

Concentration de ^{137}Cs et de ^7Be dans les aérosols en France métropolitaine et à Tahiti de 1959 à 2002

P. BOUISSET¹, E. BARKER¹, O. MASSON², R. GURRIARAN¹, X. CAGNAT¹,
D. MEKHLUCHE¹, S. AUBRY¹, M. HADJAJ³, L. SAEY²

(Manuscrit reçu le 20 mars 2003, accepté le 16 mars 2004)

RÉSUMÉ

Les longues séries temporelles d'observation de la radioactivité dans l'atmosphère (au niveau du sol) permettent d'étudier l'évolution de ce réservoir après les injections des expérimentations nucléaires militaires, de l'activité industrielle, ou suite aux accidents tel que celui de Tchernobyl (1986). Conjointement à l'observation des radionucléides d'origine artificielle, les radionucléides formés par l'interaction du rayonnement cosmique dans la haute atmosphère, comme ^7Be , sont quantifiés. La corrélation entre les composantes naturelles et artificielles permet de mieux comprendre l'évolution globale de la radioactivité dans l'atmosphère. L'observatoire de la radioactivité dans l'atmosphère de l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN) a débuté en 1959. Actuellement les aérosols sont prélevés dans 6 stations localisées en Métropole et dans 2 stations en Outre-mer (hémisphère sud). Les concentrations de ^{137}Cs dans les aérosols en 2002 sont de l'ordre de $0,4 \mu\text{Bq m}^{-3}$ en métropole et 10 fois moins à Tahiti. Les activités du ^7Be , de l'ordre de $3\,200 \mu\text{Bq m}^{-3}$, sont similaires en métropole et à Tahiti.

ABSTRACT

^{137}Cs and ^7Be concentration in aerosols samples collected in France mainland and Tahiti from 1959 to 2002.

Long chronological series of atmospheric radioactivity observatory is used for the understanding of radionuclide behavior in the atmospheric compartment. Artificial radionuclides have been introduced in the environment after nuclear weapons tests, nuclear industries and nuclear accident such as Chernobyl (1986). The artificial radionuclide storage compartment evolution could also be understood by the behavior of natural radionuclides (*i.e.* ^7Be , cosmogenic radionuclide). The Institute for Radiological Protection and Nuclear Safety (IRSN)'s atmospheric radioactivity observatory has begun in 1959. Nowadays, aerosol samples are collected on 6 stations located in the France (mainland) and 2 stations in the south hemisphere. In 2002, ^{137}Cs levels in aerosols are around $0.4 \mu\text{Bq m}^{-3}$ in France (mainland) and 10 times lower at Tahiti. For ^7Be , levels are similar whatever the station location and are around $3\,200 \mu\text{Bq m}^{-3}$.

¹ IRSN, LMRE, bâtiment 501, Bois des Rames, 91400 Orsay, France.

² IRSN, LERCM, bâtiment 153, CE-Cadarache, 13108 St-Paul-lez-Durance, France.

³ MSIS, bâtiment 501, Bois des Rames, 91400 Orsay, France.

1. Introduction

L'air constitue un vecteur important de toute pollution, qu'elle soit radioactive ou non. Un observatoire de la radioactivité dans l'atmosphère a été mis en place dès 1959 afin d'identifier et de quantifier les isotopes radioactifs libérés dans l'atmosphère lors des essais nucléaires réalisés par les grandes puissances. Près de $1,3 \times 10^{18}$ Bq de ^{137}Cs ont été ainsi libérés dans l'atmosphère depuis 1945. L'arrêt de ces essais en 1980 s'est soldé par la décroissance de l'activité atmosphérique artificielle ponctuée par des accidents nucléaires civils comme Tchernobyl (Ukraine) en 1986 ($8,5 \times 10^{16}$ Bq libéré dans l'atmosphère) ou Algisiras (Espagne) en 1998 auxquels s'ajoute en continue les rejets autorisés des installations nucléaires.

Cet observatoire atmosphérique permet de disposer aujourd'hui d'un référentiel temporel et spatial unique. L'arrêt des expérimentations nucléaires militaires dans l'atmosphère et la baisse des rejets chroniques industriels s'est traduit par une décroissance régulière au cours du temps des niveaux de radioactivité artificielle dans l'environnement. Actuellement, la quantification de ces radionucléides artificiels relève le plus souvent du domaine de la mesure des traces. Le suivi de ces activités décroissantes a conduit à optimiser à la fois les stratégies d'échantillonnage, les modalités de collecte ainsi que les techniques et méthodes de mesure pour en améliorer les seuils de détection. ^{137}Cs est le seul radionucléide d'origine artificielle que le LMRE ait réussi à quantifier systématiquement pendant plus de 40 ans d'observation en raison de sa période de décroissance radioactive de 30 ans et des quantités importantes émises dans l'atmosphère.

Les prélèvements atmosphériques permettent également de quantifier l'activité des radionucléides d'origine naturelle comme ^7Be qui peuvent servir de traceurs pour appréhender les différents échanges entre les écosystèmes. ^7Be est un radionucléide d'origine naturelle, généré dans la haute atmosphère lors de réactions de spallation entre les noyaux légers présents dans l'atmosphère, tel que l'azote et l'oxygène, et les particules chargées provenant du rayonnement cosmique primaire ou avec les particules secondaires (neutrons, muons) (Papastefanou *et al.*, 1995 ; Vecchi et Valli, 1997).

Les processus influant les variations observées pour les deux radionucléides étudiés (^{137}Cs et ^7Be) sont connus. L'objectif de cet article est de faire un état des niveaux d'activité du ^{137}Cs et ^7Be dans les aérosols en France depuis 1959.

