



**HAL**  
open science

# Variabilités naturelle et anthropique des dépôts atmosphériques en éléments traces et en radionucléides dans les milieux distants de sources de pollution

G. Le Roux

► **To cite this version:**

G. Le Roux. Variabilités naturelle et anthropique des dépôts atmosphériques en éléments traces et en radionucléides dans les milieux distants de sources de pollution. Sciences de l'environnement. Institut National Polytechnique de Toulouse, 2013. tel-02997437

**HAL Id: tel-02997437**

**<https://hal.science/tel-02997437>**

Submitted on 22 Jan 2021

**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.



Distributed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License

Institut National Polytechnique de Toulouse

Mémoire présenté pour l'obtention  
du diplôme d'Habilitation à Diriger des Recherches

**Variabilités naturelle et anthropique des dépôts atmosphériques  
en éléments traces et en radionucléides  
dans les milieux distants de sources de pollution**

**Gaël Le Roux**

**Soutenu le 10.09.2013**

*Composition du Jury:*

**Rapporteurs:**

**Etienne Dambrine**, professeur, Université de Savoie

**Paolo Laj**, Physicien – CNAP, LGGE-Grenoble

**Vojtěch Ettler**, associate professor HDR, Charles University in Prague

**Examineurs:**

**Eric Pinelli**, professeur, INP Toulouse –ENSAT

**Alain Veron**, chercheur CNRS-HDR, CEREGE-Aix en Provence

**Anne Probst**, directeur de recherche CNRS, EcoLab

**Membre invité:**

**Didier Galop**, directeur du laboratoire GEODE, directeur de l'OHM Pyrénées Haut-Videssos











**Préambule:**

Ce mémoire tente de synthétiser une partie de mes activités de recherche menées depuis l'obtention de mon doctorat en 2005 à l'Université de Heidelberg. Un long passage à Cadarache, puis plus court à Liège avant d'arriver à Toulouse au laboratoire EcoLab et à l'Observatoire Midi-Pyrénées (OMP). J'ai eu la grande chance de connaître différents environnements de recherche entre une équipe restreinte (Liège), un laboratoire où l'on mène de front études et recherches (LERCM, IRSN) et désormais EcoLab à Toulouse. Ces différents environnements sont tous propices à une recherche en environnement de qualité mais Toulouse l'est encore plus pour l'ensemble des disciplines et des collègues qu'elle rassemble.

Après avoir fait mes dents avec Bill, Bernd, Michael, Andriy à Heidelberg, j'ai pu profiter des expériences multiples de Philippe, Olivier, Laurent à Cadarache et me "confronter" aux réalités industrielles et des pouvoirs publics. A Liège avec Nathalie, j'ai pu prolonger certaines des idées esquissées lors de ma thèse avec une grande liberté. Mohammed a repris avec brio une partie de ces recherches. Enfin à Toulouse, j'ai été accueilli par Jean-Luc, Anne, Didier, Jeroen et bien d'autres pour partager de nouvelles idées, bénéficier de leurs expériences et mettre en place certains de mes projets que j'avais présenté lors de mon recrutement au CNRS en 2008. Je bénéficie de l'émulation toulousaine, vaste vivier de jeunes chercheurs. A EcoLab, François et Roman sont arrivés quelque temps après moi et ont permis ce travail d'équipe indispensable pour faire "bouger les murs" à tous les points de vue. L'émulation toulousaine ne se limite pas à la recherche, et Séverine, Jean-Pierre, Chrystel, Manu sont également de grandes ressources.

Même si je n'évoque pas l'ensemble des résultats du projet BioGeoSTIB dans le manuscrit suivant, ce travail hautement collaboratif avec Mickael, Charles, Maritxu, Anne, Eric et Jérôme ainsi que tous les étudiants a été très formateur. J'espère pouvoir désormais prendre un peu de temps pour valoriser et promouvoir ces recherches sur l'antimoine.

Je me définis souvent comme "jeune chercheur". Mais c'est faux. Max, Adrien et Alicia & co. sont là pour me le rappeler!

Je remercie les membres du jury d'avoir bien voulu lire de façon critique ce manuscrit. Un clin d'œil à Alain qui a suivi une grande partie de mon parcours scientifique. Merci à Anne d'avoir accepté d'être correspondant de ce mémoire (et d'être chef d'équipe!).

Le lecteur cherchant plus de détails sur les recherches exposées ici trouvera en fin de ce document des reproductions intégrales des articles scientifiques.

*Aux familles Le Roux – Seiler*

*A Johanna.*

## TABLE des Matières

1	Introduction.....	8
1.1	Les milieux distants des sources de pollution .....	12
1.2	Traceurs géochimiques: l'exemple des isotopes du plomb .....	13
2	Variabilité naturelle des dépôts atmosphériques.....	17
2.1	Variabilité temporelle durant l'Holocène.....	17
2.2	Variabilité spatiale de l'intensité et des sources des dépôts des aérosols .....	30
3	Chronologie et variabilité spatiale des perturbations par l'Homme des cycles des éléments trace métalliques et radionucléides artificiels .....	37
3.1	Perturbation par l'homme des cycles biogéochimiques des ETM .....	37
3.2	Radionucléides .....	45
4	Éléments trace métalliques, hommes et Environnement.....	49
4.1	Archéo-environnement .....	49
4.2	Observatoires Hommes et Milieu (OHM).....	51
5	Nouvelles pistes pour étudier l'impact des éléments trace et radionucléides sur l'environnement	57
5.1	Nouveaux outils pour tracer les éléments trace et les radionucléides .....	57
5.2	Eco-Géochimie.....	60
5.3	Biogéochimie spatio-temporelle des zones de montagne.....	63
6	Bibliographie.....	67
7	Curriculum Vitae.....	75
7.1	Informations personnelles et professionnelles.....	75
7.2	Formation à la recherche, enseignement, animation et diffusion de la culture scientifique	77
8	Liste de publications.....	84
9	Sélection de publications .....	95

# 1 Introduction

---

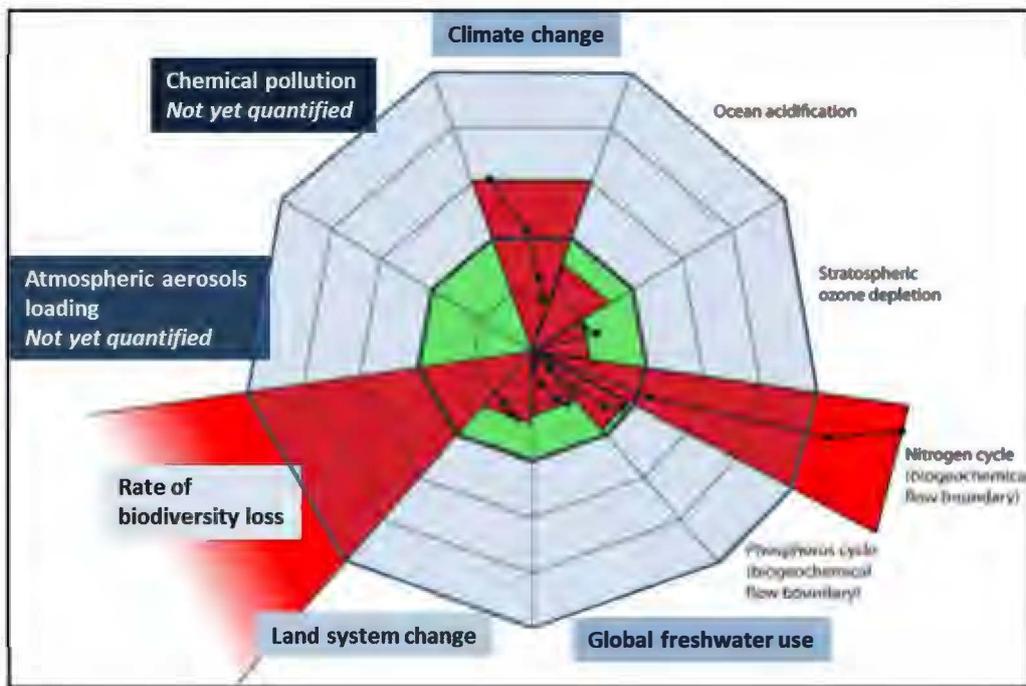
L'Homme exerce une pression sur son environnement qui s'est exacerbée durant l'Holocène et accélérée durant les 200 dernières années avec l'utilisation des combustibles fossiles. La relative stabilité et la capacité de régulation de la planète Terre, qui ont permis le développement de l'espèce humaine après la révolution néolithique, sont menacées voire déjà affectées.

---

Les seuils de viabilité environnementale sont déjà largement dépassés pour trois "frontières-seuils planétaires" : le changement climatique (i.e. CO<sub>2</sub>), la perte de biodiversité et l'impact de l'Homme sur le cycle de l'azote tels que définis par Rockström et al. (2009); Rockstrom et al. (2009) (Figure 1). Ces auteurs ont identifié d'autres domaines dont deux seuils ne peuvent pas être correctement quantifiés actuellement:

- La pollution chimique,
- La charge en aérosols et son impact.

Ces deux frontières sont indissociables (Figure 2) car les aérosols sont un des vecteurs principaux de transport de la pollution chimique. La charge en aérosol et la pollution chimique sont également liées à d'autres "frontières planétaires » (i.e. le cycle global de l'azote) et peuvent être caractérisées par des seuils similaires comme un impact non acceptable sur la santé humaine ou sur les écosystèmes.



**Figure 1 : Estimate of quantitative evolution of control variables for seven planetary boundaries from preindustrial levels to the present. The inner (green) shaded nonagon represents the safe operating space with proposed boundary levels at its outer contour. The extent of the wedges for each boundary shows the estimate of current position of the control variable. Dots show the estimated recent- time trajectory (1950–present) of each control variable (Rockström et al., 2009; Rockstrom et al., 2009) – Estimation de l'évolution quantitative des variables de contrôles pour sept frontières planétaires du préindustriel à l'actuel. L'intérieur vert du nonagone représente l'espace opérable avec la frontière proposée dans son contour extérieur.**

Les aérosols jouent un rôle essentiel dans les changements environnementaux. Les rétroactions à plus ou moins longs termes entre les charge en aérosols et les perturbations induites par l'Homme directement (i.e. particules industrielles) ou indirectement (i.e. poussières désertiques) sont encore méconnues. Les aérosols (Mahowald, 2011)( Figure 2):

- modifient le bilan radiatif,
- forment des surfaces réactives en particulier pour la photochimie,
- interagissent pour former des noyaux de condensation et participent à la formation des nuages, modifient l'albédo des surfaces enneigées,
- captent des polluants et participent à la dissémination de ceux-ci,
- impactent la santé humaine,
- modifient l'apport biogéochimique aux océans et continents, en particulier dans les milieux oligotrophes.

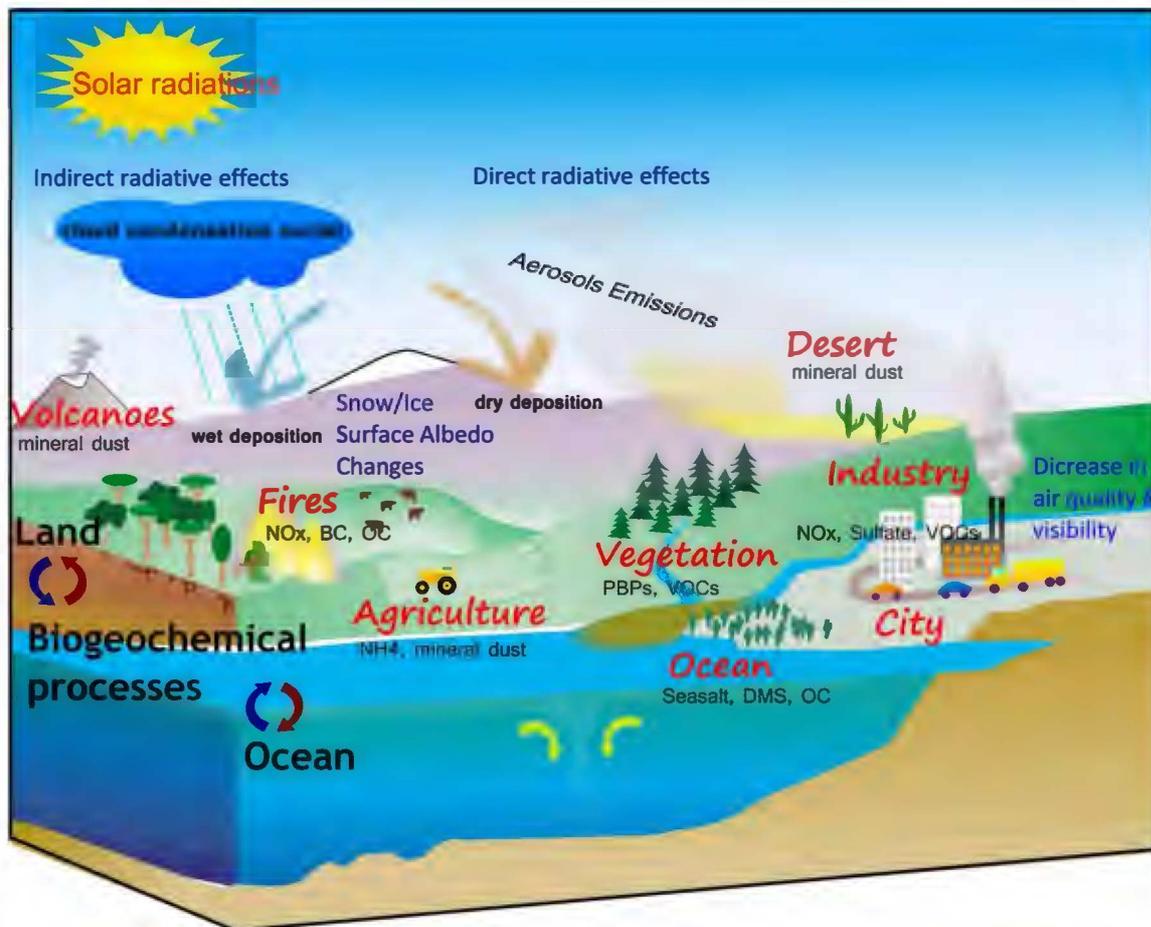
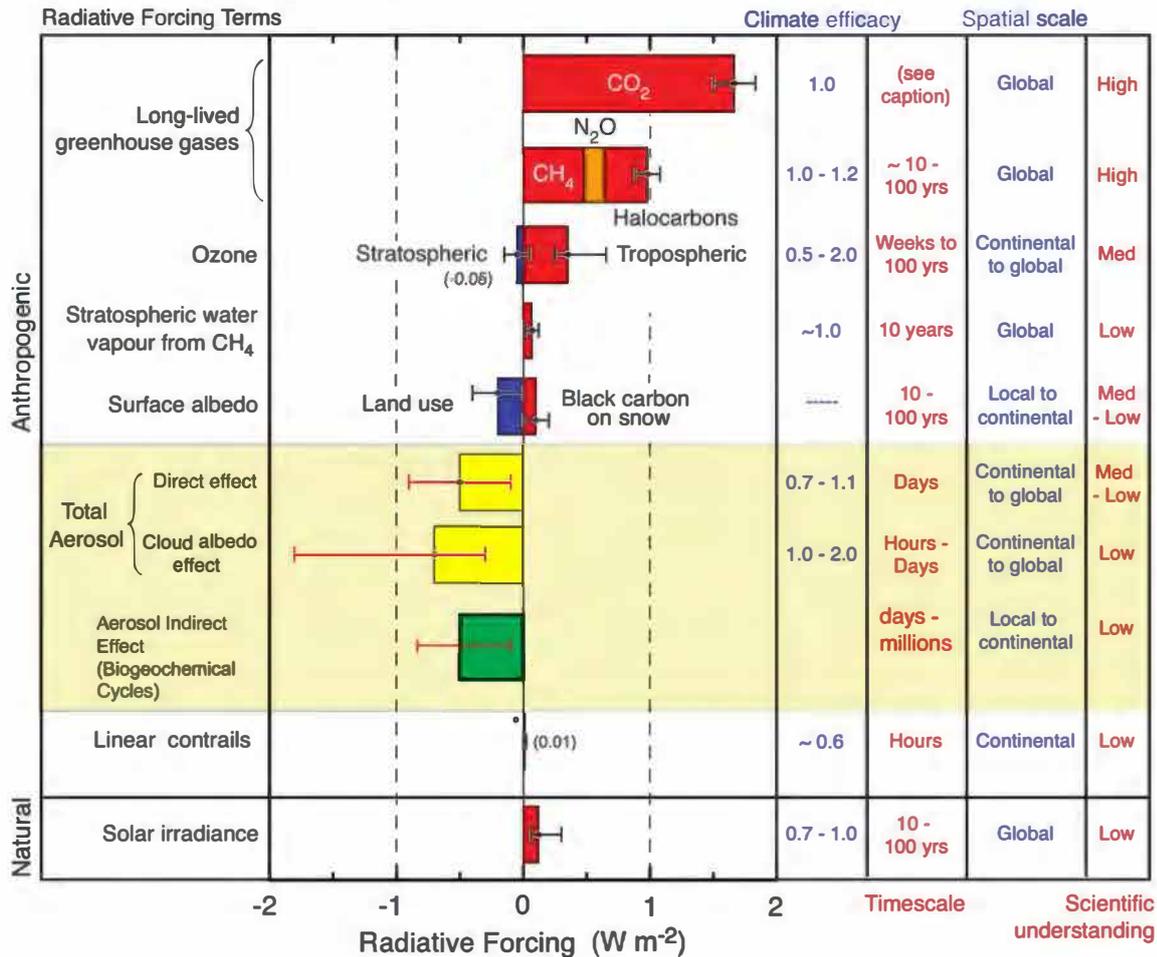


Figure 2: Aerosol sources, composition, transport, deposition, and impacts on climate and biogeochemistry redrawn after Mahowald et al. (2011). *Schéma des sources en aérosols, composition, transport, dépôt et impact.*

Par exemple, le rôle des aérosols sur le forçage radiatif comprend de fortes incertitudes (Figure 3). Il en est de même pour les effets indirects sur les cycles biogéochimiques dont celui du carbone qui sont seulement étudiés de façon globale et quantitative depuis peu (Mahowald, 2011).

### Radiative forcing of climate between 1750 and 2005



**Figure 3 : Global mean radiative forcings (RFs) grouped by agent type. Anthropogenic RFs and the natural direct solar RF are shown. Columns indicate other characteristics of the RF. Time scales represent the length of time that a given RF term would persist in the atmosphere after the associated emissions and changes ceased. No CO<sub>2</sub> time scale is given, as its removal from the atmosphere involves a range of processes that can span large time scales, and thus cannot be expressed accurately with a narrow range of lifetime values (modified from IPCC, 2007; Mahowald, 2011). Forçages radiatifs (RF) moyens regroupés par type d'agent. Les forçages radiatifs d'origine humaine et naturelle via le rayonnement solaire sont montrés. Les colonnes indiquent d'autres caractéristiques des RF. Les échelles de temps représentent la durée de persistance de l'effet d'un RF donné après que les émissions et changements environnementaux aient cessés.**

Malgré les améliorations environnementales comme les protocoles de type 'Clean Air Act' ou l'interdiction de l'utilisation de l'essence plombée dans la plupart des pays du globe, la pollution par les éléments trace métalliques (ETM) est encore d'actualité. En particulier la demande énergétique des pays émergents comme la Chine induit des émissions plus fortes d'ETM dues aux centrales à charbon (Figure 4). D'autres activités comme le mauvais recyclage de l'électronique ménager, le remplacement de matériau par des alliages plus performants, ou les nanotechnologies induisent également des émissions d'ETM dans l'environnement.

