosimetry* 127, 153-157.

Melintescu, A., & Galeriu, D., 2011. Exchange velocity approach and the role of photosynthesis for tritium transfer from atmosphere to plants. *Fusion Science and Technology*, 60(3), 1179-1182.

Melintescu, A., Galeriu, D., 2017. Uncertainty of current understanding regarding OBT formation in plants. *J. Environ. Radioact.* 167, 134-149.

Melis, A., 1998. *Photostasis in plants, Photostasis and Related Phenomena*. Springer, pp. 207-221.

Mellbye, B.L., Giguere, A., Chaplen, F., Bottomley, P.J., Sayavedra-Soto, L.A., 2016. Steady-state growth under inorganic carbon limitation conditions increases energy consumption for maintenance and enhances nitrous oxide production in *Nitrosomonas europaea*. *Applied and environmental microbiology* 82, 3310-3318.

- Meredith, L.K., Rao, D., Bosak, T., Klepac-Ceraj, V., Tada, K.R., Hansel, C.M., Ono, S., Prinn, R.G., 2014. Consumption of atmospheric hydrogen during the life cycle of soil-dwelling actinobacteria. *Environmental microbiology reports* 6, 226-238.
- Mestayer P., 2007. L'atmosphère habitée : dynamique, thermodynamique et dispersion des polluants. Cours de l'École centrale de Nantes, 225 p.
- Momoshima, N., TAJAJA, P.I., Takashima, Y., 1992. HT oxidation activity of soil irradiated with gamma radiation. *Journal of Nuclear Science and Technology* 29, 1011-1017.
- Monin, A.S., Obukhov, A.M., 1954. Basics laws of turbulent mixing in the ground layer of the atmosphere. *Akad. Nauk. SSSR, Geofiz. Inst. Trudy* 151, 163-187.
- Moses, V., & Calvin, M., 1959. Photosynthesis studies with tritiated water. *Biochimica et biophysica acta*, 33(2), 297-312.
- Murphy, C.E., 1993. Tritium transport and cycling in the environment. *Health Physics* 65, 683-697.
- NCRP, 1979. Tritium in the environment. Recommendations of the National Council on Radiation Protection and measurements. Report No 62. National Council on Radiation Protection and Measurements, Bethesda.
- Niinemets, Ü., Díaz-Espejo, A., Flexas, J., Galmés, J., Warren, C.R., 2009. Role of mesophyll diffusion conductance in constraining potential photosynthetic productivity in the field. *Journal of Experimental Botany* 60, 2249-2270.
- Nozières, M., Dulphy, J., Peyraud, J., Poncet, C., Baumont, R., 2007. La valeur azotée des fourrages. *INRA Productions Animales* 20, 109-118.
- Okada, S., Momoshima, N., 1993. Overview of tritium: characteristics, sources, and problems. *Health physics* 65, 595-609.
- Or, D., Tuller, M. et Wraith, J. M., 2004. - Soil water potential. - Dans D. Hillel (dir.), *Encyclopedia of soils in the environment* (Vol. 3, p. 270-277), New York: Elsevier/Academic Press.
- Ota, M., Yamazawa, H., Moriizumi, J., Iida, T., 2007. Measurement and modeling of oxidation rate of hydrogen isotopic gases by soil. *Journal of environmental radioactivity* 97, 103-115.
- Ota, M., Nagai, H., 2011. Development and validation of a dynamical atmosphere-vegetation-soil HTO transport and OBT formation model. *Journal of environmental radioactivity* 102, 813-823.
- Ota, M., Kwamena, N.-O.A., Mihok, S., Korolevych, V., 2017. Role of soil-to-leaf tritium transfer in controlling leaf tritium dynamics: Comparison of experimental garden and tritium-transfer model results. *Journal of Environmental Radioactivity* 178, 212-231.
- Paillard, P., Calando, J.P., Clerc, H., Gros, R., Belot, Y., 1988. Tritium release experiment in France results concerning HT/HTO conversion in the air and soil. *Fusion Science and Technology*, 14: 1226-1230.

- Panovsky, H.A., Dutton, J.A., 1984. Atmospheric turbulence. Models and methods for engineering applications. John Wiley, New York.
- Papke, H., Foerstel, H., 1991. Formation rate of nonexchangeable organically bound tritium from tritiated soil water. *Health Physics*, 60 (6): 773-779.
- Parent, A.-C., Anctil, F., 2012. Quantifying evapotranspiration of a rainfed potato crop in South-eastern Canada using eddy covariance techniques. *Agricultural water management* 113, 45-56.
- Peltola, O., Hensen, A., Helfter, C., Belelli Marchesini, L., Bosveld, F., Van Den Bulk, W., Elbers, J., Haapanala, S., Holst, J., Laurila, T., 2014. Evaluating the performance of commonly used gas analysers for methane eddy covariance flux measurements: the InGOS inter-comparison field experiment. *Biogeosciences Discussions* 11, 797-852.
- Penman, H. L., 1948. Natural evaporation from open water, bare soil and grass. In *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* (Vol. 193, No. 1032, pp. 120-145). The Royal Society.
- Perrin, J.-F., 2011. DOSAGE DE L'AZOTE TOTAL PAR MÉTHODE DE KJELDAHL. http://www.perrin33.com/polys/analytiq/tp_kjeldahl-nproteiq.pdf (consultée le 28/09/2017).
- Peterson, S. R., & Davis, P. A., 2002. Tritium doses from chronic atmospheric releases: a new approach proposed for regulatory compliance. *Health Physics*, 82(2), 213-225.
- Piché-Choquette, S., Tremblay, J., Tringe, S.G., Constant, P., 2016. H₂-saturation of high affinity H₂-oxidizing bacteria alters the ecological niche of soil microorganisms unevenly among taxonomic groups. *PeerJ* 4, e1782.
- Piel, C., 2002. Diffusion du CO₂ dans le mésophylle des plantes à métabolisme C₃. Université Paris Sud-Paris XI.
- Pinson, E.A., Anderson, E.C., 1950. The absorption, distribution, and excretion of tritium in men and animals. Los Alamos National Lab., NM (United States).
- Pointurier, F., Baglan, N., Alanic, G., Chiappini R., 2003. Determination of organically bound tritium background level in biological samples from a wide area in the south-west of France. *J. Env.Radioact.* 68, 171-189.
- Pointurier, F., Baglan, N., Alanic, G., 2004. A method for the determination of low-level organic-bound tritium activities in environmental samples. *Applied radiation and isotopes* 61, 293-298.
- Popelier, F., Liessens, J., Verstraete, W., 1985. Soil H₂-uptake in relation to soil properties and rhizobial H₂-production. *Plant and soil* 85, 85-96.
- Prairies-GNIS, web. Prairies-gnis.org (consultée le 28/09/2017).