2. Matériel et méthode

Depuis la création de cet observatoire en 1959 (Philippot, 1960), les stations de prélèvements et l'équipement de collecte des aérosols ont évolué pour optimiser la

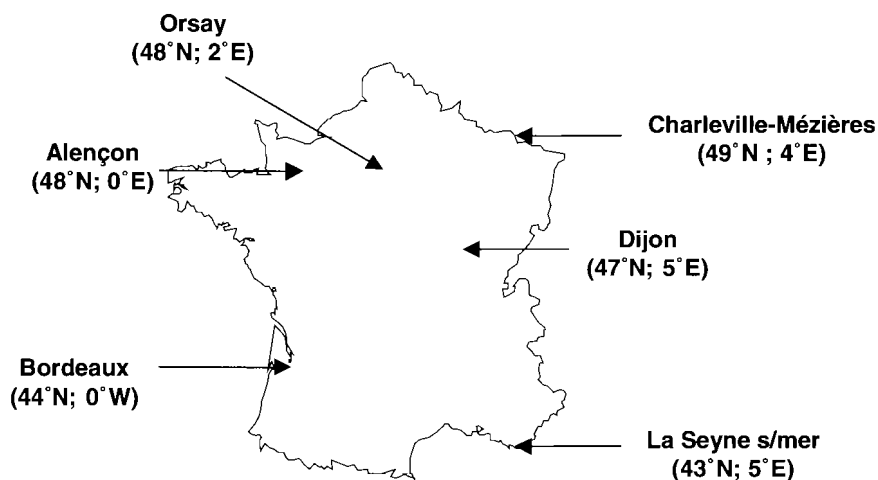


Figure 1 – Localisation des 6 stations métropolitaines de prélèvement atmosphérique de l'IRSN.
 Localization of the 6 IRSN's atmospheric sampling stations in France (mainland).

couverture spatiale du territoire (Fig. 1) et afin d'augmenter les volumes prélevés pour améliorer les limites de détection.

2.1. Instrument de collecte

L'équipement des stations est constitué d'une tête d'aspiration sur laquelle se place un filtre en polypropylène rectangulaire (48 cm × 27 cm) et d'une turbine caractérisée par un débit de $400 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ pour effectuer un prélèvement en continu. Le débit d'air et le volume filtré sont mesurés à l'aide d'un débitmètre massique étalonné placé sur la veine d'évacuation d'air. Tous les dix jours, les filtres sont conditionnés à l'aide d'une thermo-presse en vue de leur mesure par spectrométrie gamma germanium directe.

2.2. Mesure par spectrométrie gamma

Le ^{137}Cs est un émetteur bêta ($T_{1/2} = 30,07 \pm 0,03$ ans) qui peut être quantifié par spectrométrie gamma avec l'énergie de la transition à 661,7 keV de son fils $^{137\text{m}}\text{Ba}$ (rapport d'embranchement de $85,1 \pm 0,2 \%$; Firestone, 1996). ^{137}Cs est présent dans les matériaux de construction de la salle de mesure, dans les constituants du détecteur lui-même et dans sa protection de plomb. Afin d'obtenir des limites de détection compatibles avec les concentrations de ^{137}Cs présentes aujourd'hui dans les aérosols, un tri des matériaux constituant le système de détection et sa protection est indispensable (système bas bruit de fond).

La spectrométrie gamma germanium est bien adaptée aussi pour la quantification de ^7Be , caractérisée par une raie à 477,6 keV avec un rapport d'embranchement de $10,39 \pm 0,21 \%$ (Firestone, 1996), et sa concentration dans les aérosols est suffisamment élevée pour pouvoir le quantifier pendant quelques mois après le prélèvement malgré sa période radioactive de 53,3 jours.

Les spectrométries gamma pour les échantillons d'aérosols sont réalisées à l'aide de détecteurs germanium bas bruit de fond d'efficacité relative supérieure à 50 %. Les détecteurs du laboratoire de mesure de la radioactivité de l'environnement (LMRE) situé à Orsay, sont installés au deuxième sous-sol sous 3 mètres de béton boré (Bouisset et Calmet, 1997). Une ventilation des salles de mesures et une circulation d'azote gazeux permettent de réduire et de maintenir stable le taux de radon autour des têtes de détection (Kerlau *et al.*, 1999). Compte tenu de leurs faibles niveaux d'activité, les aérosols prélevés dans l'hémisphère sud sont mesurés au laboratoire souterrain de Modane. Les 1700 m de roches au-dessus du laboratoire permettent d'éliminer l'influence des rayonnements cosmiques lors des mesures (Cagnat *et al.*, 1999). Les durées d'acquisition de ces mesures sont comprises entre 2 à 5 jours.

3. Résultats

3.1. Césium 137

L'activité volumique du ^{137}Cs dans les aérosols présente, dans les 2 hémisphères depuis 1959, une succession de grandes injections liées aux expérimentations dans l'atmosphère des programmes militaires nucléaires américains, français, soviétiques et chinois. Ces variations se superposent au cycle annuel naturel des mouvements de masses d'air (Figs. 2 et 3). Corrélée à la réduction des expérimentations atmosphériques, on observe une tendance à la décroissance de la concentration de ^{137}Cs entre 1959 et 1985.