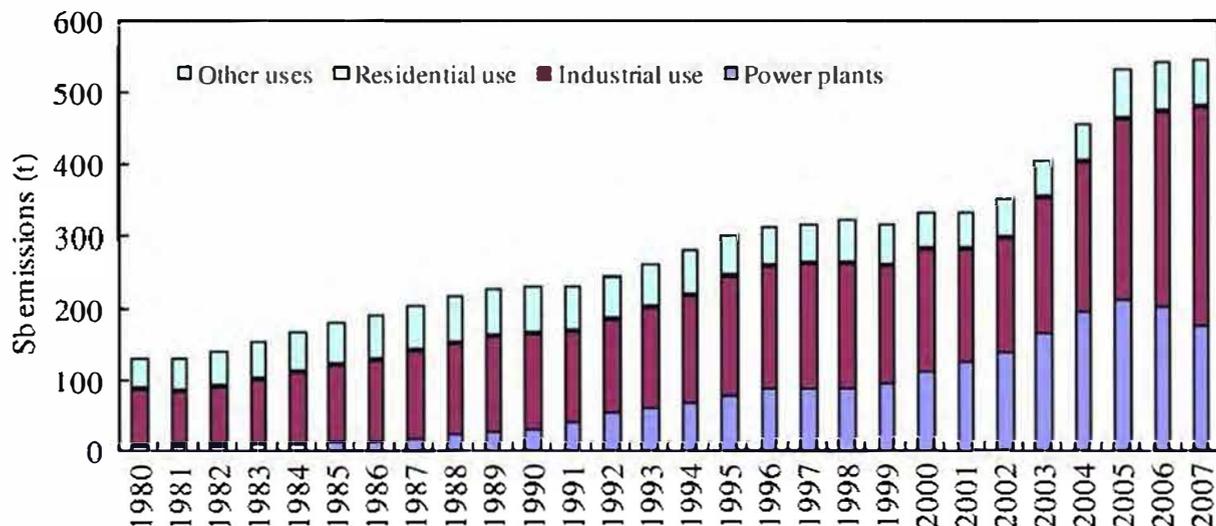


Figure 4 : Atmospheric Sb emissions from coal combustion sorted by activity type in China, 1980-2007 (Tian et al., 2011) - Tendances des émissions atmosphériques en antimoine par combustion de charbon en Chine de 1980 à 2007.

Les cycles biogéochimiques des métaux sont donc encore fortement perturbés par l'Homme. Cela a des conséquences sur la santé des écosystèmes, sur la santé humaine mais également des effets non attendus. Par exemple, Cziczo et al. (2009) ont montré que les aérosols enrichis en plomb d'origine anthropique étaient de meilleurs noyaux de nucléation que les aérosols ne contenant pas plomb.

## 1.1 Les milieux distants des sources de pollution

Si les outils de télédétection et/ou en temps réel ont fortement progressé depuis plusieurs années et permettent d'avoir une observation quasi continue des aérosols (par ex. le radiomètre spectral MODIS) voire de certains polluants (Laskin et al., 2012), leur étude à l'interface atmosphère-sol (le "dépôt") sur le terrain est encore nécessaire pour alimenter les modèles et donc les prédictions spatiales et temporelles. C'est encore plus vrai dans les régions éloignées des grands centres de recherches et dans les zones difficiles d'accès comme les montagnes ou les régions australes et boréales. Ce sont des zones cruciales car extrêmement sensibles aux changements environnementaux : elles sont peu anthropisées, avec une courte saison chaude et végétative. Ces zones sont également soumises à des mécanismes atmosphériques particuliers par rapport aux zones tempérées de plaine. Ils induisent des dépôts atmosphériques plus importants mais plus difficilement quantifiables car localisés dans des zones peu faciles d'accès (Lovett, 1994; Weathers et al., 2000). Les fonctions et services écologiques de ces zones sont aussi importants comme réserves en eau douce, comme stocks de carbone ou encore par leur diversité biologique.

Mes travaux s'intègrent dans des projets pluridisciplinaires associant la biogéochimie à la paléobotanique, l'archéologie ou bien l'écologie des sols. Mon objectif est de mieux comprendre l'impact de l'Homme sur les aérosols et les cycles biogéochimiques de différents métaux et autres éléments trace (Pb, Sb, Hg...) et ce à différentes échelles spatiales (sol, bassin versant, région, Continent) et à différentes échelles de temps (Holocène, 3000 dernières années et période industrielle) (Figure 5). Je m'intéresse en particulier à l'interface atmosphère-sol dans les milieux montagnards et/ou boréaux/austraux. J'utilise la rétro-observation via des archives

environnementales et l'observation sur le long terme (année, décennie) en utilisant des outils géochimiques et isotopiques (Figure 5).

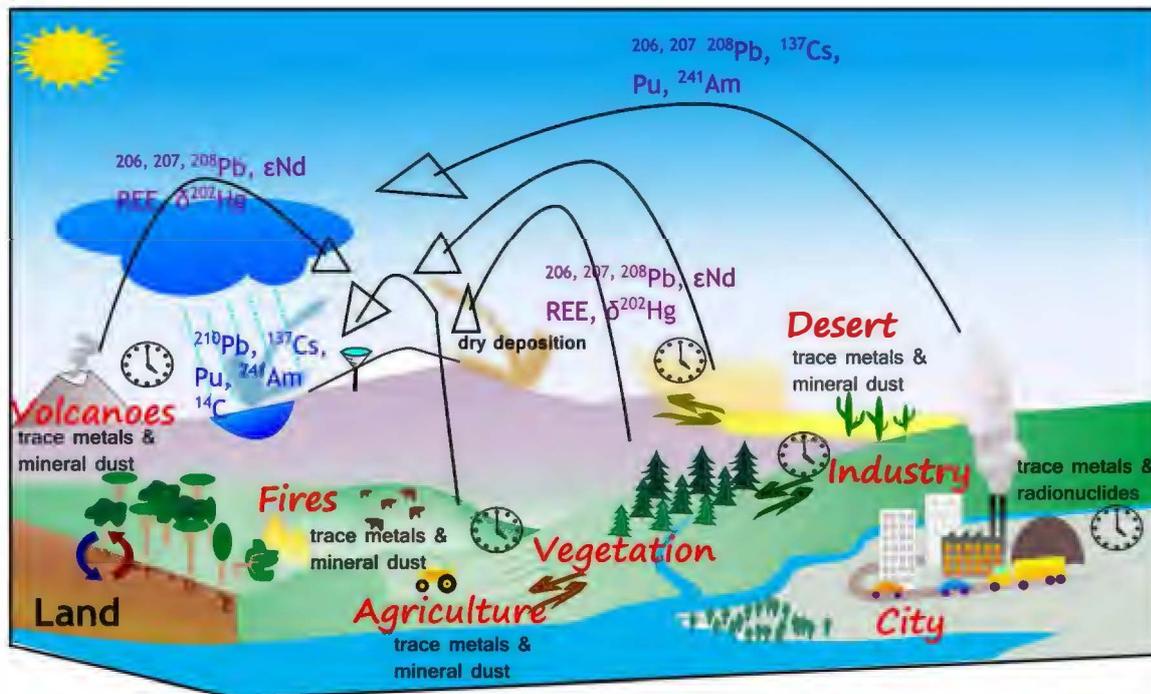


Figure 5 : Main emitters of atmospheric particles and trace metals to areas distant from pollution sources, in blue: isotopic systems used to trace the dynamics of trace elements and aerosol deposition, in pink: isotopic tracers to fingerprint the sources of contaminants. The clocks represent the different main compartments and emitters of aerosols that I am investigating with environmental archives and long-term observatories. *Principaux émetteurs de particules atmosphériques et d'ETM vers les zones distantes de sources de pollution, en bleu: systèmes isotopiques que j'utilise pour tracer la dynamique des éléments trace et des dépôts d'aérosols, en rose: traceurs isotopiques pour déterminer la source des contaminants. Les horloges représentent les différents compartiments environnementaux et émetteurs d'aérosols que j'étudie avec des archives environnementales et des observatoires sur le long terme.*

## 1.2 Traceurs géochimiques: l'exemple des isotopes du plomb

Les isotopes stables du plomb, les chaînes de désintégration de l'uranium-thorium et les techniques de spectrométrie de masse sont décrits par De Laeter comme la pierre de Rosette de la géochimie (De Laeter, 2011). La compréhension de ce système isotopique a eu des conséquences en physique nucléaire, en géochronologie, traçage des sources en géologie, environnement et archéologie. Poursuivant, reproduisant des travaux, des dispositifs expérimentaux imaginés par des chercheurs comme Clair C. Patterson (1922-1995) ou Karl K. Turekian (1927-2013), je me suis appuyé également sur ces systèmes isotopiques pour mieux comprendre la dispersion et leur origine des métaux dans l'environnement (Figure 5).

Les chaînes de désintégration dites Uranium-Thorium sont illustrées sur la Figure 6. Les isotopes de l'uranium ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ) et du thorium ( $^{232}\text{Th}$ ) se désintègrent pour former des radioisotopes dont la  $\frac{1}{2}$  vie est plus ou moins longue. Certains radioéléments sont particulièrement intéressants car ils ont des propriétés chimiques différentes de leur père et/ou de leur fils. L'uranium et le thorium, par exemple, ont des propriétés chimiques différentes vis-à-vis de l'eau : l'uranium se retrouvant

facilement sous forme dissoute dans les eaux continentales et marines tandis que le thorium peut être rapidement entraîné vers les sédiments du fait de sa plus faible solubilité ainsi que de sa propension à se lier à la matière organique.

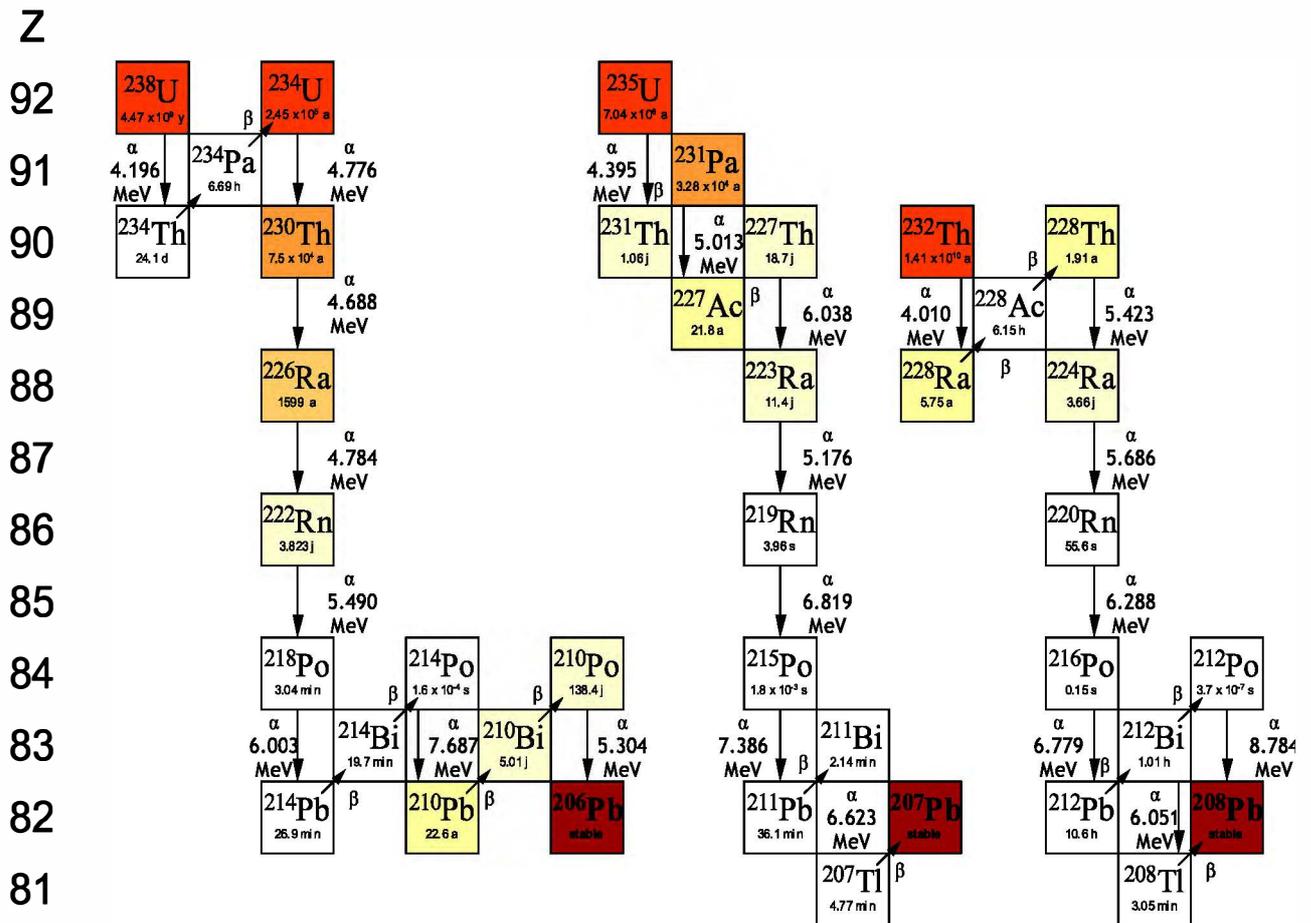


Figure 6 : Uranium-thorium decay series. Darker color is indicating longer half life. *Chaînes de désintégration de l'Uranium-Thorium. La couleur plus sombre indique une demi-vie plus longue.*

Le radon est le seul gaz de ces chaînes de désintégration radioactive. En particulier, le <sup>222</sup>Rn a une ½ vie suffisamment longue pour être exhalé et émané de la croûte continentale supérieure (Figure 7). Ses descendants ne sont cependant pas sous forme gazeuse et sont rapidement liés aux particules atmosphériques submicroniques (Figure 8) lors de leur formation. C'est le cas en particulier du plomb-210 dont la ½ vie est "suffisamment" longue pour le retrouver facilement dans l'environnement. C'est à la fois un traceur (Graustein and Turekian, 1989; Turekian and Graustein, 2004) (§2.2) et un géochronomètre (Appleby, 2001; Appleby and Oldfield, 1978) (§2.1.1.1.2).

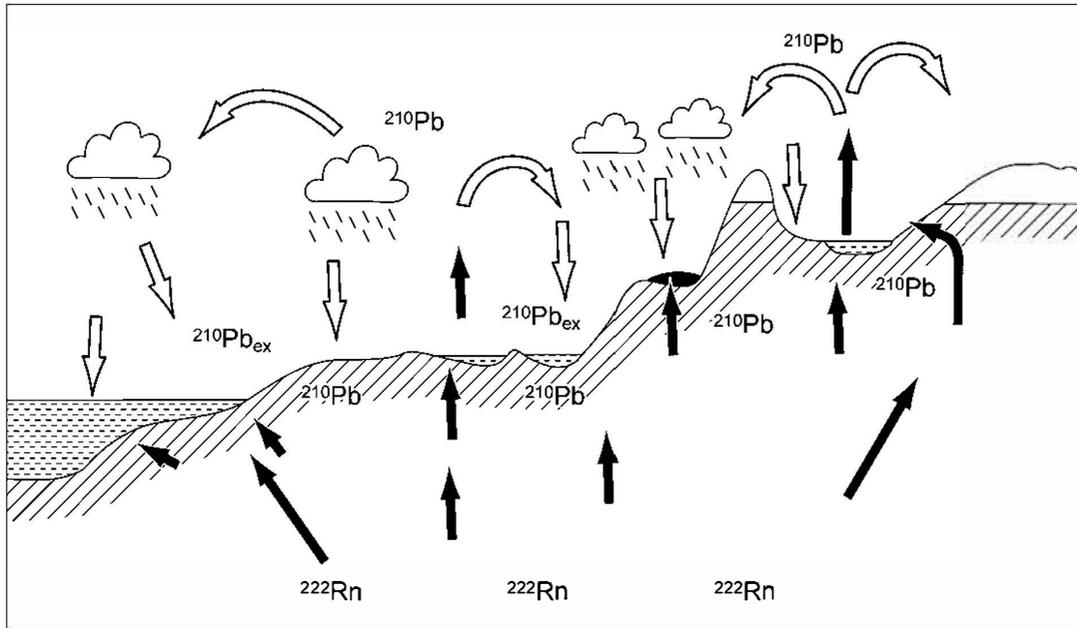


Figure 7 : Lead-210 production and relative atmospheric deposition levels after Preiss et al. (1996) in : Le Roux and Marshall (2010) – plomb-210 et niveaux relatifs de dépôt atmosphérique

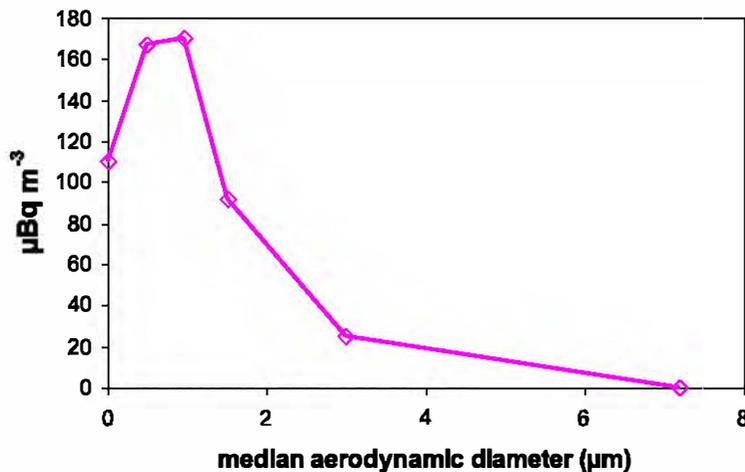
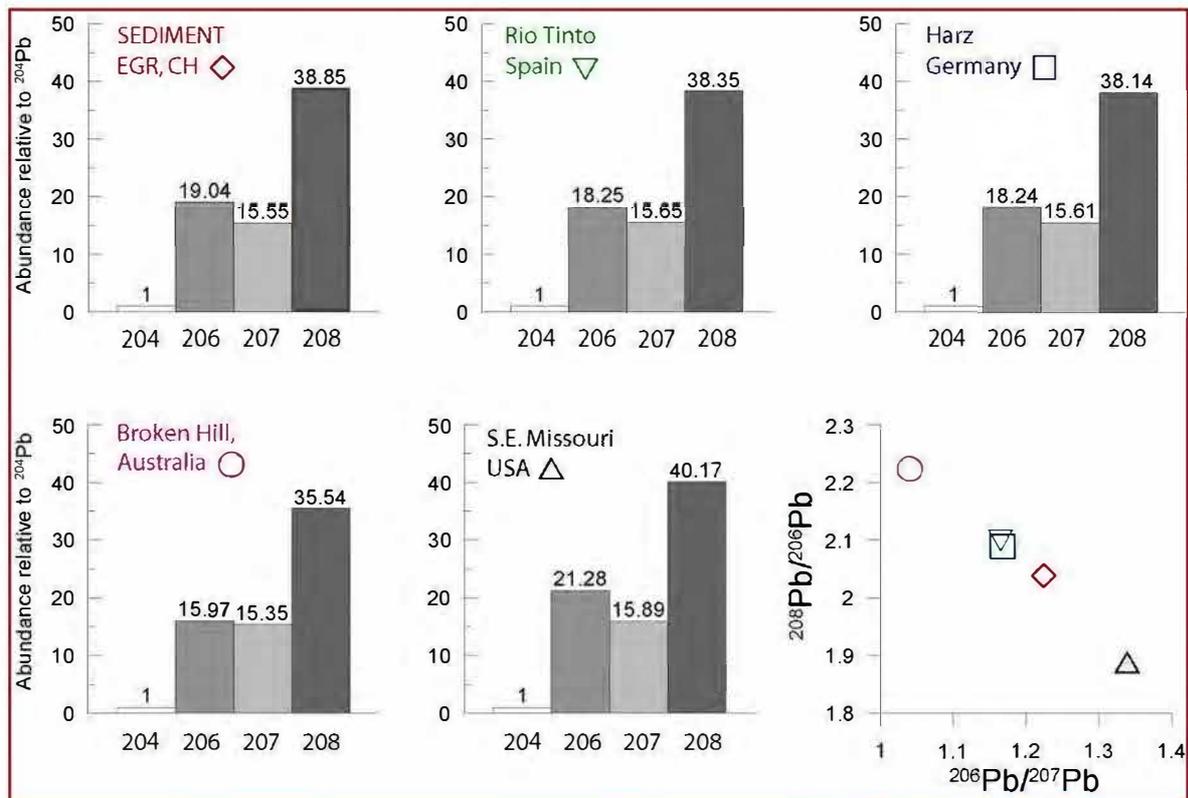


Figure 8: Aerosol size distribution and  $^{210}\text{Pb}$  air concentration at Puy de Dôme Station (Masson and Le Roux, unpublished) – taille des aérosols et concentrations en  $^{210}\text{Pb}$  dans l'air correspondant au Puy de Dôme

Les isotopes stables et radiogéniques du plomb :  $^{206}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}$  et  $^{208}\text{Pb}$  sont également de puissants traceurs des sources de ce métal dans l'environnement. En effet, la quantité de ces trois isotopes dépend de différents paramètres comme l'âge de la roche, les concentrations initiales en uranium et thorium. Les minerais de plomb ont des signatures isotopiques distinctes de la croûte continentale supérieure. Cette signature isotopique est conservative lors de phénomènes naturels ainsi que lors des activités métallurgiques. Le plomb conserve ainsi son empreinte géochimique à travers sa dispersion dans l'environnement (Shotyk and Le Roux, 2005a) (§2.1.2 et §3.1.1).

