



**HAL**  
open science

## Outils de modélisation de la chimie de l'atmosphère : Etude de l'accident de Fukushima Daiichi

Valérie Fevre-Nollet, Patrick Lebègue, Florent Louis, Sonia Taamalli

### ► To cite this version:

Valérie Fevre-Nollet, Patrick Lebègue, Florent Louis, Sonia Taamalli. Outils de modélisation de la chimie de l'atmosphère : Etude de l'accident de Fukushima Daiichi. CNRIUT 2023 Saint Pierre - La Réunion, IUT de Saint Pierre, Jun 2023, Saint Pierre (La Réunion), La Réunion. hal-04326696

**HAL Id: hal-04326696**

**<https://hal.science/hal-04326696v1>**

Submitted on 6 Dec 2023

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

---

## Outils de modélisation de la chimie de l'atmosphère : Etude de l'accident de Fukushima Daiichi

---

Valérie Fèvre-Nollet<sup>1</sup>      Patrick Lebègue<sup>1</sup>  
valerie.fevre-nollet@univ-lille.fr    patrick.lebegue@univ-lille.fr

<sup>1</sup> IUT, Université de Lille  
Physicochimie des processus de combustion et de l'atmosphère, UMR 8522

Florent Louis<sup>2</sup>    Sonia Taamalli<sup>2</sup>

<sup>2</sup> Université de Lille  
Physicochimie des processus de combustion et de l'atmosphère, UMR 8522

**Thèmes** – Chimie - Environnement - Informatique

**Résumé** – *La chimie de l'atmosphère est un champ de recherche pluridisciplinaire qui comprend, entre autres, des spécialistes en chimie, physique, modélisation informatique, météorologie et sciences environnementales. Afin de synthétiser l'ensemble de leurs connaissances, des modèles sont développés et appliqués à l'étude de phénomènes d'actualité tels que le changement climatique, la pollution atmosphérique ou les incidents et accidents industriels. Nous allons présenter dans ce papier un exemple d'utilisation de 3 types de modèles, rarement mis en relation : un modèle de chimie théorique, un modèle de réactivité chimique 0D et un modèle de chimie-transport 3D. Ils sont conjointement appliqués à l'étude de l'accident de la centrale nucléaire de Fukushima Daiichi.*

**Mots-Clés** – Chimie, atmosphère, modélisation

## 1 Introduction

Quand on aborde le sujet des phénomènes atmosphériques, on pense d'abord au dérèglement climatique et aux perturbations météorologiques associées. Mais il existe à plus petite échelle des modifications de l'atmosphère qui ont un impact direct sur la santé humaine. Ainsi, il est démontré que la pollution atmosphérique, provenant principalement des émissions industrielles et des transports, augmente la mortalité due aux maladies cardiovasculaires. L'exposition aux épandages de produits phytosanitaires induit aussi des risques sur la santé (cancer, infertilité, déficit immunitaire...) et l'environnement. On peut citer également les accidents industriels, phénomènes ponctuels et assez rares, ayant de très fortes retombées sur les populations avoisinantes (AZF-2001, Fukushima-2011). Depuis 1950, de nombreux groupes de recherche ont développé des modèles physico-chimiques permettant de simuler, prédire et élaborer des stratégies pour limiter l'évolution de ces phénomènes à petite et grande échelles. C'est dans ce cadre que se déroulent nos recherches.

## 2 Présentation des modèles

En tant que chimistes, nous nous intéressons principalement à la réactivité des polluants dans l'atmosphère. Nous utilisons pour ce faire 3 types de modélisation bien distinctes, rarement mises en relation comme c'est le cas dans nos travaux (Figure1).

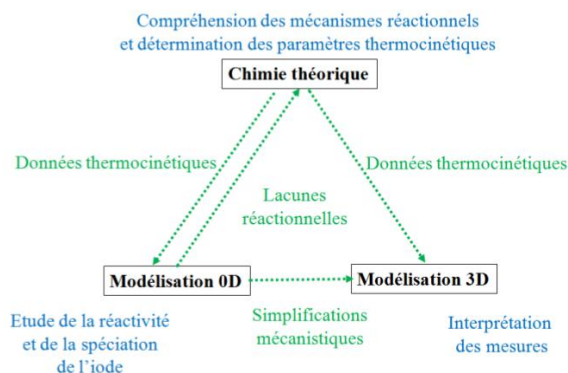


Figure 1 – Complémentarité des modélisations

La chimie théorique, basée sur une étude fondamentale, a pour objectif de modéliser le comportement des électrons dans une molécule et de déterminer les paramètres structuraux et énergétiques des espèces chimiques intervenant dans une réaction. Les logiciels utilisés sont Molden, Gaussian, Molpro, GPOP et Polyrate.