Durant les années 63-64 en métropole, les valeurs maximales mesurées dépassaient $1\ 000\ \mu\text{Bq m}^{-3}$. Cette activité a décliné d'un facteur 10 dans les années 70 pour atteindre environ $1\ \mu\text{Bq m}^{-3}$ ($10^{-6}\ \text{Bq m}^{-3}$) en 1985 (*cf.* Tab. I).

Dans l'hémisphère sud à Tahiti, il a été mesuré près de $100\ \mu\text{Bq m}^{-3}$ en 1970 et moins de $1\ \mu\text{Bq m}^{-3}$ en 1985. Cette diminution s'est poursuivie pour atteindre ces dernières années des valeurs inférieures à $0,1\ \mu\text{Bq m}^{-3}$ (*cf.* Tab. II). Ces niveaux de concentrations ne peuvent être déterminés sur ces prélèvements d'aérosols qu'avec des spectromètres germanium bas bruit équipés de *veto* cosmique ou placés en laboratoire souterrain.

CONCENTRATION DE ^{137}Cs ET DE ^7Be DANS LES AÉROSOLS

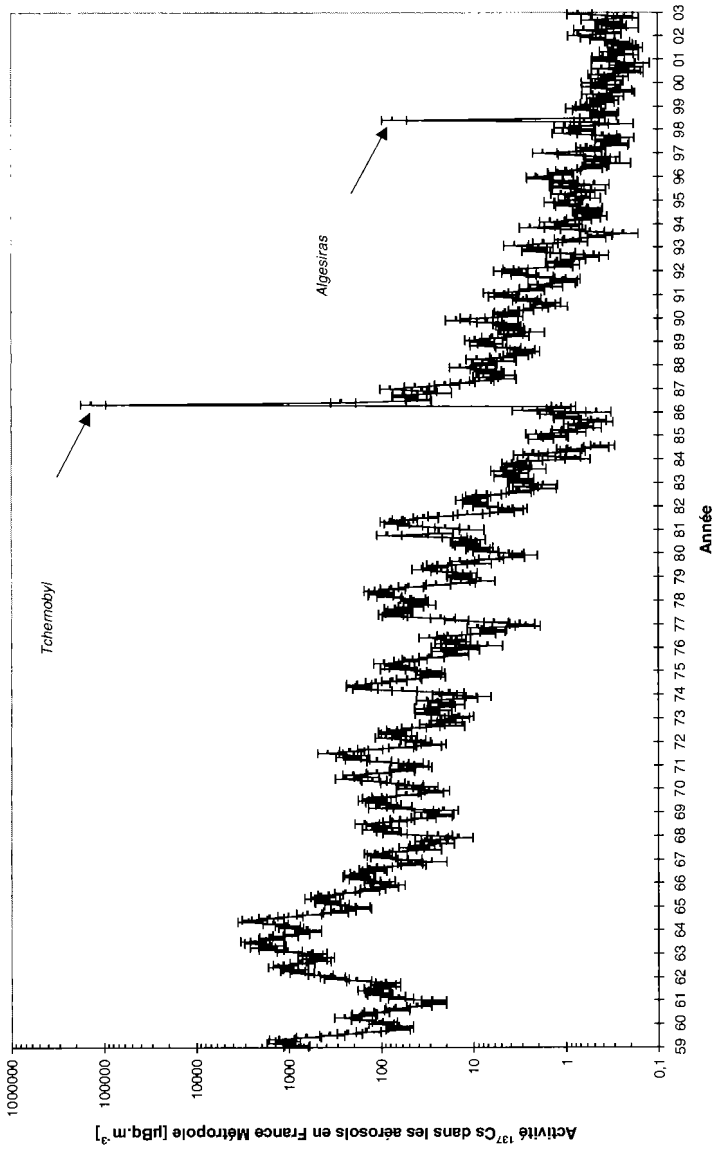


Figure 2 – Activité volumique de ^{137}Cs des aérosols collectés en métropole (01/1959 à 12/2002) (moyenne des 6 stations).
 ^{137}Cs activity in aerosols sampled in France (mainland) (01/1959 to 12/2002) (mean value of the 6 stations).