Le traçage isotopique est également possible en radioécologie. L'enrichissement en  $^{235}\text{U}$  nécessaire à la fabrication du combustible nucléaire peut également se retrouver dans l'environnement suite à un incident ou à des négligences dans ou autour d'un site nucléaire (Pourcelot et al., 2008) (§3.2)



**Figure 9 : Isotopic composition in pre-anthropogenic sediment (Etang de la Gruère, Switzerland) and in selected ores (Shotyk and Le Roux, 2005a). Rio Tinto is a famous mining area in Spain where Cu and Pb ores were mined since the Antiquity. Harz Mountains were mined during Medieval Times. The Pb ores from Broken Hill and Missouri were used respectively In Europe and USA as gasoline additives –Composition isotopique du plomb dans des sédiments préanthropiques et dans une sélection de minerais. Rio Tinto est une région minière connue en Espagne et exploitée depuis l'Antiquité. Les montagnes du Harz ont été exploitées durant le Moyen Age principalement. Les minerais de plomb de Broken Hill et du Missouri ont été utilisés dans les additifs pour l'essence respectivement en Europe et aux Etats-Unis.**

## 2 Variabilité naturelle des dépôts atmosphériques

Les émissions anthropiques directes et indirectes de particules atmosphériques et de contaminants métalliques associés sont nombreuses. Mais quand était-il dans le passé? Est-ce qu'une partie de la variabilité temporelle des dépôts peut être expliquée par des phénomènes naturels comme le volcanisme? Les émissions des déserts? Est-ce qu'une partie de la variabilité spatiale peut être expliquée par des mécanismes atmosphériques? Par l'hétérogénéité des dépôts?

### 2.1 Variabilité temporelle durant l'Holocène

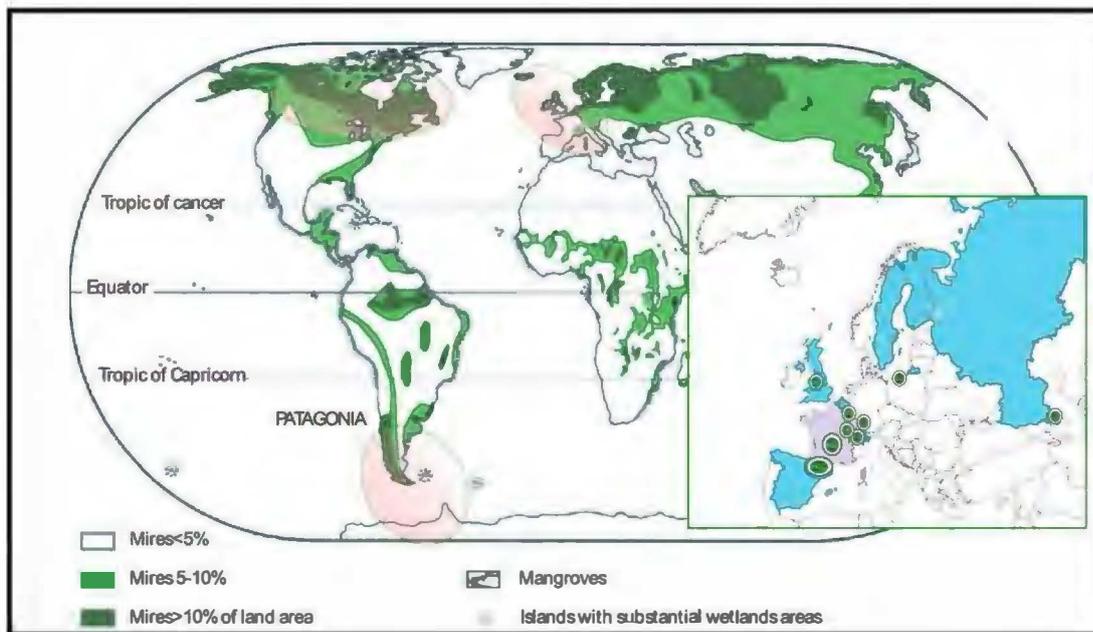
Ces travaux sont la suite logique de mon doctorat et de mes recherches dans le groupe de William Shotyk à Heidelberg. Après avoir démontré que les tourbières ombrotrophes étaient des enregistreurs efficaces des poussières atmosphériques, en particulier des aluminosilicates (Le Roux et al., 2006; Le Roux and Shotyk, 2006) et de certains contaminants comme le plomb ou les Terres Rares (Aubert et al., 2006; Le Roux et al., 2005), nous<sup>1</sup> avons commencé à développer un réseau de sondages de plus en plus denses couvrant l'Holocène<sup>2</sup>.

Pour cela, nous avons continué à développer les aspects méthodologiques et analytiques initiés à Bern et Heidelberg (Givelet et al., 2004) et à développer ou améliorer de nouveaux traceurs comme les Terres Rares ou les isotopes du Nd (Le Roux et al., 2012). De nouveau, les isotopes du plomb s'avèrent également d'excellents traceurs des dépôts passés d'aérosols. L'objectif final est de pouvoir comprendre les interactions passées entre les charges en aérosols, leurs dépôts et les changements environnementaux (paysage, climat,..).

---

<sup>1</sup> Ce travail est un travail hautement collaboratif en particulier avec William Shotyk (Univ. Edmonton) et Nathalie Fagel (Univ. Liège) et la complicité scientifique et amicale de François de Vleeschouwer (CNRS, Toulouse).

<sup>2</sup> <https://sites.google.com/site/peattoulouse>



**Figure 10 : Main distribution of mires with: in pink my three main areas of fieldwork. In the Europe panel, the long peat records we sampled the past few years are described in more details. In blue, are the countries where I have active collaborations and exchange of samples - *Distribution globale des tourbières avec mes trois régions principales de terrain. En Europe, est illustrée plus en détail la localisation des enregistrements les plus profonds ainsi que les pays avec des collaborations actives.***

## **2.1.1 Etablir une chronologie précise et inter-comparable des dépôts atmosphériques durant l'Holocène en Europe**

### ***2.1.1.1 Une méthodologie pour améliorer notre compréhension des informations archivées par les accumulations de tourbe***

Afin de permettre la comparaison entre tourbières et autres archives environnementales, ainsi que de pouvoir comparer les enregistrements tourbeux entre eux, il est nécessaire d'établir des chronologies robustes de l'accumulation de tourbe (Blaauw, 2010; Blaauw and Christen, 2010; Le Roux and Marshall, 2010). A l'initiative de François de Vleeschouwer et de collègues présents à un atelier de travail en Estonie, nous avons consolidé et formalisé l'ensemble des bonnes pratiques pour utiliser les enregistrements tourbeux comme archives paléoenvironnementales (De Vleeschouwer et al., 2010a). Je suis particulièrement impliqué dans l'analyse chimique en éléments trace et les datations par utilisation de radionucléides ( $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{14}\text{C}$ ).

#### **2.1.1.1.1 Sondage et préparation analytique**

Les bonnes pratiques concernant l'échantillonnage des tourbes développées à Heidelberg, puis prolongées à Liège (Belgique) et désormais à Toulouse sont décrites dans Givélet et al. (2004), De Vleeschouwer et al. (2010a) et Le Roux and De Vleeschouwer (2010). La qualité du sondage est fondamentale et permet d'éviter ensuite des surinterprétations, par exemple, concernant la précision du modèle d'âge-profondeur (Le Roux and Marshall, 2010). Une fois le carottage effectué, le sous-échantillonnage de précision tout en évitant les potentielles sources de contamination

extérieure ou croisée est également nécessaire (<http://youtu.be/CSmYQ3QgHrM>). Etablir un protocole complet de sous-échantillonnage est utile car il permet de travailler à haute-résolution (tranche de moins de 1 cm à résolution décennale), de travailler en "multiproxy" sur le même sondage et de conserver une archive pour des analyses ultérieures (Figure 11).

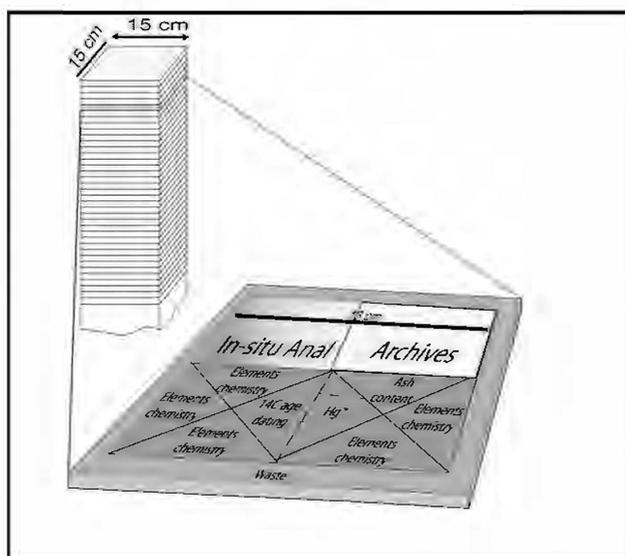


Figure 11 : Example of sub-sampling protocol used for a Wardenaar core. Exemple de protocole de sous-échantillonnage de tourbe pris à l'aide d'un carottier Wardenaar

L'analyse géochimique est ensuite une composante indispensable de l'analyse des tourbes. Pour cela, nous nous appuyons sur un protocole de minéralisation développée spécialement pour les tourbes afin d'avoir un bon recouvrement pour un grand nombre d'éléments (Figure 12 et Tableau 1). La difficulté n'étant pas dans l'analyse géochimique elle-même, mais bien dans le grand nombre d'échantillons à traiter pour pouvoir analyser en haute résolution des sondages de tourbes profonds, parfois de plus de 10 m (soit 9000 échantillons). La salle blanche à EcoLab dont j'ai la responsabilité scientifique a une capacité de préparation des échantillons avant analyse chimique de 350 échantillons/mois.

Standard	Element ( $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ )	Cu	Pb	Zn	Mo	Sb
CTA-OTL	Reference values	14.1±0.5	4.91±0.8	49.9±2.4	0.26	0.075
	Mean measured values (n=6)	13.4±0.7	4.33±0.3	46.3±3.2	0.30±0.02	0.065±0.007
	Recovery (%)	94	92	92	93	87
Lichen IAEA 336	Reference values	3.6±0.5	4.90±0.6	30.4±3.4	-	0.070±0.01
	Mean measured values (n=4)	2.9±0.1	4.07±0.1	25.6±0.9	-	0.078±0.004
	Recovery (%)	96	97	96	-	94
Tomatoe leaves 1573	Reference values	4.7	-	-	0.46	-
	Mean measured values (n=2)	4.6±0.2	-	-	0.41±0.006	-
	Recovery (%)	100	-	-	98	-

Tableau 1 : Example of quality control using certified reference material (Allan et al., 2013a). Samples were measured by Q-ICP-MS. Exemple de contrôle qualité à l'aide de matériaux de référence. Les échantillons minéralisés ont été analysés par Q-ICP-MS.

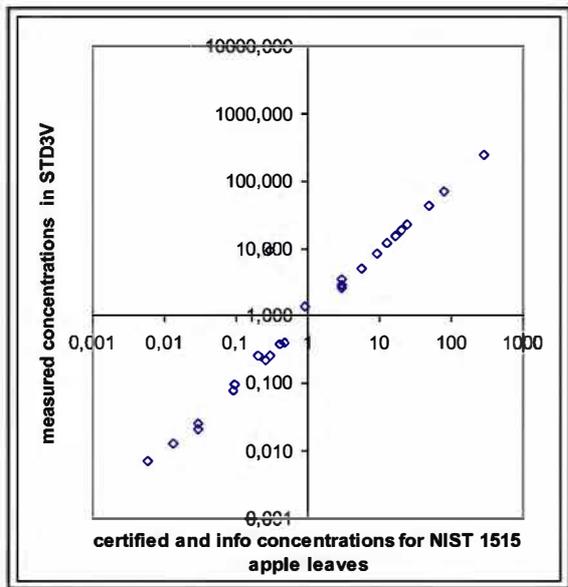


Figure 12 : Measured trace element concentrations ( $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ ) vs. certified and informative concentrations in the CRM NIST 1515 following the protocol described by Le Roux and De Vleeschouwer (2010). *Concentrations en éléments trace mesurés par Q-ICP-MS suivant le protocole décrit par Le Roux et De Vleeschouwer, 2010 vs. Concentrations certifiées du CRM NIST 1515*

Des inter-comparaisons d'autres laboratoires français et belges montrent la qualité de nos analyses (ex. Figure 13).

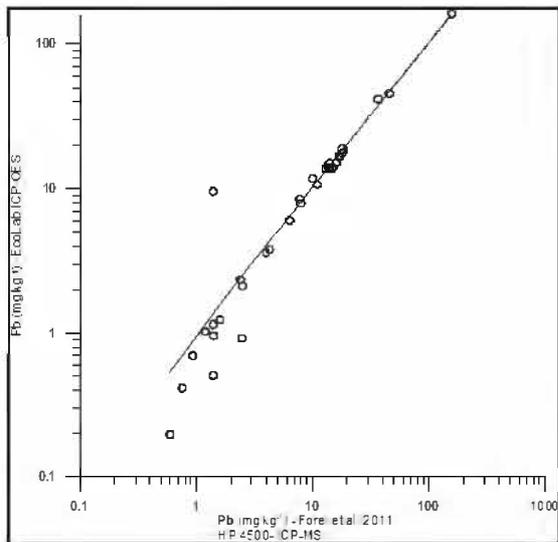


Figure 13 : Comparison between Pb ICP-OES measurements at EcoLab Toulouse and ICP-MS measurements at LISA Paris- *comparaison de mesures de plomb dans un profil de tourbe des Vosges mesurées à EcoLab par ICP-OES et au LISA par ICP-MS (Forel et al., 2010)*

#### 2.1.1.1.2 Datations

Les constructions des modèles d'âge-profondeur sont primordiales pour pouvoir comparer les tourbières entre elles ainsi que pour comparer ces archives avec les archives lacustres, glaciaires et spéléothèmes. Si de nombreuses recherches ont été menées et sont en cours sur l'utilisation du radiocarbone (Piotrowska et al., 2010) et de la téphrochronologie (Swindles et al., 2010), l'utilisation

des radionucléides ( $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ) n'avait pas été clairement formalisée pour les tourbières. En effet, si la théorie est bien établie (Appleby, 2001; Appleby and Oldfield, 1978), de nombreux problèmes subsistent quant à la précision et la validité de ces chrono-marqueurs. Avec William Marshall (Le Roux and Marshall, 2010), nous avons tenté de mettre en exergue certains points fondamentaux qui permettent de valider l'utilisation des radionucléides comme chronomarqueurs.

**Tableau 2 : Summary of the common problems and issues that can be encountered when using  $^{210}\text{Pb}$  CRS modelling to date recent peat accumulation – résumé des problèmes courants rencontrés lors de l'utilisation du modèle CRS- $^{210}\text{Pb}$  pour dater l'accumulation récente de tourbes**

	<ul style="list-style-type: none"> <li>➤ site with very low, spasmodic or highly variable peat accumulation rates</li> </ul>
<b>During the field coring</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>➤ the presence of too many vascular plants (e. g., <i>Calluna vulgaris</i>, <i>Molinia caerulea</i>, <i>Pinus</i>) resulting in root disturbance of the peat stratigraphy</li> <li>➤ minerotrophic site (e. g., valley mire) with excessive temporal variability of detrital clastic input</li> <li>➤ disrupted stratigraphy or peat compression due to using an inappropriate coring device</li> </ul>
<b>In the lab</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>➤ inaccurate measurements of peat bulk density</li> <li>➤ incomplete digestion of peat samples for alpha spectrometry</li> <li>➤ using an inappropriate geometry for <math>^{210}\text{Pb}</math> gamma spectrometry measurements, e.g., sample is too small for the selected container</li> <li>➤ unreliable estimation of <math>^{210}\text{Pb}</math> supported activity due to wrong instrument calibration</li> <li>➤ low precision due using inappropriate counting times</li> </ul>
<b>Modelling</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>➤ hiatus in the profile</li> <li>➤ lack of validation and cross checking with other independent dating methods (e. g., <math>^{14}\text{C}_{\text{bomb-pulse}}</math>, pollen, SCP)</li> <li>➤ the <math>^{210}\text{Pb}</math> activity is too low for reliability because of low initial deposition at surface, or poor retention in some samples</li> <li>➤ wrong equilibrium point selected between supported and unsupported <math>^{210}\text{Pb}</math> fractions</li> </ul>

L'utilisation de marqueurs indépendants comme des pollens spécifiques (comme ceux d'*Epicea* ou de Cannabis dans les Pyrénées) permet de valider cette approche. Nous illustrons ici deux exemples de tourbières à forte accumulation étudiée et dont les modèles d'âge basés sur le  $^{210}\text{Pb}$  sont validés par l'utilisation d'une autre méthode de datation (Figure 14): le radiocarbone des bombes ( $^{14}\text{C}$  "bomb pulse") (Goodsite et al., 2001). Les essais nucléaires aériens ont en effet contribué à une émission supplémentaire globale de  $^{14}\text{C}$  jusqu'à leurs arrêts au début des années 1980. L'évolution de la teneur en  $^{14}\text{C}$  dans l'atmosphère est globale<sup>3</sup> et est conservative lorsqu'il est intégré dans les plantes se fossilisant. En utilisant un abaque de l'évolution du radiocarbone dans l'atmosphère depuis les 60 dernières années, des premiers essais nucléaires dans les années 50 jusqu'à la rémanence aujourd'hui du  $^{14}\text{C}_{\text{bomb-pulse}}$ , il est possible de précisément dater les couches les plus récentes de

<sup>3</sup> Quasi-globale, on distingue des bandes latitudinales d'évolution du  $^{14}\text{C}$  pour les 60 dernières années.

tourbes. Les modèles d'âge établis entre le modèle  $^{210}\text{Pb}$  CRS et le modèle "bomb-pulse" correspondent relativement bien pour ces 2 tourbières. Les radionucléides artificiels ( $^{137}\text{Cs}$  et  $^{241}\text{Am}$ ) dont les sources majeures sont différentes entre l'Europe et l'Amérique du Nord permettent également de valider des âges discrets des modèles d'âge-profondeur.