- Protin, P., Corre-Hellou, G., Naudin, C., Trochard, R., 2009. Impact des pratiques de fertilisation sur la productivité des prairies et mélanges céréales-protéagineux et la qualité du fourrage. *Fourrages* 198, 115-130.
- Qian, T., Elings, A., Dieleman, J., Gort, G., Marcelis, L., 2012. Estimation of photosynthesis parameters for a modified Farquhar-von Caemmerer-Berry model using simultaneous estimation method and nonlinear mixed effects model. *Environmental and experimental botany* 82, 66-73.
- Quinlan, A. V., 1980. The thermal sensitivity of Michaelis-Menten kinetics as a function of substrate concentration. *Journal of the Franklin Institute*, 310 (6), 325-342.
- Raskob, W., 2002. Enhancement of accident consequence assessment model for tritium UFOTRI to include a wider variety of human foodstuffs. *Fusion science and technology*, 41(3P2), 346-350.
- Raskob W., 1995. Assessment of the environmental impact from tritium releases under normal operation conditions and after accidents. Fifth Tropical Meeting on Tritium Technology in Fission, Fusion and Isotopic Applications, Belgirate, pp. 934-939.
- Renard., H., 2014. Stage de modélisation opérationnelle de l'évapotranspiration d'un écosystème prairial et comparaison avec des mesures environnementales. Master Sciences de l'Eau et de l'Environnement. Hydrosystèmes et Bassins Versants : diagnostic et risque environnemental. Université de Tours.
- Renard, H., Maro, D., Le Dizès, S., Escobar-Gutiérrez, A., Voiseux, C., Solier, L., Hébert, D., Rozet, M., Cossonnet, C., Barillot, R., 2017. Tritium forms discrimination in ryegrass under constant tritium exposure: From seed germination to seedling autotrophy. *Journal of Environmental Radioactivity* 177, 194-205.
- Riedo, M., Grub, A., Rosset, M., & Fuhrer, J., 1998. A pasture simulation model for dry matter production, and fluxes of carbon, nitrogen, water and energy. *Ecological Modelling*, 105(2), 141-183.
- Risi, C., 2009. Les isotopes stables de l'eau: applications à l'étude du cycle de l'eau et des variations du climat, Thèse, Université Paris.
- Sampoux, J.-P., Beguier, V., Bourdon, P., Galbrun, C., Gras, M., Noël, D., Pietraszek, W., Poinard, L., Tharel, B., Durand, J.-L., 2016. Efficacité du prélèvement de l'azote et efficacité de l'eau en conditions de production fourragère chez le ray-grass anglais: recherche de critères d'évaluation de la diversité variétale. *Innovations Agronomiques* (50), 111-121.
- Schnute, J., 1981. A versatile growth model with statistically stable parameters. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.* 38, 1128-1140.
- Schuler, S., Conrad, R., 1990. Soils contain two different activities for oxidation of hydrogen. *FEMS microbiology letters* 73, 77-83.
- Schuler, S., Conrad, R., 1991. Hydrogen oxidation activities in soil as influenced by pH, temperature, moisture, and season. *Biology and fertility of soils* 12, 127-130.

SDEC, France. Tritium sampler with 4 vials (oven) - MARC 7000. <http://radioprotection.sdec-france.com/index.php?lg=en&numpage=35&numfamille=12&numgamme=2&numrub=37&numcateg=61> (consultée le 28/04/17).

Seigneur C., 2013. Cours SGE "Modelisation de la pollution atmospherique" Dispersion atmospherique. cerea.enpc.fr/fich/support_cours/SGE_M2_modelisation/SGE-Modelisation-Dispersion.pdf (consultée le 28/09/2017).

Seiler, W., Liebl, K., Stöhr, W.T., Zakosek, H., 1977. CO-und H₂-Abbau in Böden. *Journal of Plant Nutrition and Soil Science* 140, 257-272.

Sharkey, T.D., Bernacchi, C.J., Farquhar, G.D., Singaas, E.L., 2007. Fitting photosynthetic carbon dioxide response curves for C₃ leaves. *Plant, Cell & Environment* 30, 1035-1040.

Sharkey, T.D., Loreto, F., 1993. Water stress, temperature, and light effects on the capacity for isoprene emission and photosynthesis of kudzu leaves. *Oecologia* 95, 328-333.

Shen, H.-F., Liu, W., 2016. Tritium concentration in soybean plants exposed to atmospheric HTO during nighttime and daytime. *Nuclear Science and Techniques* 27, 39.

SIMON, M., 2009. La photosynthèse. <http://www.cours-pharmacie.com/biologie-vegetale/la-photosynthese.html> (consultée le 16/02/16).

Simonneau, T., Ollat, N., Pellegrino, A., Lebon, E., 2015. Contrôle de l'état hydrique dans la plante et réponses physiologiques de la vigne à la contrainte hydrique. *Progrès Agricole et Viticole* 132, 07-21.

Singer, M., Ewing, S., SUMMER, M., 2000. Handbook of soil science. Handbook of soil science.

Sinsawat, V., Leipner, J., Stamp, P., Fracheboud, Y., 2004. Effect of heat stress on the photosynthetic apparatus in maize (*Zea mays* L.) grown at control or high temperature. *Environmental and Experimental Botany* 52, 123-129.

Spencer, F. S., 1984. Tritiated water uptake kinetics in tissue-free water and organically-bound fractions of tomato plants. Ontario Hydro, Research Division.

Spencer, F. S., Dunstall, T. G., 1986. Molecular tritium conversion in vegetation, litter and soil. *Radiation Protection Dosimetry*, 16(1-2), 89-93. Johnson, I.R., 2010. PlantMod.

Spencer, F., Vereecken-Sheehan, L., 1994. HTO Concentration Relationships between Air, Soil and Vegetation and Seasonal Dependence of HT Deposition to Soil. Ontario Hydro Research Division Report A-NBP-94-36-K, COG, 94-239.

Spencer, F.S., Dunstall, T.G., 1986. Molecular tritium conversion in vegetation, litter and soil. *Radiat. Protect. Dosim.* 16 (1-2), 89-93.

Strack, S., Diabate, S., Muller, J., Raskob, W., 1995. Organically bound tritium formation and translocation in crop plants. Modelling and experimental results. *Fusion Technol.* 28, 951-956.

- Straume, T., 1993. Tritium risk assessment. *Health physics* 65, 673-682.
- Stull, R.B., 1988. *An Introduction to Boundary layer Meteorology*. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht.
- Sullivan, M.J., Gates, A.J., Appia-Ayme, C., Rowley, G., Richardson, D.J., 2013. Copper control of bacterial nitrous oxide emission and its impact on vitamin B12-dependent metabolism. *Proceedings of the National Academy of Sciences* 110, 19926-19931.
- Suzuki, N., Rivero, R.M., Shulaev, V., Blumwald, E., Mittler, R., 2014. Abiotic and biotic stress combinations. *New Phytologist* 203, 32-43.
- Sweet, C.W., Murphy, C.E., 1981. Oxidation of molecular tritium by intact soils. *Environmental Science & Technology* 15, 1485-1487.
- Tardieu, F., Simonneau, T., 1998. Variability among species of stomatal control under fluctuating soil water status and evaporative demand: modelling isohydric and anisohydric behaviours. *Journal of experimental botany*, 419-432.
- Taschner, M., Wiener, B., Bunnenberg, C., 1988. HT dispersion and deposition in soil after experimental releases of tritiated hydrogen. *Fusion Science and Technology*, 14: 1264-1269.
- Thompson, R.G., Nelsons, C., 1971. Photosynthetic assimilation and translocation of ³H- and ¹⁴C-organic compounds after ³H₂O and ¹⁴CO₂ were simultaneously offered to a primary leaf of soybean. *Canadian journal of botany* 49, 757-766.
- Thornley, J.H., 1976. *Mathematical models in plant physiology*. Academic Press (Inc.) London, Ltd.
- Thornley, J.H., Johnson, I.R., 1990. *Plant n Crop Modelling*.
- Tomás, M., Flexas, J., Copolovici, L., Galmés, J., Hallik, L., Medrano, H., Ribas-Carbó, M., Tosens, T., Vislap, V., Niinemets, Ü., 2013. Importance of leaf anatomy in determining mesophyll diffusion conductance to CO₂ across species: quantitative limitations and scaling up by models. *Journal of experimental botany* 64, 2269-2281.
- Tort, V., Lefaure, C., Linden, G., Herbelet, J., 1997. Tritium in the aquatic environment and the associated risk. *Radioprotection* 32, 501-519.
- Tracy, S.R., Black, C.R., Roberts, J.A., Mooney, S.J., 2011. Soil compaction: a review of past and present techniques for investigating effects on root growth. *Journal of the Science of Food and Agriculture* 91, 1528-1537.
- Trivedi, A., Cheng, Y., 1997. Biokinetic and dosimetry of inhaled tritiated aerosoles. P-3a-182. *International Radiation Protection Association-10 (IARP-10)*.
- Trivedi, A., Galeriu, D., Richardson, R., 1997. Dose contribution from metabolized organically bound tritium after acute tritiated water intakes in humans. *Health physics* 73, 579-586.