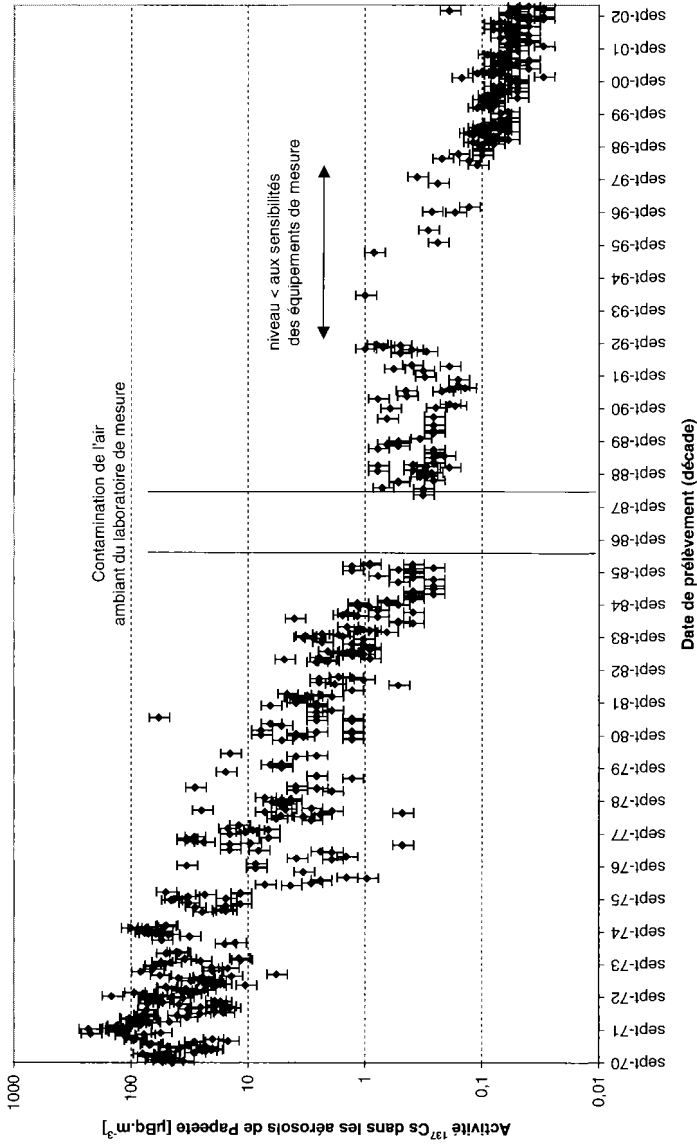


Figure 3 – Activité volumique de ^{137}Cs des aérosols collectés à Tahiti (09/1970 à 12/2002).
 ^{137}Cs activity in aerosols sampled in Tahiti (09/1970 to 12/2002).

CONCENTRATION DE ^{137}CS ET DE ^7BE DANS LES AÉROSOLS

TABLEAU I

Valeur moyenne mensuelle pour les 6 stations métropolitaines de l'activité volumique de ^{137}Cs dans les aérosols de 1959 à 2002.

^{137}Cs mean monthly activity in aerosols sampled in France (mainland) (from 1959 to 2002) (mean value of the 6 stations).

	1959	1960	1961	1962	1963	1964	1965	1966	1967	1968	1969	1970
moyenne	591	109	120	732	1467	1128	279	121	56	74	75	101
minimum	65	28	28	353	560	185	80	28	15	24	21	35
maximum	1350	250	320	1300	2584	2750	520	200	117	149	137	240
	1971	1972	1973	1974	1975	1976	1977	1978	1979	1980	1981	1982
moyenne	140	50	23	79	44	14	45	58	16	19	31	6,6
minimum	29	18	9	18	12	2,7	3,1	8	2,9	4,1	3,7	1,8
maximum	375	90	34	185	92	30	82	116	36	85	79	12
	1983	1984	1985	1986	1987	1988	1989	1990	1991	1992	1993	1994
moyenne	3,6	1,3	1,0	11358	18	6	6	3,8	2,7	1,8	1,4	0,9
minimum	2,3	0,42	0,44	0,47	4,9	2,7	2,4	1,4	0,9	0,5	0,4	0,55
maximum	5,0	2,8	2,1	135769	79	9	15	10,2	6,0	4,8	3,8	1,5
	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002				
moyenne	1,0	0,8	0,63	6,7	0,42	0,33	0,30	0,36				
minimum	0,51	0,30	0,26	0,25	0,25	0,18	0,16	0,14				
maximum	2,08	2,1	1,90	73,9	0,59	0,52	0,52	0,68				

TABLEAU II

Valeur moyenne décadaire pour Tahiti de l'activité volumique de ^{137}Cs dans les aérosols de 1971 à 2002 (les valeurs en limite de détection n'ont pas été prises en compte dans les calculs).

^{137}Cs mean decade activity in aerosols sampled in Tahiti (from 1971 to 2002) (detection limit values are not taking account in mean, min and max determination).

	1971	1972	1973	1974	1975	1976	1977	1978	1979	1980	1981	1982
moyenne	82,1	49,4	31,0	54,8	24,6	6,1	14,4	5,2	6,9	4,4	6,1	1,76
minimum	14,8	14,4	5,7	12,9	11,6	0,96	0,48	0,48	1,29	1,29	1,29	0,52
maximum	231,1	146,9	82,3	100,5	50,4	33,5	33,5	24,9	28,4	14,2	58,2	2,59
	1983	1984	1985	1986	1987	1988	1989	1990	1991	1992	1993	1994
moyenne	1,69	0,93	0,52			0,42	0,38	0,38	0,29	0,56		
minimum	0,65	0,39	0,26			0,19	0,21	0,17	0,14	0,30		
maximum	4,91	4,00	1,29			0,78	0,78	0,78	0,57	1,00		
	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002				
moyenne	0,54	0,22	0,30	0,11	0,09	0,07	0,06	0,06				
minimum	0,24	0,13	0,24	0,06	0,06	0,03	0,03	0,03				
maximum	0,84	0,29	0,36	0,22	0,13	0,15	0,09	0,19				

Par contre en 1986 dans l'hémisphère nord, une augmentation brutale de ^{137}Cs apparaît suite à l'accident de Tchernobyl survenu le 26 avril 1986, suivie d'une rapide diminution. On retrouve en métropole en 1994 les niveaux observés avant l'accident de Tchernobyl. Dans une moindre mesure, en juin 1998, l'incinération d'une source de ^{137}Cs dans une aciérie à Algésiras (Espagne) a entraîné une augmentation très sensible des niveaux de ^{137}Cs (Barker et Bouisset, 2001), mais quelques jours ont suffi pour retrouver les valeurs observées avant l'incident et aucun marquage dans les bioindicateurs terrestres et marins n'a pu être mis en évidence (Calmet *et al.*, 1999). Ponctué par ces 2 événements, la baisse de l'activité de ^{137}Cs dans les aérosols s'est poursuivie et les valeurs mesurées en métropole en 2002 sont inférieures à $1 \mu\text{Bq m}^{-3}$.