Le deuxième modèle, 0D, est unidimensionnel : il décrit la réactivité d'un ensemble d'espèces chimiques inscrites

dans un mécanisme par la résolution du système d'équations différentielles par rapport à la seule variable temps, sans variation dans l'espace. Il est rapide d'exécution et permet de déterminer les réactions et spéciations prépondérantes en s'affranchissant de la dispersion atmosphérique. Le modèle utilisé ici est le modèle ASTEC ( Accident Source Term Evaluation Code) de l'IRSN.

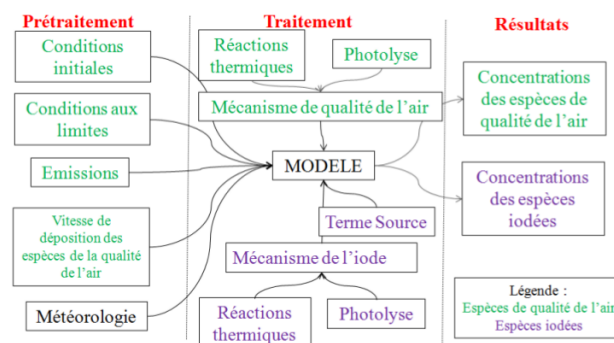


Figure 2 – Etapes d'un modèle 3D

Notre troisième modèle, Polair3D, est un modèle de chimie-transport déterministe eulérien. Il calcule l'évolution spatio-temporelle de plusieurs centaines d'espèces chimiques sur un domaine choisi et constitué de mailles fixes. Ce type de modèle est le plus représentatif de la réalité car il prend en compte la météorologie, les processus de dispersion, les dépôts secs ou humides, les conditions aux limites et un mécanisme chimique très complet (Figure 2). Tout comme les modèles de chimie théorique, il nécessite des moyens de calcul performants (clusters) et un espace de stockage conséquent. Il demande également un soutien informatique important, notamment pour le développement de modèles d'émission et le traitement des bases de données.

## 3 Modélisation de l'accident de Fukushima

Lors d'un accident sur une centrale nucléaire, il est nécessaire d'évaluer très tôt la quantité de produits de fission rejetés et leur dispersion. L'utilisation de modèles permet ainsi de prendre des mesures rapides de mise en sécurité des populations exposées. Lors de la catastrophe de Fukushima Daiichi, le 11 mars 2011, les concentrations des principaux radionucléides déposés (Césium 137 et Iode 131) ont été comparées aux résultats simulés avec le modèle 3D du centre technique de crise de l'IRSN. Pour l'iode 131, isotope de l'iode naturel et l'un des produits de fission les plus cancérigènes (cancer de la thyroïde), les résultats de simulations expriment des quantités inférieures aux mesures réalisées sur Tokyo. Nous supposons que cela provient du fait que le modèle ne tient pas compte de la réactivité chimique de l'iode avec son environnement.

Afin de simuler au plus proche l'accident de

Fukushima, nous développons donc dans un premier temps un mécanisme chimique complet de l'iode gazeux : il intègre toutes les connaissances thermocinétiques et réactions déterminées par chimie théorique publiées à ce jour. Ce mécanisme est ensuite analysé par modélisation 0D et 3D afin de déterminer l'impact de divers paramètres de la qualité de l'air sur l'iode.