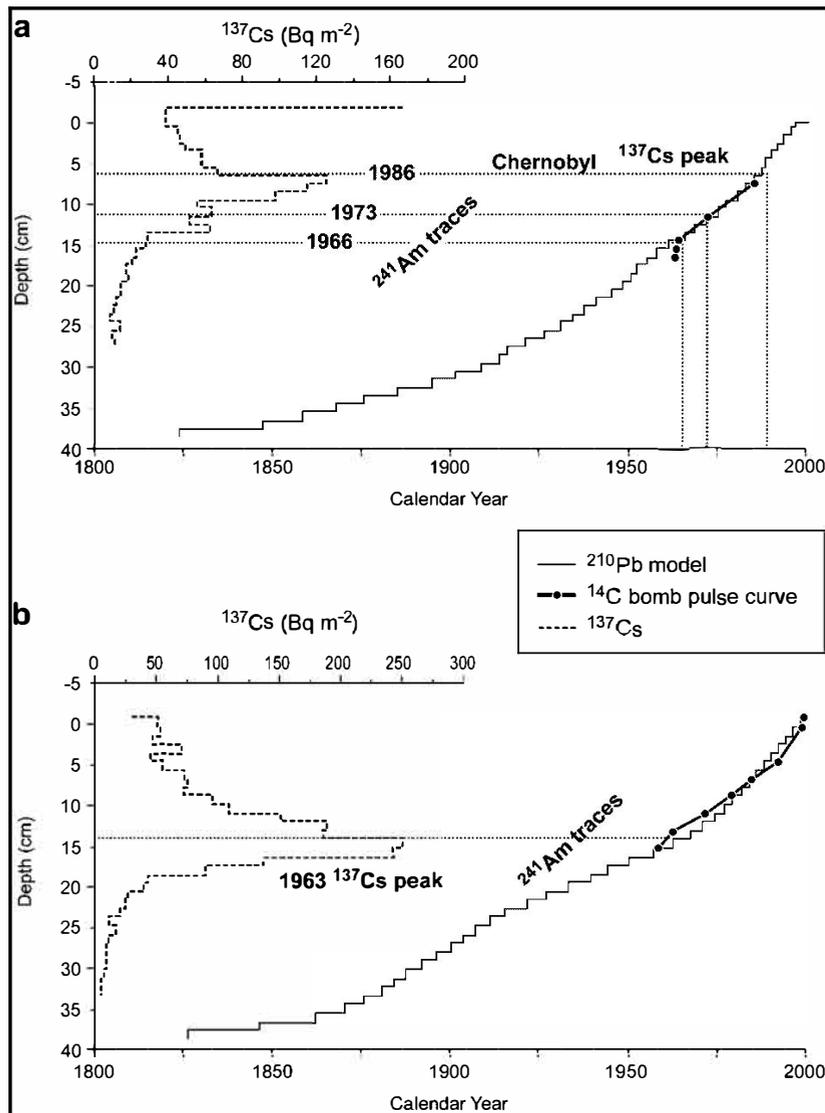


Figure 14 : Examples of age-depth models for peat cores derived from radionuclides. Top panel (a), Vlorusuo, Outokompu, Finland (Rausch et al., 2005). Bottom panel (b), Sifton Bog, Canada (Glivelet et al., 2003). Exemples de modèles âge-profondeur dérivés à l'aide de radionucléides. Haut (a), Outokompu, Finlande, bas (b): Sifton, Canada.

Un autre exemple est la tourbière du Misten où avec François de Vleeschouwer, nous avons pu mettre en évidence grâce au plomb-210 que ce plateau tourbeux belge, malgré un assèchement caractérisé par la présence de molinie, accumulait de la tourbe encore aujourd'hui dans sa partie protégée (De Vleeschouwer et al., 2007). Dans le cadre de plusieurs projets financés par le Fond National de la Recherche Scientifique Belge et l'Université de Liège, nous avons pu sonder plusieurs fois la zone la plus protégée de la tourbière et montrer que les datations  $^{210}\text{Pb}$  couplée aux datations radiocarbone plus profondes et la stratigraphie des zones polliniques étaient en parfaite concordance. Il en était de même pour l'accumulation de mercure (Figure 15).

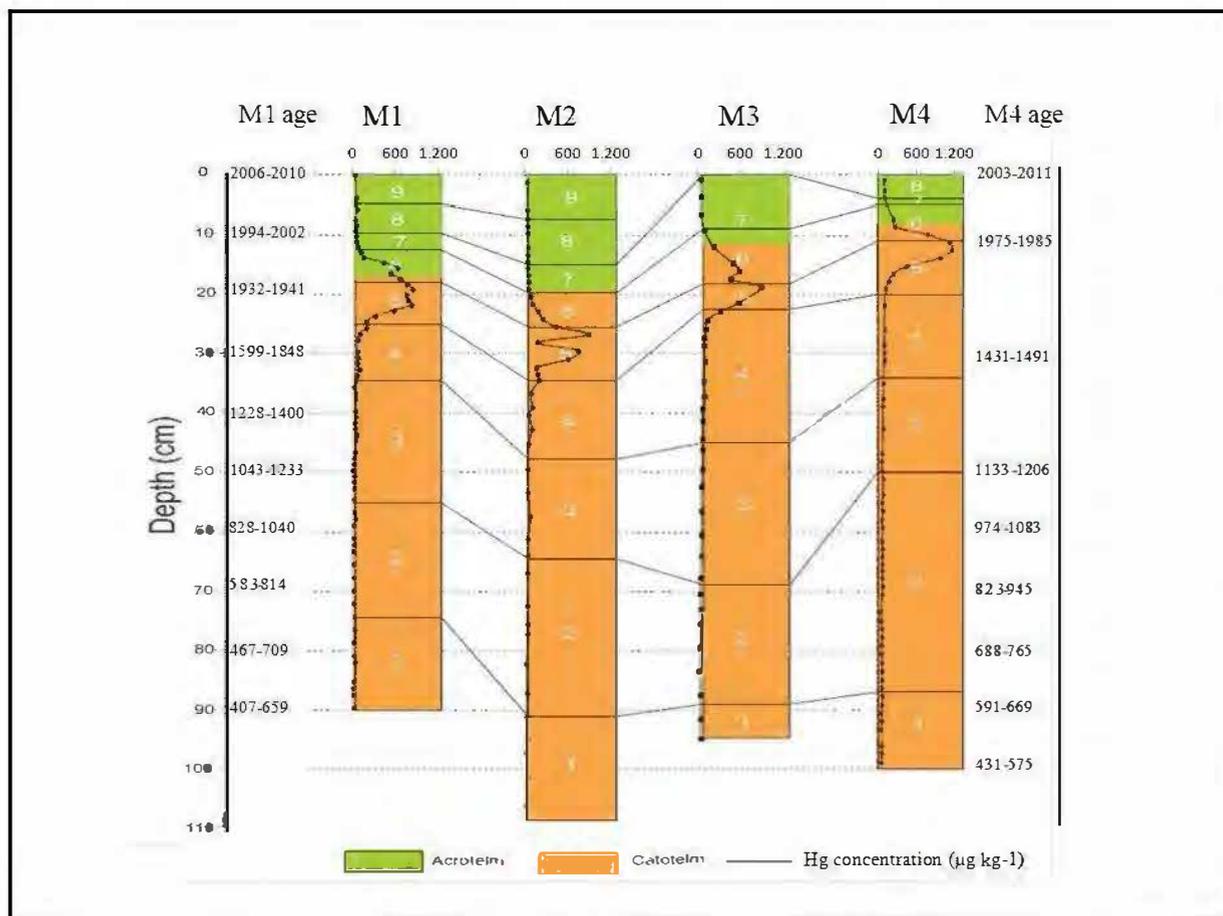


Figure 15 : Mercury concentrations and palynozone stratigraphy in 4 Wardenaar peat cores from the Misten (Allan et al., 2013c). Concentration en mercure et palynozones dans 4 sondages de la tourbière du Misten.

Un autre exemple de l'importance de la construction du modèle d'âge-profondeur est la comparaison entre 2 sondages de la tourbière de l'Etang de la Gruère, l'un échantillonné à faible résolution (5cm) et l'autre à haute résolution (2cm). Nous avons utilisé le modèle numérique BACON développé par Marteen Blauw (Blauw and Christen, 2010) pour construire ces modèles d'âge-profondeur<sup>4</sup> (Figure 16 et Figure 17).

<sup>4</sup> Pour plus de détails, voir les informations supplémentaires de la publication dans *Geology* (Le Roux et al., 2012).

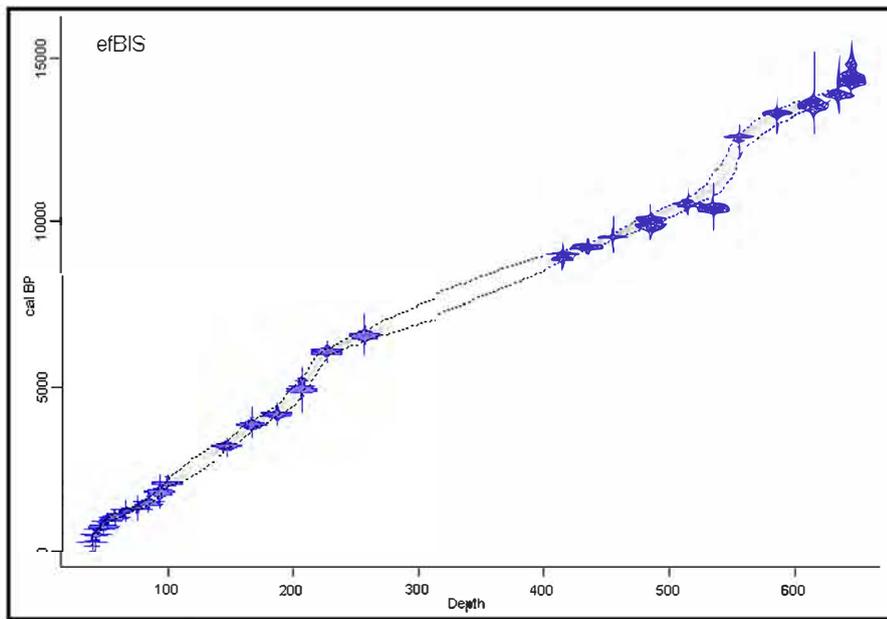


Figure 16 : Age-depth model built with Bacon for EGR2E+2F (Le Roux et al., 2012). Darker colours indicate the maximum likelihood of calendar ages for the low-resolution core (depth in cm). *Modèle d'âge-profondeur pour le sondage EGR2E+2F à basse résolution.*

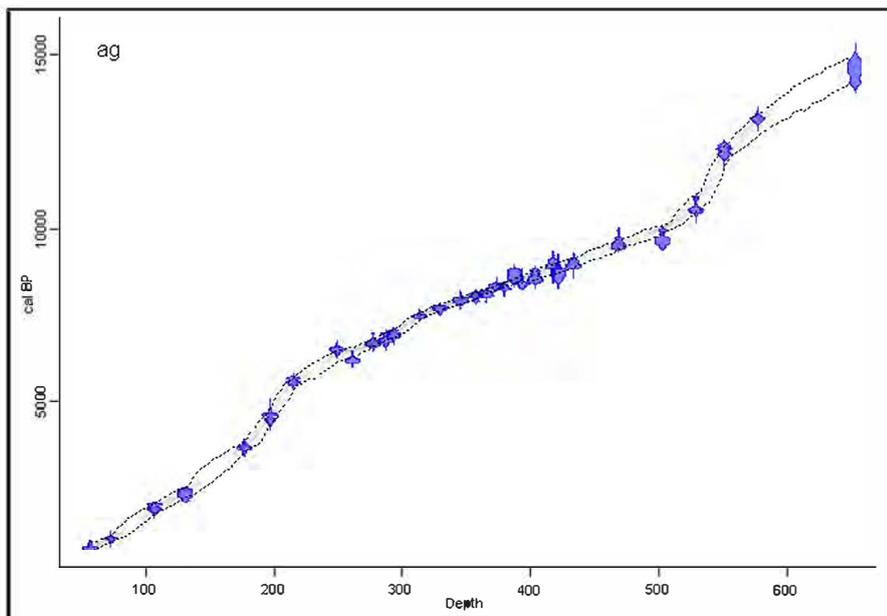


Figure 17 : Age-depth model built with Bacon for core 2A+2G (Le Roux et al., 2012). Darker colours indicate the maximum likelihood of calendar ages for the high-resolution core (depth in cm). *Modèle d'âge-profondeur pour le sondage haute résolution 2A+2G*

La Figure 18 permet de montrer l'incertitude lié au modèle d'âge pour les concentrations en titane, un élément lithogénique traceur des poussières atmosphériques. Les différences entre les 2 profils s'expliquent par la basse résolution d'une des carottes. Le pic de poussière le plus important datant du Dryas Récent (vers 12000 BP) est dédoublé, par exemple, pour le sondage à haute résolution ; cela s'explique par un double pic de poussières de 2 sources différentes (Le Roux et al., 2012) (2.1.2).

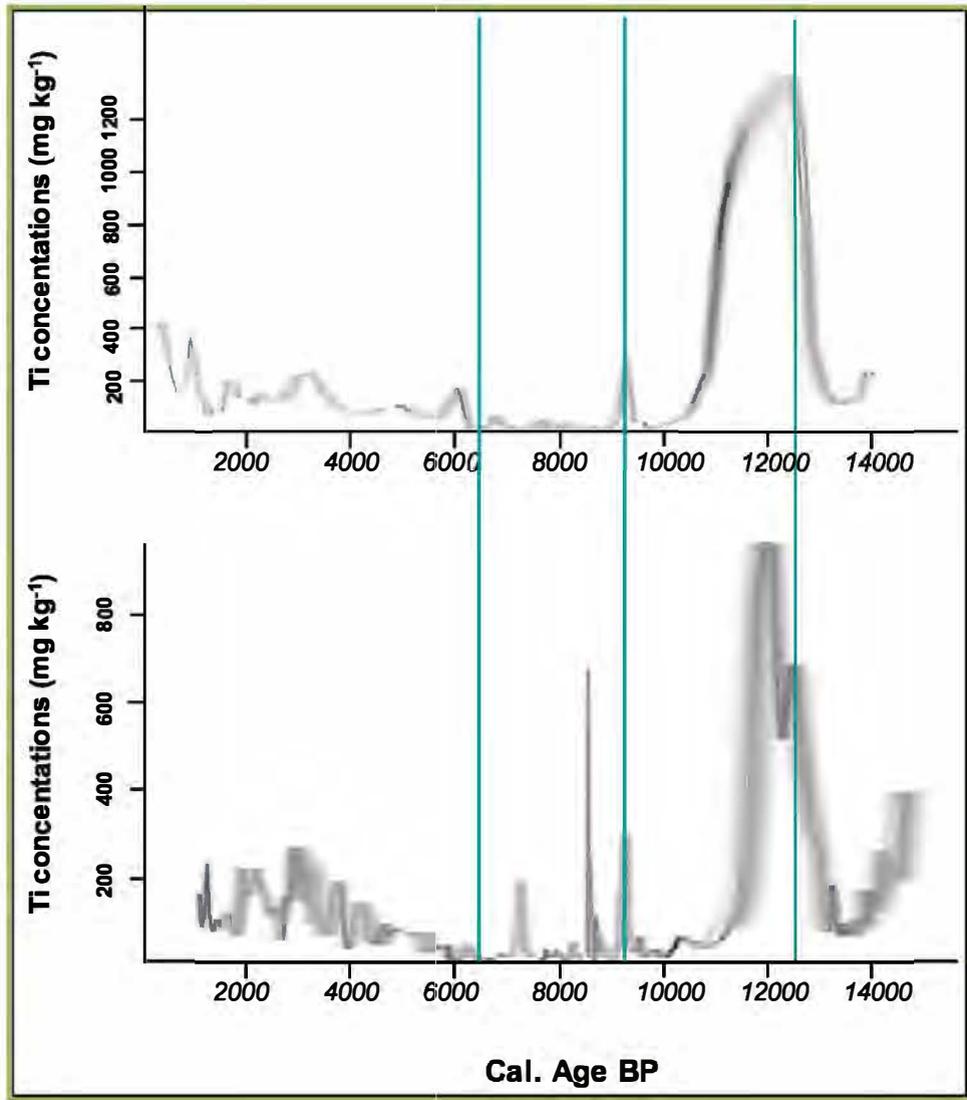


Figure 18 : Ti concentration profiles in the low-(top) and high- (bottom) resolution core. Green lines are only visual outlines. Concentrations en Ti dans les 2 sondages d'Etang de la Gruère (en haut : sondage à basse résolution – en bas: sondage à haute résolution).

Etablir ce type de chronologie robuste est indispensable afin de pouvoir comparer 2 sondages distants entre eux, ainsi que de pouvoir comparer dans le futur les enregistrements tourbeux aux autres archives environnementales. La Figure 19 montre ainsi parfaitement la tendance commune à l'Europe d'une signature anthropique du plomb à partir de 4000 cal B.P., ainsi qu'un shift dans la signature isotopique des 2 sondages vers 6000 cal B.P. témoignant d'un apport de poussières sahariennes plus important en Europe (§2.1.2). Toutefois ces sondages réalisés dans les années 90 ne permettent pas de distinguer clairement les évènements à haute résolution (i.e. #3) car insuffisamment découpés en résolution (tous les 5 cm, par exemple, pour ce sondage-ci d'Etang de la Gruère).