Ugarte Nano, C.C., 2015. Etude de la variabilité des propriétés physiques et hydrodynamiques d'un sol argileux sous l'effet de conduites en protection intégrée contre les adventices, Thèse, Université de Bourgogne.

Unscar, S., 2000. effects of Ionizing Radiation. United Nations, New York, 453-487.

USDA (U.S. Department of Agriculture), web. <https://www.usda.gov/> (consultée le 28/09/2017).

Van Bodegom, P., Stams, F., Mollema, L., Boeke, S., Leffelaar, P., 2001. Methane oxidation and the competition for oxygen in the rice rhizosphere. *Applied and environmental microbiology* 67, 3586-3597.

Verbeeck, H., Samson, R., Granier, A., Montpied, P., Lemeur, R., 2008. Multi-year model analysis of GPP in a temperate beech forest in France. *Ecological Modelling* 210, 85-103.

Villalobos, F., Orgaz, F., Mateos, L., 1995. Non-destructive measurement of leaf area in olive (*Olea europaea* L.) trees using a gap inversion method. *Agricultural and Forest Meteorology* 73, 29-42.

Von Caemmerer, S., 2000. Biochemical models of leaf photosynthesis. Csiro publishing.

Vuichard, N., 2005. Modélisation des flux de gaz à effet de serre des prairies européennes. Thèse, Université Paris 6.

VWR, Inc., web. Analyse Kjeldahl. https://be.vwr.com/store/content/externalContentPage.jsp?path=/be.vwr.com/fr_BE/food_and_beverage_kjeldahl_analysis.jsp (consultée le 28/09/2017).

Waksman, S.A., Tenney, F.G., 1927. The composition of natural organic materials and their decomposition in the soil: ii. Influence of age of plant upon the rapidity and nature of its decomposition-rye plants. *Soil Science* 24, 317-334.

Walker, R.L., Burns, I.G., Moorby, J., 2001. Responses of plant growth rate to nitrogen supply: a comparison of relative addition and N interruption treatments. *Journal of experimental botany* 52, 309-317.

Wang, Y., Wang, X., Zheng, Q., Li, C., Guo, X., 2012. A comparative study on hourly real evapotranspiration and potential evapotranspiration during different vegetation growth stages in the Zoige Wetland. *Procedia Environmental Sciences* 13, 1585-1594.

Ware, A., Allott, R., 1999. Review of methods for the analysis of total tritium and organically bound tritium. Environment Agency.

Weaver, R., Angle, S., Bottomley, P., Bezdieck, D., Smith, S., Tatatabai, A., Wollum, A., 1994. Methods of Soil Analysis. Part 2. Microbiological and Biochemical Properties (Soil Science Society of America Book, No 5) (Soil Science Society of America Book Series).

Wood, M., McElroy, R., Surette, R., Brown, R., 1993. Tritium sampling and measurement. *Health physics* 65, 610-627.

Wood, M.J., McElroy, R.G.C., Surette, R.A., Brown, R.M., 1993. Tritium sampling and measurement. *Health Physics*. 65:610-627.

Xu, L., Baldocchi, D.D., 2003. Seasonal trends in photosynthetic parameters and stomatal conductance of blue oak (*Quercus douglasii*) under prolonged summer drought and high temperature. *Tree physiology* 23, 865-877.

Yamada, Y., Itoh, M., Egawa, K., Kiriya, N., Komura, K., Ueno, K., 1992. Effect of labile hydrogens on measurement of tritium preserved in hydrogens of cellulose. *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry* 164, 47-57.

Yamazawa, H., 2001. A one-dimensional dynamical soil-atmosphere tritiated water transport model. *Environmental Modelling & Software* 16, 739-751.

Yamori, W., Hikosaka, K., Way, D.A., 2014. Temperature response of photosynthesis in C3, C4, and CAM plants: temperature acclimation and temperature adaptation. *Photosynthesis research* 119, 101-117.

ANNEXES

Annexe A. Outil Analytique

A1. Scintillation liquide

Le tritium se désintègre en émettant un rayonnement β^- , dont la faible énergie le rend difficile à détecter. Sa détection nécessite la conversion de ce rayonnement ionisant issu de la désintégration de l'atome radioactif en rayonnement lumineux détectable et quantifiable (Cassette, 2004). Le principe de la scintillation liquide consiste donc à mélanger la solution radioactive à mesurer à un solvant (le liquide scintillant) qui doit (i) pouvoir être excité suite à la désintégration de l'atome radioactif (ii) transférer l'énergie d'excitation pour (iii) exciter des solutés fluorescents et permettre ainsi la détection du nombre de désintégrations par l'intermédiaire de la lumière émise.

La lumière émise est détectée avec un photo-détecteur (Figure A.1-1), qui comporte une photocathode transparente émettant des électrons par effet photoélectrique après absorption de lumière. Ces photoélectrons sont ensuite accélérés par un champ électrique pour atteindre une succession d'électrodes, les dynodes, ou ils sont multipliés (Cassette, 2004).

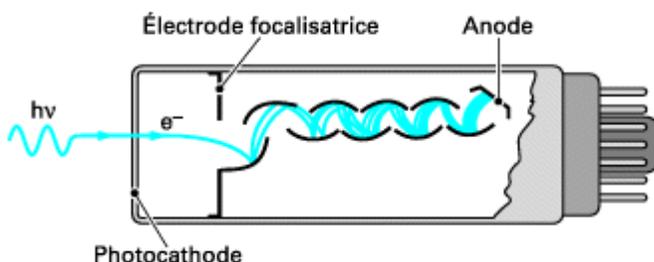


Figure A .1-1 : Schéma d'un photomultiplicateur (Cassette, 2004)

L'amplitude des signaux est proportionnelle au nombre de photoélectrons émis par la photocathode, donc au nombre de photons ayant atteint le tube photomultiplicateur (Cassette, 2004). Cependant les photomultiplicateurs sont affectés de bruit : la chambre de mesure comporte deux photo-détecteurs fonctionnant en coïncidence afin d'éliminer le bruit de fond du signal (Figure A.1-2).

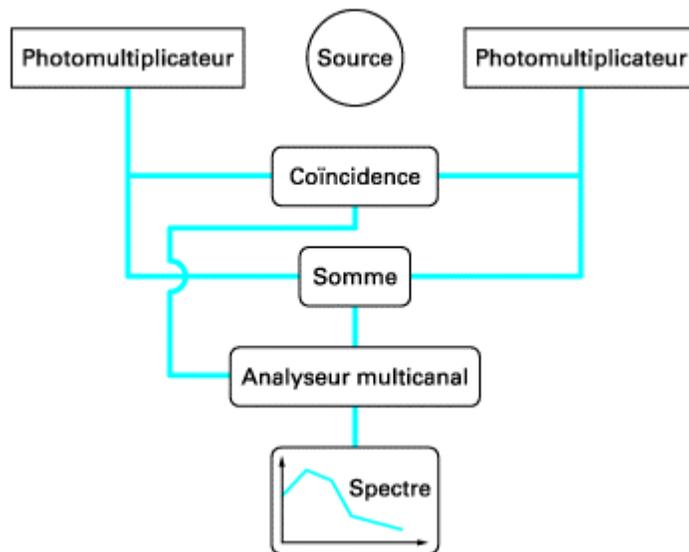


Figure A .1-2 : Schéma de principe d'un compteur à scintillation liquide (Cassette, 2004)

Annexe B. Calcul de paramètres utilisés dans TOCATTA- χ

B1. Calcul de l'évapotranspiration potentielle (ETP)

Parmi les différents modèles d'évapotranspiration existants, le modèle de Penman-Monteith est retenu (Renard, 2014) car ce dernier se base sur beaucoup de données météorologiques disponibles et précises (échelle infra-horaire). La version développée utilisée dans cette étude (Allen *et al.*, 2006) intègre la résistance aérodynamique et la résistance stomatique. Le principal avantage de cette équation réside dans sa base physique, une calibration locale n'est donc pas nécessaire (Wang *et al.*, 2012).