Pendant plusieurs mois après l'accident de Tchernobyl, la contamination résiduelle du laboratoire de mesure situé à Orsay ne permettait plus de quantifier le ^{137}Cs dans les échantillons de Tahiti (*cf.* Fig. 3). Dans le cas des aérosols par exemple, la concentration de ce radionucléide a en effet augmenté jusqu'à 1 million de fois dans l'air de l'hémisphère nord après l'accident et les échantillons provenant de l'hémisphère sud s'en trouvaient immédiatement contaminés en arrivant dans les laboratoires de métropole.

3.2. Béryllium 7

L'évolution de l'activité volumique du ^7Be dans les aérosols présente, dans les 2 hémisphères depuis 1969, une succession de maxima et de minima, avec la présence de fluctuations de grandes périodes (Figs. 4 et 5). Une analyse chronologique des données met en évidence l'existence de 2 cycles, l'un correspondant à une période de 1 an et l'autre de 11 ans. Des résultats similaires sont relevés dans la littérature (Koch et Mann, 1996), l'amplitude de variation du cycle annuel, facteur 2 à 3, étant le plus important.

Les activités volumiques de ^7Be (valeur moyenne de $3\,240 \pm 1\,450 \mu\text{Bq m}^{-3}$), pour la période observée, dans les aérosols en France métropolitaine sont similaires à celles mesurées dans d'autres pays européens comme en Grèce (Papastefanou *et al.*, 1995), en Italie (Cannizzaro *et al.*, 1995) ou en Espagne (Baeza *et al.*, 1996) et très proches aussi de la valeur moyenne ($3\,090 \pm 1\,210 \mu\text{Bq m}^{-3}$) observée à la station de Tahiti (Fig. 5).

4. Discussion

Du début des années 1960 à avril 1986, la vitesse de décroissance de la concentration de ^{137}Cs dans les aérosols est similaire entre deux injections liées aux expérimentations nucléaires militaires. La période effective de décroissance

CONCENTRATION DE ^{137}CS ET DE ^7BE DANS LES AÉROSOLS

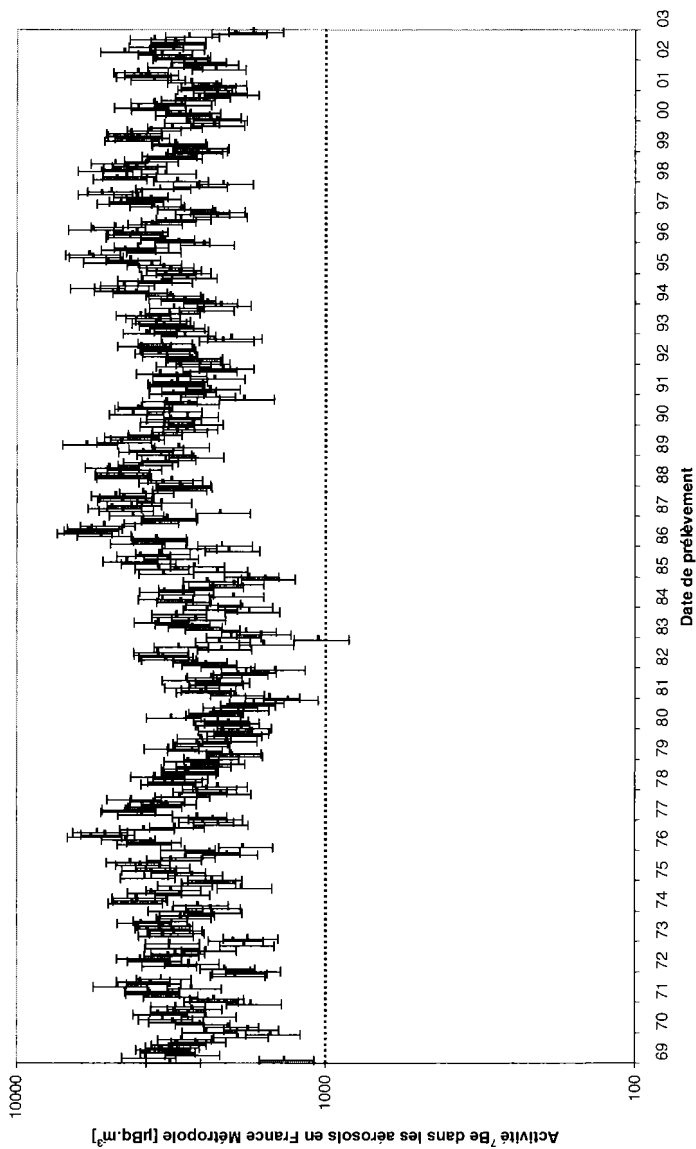


Figure 4 – Activité volumique de ^7Be des aérosols collectés en métropole (01/1969 à 12/2002) (moyenne des 6 stations).
 ^7Be activity in aerosols sampled in France (mainland) (01/1969 to 12/2002) (mean value of the 6 stations).