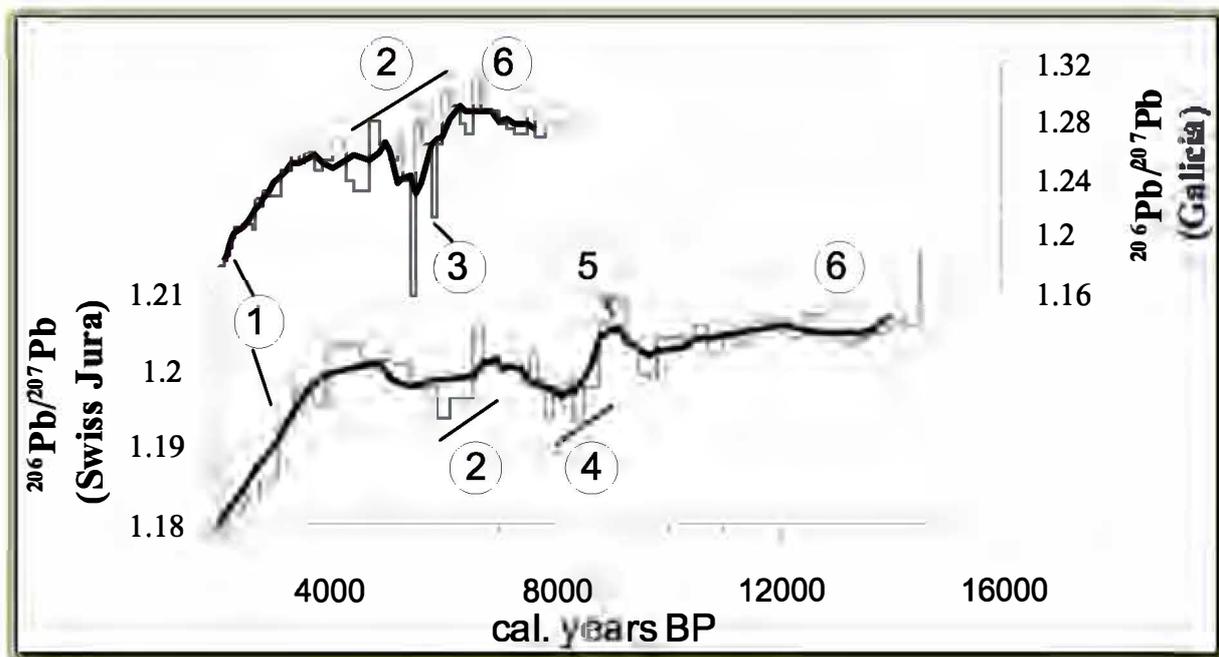


Figure 19 : Comparison of the early to middle Holocene  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  signature in two ombrotrophic peat bogs from Swiss Jura (Shotyk, 2001) and Galicia (Kylander et al., 2005) in Chambers et al. (2012).. Age-depth model of EGR from Le Roux et al. (2012). Dark lines: 4-sample running average. 1. Beginning of the metallurgy and dispersion of anthropogenic lead. 2. Instability and aridification of Sahara. 3. Unknown punctual events (Kylander et al., 2005) most probably distinct large Icelandic eruptions (Kylander et al., 2010). 4. Sahara influence around 8000 cal. BP. 5. Vasset-Killian Eruption. 6. Minerotrophic peat layers: local background. *Comparaison des signatures isotopiques en  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  dans deux tourbières ombrotrophiques du Jura Suisse et de Galice. Modèle d'âge décrit dans Le Roux et al. (2012). Lignes noires: moyenne glissante sur 4 points. 1. Début de la métallurgie et de la dispersion du plomb d'origine anthropique. 2. Instabilité et aridification du Sahara. 3. Evènements non déterminés, potentiellement d'origine volcanique. 4. Vasset-Killian éruption. 6. Couches de tourbes minérotrophes.*

### 2.1.2 Transport et dépôt des poussières enregistrés en Europe durant l'Holocène: influence des poussières d'origine saharienne, volcanique et locale

Afin de comprendre la variabilité de l'intensité et de l'origine des poussières en Europe, j'ai initié à l'Université de Liège le projet HoRACE (Holocene Records of Aerosols in Continental Environment) qui avait pour objectif de reconstituer les flux de poussières le long d'un transect entre les Hautes-Fagnes (Belgique), la Forêt Noire (Allemagne), le Jura Suisse et les Pyrénées Françaises. Les tourbières paraissent des enregistreurs idéaux des poussières et l'absence de mobilité des Terres Rares (Aubert et al., 2006) faisaient d'elles des traceurs de choix. L'existence parmi les Terres Rares du Néodyme qui comprend plusieurs isotopes permettait d'utiliser ce système isotopique comme traceur de l'origine des poussières : les signatures isotopiques étant distinctes entre les sols européens, les anciennes roches du craton saharien ou bien les poussières dérivées de matériel mantellique (volcanisme) (Grousset and Biscaye, 2005). L'étude originale sur la tourbière de l'Etang de la Gruère dans le Jura Suisse (Le Roux et al., 2012) a montré que les isotopes du Nd étaient de puissants traceurs des sources des poussières (Figure 20). Les isotopes du Nd combinés aux autres Terres Rares permettent de détecter les crypto-tephras provenant des dernières éruptions explosives des volcans de la chaîne des Puys (VKT: Vasset Killian Tephra), les poussières d'origine saharienne lors de changements climatiques plus ou moins abrupts comme le Dryas Récent (YD) ou le changement

paléoenvironnemental abrupt qui a eu lieu dans l'ensemble de l'hémisphère Nord il y a 8200 ans associé à une variation plus longue appelée l'Early Middle Holocene Transition (EMHT). Il est également possible de détecter un apport plus important et progressif de poussières sahariennes lors de l'aridification progressive du Sahara, il y a 6000 ans (Figure 21).

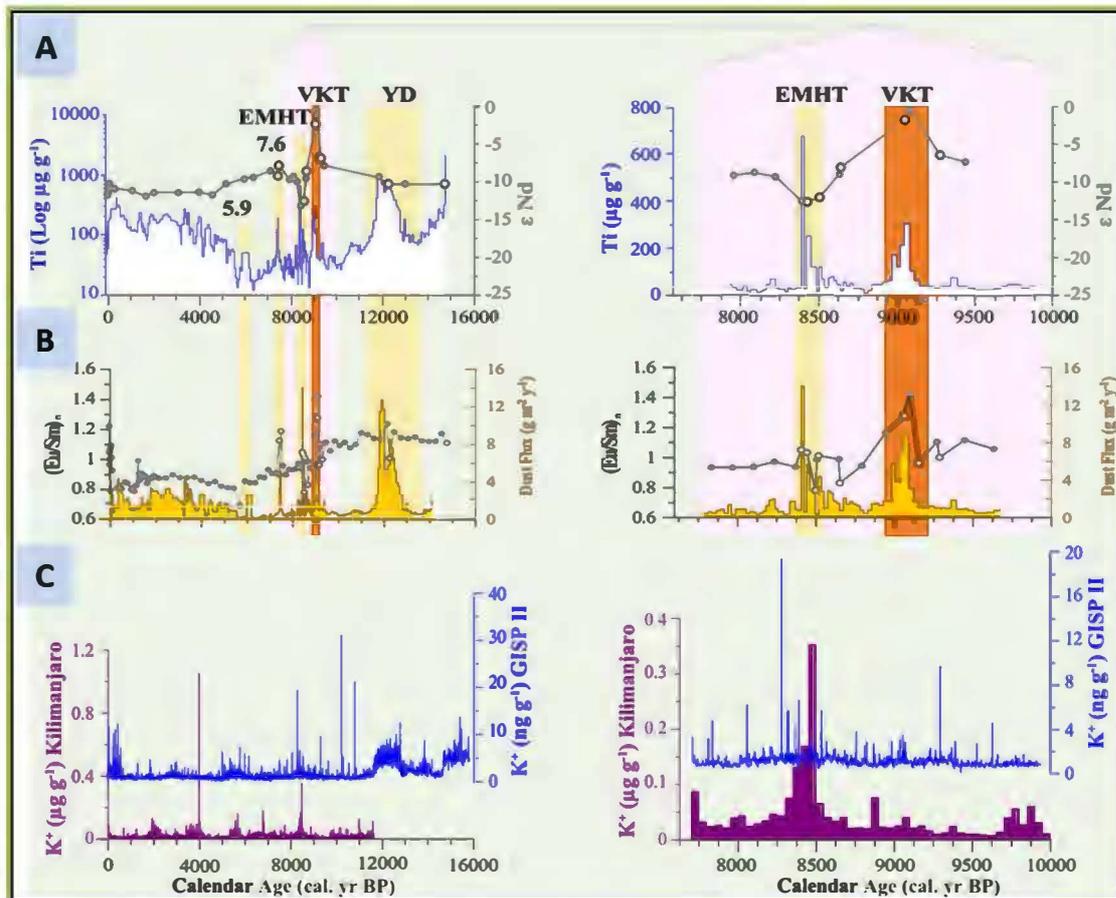


Figure 20 : Proxies versus age measured at Etang de la Gruère (Switzerland). A: Ti concentration (log scale) in high-resolution core and composite Nd isotope curve using both samples from high-resolution (white circles) and low-resolution (gray circles) peat cores. VKT—Vasset and Kilian Tephra; YD— Younger Dryas; EMHT—early-middle Holocene transition. B: (Eu/Sm)<sub>n</sub> ratio in peat samples normalized to upper continental crust composition, and dust deposition rate reconstructed from high-resolution core. C: K<sup>+</sup> measured in Kilimanjaro ice core (Thompson et al., 2002) and in Greenland (Greenland Ice Sheet Project 2, GISP II; (Mayewski et al., 1997)). *Proxies vs. Age mesurés dans la tourbière de l'Etang de la Gruère (Suisse). A. Concentrations en Ti (échelle log) à haute-résolution et courbe composite des isotopes du Nd en utilisant à la fois les échantillons provenant du sondage haute résolution (cercles blancs) et basse résolution (cercles gris). VKT: tephra Vasset-Kilian. YD: Dryas récent, EMHT: transition Holocène inférieur – Holocène moyen. B. rapport (Eu/Sm)<sub>n</sub> dans les échantillons de tourbes normalisés par rapport à la composition de la croûte continentale, and dépôt de poussière reconstruit à l'aide du sondage haute-résolution. C: K<sup>+</sup> mesuré dans une carotte de glace et au Groenland.*

La Figure 21 met ainsi en évidence 4 phases principales dans le régime des poussières se déposant dans le Jura Suisse:

- T1. 2 millénaires de changement dans les sources de poussières en lien avec l'aridification du Sahara,
- T2. Stabilisation de l'apport de poussières sahariennes après 5000 B.P.,

T3. Les 2 derniers millénaires sont clairement marqués par une hausse de la poussière due aux activités humaines en lien avec une hausse des pollens de céréales, de plantain et une signature isotopique plus locale.

T4. A partir de 1967, une diminution des poussières en lien avec une reforestation et donc une stabilisation éventuelle des sols. La signature du Nd semble tracer une augmentation relative des apports sahariens dans les poussières se déposant sur la tourbière.

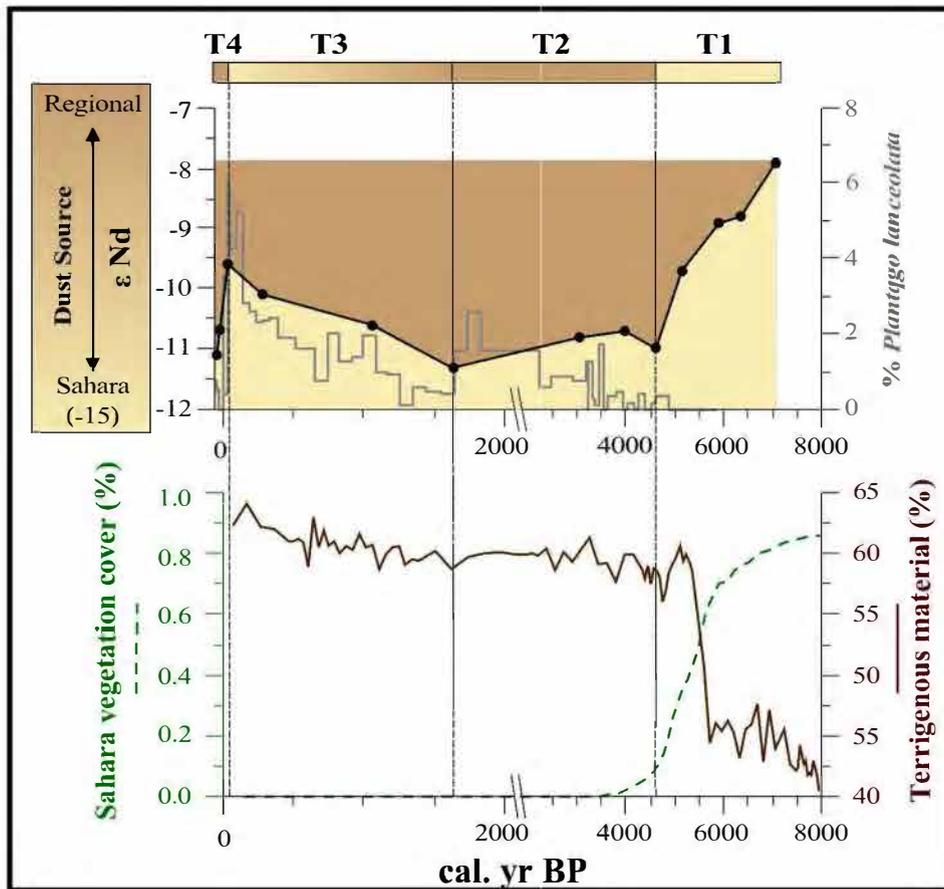


Figure 21 : The  $\epsilon Nd$  isotope signal as recorded in low-resolution Etang de la Gruère peat core, percentage of *Plantago lanceolata*, percentage of terrigenous material in core from African Atlantic coast (deMenocal et al., 2000), and modeled percentage of Sahara vegetation cover (Claussen et al., 1999). T1–T4 are time periods. Signal  $\epsilon Nd$  enregistré dans le sondage basse résolution d'Etang de la Gruère. Pourcentage de *Plantago lanceolata*, pourcentage de matériel terrigène dans une carotte de la côte africaine atlantique, et modélisation du couvert végétal.

Nos résultats montrent que les éruptions Vasset-Killian et l'évènement Saharien il y a 8400 ans représentent respectivement 2,4% et 4,6% de la poussière déposée ces 10,000 dernières années. Cela peut paraître anodin mais ces quantités de poussières déposées rapidement ont une influence sur les milieux pauvres en nutriment. L'étude couplée des pollens d'arbre enregistré dans la tourbière montre une éventuelle influence du dépôt volcanique sur l'expansion des différentes essences dans le Jura Suisse. Plus globalement, les poussières sahariennes émises en grande quantité il y a 8400 ans ont non seulement impacté les milieux continentaux mais potentiellement l'Océan Atlantique. Cette fertilisation aurait pu initier la chute de 25 ppm de  $CO_2$  mesurée par Wagner et al. (2002) il y a 8200 ans.

### 2.1.3 Influence de l'homme sur les poussières depuis la révolution néolithique

L'impact de l'Homme sur les poussières atmosphériques et leur dépôt dans les tourbières ne semblent pas marqués dans tous les cas. Nos récentes études sur la tourbière du Misten en Belgique (Fagel et al. submitted; Allan et al., 2013b; De Vleeschouwer et al., 2012a) montre que le début de l'agriculture a peu influencé les poussières locales dans le cas du Misten contrairement à l'Etang de la Gruère (Le Roux et al., 2012). Cela confirme la pertinence des traceurs géochimiques pour tracer les sources et l'importance des poussières précipitées et piégées dans les tourbières depuis plusieurs milliers d'années afin d'identifier et discriminer les événements d'origine locaux, régionaux ou globaux.

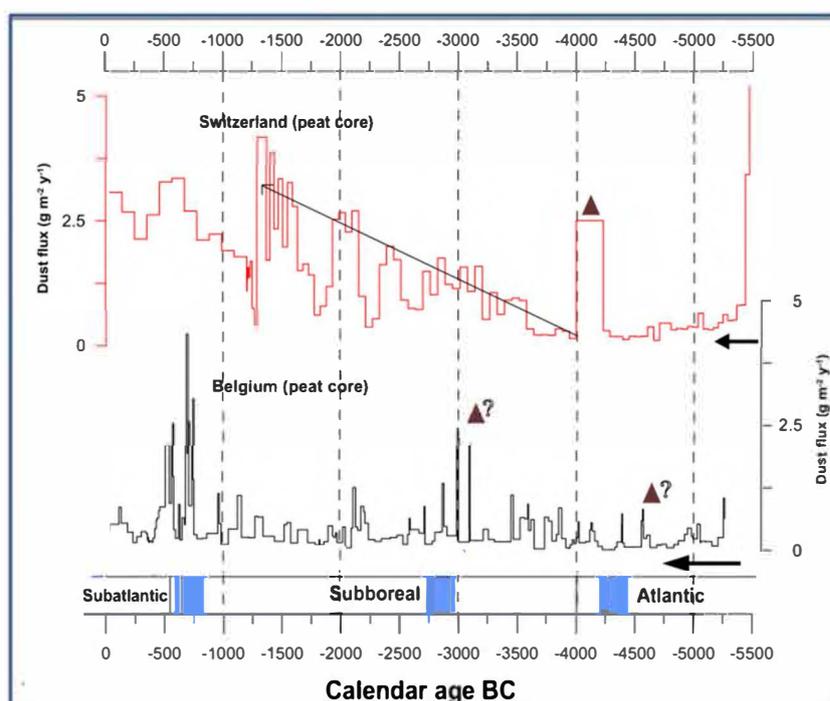


Figure 22 : Comparison between dust flux measured in Misten bog (Belgium) (black line, this study) with the dust flux ( $\text{g m}^{-2} \text{yr}^{-1}$ ) measured in Switzerland (red line, Le Roux et al., 2012). The three vertical dark blue bars show the cold events identified by Wanner et al. (2011). Brown triangles represent potential volcanic event. Black arrow underlines the minerotrophic peat section for the Misten Bog (adapted from Allan et al. (2013b) – *comparaison entre les flux de poussières mesurées dans les tourbières du Misten (Belgique) et de l'Etang de la Gruère (Suisse). Les trois lignes verticales pointillées montrent des événements froids identifiés par Wanner et al. (2011). Les triangles bruns représentent des éruptions volcaniques potentielles. La flèche noire souligne la partie minérotrophique de la tourbière du Misten*

Le plateau des Hautes-Fagnes et le sondage du Misten en son sein, semblent être plus sensibles aux poussières d'origine lointaine du fait de la grande superficie de cette tourbière. Des changements de régime de poussière en flux et en signature isotopique semblent être associés à la variabilité des minimums d'activité solaire. Le minimum de Maunder associé au Petit Age Glaciaire semble avoir été, par exemple, une période marquée par des changements de conditions environnementales avec plus de poussières d'origine locale (Figure 23) (Fagel et al. submitted, De Vleeschouwer et al. (2012b); De Vleeschouwer et al. (2009b)). L'apport accru de poussières locales peut provenir de régimes atmosphériques plus vigoureux favorisant l'arrachage de particules du sol (de Jong et al., 2010).

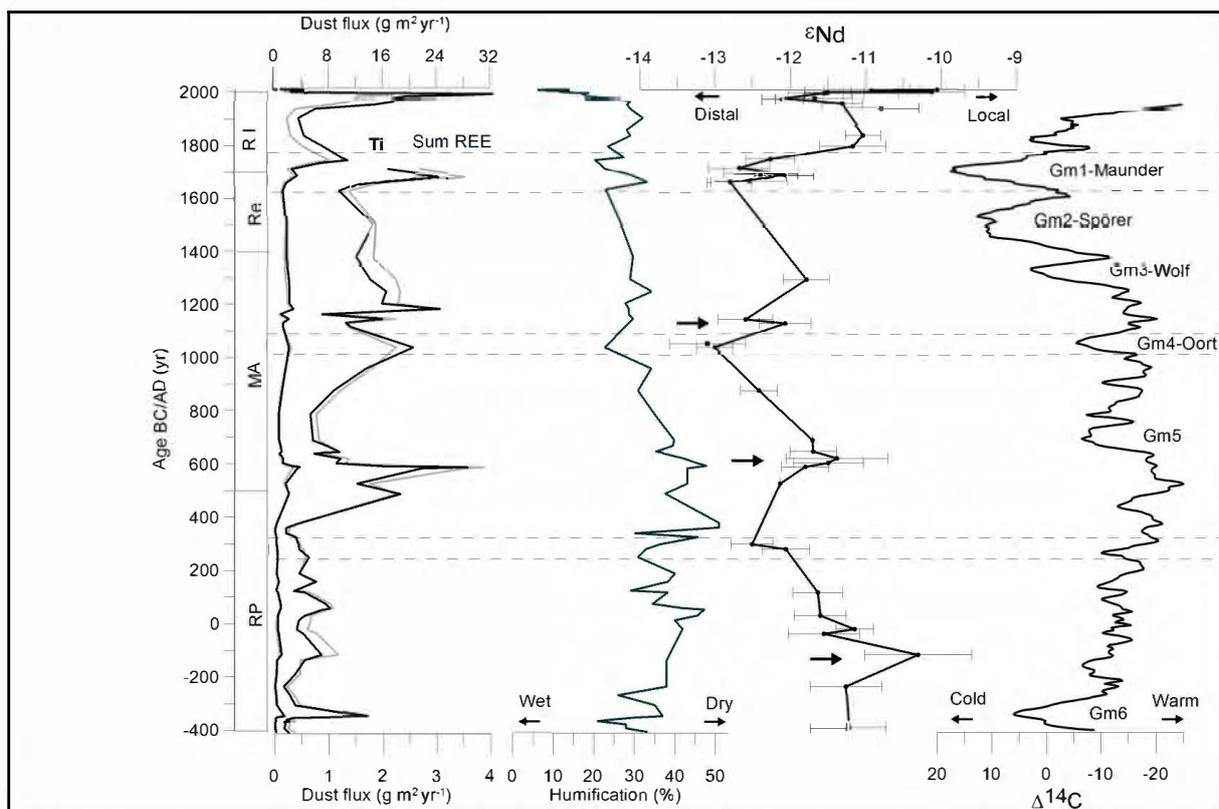


Figure 23 : Dust flux as estimated using Ti and REE concentrations in the Misten peat core, humification used here as a qualitative proxy of wetness, Nd isotope as aerosol tracer and  $\Delta^{14}\text{C}$  as solar activity proxy (Fagel et al., *submitted*,  $\Delta^{14}\text{C}$  from Reimer et al. (2009)). Flux de poussière estimé en utilisant le Titane et les terres rares dans la tourbière du Misten, l'humification utilisée comme un proxy qualitatif de l'humidité, les isotopes du Nd comme un traceur des aérosols et le  $\Delta^{14}\text{C}$  comme un indicateur de l'activité solaire.