L'équation d'évapotranspiration d'Allen *et al.* (2006), utilisée dans cette étude, se présente comme telle :

$$ET_p = \frac{\Delta \cdot (R_n - G) + \rho_a \cdot C_p \cdot \left(\frac{e_s - e_a}{r_a} \right)}{\lambda \cdot \rho_w \cdot \left(\Delta + \gamma \cdot \left(1 + \frac{r_c}{r_a} \right) \right)}$$

Avec : ET_p l'évapotranspiration potentielle ($\text{mm} \cdot \text{s}^{-1}$), R_n les radiations nets au niveau de la surface du couvert végétal ($\text{J} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$), G le flux de chaleur au sol ($\text{J} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$), e_s la pression de vapeur saturante (kPa), e_a la pression partielle de vapeur (kPa), $e_s - e_a$ le déficit de pression de vapeur saturante (kPa), Δ la pente de la courbe pression de vapeur ($\text{kPa} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$), γ la constante psychrométrique ($\text{kPa} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$), r_s et r_a sont les résistances stomatiques et aérodynamiques ($\text{s} \cdot \text{m}^{-1}$). r_c décrit la résistance au flux de vapeur d'eau à l'échelle du couvert, calculée à partir de la conductance stomatique foliaire selon le modèle de Huntingford *et al.* (2015) tandis que r_a est la résistance au transfert de vapeur de la surface à une certaine hauteur de mesure (Riedo *et al.*, 1998). ρ_a et ρ_w sont respectivement les masses volumiques de l'air et de l'eau liquide ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$). C_p est la capacité de chaleur volumique de l'air humide ($\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot ^\circ\text{C}^{-1}$). La chaleur latente de vaporisation λ représente l'énergie thermique nécessaire pour transformer 1 kg d'eau bouillante en vapeur.

B2. Mesure de l'indice de surface foliaire

Ce programme Matlab, développé dans le cadre de cette étude, permet de calculer la surface d'un objet plat non blanc par calcul du nombre de pixel coloré de la photocopie de l'objet étudié. Le code développé est présent ci-dessous.

```
clear all
close all

chemin=('O:\SERIS\LRC\Temp\Hugo\LAI');
nom_image_blanc=('feuilleblanche.jpg');
% nom_image=('10pence.jpg');

param_noir=255; % aux couleurs à enlever
nom_image=('postit.jpg');
cd(chemin)

% Calcul pourcentage de noir d'une feuille blanche
image_blanc=imread(nom_image_blanc);
image_nb_blanc=rgb2gray(image_blanc);
taille_image_blanc=size(image_nb_blanc);
[noire_blanc,h_blanc]=find(image_nb_blanc<255);

pourcent_noir_blanc=((length(noire_blanc))/(taille_image_blanc(1,1)*(taille_image_blanc(1,2))))*100

% Calcul pourcentage de noir de l'image voulue
image=imread(nom_image);
image_nb=rgb2gray(image);
imshow(image_nb)
taille_image=size(image_nb);
[noire,h]=find(image_nb<param_noir);

pourcent_noir=((length(noire))/(taille_image(1,1)*(taille_image(1,2))))*100)-
pourcent_noir_blanc
```

B3. Traitements des données obtenues par la méthode d'Eddy Correlation

Ces routines Fortran, développées par Pierre Damay (Damay, 2010), sont utilisées pour reconstruire les données expérimentales obtenues par la méthode d'Eddy Correlation et convertir ces données en binaires.

B.3.1 Reconstruction des données expérimentales

```
! BeforeEdiReSonic.f90 version 3.0
!
! By Pierre DAMAY
!
!*****
!
! PROGRAM: BeforeEdiResonic
!
! PUR
!*****

program BeforeEdiResonic

! Variables

implicit none
character*2 secV,minuteV,heureV,secT
character*80 Repertoire, NomFichier,NomFic
character*100 ligne,ligne2
character*21 DateHeure !21 caracteres suprimés correspondants à date. le
22ème est le signe + ou - de U
character*9 temps
integer centsecVoulue,heureVoulue,minuteVoulue,secVoulue,debug,
count,countfalse
integer jour,mois, annee, ilong, i,heure,minute,sec,
sectemp,centsec,centsecdep,k,j,l,CfausseVal,CbonneVal,temp,nombre_Cnc
real*4 u,v,w,wtemp,t,c1,c2, increm, FreqVoulue,epsilon,Err,donnetemp(6),
utestmax, utestmin, vtestmax, vtestmin, wtestmax, wtestmin, ttestmax, ttestmin

! Body of BeforeEdiResonic

epsilon = 0.1

FreqVoulue = 10

!xxx> debug >1 affiche les temps mesurés par le fichier et les temps
recalés dans le fichier crée .txt
!xxx> debug = -1 affiche les valeurs abérantes dans les fichiers .txt
!xxx> debug = 0 aucune informations supplémentaires dans les fichiers .txt

debug =0

!%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%!%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
!*****
***
```

!ENTRER ICI LE NOMBRE DE VOIE D'ACQUISITION DU SONIC 0, 1 ou 2

nombre_Cnc = 2

```
!*****  
***  
!%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%  
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%  
%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%%
```

Repertoire='D:\Data-fortran\'

if (nombre_Cnc .EQ. 0) then

print*, 'ATTENTION, C1 et C2 MISES A ZERO!!'

endif

if (nombre_Cnc .EQ. 1) then

print*, 'ATTENTION, C2 MISE A ZERO!!'

endif

NomFichier=trim(Repertoire)//'sonic'

open(13, file=NomFichier, form='formatted', status='unknown')

read(13,5) ligne

count = 0

centsecdep = 100

!write(*,*) centsecdep

secT= ligne(18:19)

read(secT,4) secTemp

write(*,*) '1', sectemp

Do while (abs(Err) .LT. epsilon) !(count .LT. 10)

read(13,5) ligne

secV= ligne(18:19)

read(secv,4) secVoulue

!write(*,*) '2', secVoulue

Err = SecVoulue - SecTemp

!write(*,*) Err

centsecdep = centsecdep-10

!write (*,*) centsecdep

SecTemp = SecVoulue

count = count + 1

End do

```

        If (count .GT. 10 ) then
            centsecdep = 0
        endif

close (13)

NomFichier=trim(Repertoire)//'sonic'
open(13,file=NomFichier,form='formatted',status='unknown')

read(13,5)ligne
ilong =len(ligne)
ligne2 = ligne(len(dateheure):ilong)
do i=1,ilong
    if (ligne(i:i).eq.':') ligne(i:i)='_ '
    if (ligne(i:i).eq. '/') ligne(i:i)='_ '
    if (ligne(i:i).eq.' ') ligne(i:i)='_ '
    if (ligne(i:i).eq.'.') ligne(i:i)='_ '
enddo

    read(ligne,555)DateHeure
write(*,*) DateHeure

secV = ligne(18:19)
read(secV,4) secVoulue

minuteV = ligne(15:16)
read(minuteV,4) minuteVoulue

heureV = ligne(12:13)
read(heureV,4) heureVoulue
write(*,*) heureVoulue, minuteVoulue, secVoulue, centsecdep

do i=1,ilong
    if (ligne2(i:i).eq.',') ligne2(i:i)='.'
enddo

if (nombre_Cnc .EQ. 0) then
read(ligne2,*) u,v,w,t
                c1 = 0
                c2 = 0
endif

if (nombre_Cnc .EQ. 1) then
read(ligne2,*) u,v,w,t,c1
                c2 = 0
endif

if (nombre_Cnc .EQ. 2) then
read(ligne2,*) u,v,w,t,c1,c2

endif

donnetemp(1) = u