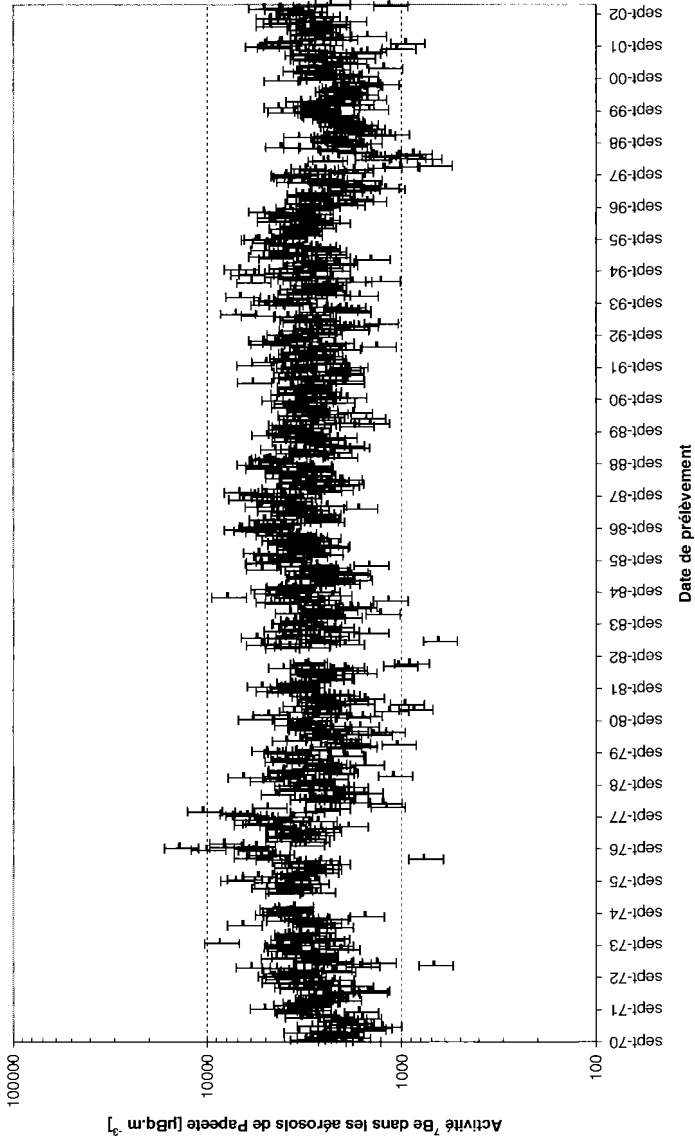


Figure 5 – Activité volumique de ⁷Be des aérosols collectés à Tahiti (09/1970 à 12/2002).
⁷Be activity in aerosols sampled in Tahiti (09/1970 to 12/2002).

de ^{137}Cs dans l'atmosphère est alors de 1 an alors que la période radioactive est de 30 ans. Avant l'accident de Tchernobyl, les niveaux d'activité de ^{137}Cs dans les aérosols sont à leur valeur la plus basse depuis l'existence de cet observatoire.

En mai 1986, l'accident de Tchernobyl s'accompagne d'une contamination très intense et très brève de la troposphère de l'hémisphère nord. De mai 1986 à 1987, la période effective de décroissance du ^{137}Cs dans l'atmosphère est de 8 à 10 jours. Depuis 1987, quelques mois seulement après l'accident, la période effective est passée à 3 ans.

L'évolution des concentrations du ^{137}Cs et du ^7Be dans les aérosols atmosphériques, avec des maxima et des minima en phases (Fig. 6) jusqu'en 1984 et l'année suivant l'accident de Tchernobyl, met en évidence un réservoir atmosphérique pour le radionucléide artificiel comme pour le radionucléide cosmogénique. Ce réservoir a été alimenté en radionucléides artificiels par les expérimentations nucléaires atmosphériques et par l'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl.

Par contre, les 2 années précédant cet accident, et depuis 1987 jusqu'à nos jours (Fig. 7), le césium radioactif observé dans les aérosols ne provient plus du réservoir atmosphérique mais vient du sol par un effet de remise en suspension des particules déposées (Hötzl *et al.*, 1992) : les concentrations maximales et minimales du ^{137}Cs sont en opposition de phases avec celles du ^7Be liées aux variations saisonnières. Le réservoir tellurique est une source secondaire qui était masquée dans le passé par les apports importants en provenance du réservoir atmosphérique et qui est devenue la source principale maintenant de la contamination atmosphérique en ^{137}Cs au niveau du sol.

Les fluctuations annuelles du ^7Be dans l'atmosphère présentent des variations saisonnières, maximum au printemps/été et minimum durant la période hivernale pour la métropole. L'activité maximale observée durant la période estivale s'explique par des échanges de masses d'air plus importants entre la stratosphère et la troposphère durant cette saison. Dans le cas de Tahiti, on observe des maxima en août-septembre, qui correspondent aux masses déplacées par les *jet-stream* (Wallbrink et Murray, 1994). L'arrivée d'air stratosphérique dans la couche troposphérique dans l'hémisphère nord (connue aux latitudes moyennes comme un processus rapide au printemps) permet le transfert de ^7Be du réservoir stratosphérique vers le réservoir troposphérique. En effet, le réchauffement de la surface terrestre entraîne une remontée de l'air chaud remplacé par de l'air frais provenant du niveau supérieur de la troposphère. Cette circulation d'air entraîne une augmentation de la concentration du ^7Be au niveau du sol (Feely *et al.*, 1989). La concentration maximale est ainsi obtenue vers le mois de mai dans l'hémisphère nord et vers le mois de septembre dans l'hémisphère sud. À ce