## 2.2 Variabilité spatiale de l'intensité et des sources des dépôts des aérosols

### 2.2.1 En France

Les isotopes radioactifs d'origine naturelle sont de précieux traceurs des phénomènes atmosphériques. En particulier le plomb-210 ( $^{210}\text{Pb}$ ) (§1.2) et le béryllium-7 ( $^7\text{Be}$ ), un radio-isotope d'origine cosmogénique produit dans la haute atmosphère sont utiles. Le béryllium-7 étant comme le plomb-210 rapidement lié aux aérosols submicroniques; toutefois il est distribué dans l'intégralité de la colonne d'air contrairement au  $^{210}\text{Pb}$  enrichi dans la couche limite de surface. La Figure 24 compare ainsi les rapports  $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$  dans des précipitations collectées mensuellement dans trois lieux différents : Bordeaux, La Seyne sur Mer-Toulon et Dijon. Premièrement, si les précipitations sont très importantes dans le mois, les trois lieux ont des rapports  $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$  faibles. Cela montre que les processus de nettoyage, lessivage de l'atmosphère ("washout") comparé aux radionucléides apportés par la pluie elle-même ("rainout") sont négligeables après une longue période de pluie. Pour des quantités plus faibles de précipitations, les rapports  $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$  et leurs variabilités sont plus grandes dans le site méditerranéen. Cela peut être expliqué par les pluies soudaines affectant ce site

et favorisant le lessivage des particules atmosphériques. Les rapports  $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$  sont plus larges également à l'Est du fait de l'enrichissement en plomb-210 au-dessus des masses continentales.

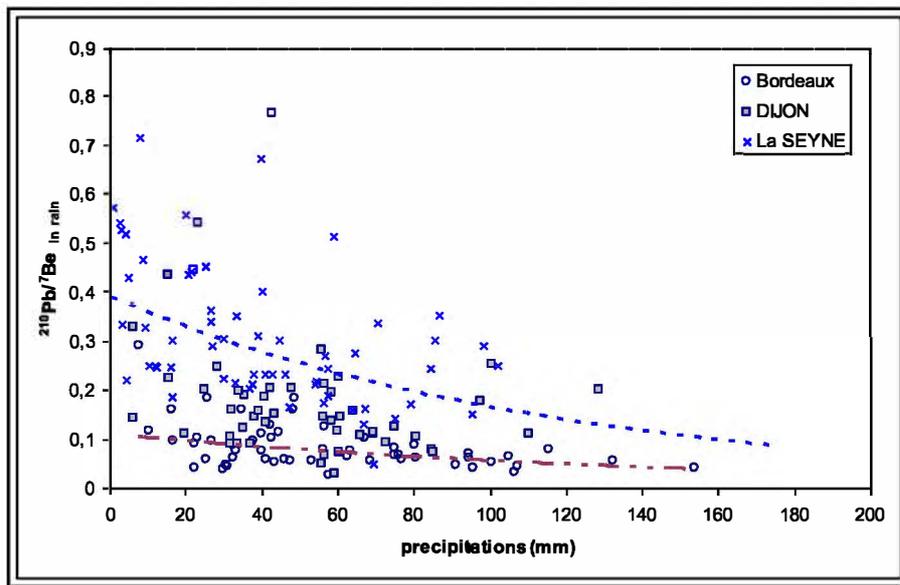


Figure 24 :  $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$  ratio in rainwater vs. the amount of monthly precipitations (Masson et Le Roux, unpublished data)- rapport  $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$  dans l'eau de pluie vs. la quantité de précipitations mensuelles à Bordeaux, Dijon et la Seyne sur Mer

En considérant une échelle de temps plus longue, le dépôt de plomb-210 peut être considéré relativement constant. Le plomb-210 est piégé dans les sols lorsqu'il se dépose et sa mobilité est très faible. Les sols (ainsi que les tourbières) sont alors de précieux "pluviomètres" enregistrant localement 140 ans<sup>5</sup> de dépôt de plomb-210. Les activités totales en plomb-210 d'origine atmosphérique mesurées dans les profils de sols peuvent être ramenées à la surface et comparées entre elles spatialement et en fonction des précipitations annuelles. Turekian and Graustein (2003 et références citées) et Appleby (Appleby, 2001) ont montré qu'il existe une bonne corrélation entre le plomb-210 mesuré dans les sols et les précipitations annuelles (Figure 25 a). Toutefois, nous avons montré que cette relation était légèrement différente dans le cas des dépôts en montagne (Le Roux et al., 2008) principalement à cause des dépôts dits orographiques (Figure 25 b).

<sup>5</sup> Environ 7 fois la  $\frac{1}{2}$  vie.

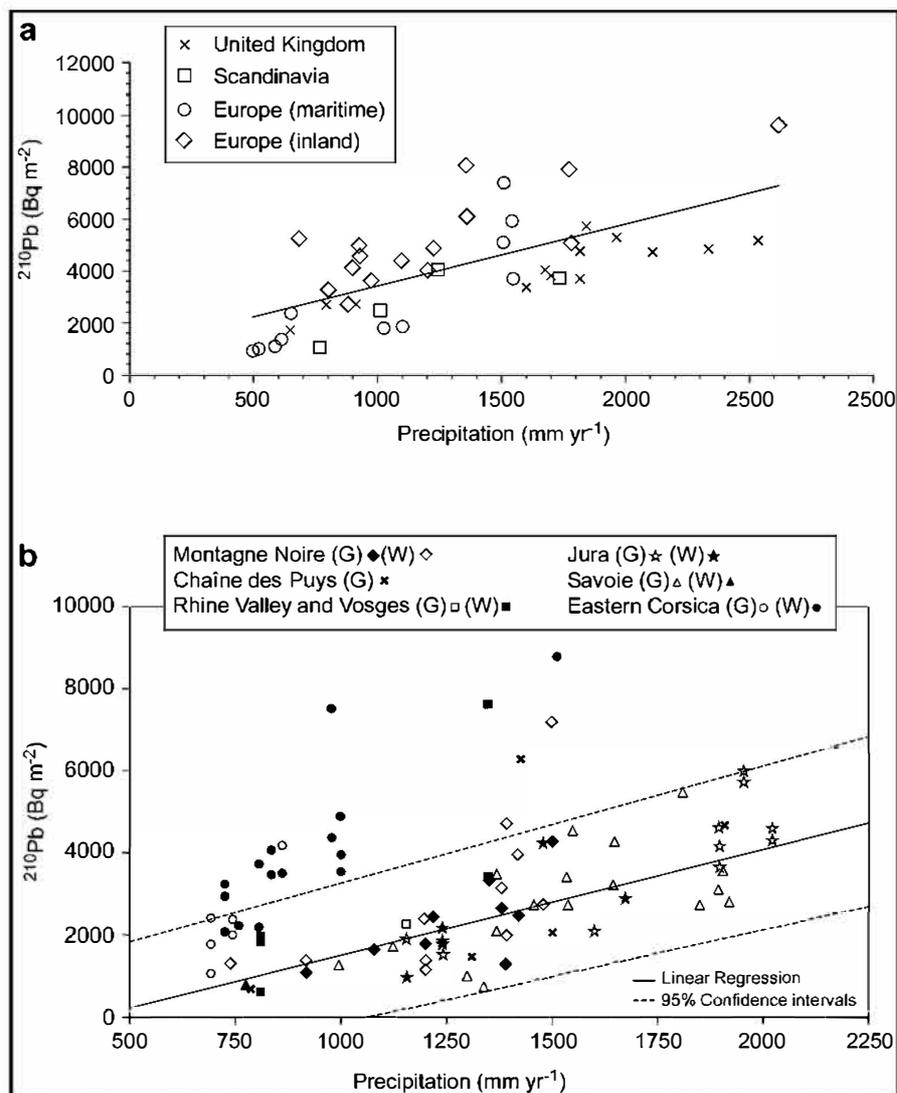


Figure 25 : (a)  $^{210}\text{Pb}$  inventory vs. precipitation rate observed in Europe and Scandinavia, from Appleby (2001 and personal communication). (b)  $^{210}\text{Pb}$  inventory vs. precipitation rate for French soils from different mountain massifs, from Le Roux et al. (2008) in Le Roux and Marshall (2010) – (a) activités surfaciques en plomb-210 vs. Taux de précipitations annuelles mesurés en Europe et Scandinavie d'après Appleby (2001) et Appleby (communication personnelle). (b) Activités surfaciques en plomb-210 vs. Précipitations annuelles pour des sols français dans différents massifs

## 2.2.2 En fonction de l'altitude

Les nuages orographiques induisent un dépôt accru sur les sommets montagneux. Par exemple, les sites de haute altitude montrent une augmentation de 30% dans les inventaires de  $^{210}\text{Pb}$  comparée à la relation  $^{210}\text{Pb}$ -précipitations établie dans des sites de basse altitude (Figure 25). Comme les radionucléides artificiels et le  $^{210}\text{Pb}$  ont des distributions passées et présentes différentes dans la troposphère (Figure 26), j'ai utilisé les rapports  $^{137}\text{Cs}_{\text{NWT}}/^{210}\text{Pb}$  et  $^{239+240}\text{Pu}/^{210}\text{Pb}$  dans les sols pour estimer les dépôts d'origine orographique et l'origine verticale des aérosols. Par exemple, le rapport  $^{210}\text{Pb}/^{239+240}\text{Pu}$  dans les sols augmente avec l'altitude, ceci est dû à un dépôt accru d'aérosols de basse altitude (couche de surface) (Figure 27).

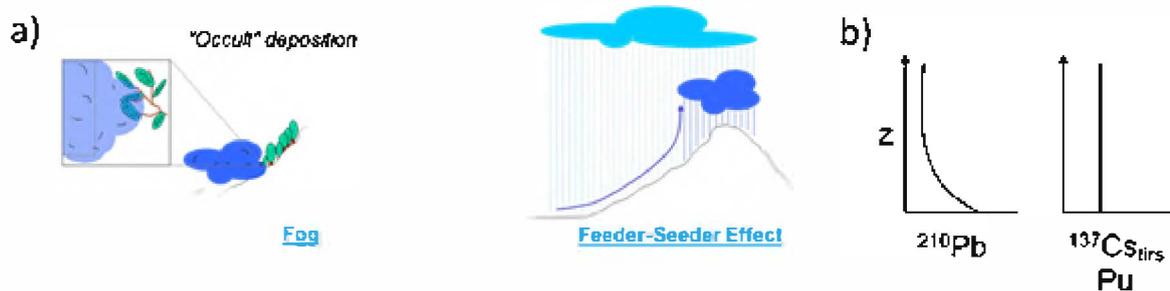


Figure 26 : a) two orographic phenomenons scavenging  $^{210}\text{Pb}$ -enriched aerosols b) theoretical distributions of  $^{210}\text{Pb}$  and Nuclear Weapons Tests derived radionuclides ( $^{137}\text{Cs}_{\text{NWT}}$  and Pu). a) 2 phénomènes orographiques entraînant les aérosols de surface enrichis en plomb-210 b) distributions théoriques verticales du plomb-210 et des radionucléides émis dans la haute atmosphère lors des essais nucléaires aériens.

Les dépôts atmosphériques dits "occultes" augmentent avec l'altitude principalement à cause de la présence de nuage orographique et aussi de mécanismes type « feeder-seeder » (Figure 26) lessivant et entraînant des aérosols de surface enrichis en  $^{210}\text{Pb}$ .

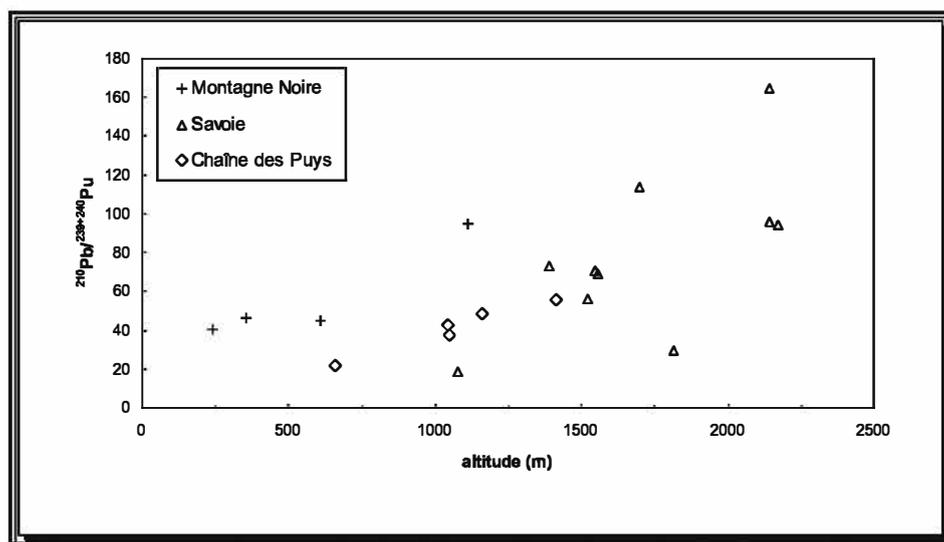


Figure 27:  $^{210}\text{Pb}/^{239-240}\text{Pu}$  in soils vs. altitude in Massif Central (Chaîne des Puys), Savoie et Montagne Noire. Rapports  $^{210}\text{Pb}/^{239-240}\text{Pu}$  dans les sols vs. altitude dans le Massif Central, la Montagne Noire et en Savoie

Les inventaires de radionucléides dans les sols sont donc de bons estimateurs des dépôts des aérosols et la combinaison des rapports entre plusieurs radionucléides, d'origine atmosphérique, mais aux distributions différentes dans la colonne d'air, est prometteuse pour déterminer la sensibilité des différents massifs montagneux à la pollution atmosphérique.

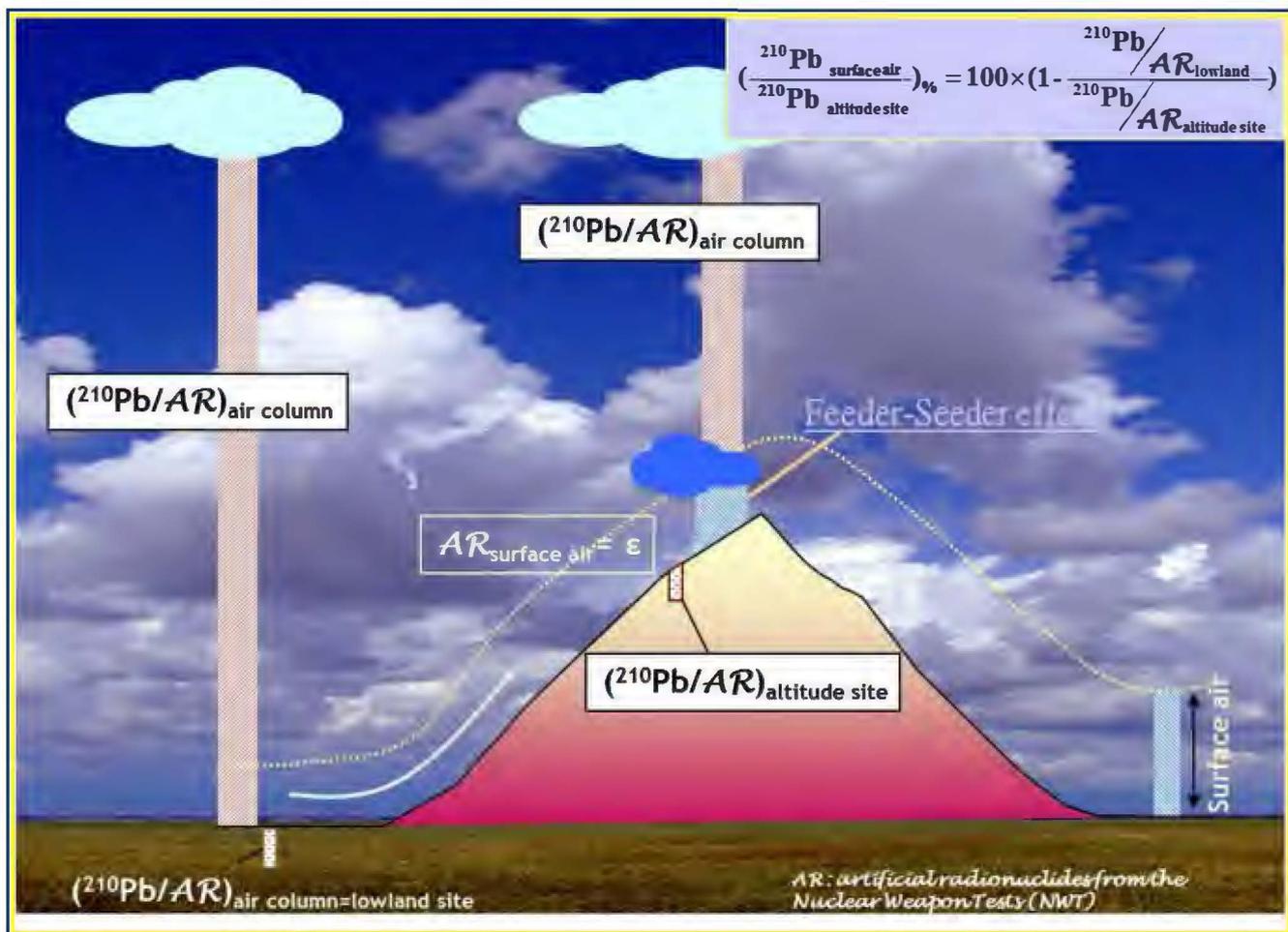


Figure 28 : Illustration of the  $^{210}\text{Pb}$ /artificial radionuclides mass balance model used in French mountain ranges. *Illustration du modèle à 2 compartiments se basant sur les radionucléides artificiels issus des tirs et du plomb-210 pour calculer la part d'aérosols appartenant à la couche limite déposés par les phénomènes orographiques*

En utilisant un modèle de bilan de masse assez simple (Figure 28), nous avons estimé que les dépôts occultes et les mécanismes de type « *feeder-seeder* » contribuaient à plus de 50% du dépôt total de plomb-210 ainsi que des aérosols submicroniques dans les sites français d'altitude étudiés (Le Roux et al., 2008). Ceci a des conséquences considérables sur la contamination des sols montagnards par le transport lointain ou provenant des vallées car les contaminants comme les ETM ou les radionucléides artificiels potentiellement émis par un accident d'un réacteur sont aussi liés aux aérosols submicroniques.

Le modèle ci-dessous (Figure 29) présente le même type d'expérimentation où nous avons prélevé des sols en fonction de l'altitude le long de trois transects au Puy de Dôme (Le Roux et al., in prep). Les inventaires de plomb-210 ainsi que le rapport  $^{210}\text{Pb}/^{137}\text{Cs}_{\text{NWT}}$  montrent ainsi clairement une augmentation des dépôts d'aérosols de surface (Le Roux et al., in prep.).