```

```

donnetemp(2) = v
donnetemp(3) = w
donnetemp(4) = t
donnetemp(5) = c1
donnetemp(6) = c2

close(13)

open(13,file=NomFichier,form='formatted',status='unknown')

NomFichier=trim(Repertoire)//trim(dateheure)//'TwinCnC.txt'
open(14,file=NomFichier,form='formatted',status='unknown')

NomFichier=trim(Repertoire)//'binair'//trim(dateheure)//'TwinCnC'
open(15,file=NomFichier,form='binary',status='unknown')

NomFichier=trim(Repertoire)//trim(dateheure)//'TwinCnCRapportErreur.txt'
open(16,file=NomFichier,form='formatted',status='unknown')

FreqVoulue = 10
incred = (1/FreqVoulue)*100
sec = secvoulue+1
CfausseVal = 0
CBonneVal = 0
k= 0
j=0
countfalse=0

do while (eof(13) .EQ. .FALSE.)! (j .NE. 10 )
  read(13,5) ligne
  j=j+1
! write(*,*) ligne
  do i=1, ilong
    if (ligne(i:i).eq.',') ligne(i:i)='.'
    if (ligne(i:i).eq.':') ligne(i:i)=','
    if (ligne(i:i).eq.'/') ligne(i:i)='/'
  enddo
  temps = ligne(12:23)
sectemp = sec
  !write (*,*) temps

  read(temps,6)heure,minute,sec
  !write(*,*) centsecdep
  centsecVoulue = centsecdep + (k*incred)

  !write (*,*) centsecdep
  !write (*,*) centsecVoulue

  if (centsecVoulue .GT. 99) then
    centsecVoulue = centsecVoulue - 100
    secVoulue = secVoulue + 1
  k = 0
  centsecdep =0
end if

  if (secVoulue .GT. 59) then
    secVoulue = secVoulue-60

```

```

minuteVoulue = minuteVoulue+1
end if

if (minuteVoulue .GT. 59) then
    minuteVoulue = minuteVoulue - 60
    heurevoulue = heureVoulue + 1
end if

ilong =len(trim(ligne))

ligne = ligne(len(dateheure):ilong)

centsec = centsecVoulue
If ( sec .NE. secVoulue) then
centsec = 0
End if

Err      =(heure)*360000+(minute)*6000+(sec)*100+centsec)      -
((heurevoulue)*360000+(minutevoulue)*6000+(secvoulue)*100+centsecvoulue)
!write(14,*)      Err

If(((Err >=incred/2))) then

do l=1, Err/incred
    Err =(heure)*360000+(minute)*6000+(sec)*100+centsec)      -
((heurevoulue)*360000+(minutevoulue)*6000+(secvoulue)*100+centsecvoulue)

    if (Err .LT. increm) then
Err = increm
End if

    if (debug .GT. 1) then

        write(14,*)'temps
errrrr',heure,'h',minute,'min',sec,centsec
        write(14,*)'temps      voulue',heureVoulue,'h',
minuteVoulue,'min',secVoulue, centsecVoulue
    end if

        write(14,666)heureVoulue,      minuteVoulue,secVoulue,
centsecVoulue,u,v,w,t,c1,c2
        write(15) u,v,w,t,c1,c2
        k=k+1
CfausseVal = CfausseVal + 1

        centsecVoulue = centsecVoulue+ increm

        if(centsecVoulue .GT. 99) then
            centsecVoulue = centsecVoulue - 100
            secVoulue = secVoulue+1
            k = 0
            centsecdep = 0
        end if

```

```

        if (secVoulue .GT. 59) then
            secVoulue = secVoulue-60
            minuteVoulue = minuteVoulue+1
        end if

        if (minuteVoulue .GT. 59) then
            minuteVoulue = minuteVoulue-60
            heurevoulue = heureVoulue + 1
        end if
        Err = ((heure)*360000+(minute)*6000+(sec)*100+centsec) -
((heurevoulue)*360000+(minutevoulue)*6000+(secvoulue)*100+centsecvoulue)

        if (debug .GT. 2) then
            write(14,*) 'l', l
            write(14,*) 'k1', k
            write(14,*) 'temps3', temps
            write(14,*)
((heure)*360000+(minute)*6000+(sec)*100+centsec)
            write(14,*)
((heurevoulue)*360000+(minutevoulue)*6000+(secvoulue)*100+centsecvoulue)
            write(14,*) Err
            write(14,*) 'nb val corr' , Cfausseval
        end if
    End do
End if

        Err =((heure)*360000+(minute)*6000+(sec)*100+centsec) -
((heurevoulue)*360000+(minutevoulue)*6000+(secvoulue)*100+centsecvoulue)
        !write(14,*) Err

If( (abs(Err) .LT. (incred/2)) ) then

!print*, '2', u, v, w, t, c1
        if (nombre_Cnc .EQ. 0) then
            read(ligne,*) u, v, w, t
            c1 = 0
            c2 = 0
        endif

        if (nombre_Cnc .EQ. 1) then
            read(ligne,*) u, v, w, t, c1
            c2 = 0
        endif

        if (nombre_Cnc .EQ. 2) then
            read(ligne,*) u, v, w, t, c1, c2
        endif

        !print*, 'w1', u, v, w, t, c1
        !print*, 'test', utest, vtest, wtest, ttest

```

```

        utestmax= 10
        vtestmax= 10
        wtestmax= 5
        ttestmax = 50

        utestmin= -10
        vtestmin= -10
        wtestmin= -5
        ttestmin = -10

        !print*, 'w1', u, v, w, t, c1

        if ((u .GT. utestmax ) .or. (v .GT. vtestmax) .or. (w .GT.
wtestmax) .or. (T .GT. ttestmax) .or. (u .LT. utestmin ) .or. (v .LT. vtestmin)
.or. (w .LT. wtestmin) .or. (T .LT. ttestmin)) then

            if (debug .EQ. -1) then
                write(14,*) '***** 1 *****'
                write(14,*) 'valeurs aberrantes du sonic'
                write (14,666)heureVoulue, minuteVoulue, secVoulue,
centsecVoulue, u, v, w, t, c1, c2
                write(14,*) 'Valeur Test supérieur'
                write (14,666)heureVoulue, minuteVoulue, secVoulue,
centsecVoulue, utestmax, vtestmax, wtestmax, ttestmax, c1, c2
                write(14,*) 'Valeur Test inférieur'
                write (14,666)heureVoulue, minuteVoulue, secVoulue,
centsecVoulue, utestmin, vtestmin, wtestmin, ttestmin, c1, c2
                write(14,*) '***** 2 *****'
            end if

        u = donnetemp(1)
        v = donnetemp(2)
        w = donnetemp(3)
        t = donnetemp(4)

        countfalse = countfalse + 1
        CfausseVal = CfausseVal+1
        CbonneVal = CbonneVal - 1

    endif

    donnetemp(1) = u
    donnetemp(2) = v
    donnetemp(3) = w
    donnetemp(4) = t

    !xxx> debugage affiche les temps mesurés par le fichier et les temps
recalés dans le fichier crée .txt
        if (debug .GT.1) then
            write(14,*) 'temps
echant', heure, 'h', minute, 'min', sec, centsecvoulue
write(14,*) 'temps      voulue', heureVoulue, 'h',      minuteVoulue, 'min', secVoulue,
centsecVoulue
            end if