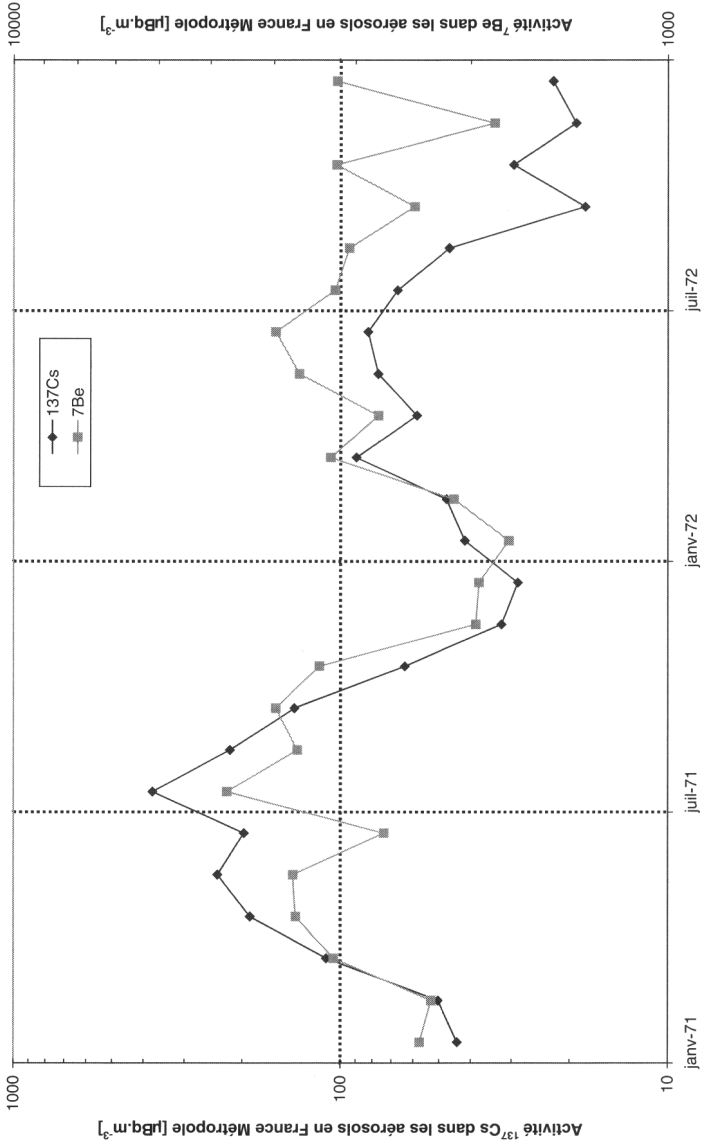


Figure 6 – Évolution en phase des activités volumiques de ^{137}Cs et ^7Be des aérosols collectés en métropole (01/1971 à 12/1972) (moyenne des 6 stations).
 Correlated evolution of ^{137}Cs and ^7Be activity in aerosols sampled in France (mainland) (01/1971 to 12/1972) (mean value of the 6 stations).

CONCENTRATION DE ^{137}Cs ET DE ^7Be DANS LES AÉROSOLS

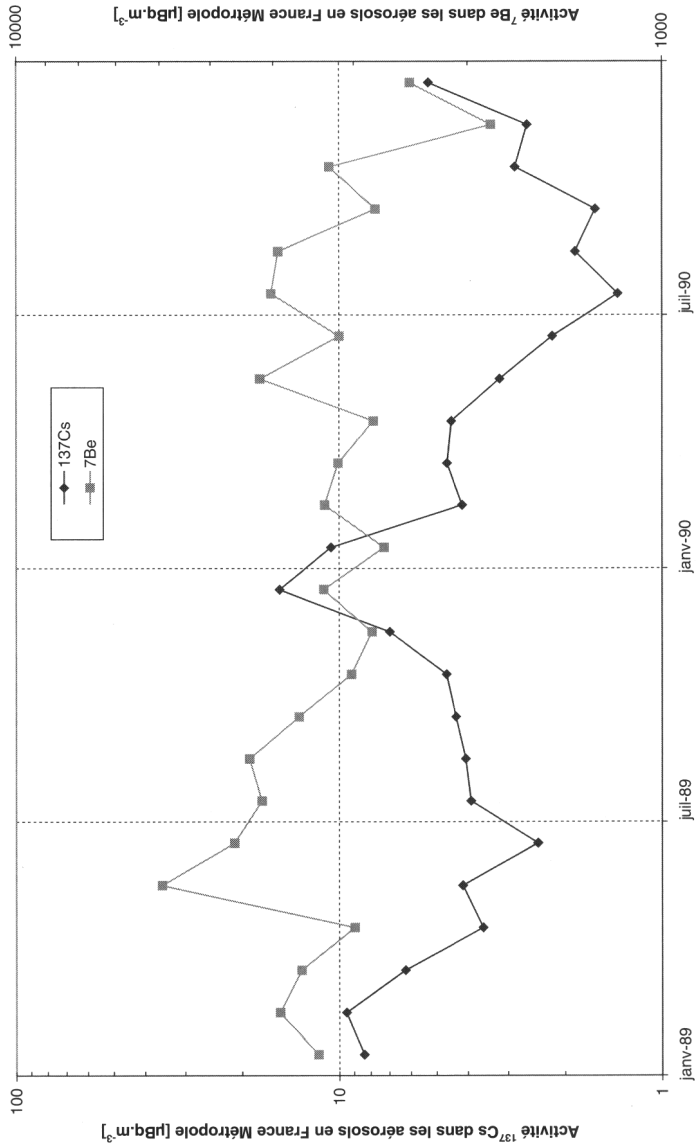


Figure 7 – Évolution en opposition de phase des activités volumiques de ^{137}Cs et ^7Be des aérosols collectés en métropole (01/1989 à 12/1990) (moyenne des 6 stations).