## 4 Résultats

Dans ce type de mécanisme, compte tenu du manque de données dans les publications, il est courant de faire des analogies entre éléments d'une même famille. Nous avons démontré par calcul de chimie théorique que cela ne peut pas être appliqué à l'iode par la détermination des paramètres thermo cinétique de la réaction  $X + H_2O_2 =$  produits, avec  $X = Br$  ou  $I$ , Fortin C. [1]

La mise en œuvre du mécanisme 0D a permis de mettre au jour une forte réactivité de l'iode dans l'atmosphère. Il fait clairement apparaître un cycle jour/nuit (Figure 3, Table1) et l'influence des polluants atmosphériques ( $NO_2$  et composés organiques) sur la formation d'iode organique suffisamment stable pour être transporté à plus longue distance et d'oxydes d'iode qui se déposeront rapidement au sol, Fortin C. [2]

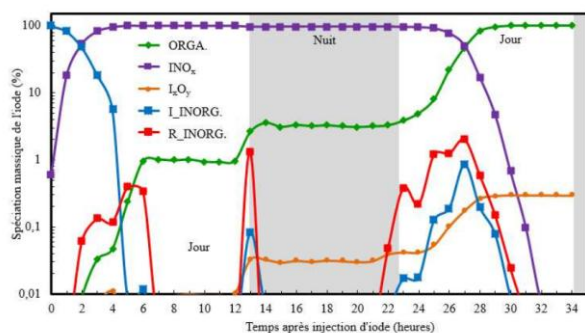


Figure 3 – Evolution de la spéciation massique de l'iode en fonction du temps (injection de  $I_2$  à 6h le 12/03/2011)

Table 1 – famille chimique des espèces iodées

| Nom de la famille           | Notation    | Espèces chimiques   |
|-----------------------------|-------------|---|
| Nitroxydes d'iode           | $INO_x$     | $INO, INO_2, IONO_2$  |
| Oxydes d'iode               | $I_xO_y$    | $I_2O, I_2O_2, I_2O_3, I_2O_4, I_2O_5, I_2O_6, I_2O_7, I_2O_8, I_2O_9, I_2O_{10}, HOIO_2$ |
| Espèces iodées inorganiques | $I\_INORG.$ | $I_2, HOI, HI$  |
| Radicaux inorganiques       | $R\_INORG.$ | $I, IO, OIO$  |
| Espèces iodées organiques   | $ORGA.$     | Espèces iodées comportant au moins un carbone   |

La simulation 3D a enfin confirmé les tendances observées en 0D, nous donnant des profils de concentration d'espèces assez similaires tout au long de la trajectoire 3D (Figure 4).

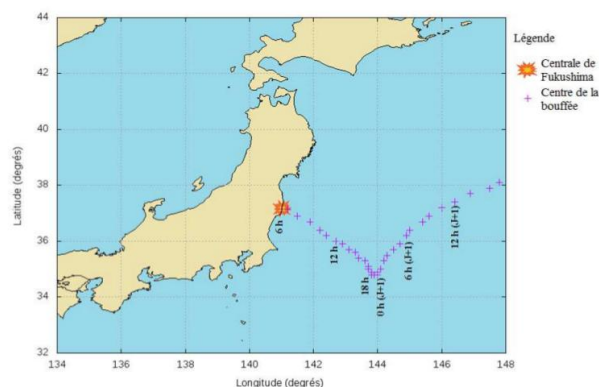


Figure 4 – Déplacement de la bouffée (injection de  $I_2$  à 6h le 12/03/2011)

## 5 Conclusions

Les résultats obtenus dans le cadre de l'étude de l'accident de Fukushima démontrent l'intérêt de l'utilisation conjointe de modèles de chimie théorique, 0D et 3D. Cette complémentarité est étendue à de nouveaux travaux afin d'étudier l'impact du chlore sur le changement climatique (coopération avec Météo France, modèle 3D Mocage). Une étude en chimie théorique est également en cours sur la réactivité des produits phytosanitaires avec les polluants de l'atmosphère.

## 6 Remerciements

Les auteurs expriment leur gratitude au LABEX CaPPA (Chemical and Physical Properties of the Atmosphere) "ANR-11-LABX-0005-01" pour son soutien financier ainsi que le conseil régional "Hauts de France" et "the European Funds for Regional Economic Development"

## Références

- [1] Camille Fortin, Sarah Khanniche, Dora Khiri, Valérie Fèvre-Nollet, Patrick Lebègue, Frédérique Cousin, Ivan Černusak, Florent Louis, *Reactivity of Hydrogen Peroxide with Br and I Atoms*. J. of Phys. Chem. A, 122(4):1053-1063, 2018.
- [2] Camille Fortin, Valérie Fèvre-Nollet, Frédérique Cousin, Patrick Lebègue, Florent Louis, *Box modelling of gas-phase atmospheric iodine chemical reactivity in case of a nuclear accident*, Atmos. Env., 214, 116838, 2019