```

```

!====> ecriture dans les fichiers créés (binaire et .txt) des valeurs
voulues
        write(14,666)heureVoulue,                minuteVoulue,secVoulue,
centsecVoulue,u,v,w,t,c1,c2
        write(15)  u,v,w,t,c1,c2
        k=k+1
        CbonneVal = CbonneVal +1

        if (debug .GT. 2 ) then
            write(14,*)'nb val bonne' , CbonneVal
            write(14,*)'nb erreur sonic' , countfalse
        end if

        donnetemp(1) = u
        donnetemp(2) = v
        donnetemp(3) = w
        donnetemp(4) = t
        donnetemp(5) = c1
        donnetemp(6) = c2

End if
    End do

        write (*,*) 'nombre de valeurs aberrantes', countfalse
        write (*,*) 'fini'
        write(*,*) ' nombre de valeurs corrigees :', CfausseVal
        write(*,*) ' nombre de valeurs Totales   :', CbonneVal+CfausseVal
        write(*,*) '          Pourcentage          d          erreur          :',
(100*CfausseVal)/(CbonneVal+CfausseVal)

        write(16,*) 'nombre de valeurs aberrantes', countfalse
        write(16,*) ' nombre de valeurs corrigees :', CfausseVal
        write(16,*) ' nombre de valeurs Totales   :', CbonneVal+CfausseVal
        write(16,*) '          Pourcentage          d          erreur          :',
(100*CfausseVal)/(CbonneVal+CfausseVal)
        close(13)
        close(14)
close(15)
close(16)

666 format(4I,6F)
6   format(4I)
555 format(A19)
5   format(A)
4   format(I)
end program BeforeEdiResonic

```

B.3.2 Conversion des données en binaire (routine Fortran).

```

! BeforeEdiReSonic.f90 version 3.0
!
! By Pierre DAMAY
!
```

```

!*****
!
! PROGRAM: BeforeEdiResonic
!
! PURPOSE: Entry point for the console application.
!
!*****

      program goodDateSonic

      ! Variables

implicit none
      character*2 secV,minuteV,heureV,secT
      character*80 Repertoire, NomFichier,NomFic
      character*110 ligne
      character*19 DateHeure
      character*2 date
      character*9 temps
      integer centsecVoulue,heureVoulue,minuteVoulue,secVoulue,debug, count,
lignelong
      integer jour,mois, annee, ilong, i,heure,minute,sec,
sectemp,centsec,centsecdep,k,j,l,CfausseVal,CbonneVal,temp
      real*4 u,v,w,wtemp,t,c1,c2, increm, FreqVoulue,epsilon,Err,donnetemp(6)

      ! Body of BeforeEdiResonic

epsilon = 0.001

      FreqVoulue = 10

      Repertoire='D:\Data-fortran\'

!===> Ouverture du fichier appelé 'sonic'
      NomFichier=trim(Repertoire)//'sonic'
      open(13,file=NomFichier,form='formatted',status='unknown')

!===> Lecture de la première ligne du fichier 'sonic'
      read(13,5)ligne

!===> écrase la première ligne en cas d'en-tête
      read(13,5)ligne

!===> Mesure de la longueur de la ligne
      ilong =len(ligne)

!===> Test enlevant les espaces inutiles entre la date est les heures
      If (ligne(11:13).eq.' ')then
          ligne(1:100) = (ligne(1:11) // ligne(14:21) //
(ligne (28:100)))
      end if

```

```

!===> Boucle mettant des underscores à la place des :,/ , et . de la ligne

do i=1,ilong

    if (ligne(i:i).eq.':') ligne(i:i)='_ '
    if (ligne(i:i).eq. '/') ligne(i:i)='_ '
    if (ligne(i:i).eq.' ') ligne(i:i)='_ '
    if (ligne(i:i).eq.'.') ligne(i:i)='_ '

enddo
!===> lecture des 19 premiers caractères de la ligne (format en 555) et
affectation à la variable DateHeure
    read(ligne,555)DateHeure
!===> affichage de DateHeure à l'écran
    !write(*,*) ligne(11:13)
    write(*,*) DateHeure

!===> fin du repérage de l'heure initial du fichier
close(13)

!===> réouverture du fichier sonic pour commencer à lire dès la première ligne
open(13,file=NomFichier,form='formatted',status='unknown')

!===> ouverture et création du fichier corrigé en .txt
NomFichier=trim(Repertoire)//trim(dateheure)//'sonic.txt'
open(14,file=NomFichier,form='formatted',status='unknown')

!===> ouverture et création du fichier corrigé du jours suivant
NomFichier=trim(Repertoire)//'1
+//dateheure(1:10)//'_00_00_00sonic.txt'
open(15,file=NomFichier,form='formatted',status='unknown')
                                                    jour

!===> écrase la première ligne en cas d'en-tête

read(13,5) ligne

!===> Boucle lisant toutes les lignes du fichier 'sonic' et qui créer un nouveau
fichier lorsqu'on change de jour
do while (eof(13) .EQ. .FALSE.)
    read(13,5) ligne

    lignelong = len(ligne)
    date = ligne(1:2)

    If (date == DateHeure(1:2) )then

        If (ligne(11:13).eq.' ')then
            ligne(1:100) = (ligne(1:11) // ligne(14:21) //
(ligne (28:100)))
        end if
        write(14,5)ligne

    else

```

```

                !If (p .LT. 11) then
                    !If (ligne(11:13).eq.' ')then
                        ! ligne(1:100) = (ligne(1:11) // ligne(14:19)
// ligne(24:27) // (ligne (28:100)))
                        !end if
                        !write(15,5) ligne(1:10)//'
00:00:00'//ligne(11:ilong)
                    !else
                    If (ligne(11:13).eq.' ')then
                        ligne(1:100) = (ligne(1:11) // ligne(14:21) //
(ligne (28:100)))
                    end if
                    write(15,5)ligne
                    !end if
                end if
            end do
            write (*,*) 'fini'
            close(13)
            close(14)
        close(15)

666 format(4I,6F)
6 format(4I)
555 format(A19)
!555 format(A24)
55 format(A8)
5 format(A)
4 format(I)
end program goodDateSonic

```

B4. Reconstruction des données de HT et HTO au niveau de la plateforme technique IRSN - La Hague (Maro *et al.*, 2017).

Comme le précise l'étude de Maro *et al.*, 2017, les concentrations atmosphériques horaires de HT et HTO peuvent être reconstruites au niveau de la plateforme expérimentale IRSN-La Hague selon les concentrations de ⁸⁵Kr et des directions de vent.

B.4.1 Calcul de la concentration atmosphérique horaire de HT

Les concentrations atmosphériques de HT (mesurées à intervalles mensuels) peuvent être déduites de ⁸⁵Kr. En effet, HT et ⁸⁵Kr sont libérés de manière concomitante et uniquement par les deux piles de décharge principales des usines UP2-800 et UP3. Ainsi, l'activité de ⁸⁵Kr qui est mesurée (en utilisant un compteur proportionnel LB111, Berthold) à intervalles horaires sur la plateforme technique est utilisée pour réduire les concentrations d'activité HT mensuelles à une heure-heure horaire.