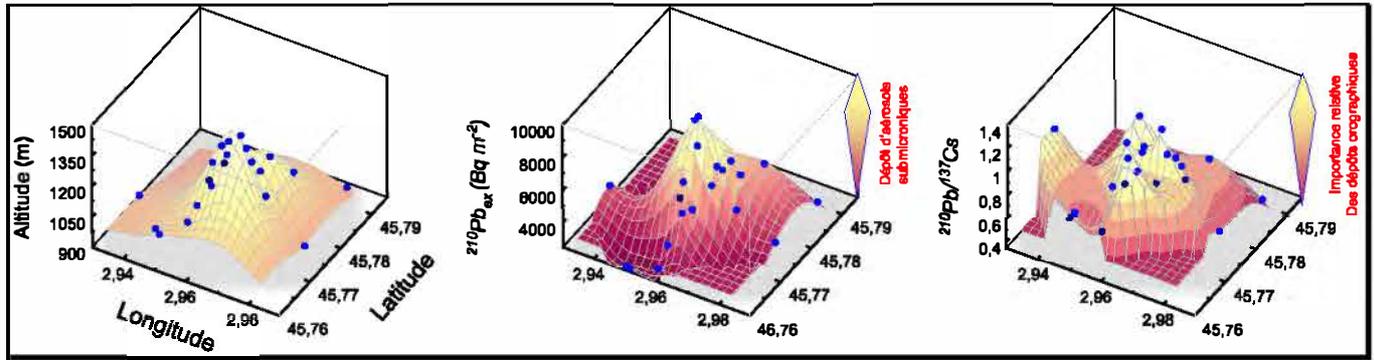


Figure 29 : Numerical topographic model of Puy de Dôme,  $^{210}\text{Pb}$  soil inventories,  $^{210}\text{Pb}/^{137}\text{Cs}$  ratios. *Modèle numérique de terrain du Puy de Dôme, inventaires surfaciques en  $^{210}\text{Pb}$  et rapports  $^{210}\text{Pb}/^{137}\text{Cs}$  dans les sols du Puy de Dôme*



**Photo 1 : Puy de Dôme**

### **3 Chronologie et variabilité spatiale des perturbations par l'Homme des cycles des éléments trace métalliques et radionucléides artificiels**

---

L'Homme depuis les débuts de la métallurgie, il y a plus de 7000 ans, a émis des contaminants dans l'atmosphère. Ces émissions ont perturbé les cycles géochimiques des ETM et introduit des radionucléides artificiels dans l'environnement. En l'absence de capteurs dans le temps et dans l'espace, quelle est la chronologie des dépôts de ces contaminants atmosphériques? Quelle est la répartition des dépôts de ces contaminants atmosphériques? Quelles sont les sources et l'intensité des accumulations des contaminants vers les sols?

---

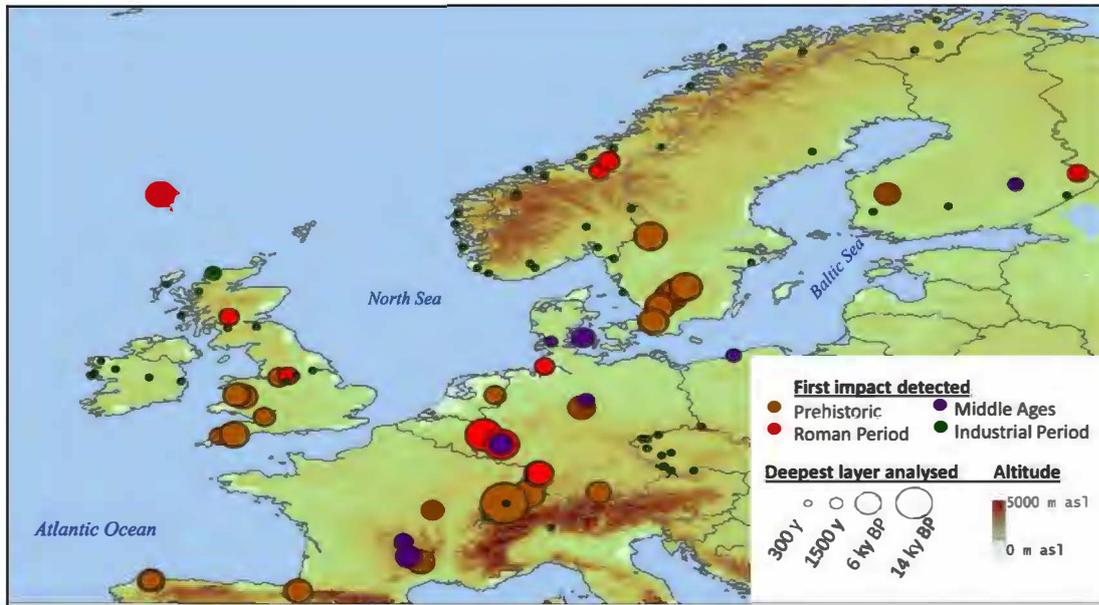
#### **3.1 Perturbation par l'homme des cycles biogéochimiques des ETM**

##### **3.1.1 Le plomb**

Le plomb est un métal toxique non essentiel pour l'homme (Shotyk and Le Roux, 2005a). Son impact sur la santé des écosystèmes et sur l'homme fait encore l'objet de recherches actives près de cinquante ans après les travaux séminaux de Patterson (1965). En effet, la rémanence du plomb dans l'environnement issu de l'utilisation de l'essence plombée, des activités industrielles et minières est la cause d'une contamination persistante de l'environnement. De plus, la présence encore de canalisations et de peintures au plomb entraîne aussi des risques de contamination par ingestion qui sont malheureusement encore d'actualité. Parmi les travaux en cours, citons l'impact du plomb sur la fertilité masculine (Giaccio et al., 2012), sur le développement neuronal en particulier des enfants (Huang et al., 2012; Lanphear et al., 2000; Mielke, 1999; Triantafyllidou and Edwards, 2012), sur la criminalité (Nevin, 2007), sur son coût financier pour la société (Bierkens et al., 2012). En France par exemple, si le risque de saturnisme ( $>100\mu\text{g dl}^{-1}$  de plomb dans le sang) a fortement chuté chez les enfants ces dernières années, la moyenne géométrique chez les enfants de 1 à 6 ans ( $15,1\ \mu\text{g dl}^{-1}$ ) (Etchevers et al., 2010) est toujours supérieure à  $10\mu\text{g Pb dl}^{-1}$  de sang, ce qui est supérieur aux standards américains. Or l'impact de la moindre présence de plomb dans le sang est toujours discutée (Huang et al., 2012). Une concentration supérieure à  $1\ \mu\text{g dl}^{-1}$  entraîne vraisemblablement des effets notables sur le développement neuronal (Gilbert and Weiss, 2006; Lanphear et al., 2005) et elle est supérieure aux concentrations rencontrées dans les populations préhistoriques (Patterson et al., 1991).

Depuis les travaux précurseurs de Patterson et ses collègues (Murozumi and Nakamura, 1982; Patterson, 1965; Settle and Patterson, 1980), il a été démontré que le plomb d'origine anthropique a été dispersé dans les plus lointains environnements comme les fonds des océans (Véron et al., 1987), les pôles (Rosman et al., 1998; Rosman et al., 1997; Vallelonga et al., 2002), les sols forestiers (Hernandez et al., 2003) et les plus hauts sommets (Barbante et al., 2004; Schwikowski et al., 2004).

Les tourbières, archives environnementales des dépôts atmosphériques ont également enregistré les dépôts de plomb en fonction du temps (Figure 30). Les enregistrements tourbeux ont également mis en évidence des contaminations en Europe de l'Ouest au plomb dès l'âge du Bronze (De Vleeschouwer et al., 2010b; Le Roux et al., 2004) et permis de déterminer l'importance des contaminations anciennes vis-à-vis des contaminations plus récentes dues à l'essence plombée ou aux activités industrielles (Le Roux et al., 2005).



**Figure 30 : Map of atmospheric Pb contamination in Europe reconstructed using age-dated peat cores. Carte des reconstructions de la contamination au plomb en utilisant des sondages de tourbes datés**

Dans les régions minières comme la Forêt Noire Allemande, nous avons pu montrer que plus de 50% de la contamination au plomb provient de dépôts antérieurs à la Révolution Industrielle. Nos travaux qui ont initié la thèse actuelle d'Adrien Claustres (2012-2015) montrent qu'il en est de même dans le Pyrénées. Une grande part du plomb stocké dans les sols de montagne a pour origine les activités humaines préindustrielles.

L'histoire de la dispersion du plomb en Europe de l'Est est légèrement différente en particulier pour les 200 dernières années. L'absence d'un fort développement du trafic automobile pendant l'ère communiste ainsi qu'une activité industrielle moins contrôlée a induit une part relative plus importante de plomb provenant des activités industrielles et minières. C'est le cas en Pologne où nous avons pu montrer aussi un moindre impact de l'essence plombée sur la signature isotopique du plomb déposé dans les années 70-80 par rapport, par exemple, au plomb déposé dans un lac d'Allemagne du Nord (Figure 31) (De Vleeschouwer et al., 2009a).

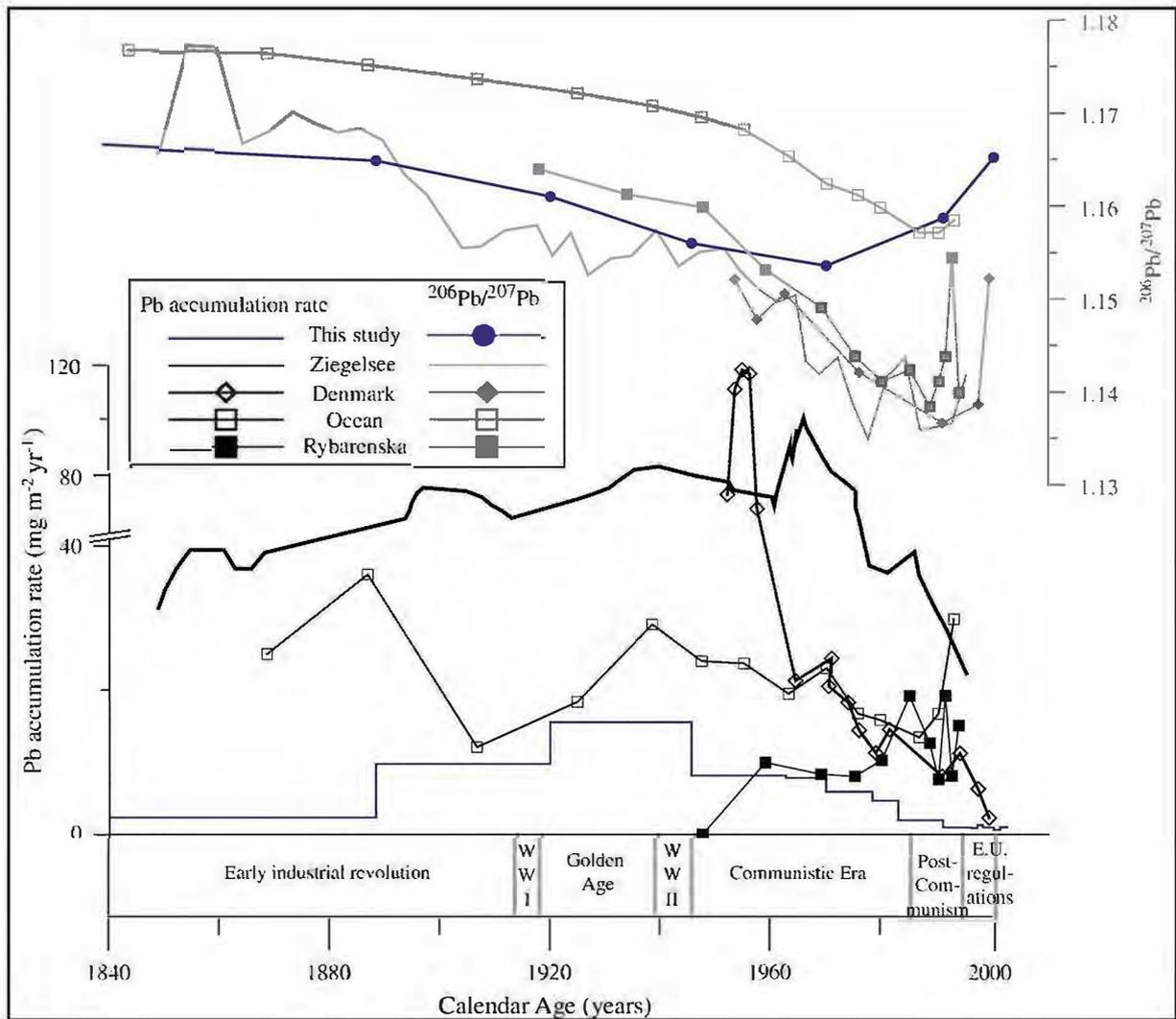


Figure 31 : Comparison of <sup>206</sup>Pb/<sup>207</sup>Pb and Pb accumulation profiles in Słowińskie Bloto (De Vleeschouwer et al., 2009a) since AD 1840 with peat records from Denmark (Shotyk et al., 2003), Ocean and Rybarenska peat bogs, Czech Republic (Novak et al., 2008), and a lake record from Ziegelsee, North Germany (Gäbler and Suckow, 2003) – *comparaison entre la signature isotopique du plomb (<sup>206</sup>Pb/<sup>207</sup>Pb), l'accumulation de plomb dans la tourbière de Słowińskie Bloto sur la côte polonaise de la Baltique avec des enregistrements tourbeux du Danemark, de la République Tchèque et un lac du nord de l'Allemagne.*

Le plomb n'est pas le seul élément trace métallique dont le cycle géochimique global a été fortement perturbé par l'homme. La Figure 32 montre ainsi que les dépôts atmosphériques du cuivre et du mercure ont aussi augmenté sous l'influence de l'homme en Grande Bretagne mais principalement après le XV<sup>ème</sup> siècle.

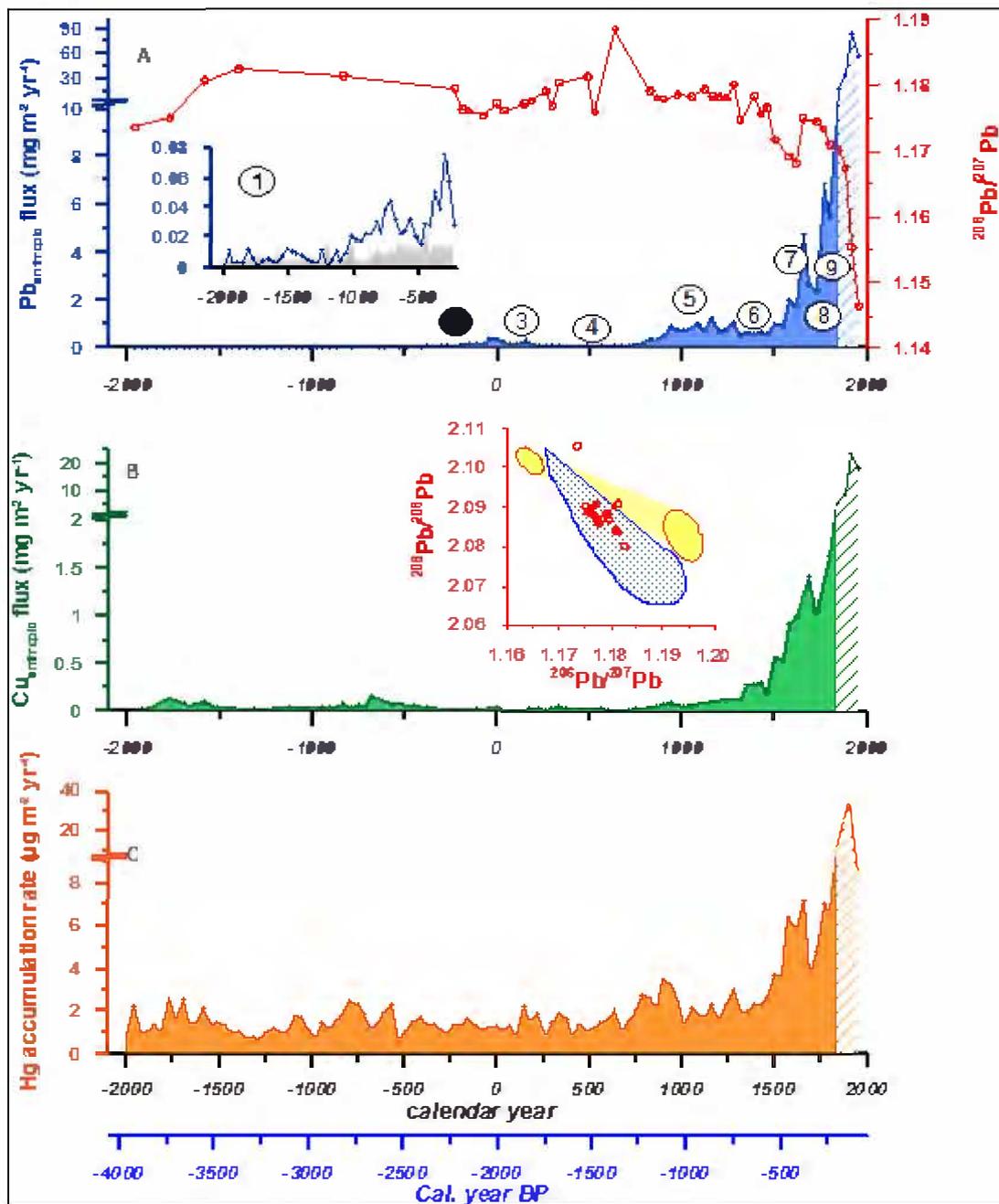


Figure 32 : Lead (Pb), Copper (Cu) and Mercury (Hg) chronologies in Lindow Bog (UK). A. Fluxes of anthropogenic Pb and <sup>206</sup>Pb/<sup>207</sup>Pb from 2000 BC to 1800 AD with focus on the pre-Roman period (Inset) to emphasize the early increase in Pb deposition around 1000 BC from Le Roux et al. (2004). The natural estimated Pb flux is also represented in light grey. (1) Begin of use of leaded bronze in Great Britain (2) Iron Age, (3) Roman Occupation (43 AD–410 AD), (4) Dark Ages, (5) Norman-Medieval Period, (6) Hundred Years War, plague epidemic (1349 AD), (7) German workers brought to re-organize the mines (16th century) (8) plague epidemic (1645 AD), (9) Industrial Revolution. B. Flux of copper and Pb three-isotope plot (inset) with peat samples (red), UK ores (blue) and Spanish ores (yellow), indicating UK ores as the likely source of Pb atmospheric deposition over Iron Age and Roman Occupation. C. Hg accumulation rate in De Vleeschouwer et al. (2010b). Hatched section: recent period possibly disturbed by peat farming. *Chronologies du plomb (Pb), cuivre (Cu) et mercure (Hg) dans la tourbière de Lindow (GB). A. Flux de plomb d'origine anthropique and <sup>206</sup>Pb/<sup>207</sup>Pb de 2000 BC à 1800 AD avec un zoom sur la période pré-romaine pour mettre en évidence l'augmentation précoce du dépôt de plomb vers 1000 BC*

### 3.1.2 Le mercure

La Grande-Bretagne, premier pays de la révolution industrielle, a vraisemblablement été aussi le premier pays à émettre fortement du mercure d'origine anthropique dans l'atmosphère (Shotyk et al., 2005). En effet, la combustion de charbon est une des causes principales de l'introduction de mercure exogène primaire dans l'atmosphère. C'est également la cause principale de l'augmentation des émissions de mercure, les centrales à charbon étant de plus en plus utilisées en Asie (Driscoll et al., 2013; Selin, 2009). Le mercure est un élément non essentiel qui est dispersé sous forme gazeuse dans l'atmosphère. Il peut se transporter relativement loin, en particulier en Arctique où plusieurs phénomènes entraînent son dépôt au sol puis son accumulation et son effet délétère le long de la chaîne alimentaire sous forme méthylée (Douglas et al., 2012).

De nouveau, les archives environnementales comme les tourbières peuvent permettre de reconsidérer le cycle actuel par rapport au passé (Figure 33). Toutefois contrairement au plomb où ses isotopes radiogéniques ( $^{206},^{207},^{208}\text{Pb}$ ) et radioactifs ( $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ) permettent de démontrer que le dépôt atmosphérique est conservé dans les enregistrements tourbeux (Le Roux et al., 2005); le mercure est potentiellement sujet à des réémissions et remobilisations, en particulier dans la partie supérieure des tourbières: l'acrotelme (Allan et al., 2013c et références citées).