Anti-correlated evolution of ^{137}Cs and ^7Be activity in aerosols sampled in France (mainland) (01/1989 to 12/1990) (mean value of the 6 stations).

phénomène de transfert des masses d'air, s'ajoute le phénomène physique de la décroissance radioactive rapide (53 jours) de ^7Be . Il en résulte une diminution de la concentration de ^7Be dans les aérosols vers la fin de l'année.

L'évolution temporelle de l'activité volumique du ^7Be dans les aérosols est également régie par un cycle de 11 ans lié à l'activité solaire. Lors des fortes activités solaires, où la Terre est davantage protégée par les vents solaires qui réduisent le flux des rayonnements primaires cosmiques galactiques dans la stratosphère (Cannizzaro *et al.*, 1995), les concentrations de ^7Be sont à leur valeur la plus basse.

5. Conclusion

Les niveaux du ^{137}Cs en France métropolitaine ont diminué depuis 1959, avec une valeur de l'ordre de $600 \mu\text{Bq m}^{-3}$, pour atteindre un niveau de l'ordre de $0,4 \mu\text{Bq m}^{-3}$ en 2002.

À Tahiti, l'activité de ^{137}Cs a continuellement diminué depuis 1970, pour atteindre en 2002 une concentration de l'ordre de $0,05 \mu\text{Bq m}^{-3}$, nécessitant des moyens de mesure très performants (installation très bas bruit de fond en laboratoire souterrain) (Cagnat *et al.*, 1999).

L'observation de la concentration atmosphérique des radionucléides artificiels et naturels permet de suivre l'impact des injections artificielles dans l'atmosphère (expérimentations nucléaires militaires, accidents ou rejets autorisés). L'observation de ces données en séries chronologiques permet de préciser l'évolution relative des réservoirs atmosphérique et tellurique.

La détermination de l'activité des radionucléides dans les aérosols est fondamentale pour calculer les transferts aux autres compartiments de la biosphère puisqu'ils sont les principaux vecteurs de cette contamination.

RÉFÉRENCE

- Baeza A., Del Río L.M., Jiménez A., Miró C., Paniagua J.M., Rufo M. (1996) Analysis of the temporal evolution of atmospheric ^7Be as a vector of the behavior of other radionuclides in the atmosphere, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **207**, 331-344.
- Barker E., Bouisset P. (2001) Évolution de la radioactivité en France Métropole et en Outre-mer dans les aérosols et les retombées depuis la mise en place de l'observatoire atmosphérique de l'IPSN, Rapport DPRE / SERNAT / 2001-27.
- Bouisset P., Calmet D. (1997) *Hyper Pure Gamma-Ray Spectrometry Applied to Low-Level Environmental Sample Measurements*, in Geel, Belgium, Proceedings Esarda, Report EUR17312, 73-81.

CONCENTRATION DE ^{137}CS ET DE ^7BE DANS LES AÉROSOLS

- Cagnat X., Kerlau G., Barker E., Bouisset P., Calmet D. (1999) *Mesure directe du krypton 85 de l'air en spectrométrie gamma en laboratoire souterrain*, Proceeding 'Journées techniques de la CETAMA : Mesures et Analyses dans les matrices environnementales et biologiques', Cadarache, 14-15 sept. 1999, pp. 419-431.
- Calmet D., Barker E., Melquiond J.P., Cedrola P., Bouisset P., Masson O., Arnaud M., Thebault H., Charmasson S. (1999) *Assessment of Algeciras fall-out distribution over the southern part of France*, Marine pollution proceeding, IAEA – TECDOC – 1094 650-651.
- Cannizzaro F., Greco G., Raneli M., Spitale M.C., Tomarchio E. (1995) Behaviour of ^7Be air concentration observed during a period of 13 years and comparison with sun activity, *Nucl. Geophys.* **9**, 597-607.
- Feely H.W., Larsen R.J., Sanderson C.G. (1989) Factors that cause seasonal variations in beryllium-7 concentrations in surface air, *J. Environ. Radioact.* **9**, 223-249.
- Firestone R.B. (1996) *Table of Isotopes*. Eighth Edition, Virginia S. Shirley Editor.
- Hötzl H., Rosner G., Winkler R. (1992) Sources of present Chernobyl-derived caesium concentrations in surface air and deposition samples, *Sci. Tot. Environm.* **119**, 231-242.
- Kerlau G., Cagnat X., Bouisset P., Barker E., Calmet D. (1999) *Amélioration des mouvements propres des chaînes de spectrométrie gamma pour la mesure d'échantillons de l'environnement*, Proceeding 'Journées techniques de la CETAMA : Mesures et Analyses dans les matrices environnementales et biologiques', Cadarache, 14-15 sept. 1999, pp. 397-403.
- Koch D.M., Mann M.E. (1996) Spatial and temporal variability of ^7Be surface concentrations, *Tellus B* **48**, 387-396.
- Papastefanou C., Ioannidou A., Stoulos S., Manolopoulou M. (1995) Atmospheric deposition of cosmogenic ^7Be et ^{137}Cs from fallout of the Chernobyl accident, *Sci. Tot. Environm.* **170**, 151-156.
- Philippot J.-Cl. (1960) Mesures journalières de la radioactivité naturelle et artificielle dans l'air en 1959, Rapport CEA N° 1519, 27p.
- Vecchi R., Valli G. (1997) ^7Be in surface air: a natural atmospheric tracer, *J. Aerosol Sci.* **28**, 895-900.
- Wallbrink P.J., Murray A.S. (1994) Fallout of ^7Be in South Eastern Australia, *J. Environ. Radioact.* **25**, 213-228.