Les concentrations atmosphériques horaires de HT sont calculées comme suit :

$$C_c(\text{HT})_{h_t} = C_m(\text{Kr})_{h_t} \times \frac{C_m(\text{HT})_m}{C_m(\text{Kr})_m}$$

Où :

- $C_c(\text{HT})_{h_t}$: concentration atmosphérique horaire HT à l'instant t ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$) ;
- $C_m(\text{Kr})_{h_t}$: concentration atmosphérique horaire mesurée de ^{85}Kr à l'instant t ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$) ;
- $C_m(\text{HT})_m$: concentration atmosphérique HT mesurée mensuellement ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$) ;
- $C_m(\text{Kr})_m$: concentration atmosphérique ^{85}Kr mesurée mensuellement ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$).

B.4.2 Calcul de la concentration atmosphérique horaire de HTO

HTO est libéré dans l'atmosphère principalement par les piles de décharge principales des usines UP2-800 et UP3 et en partie par les piles secondaires (Figure I.19), de sorte que deux ensembles d'équations différentes sont nécessaires pour déduire l'activité de HTO à un pas de temps horaire. Les concentrations atmosphériques horaires de HTO au niveau de la plateforme technique résultant des principales émissions (des piles de décharge UP2-800 et UP3) sont calculées comme suit :

$$C_c(\text{HTO}_M)_{h_t} = C_c(\text{HT})_{h_t} \times \frac{R(\text{HTO}_M)_m}{R(\text{HT})_m}$$

Où :

- $C_c(\text{HTO}_M)_{h_t}$: concentration atmosphérique HTO calculée au pas de temps horaire provenant des émissaires principaux à l'instant t ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$) ;
- $C_c(\text{HT})_{h_t}$: concentration atmosphérique HT calculée au pas de temps horaire provenant des émissaires principaux à l'instant t ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$) ;
- $R(\text{HTO}_M)_m$: émissions mensuelles de HTO depuis les usines UP2-800 et UP3 (Bq) ;
- $R(\text{HT})_m$: émissions mensuelles de HT depuis les usines UP2-800 et UP3 (Bq).

Les concentrations atmosphériques HTO horaire au niveau de la plateforme technique résultant des émissions secondaires (des piles de décharge D', STE2 et STE3, dans le même secteur angulaire prenant en compte les fluctuations de direction du vent de 20°) sont calculées comme expliqué dans les deux cas suivants :

Cas 1, si $C_c(\text{HTO}_M)_{48h} \geq C_m(\text{HTO})_{48h}$ alors :

$$C_c(\text{HTO})_{h_t} = C_c(\text{HTO}_P)_{h_t} = C_c(\text{HT})_{h_t} \times \frac{R(\text{HTO}_M)_m}{R(\text{HT})_m}$$

Où :

- $C_c(\text{HTO}_M)48h$: concentration atmosphérique moyenne sur 48 h de **HTO** calculé, provenant des émissaires principaux (Bq.m^{-3}) ;
- $C_m(\text{HTO})48h$: concentration atmosphérique moyenne sur 48 h de **HT** mesuré (Bq.m^{-3}) ;
- $C_c(\text{HTO})h_t$: concentration atmosphérique horaire de **HTO** calculé à l'instant t (Bq.m^{-3}).

Ce cas, bien que rare, peut être rencontré si le panache avait été présent au-dessus de l'herbe sur la plateforme technique alors que l'eau était recueillie en chauffant le piège à froid du condenseur H3R7000. En effet, pendant une phase d'échantillonnage d'une heure, la phase de condensation du piège à froid dure 55 minutes et la phase de récupération d'eau dure 5 minutes. Cela pourrait entraîner une perte d'informations qui est néanmoins prise en compte dans le calcul.

Cas 2, si $C_c(\text{HTO}_M)48h < C_m(\text{HTO})48h$ alors :

$$C_c(\text{HTO}_S)48h = C_m(\text{HTO})48h - C_c(\text{HTO}_M)48h$$

$$C_c(\text{HTO}_S)h_t = C_c(\text{HTO}_S)48h \times 48 \times \frac{f_{c_t}}{\sum_1^{48} f_{c_t}}$$

Où :

- $C_c(\text{HTO}_S)48h$: concentration atmosphérique calculée **HTO**, moyennée sur 48 h, provenant des émissaires secondaires (Bq.m^{-3});
- $C_c(\text{HTO}_S)h_t$: concentration atmosphérique horaire calculée de **HTO** provenant des émissaires secondaires (Bq.m^{-3});
- f_{c_t} : facteur de pondération de la concentration atmosphérique de **HTO** à un instant t, en prenant des valeurs issues d'une loi gaussienne avec une moyenne de 213° et un écart-type de 15° .

La concentration atmosphérique horaire de **HTO**, en prenant en compte l'ensemble des cheminées rejetant du tritium dans l'atmosphère, est donc :

$$C_c(\text{HTO})h_t = C_c(\text{HTO}_P)h_t + C_c(\text{HTO}_S)h_t$$

*B.4.3 Calcul de la concentration horaire de **HTO** dans l'eau de pluie*

La concentration horaire de **HTO** dans l'eau de pluie est déduite à la fois de la concentration atmosphérique de **HTO** et de l'intensité des précipitations. Le calcul prend en compte les deux paramètres lors du calcul du facteur de pondération.

$$C_c(\text{HTO}_R)h_t = C_m(\text{HTO}_R)48h \times \frac{f_{p_t}}{\sum_1^{48} f_{p_t}} \times \frac{\sum_1^n IP_t}{IP_t}$$

Où :

- $C_c(\text{HTO}_R)h_t$: concentration horaire calculée de **HTO** dans l'eau de pluie à l'instant t (Bq.L^{-1}) ;
- $C_m(\text{HTO}_R)48h$: concentration de **HTO** mesurée dans l'eau de pluie, moyennée sur 48 h (Bq.L^{-1}) ;

- fp_t : facteur de pondération de la concentration en HTO dans l'eau de pluie à un instant t, obtenu en multipliant la concentration atmosphérique horaire de HTO ($Bq.m^{-3}$) avec l'intensité de précipitation ($mm.h^{-1}$) ;
- IP_t : intensité de précipitation ($mm h^{-1}$) pour un nombre n de précipitations.

Annexe C. Données expérimentales complémentaires

C1. Appendix 1 (Renard *et al.*, 2017)

Activity values obtained for OBT in a hydroponic culture, in Bq.kg⁻¹. Experiment numbers refer to the experiments described in Table III.13, Table III.14, Table III.15 (main text).

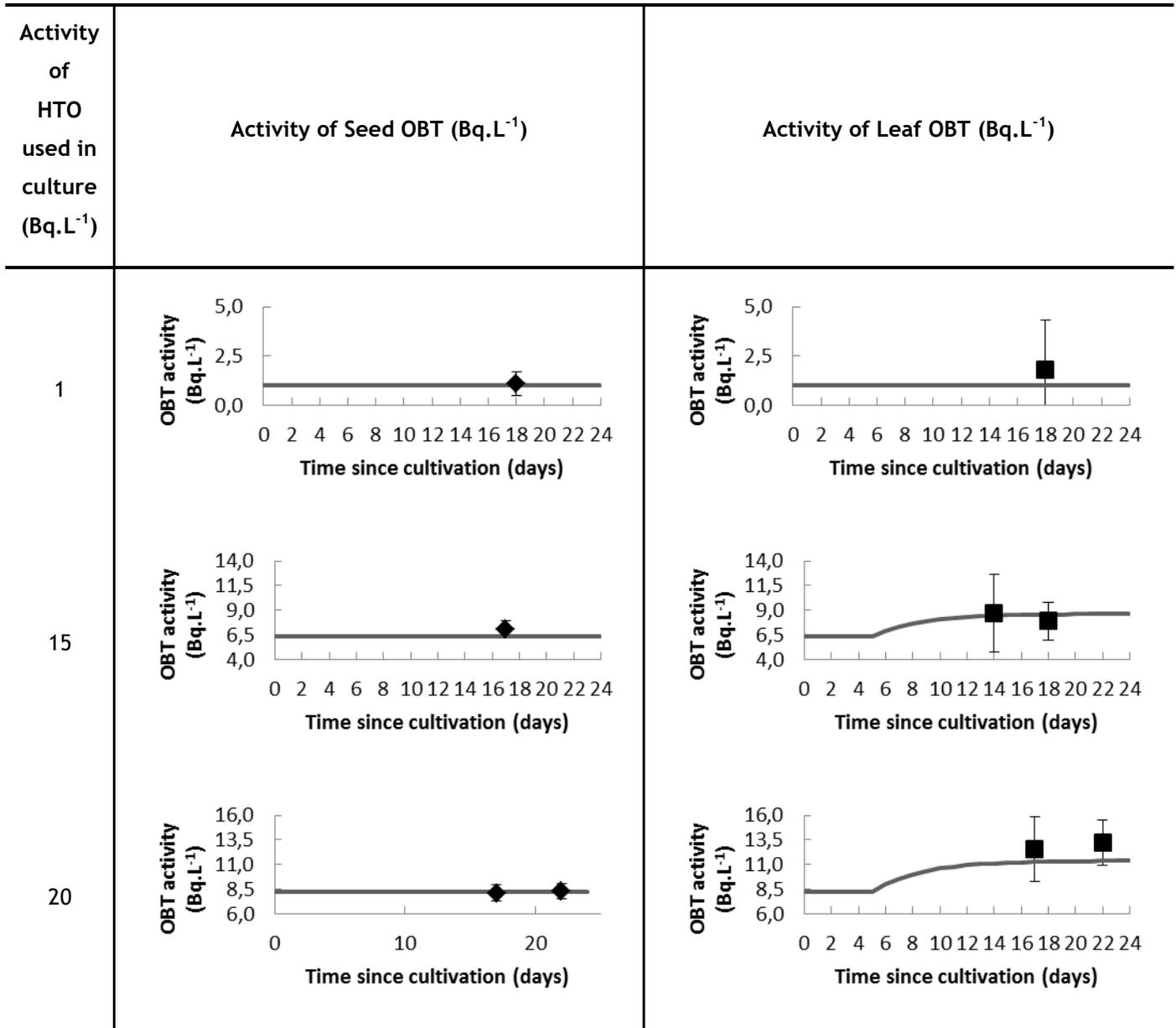
Table C.1 Activity values obtained for OBT in a hydroponic culture, in Bq.kg⁻¹. Experiment numbers refer to the experiments described in Table III.13, Table III.14 and Table III.15 (main text).

Hydroponic experiment No.	OBT measured in Leaf [Bq.kg _{DW} ⁻¹]	OBT measured in Seed [Bq.kg _{DW} ⁻¹]	OBT measured in Root [Bq.kg _{DW} ⁻¹]
1	0.8 ± 0.8	0.6 ± 0.3	<1
2	6.6 ± 1.8	4.8 ± 0.5	- ^a
3	6.2 ± 1.1	4.8 ± 0.5	5.8 ± 2.7
4	3.8 ± 0.9	3.4 ± 0.4	5.9 ± 2.7
5	3.9 ± 1.8	-	-
6	12.6 ± 1.2	10.6 ± 0.7	-

^aThe symbol "-" means that there is no data available.

C2. Appendix 2 (Renard *et al.*, 2017)

Comparison of modelled OBT activity and measured OBT activity. Each line represents OBT activity modelled for a given compartment, over a simulation period of 22 days. Each black square represents a OBT measurement, with the related measurement uncertainty, corrected for rehydration.



47

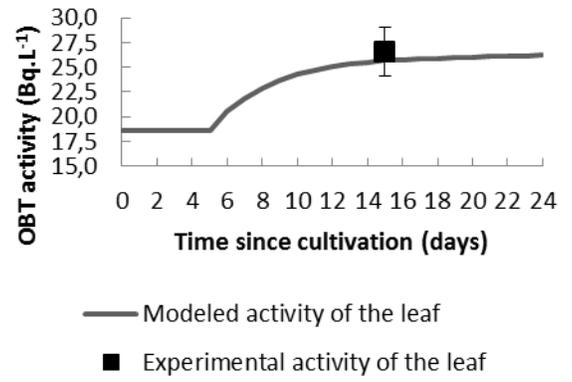
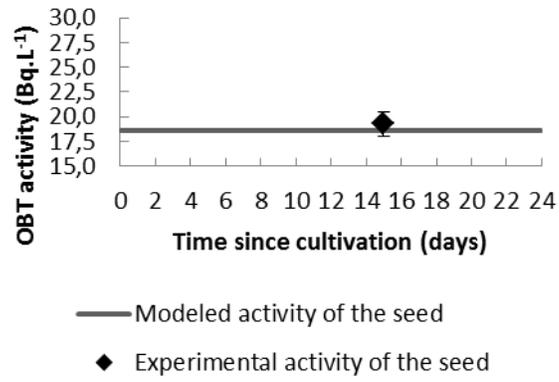


Figure C.2 Comparison of modelled OBT activity and measured OBT activity. Each line represents OBT activity modelled for a given compartment, over a simulation period of 22 days. Each black square represents a OBT measurement, with the related measurement uncertainty, corrected for rehydration.

ABSTRACT

In the context of accidental or chronic releases from nuclear installations to the environment, it is important to predict the future of radionuclides, particularly at the grassland scale, the first link in the human food chain. The IRSN and EDF are developing a simulation platform for the transfer of radionuclides in the environment, called SYMBIOSE, in order to estimate the dose received by humans. Tritium is an example of a radionuclide released into the environment by nuclear installations, whose behavior is particularly difficult to predict because of its high mobility and its biological affinity depending on the chemical form considered. The TOCATTA- χ model, implemented in the SYMBIOSE platform, is dedicated, among other things, to the transfer of tritium within a grassland ecosystem. The main objective of this thesis is to improve and evaluate the TOCATTA- χ model from experiments carried out in situ at the technical platform IRSN La Hague and in laboratory, by studying and quantifying the transfers of tritium within a grassland ecosystem, as well as the associated residual uncertainties.

RESUME

Lors des rejets accidentels ou chroniques des installations nucléaires vers l'environnement, il est important de prédire le devenir des radionucléides dans l'environnement, en particulier à l'échelle de la prairie qui constitue un des maillons de la chaîne alimentaire. L'IRSN et EDF développent une plateforme de simulation pour le transfert de radionucléides dans l'environnement, appelée SYMBIOSE, afin d'estimer la dose reçue par l'homme. Le tritium est un exemple de radionucléide rejeté dans l'environnement par les installations nucléaires, dont le comportement est particulièrement difficile à prédire en raison de sa grande mobilité et de son affinité biologique selon la forme chimique considérée. Le modèle TOCATTA- χ , mis en œuvre dans la plateforme SYMBIOSE, est dédié, entre autres, aux transferts du tritium au sein d'un écosystème prairial. L'objectif principal de la thèse est d'améliorer et d'évaluer le modèle TOCATTA- χ à partir d'expériences réalisées in situ à la plateforme technique IRSN La Hague et en laboratoire, en étudiant et en quantifiant les transferts de tritium au sein d'un écosystème prairial, ainsi que les incertitudes rémanentes associées.