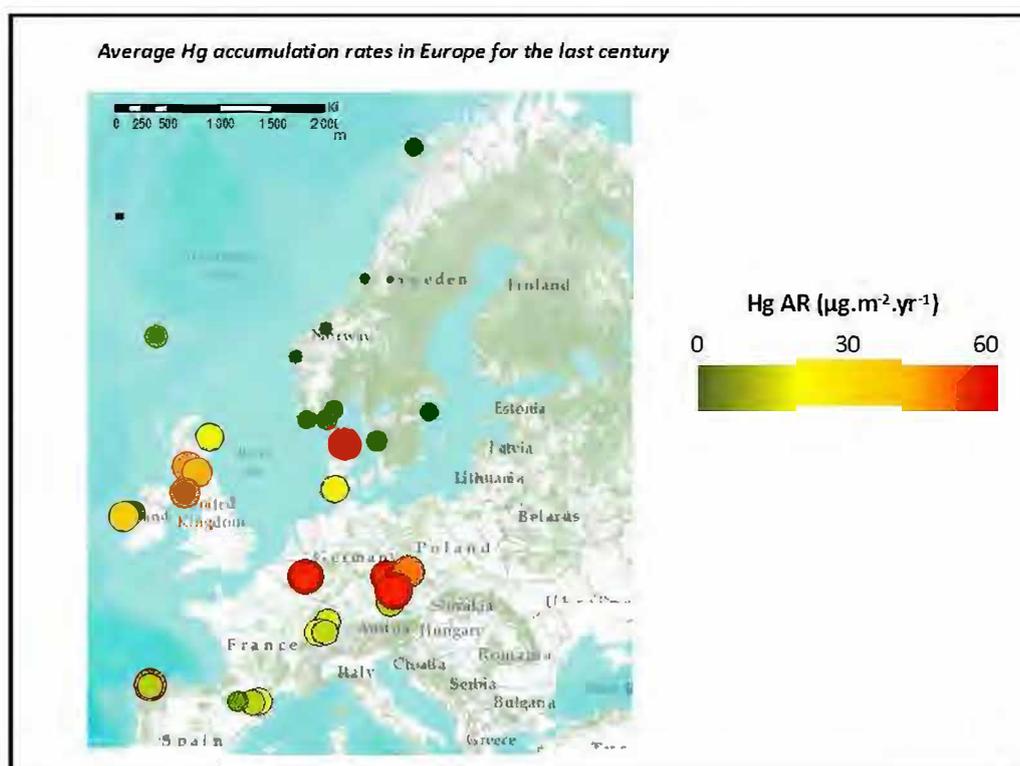


Figure 33 : Average Hg accumulation rates recorded in European peat bogs during the last century. Taux d'accumulation net moyen en mercure tel qu'enregistré par des tourbières en Europe pour le dernier siècle – thèse en cours de Maxime Enrico (2011-2014)

Nous avons pu montrer que les tourbières préservent bien le signal atmosphérique du mercure dans la tourbière du Misten, en Belgique (Figure 15) mais qu'il était nécessaire d'utiliser une stratégie

dite "multisondages" afin de tenir compte de l'hétérogénéité micro-locale des dépôts et réémissions de mercure (Allan et al., 2013c). La comparaison entre les taux de mercure tels qu'enregistrés par le réseau EMEP actuellement et les tourbières est relativement bon ( $19 \mu\text{g m}^{-2} \text{an}^{-1}$  vs.  $18 \mu\text{g m}^{-2} \text{an}^{-1}$ ). Ce travail a permis de confirmer que les taux d'accumulation préindustrielles de mercure mesurés dans les tourbes européennes sont généralement autour de  $2 \mu\text{g m}^{-2} \text{an}^{-1}$  (Figure 34 –  $1,8 \pm 0,5 \mu\text{g m}^{-2} \text{y}^{-1}$  dans le cas de cette tourbière), ce qui est largement inférieur à celui mesuré au maximum de la combustion de charbon en Europe (Figure 34 & Figure 33).

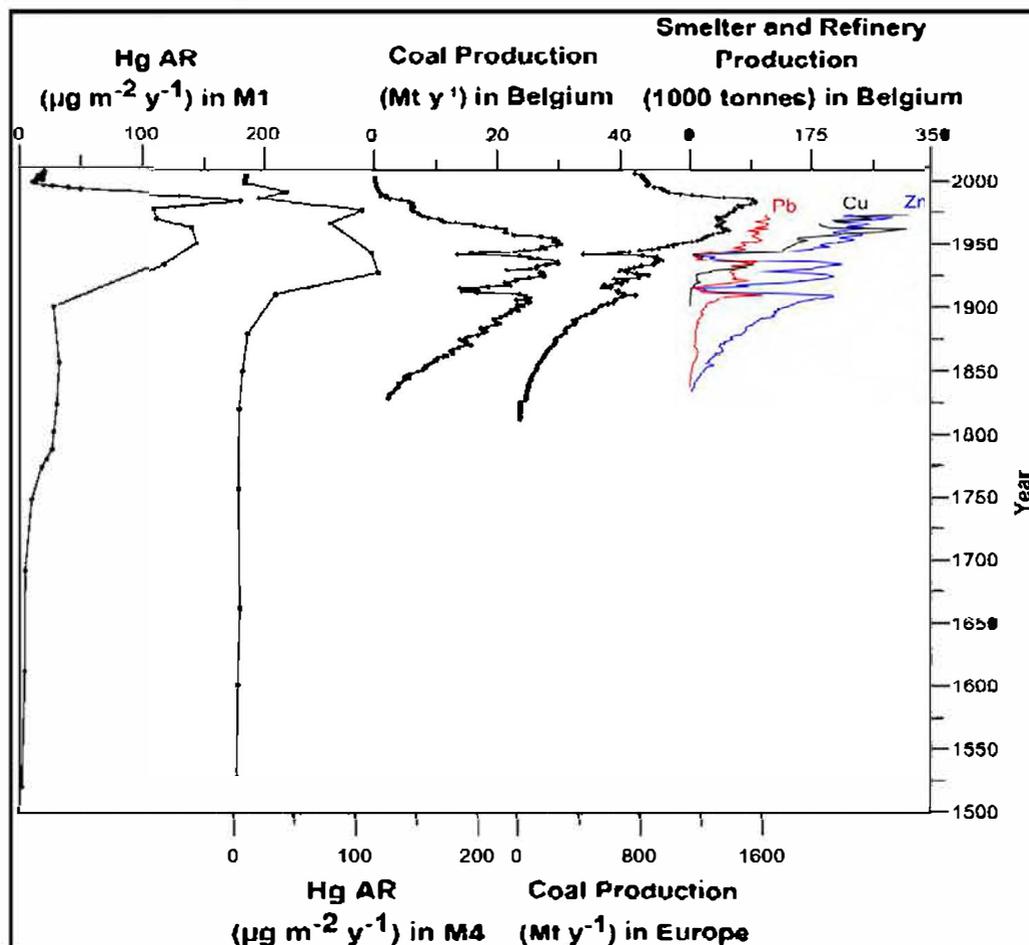


Figure 34 : Comparison between total Hg accumulation rates in M1 and M4 cores with the Belgium and European production of coal (Rutledge, 2011), and with smelter and refinery production (Pb, Cu and Zn) in Belgium (Rutledge, 2011) (Allan et al., 2013c). *Comparison entre les accumulations totales de Hg dans les sondages M1 et M4 et les productions de charbon en Belgique et Europe ainsi que la production de Pb, Cu, Zn.*

### 3.1.3 L'antimoine

L'antimoine (Sb) est un métalloïde utilisé depuis quasiment les débuts de la métallurgie par l'homme (Shortland et al., 2002). Sa potentielle toxicité a été clairement identifiée en même temps que d'autres ETM dès les années 70 (Wood, 1974).

Son caractère chalcophile a pour conséquence son abondance dans les sulfures et minéraux associés, et le principal minéral d'antimoine est la stibine ( $\text{Sb}_2\text{S}_3$ ). La production globale de Sb en 2003 est de

142000 tonnes, principalement extraites en Chine (88%). L'antimoine est utilisé de façon très diverse pour la conception et comme composant de différents produits industriels et grand public. Actuellement, il sert principalement comme ignifugeant sous forme de  $Sb_2O_3$  (environ 2/3 de la production mondiale d'antimoine consommée).  $Sb_2O_3$  est aussi un catalyseur de polymérisation pour la fabrication de plastique polyéthylène téréphtalate (PET). Krachler et Shotyk (2009) ont d'ailleurs montré qu'il existait un lessivage d'antimoine présent dans le plastique des bouteilles d'eaux minérales induisant une contamination continue de celles-ci (Shotyk and Krachler, 2007; Westerhoff et al., 2008). La présence d'antimoine dans les alliages les rend plus résistants à la corrosion et à la friction. L'antimoine est également utilisé pour la conception de batteries, de matériel électronique, de matériel d'imprimerie etc.

L'importance des activités humaines sur le cycle géochimique global de l'antimoine, en particulier atmosphérique avait été mise en évidence dans les années 80 (Austin and Millward, 1988) de la même manière que pour l'arsenic ou le plomb. Le rôle de la combustion du charbon était mis en évidence avec, selon le modèle utilisé, une augmentation d'un facteur 2 de la teneur en Sb dans la troposphère par rapport au cycle géochimique dit naturel. Toutefois, contrairement à d'autres métaux comme le plomb et même si cette étude pointait la méconnaissance sur le transport longue distance ou non de l'antimoine, peu d'études suivant ces travaux ont été menées pendant une décennie.

Les études sur des tourbières écossaises (Cloy et al., 2005) et suisse (Shotyk et al., 2004), de même que dans les carottes de glace arctique (Krachler et al., 2008; Krachler et al., 2005) et himalayennes (Hong et al., 2009), ont montré que les dépôts d'antimoine ont augmenté pendant la révolution industrielle et tandis que les dépôts des ETM, comme le plomb ou le cuivre, avaient diminué ces 20 dernières années, les dépôts d'antimoine restaient relativement constants du fait vraisemblablement de son utilisation et émission accrue par l'homme.

De plus, comme cela avait pu être montré pour le plomb (Shotyk and Le Roux, 2005b), les facteurs d'enrichissement en antimoine dans les couches les plus récentes de la carotte de glace arctique (Shotyk et al., 2004) montrent un enrichissement de plus de 1000 par rapport aux couches vieilles de plus de 4000 ans faisant de l'antimoine un contaminant atmosphérique global.

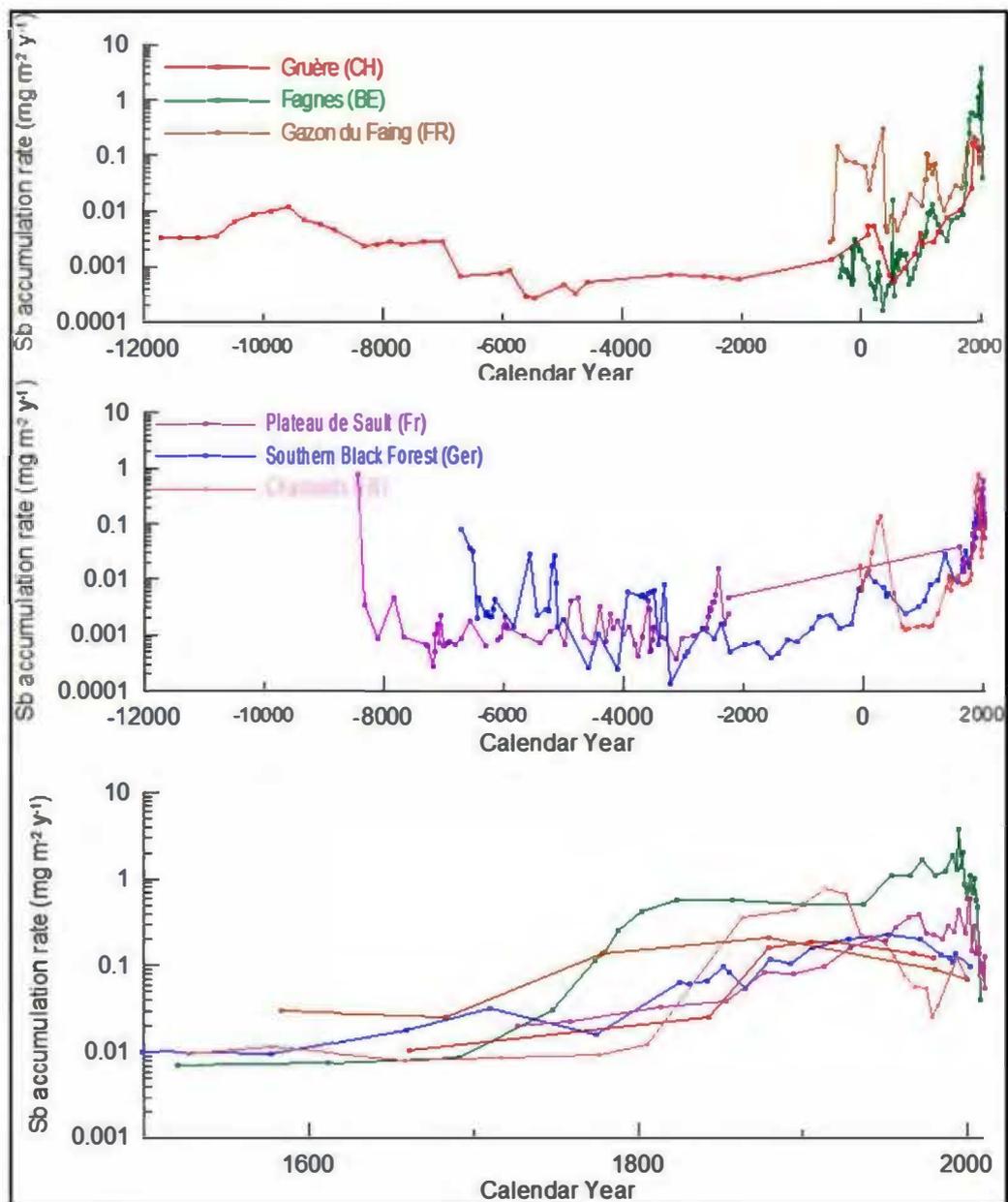


Figure 35 : Atmospheric deposition of antimony ( $\text{mg m}^{-2} \text{y}^{-1}$ ) measured in peats bogs: Misten (Hautes-Fagnes, Belgium) (Allan et al., 2013a), Pinet<sup>6</sup> (Plateau de Sault, Aude, France), Chastelets (Puy de Dôme, France), Kohlhütten Moor (Black Forest, Germany), Gazon du Faing (Vosges, France) et Etang de la Gruère (Swiss Jura). Dépôts d'antimoine ( $\text{mg m}^{-2} \text{an}^{-1}$ ) dans les tourbières hautes du Misten (Hautes Fagnes, Belgique), Pinet (Plateau de Sault, Aude, France), Chastelets (Puy de Dôme, France), Kohlhütten Moor (Forêt Noire, Allemagne), Gazon du Faing (Vosges, France) et Etang de la Gruère (Jura Suisse)

Un des objectifs du projet BioGeoSTIB<sup>7</sup> était de caractériser les dépôts atmosphériques d'antimoine à l'échelle française en utilisant un transect de trois tourbières des Pyrénées aux Vosges en passant

<sup>6</sup> Il est à noter que le profil de tourbe du Pinet comprend un hiatus de -2000 à 1700, vraisemblablement dû aux activités forestières à la fin du 18<sup>ème</sup> siècle. Les 300 dernières années ici présentées sont issus d'un carottage ultérieur (thèse de Maxime Enrico)

<sup>7</sup> BioGéoChimie de l'antimoine: Sources, Transferts, Impact et Bilan financée par l'ADEME (2009-2012)

par le Massif Central. Nos résultats (Figure 35) montrent que les dépôts atmosphériques en antimoine ont augmenté dès l'Antiquité, mais que ceux-ci se sont surtout largement accrus lors de la révolution industrielle, plus de 100 fois supérieurs aux flux naturels ( $\sim 0,001-0,01 \text{ mg m}^{-2} \text{ an}^{-1}$ ).

## 3.2 Radionucléides

Le récent accident du site nucléaire civil de Fukushima a montré que des dispersions globales de radionucléides artificiels dans l'environnement était toujours d'actualité (Masson et al., 2011; Wetherbee et al., 2012). Les techniques de traçage isotopique sont alors également des outils de choix pour comprendre les mécanismes et/ou l'historique de transfert des radionucléides dans l'environnement. J'en illustrerais 2.

### 3.2.1 Dispersion locale

J'ai pu lors de mon post-doctorat à l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire travailler sur le site de Tomsk en Sibérie où plusieurs sources potentielles (civiles, militaires) ont contribué à la dispersion de radionucléides localement dans l'environnement. L'objectif de cette étude (Gauthier-Lafaye et al., 2008) était de discriminer les différentes sources des radionucléides comme le plutonium. En effet, les rapports isotopiques des différentes sources sont différents. Un autre moyen de discriminer les sources de ces radionucléides était de s'appuyer sur la présence de tourbières qui nous ont fourni un enregistrement des dépôts en plutonium depuis 70 ans. La Figure 36 montre ainsi que l'accumulation principale de plutonium a eu lieu dans les années 50, ce qui est déconnecté du maximum de dépôts dus aux essais nucléaires aériens (dans les années 60-70) et correspond à la dispersion de plutonium militaire produit localement.

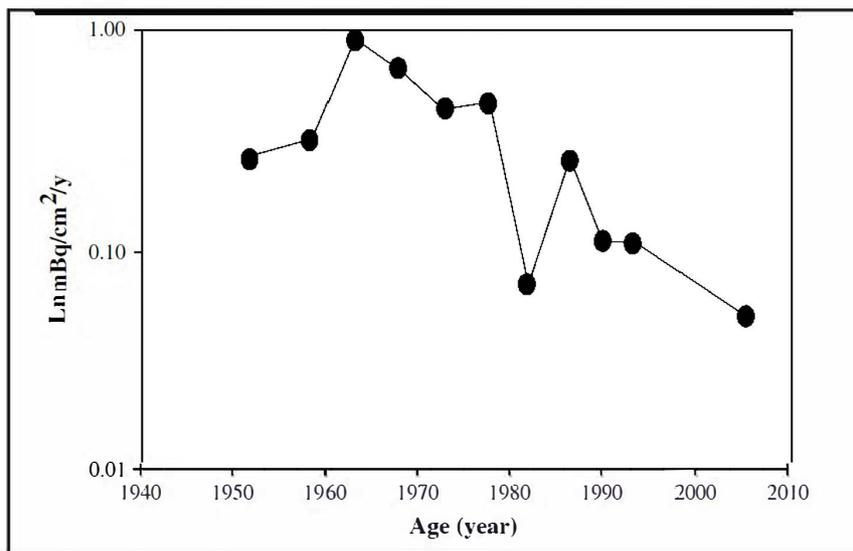


Figure 36 : Chronology of accumulation of  $^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu}$  vs. age in a peat profile 30 km North to Tomsk - *chronologie de accumulation de  $^{239}\text{Pu}+^{240}\text{Pu}$  dans un sondage de tourbe à 30km au Nord de Tomsk.*

### 3.2.2 Dispersion globale

De nouveau lors de mon post-doctorat à l'IRSN et dans le cadre de mes travaux sur les dépôts atmosphériques, j'ai travaillé sur l'utilisation des sols comme réceptacles des dépôts en radionucléides artificiels. La mobilité de certains radionucléides artificiels ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ , Pu) dans les sols étant faible, il est possible de les utiliser comme indicateur des dépôts atmosphériques depuis plus de 60 ans. L'objectif de cette recherche était de valider la relation entre le taux de précipitation annuelle et les dépôts en radionucléides artificiels provenant des essais nucléaires aériens (Bunzl and Kracke, 1988; Mitchell et al., 1990). En effet, les essais nucléaires aériens ont eu pour conséquence de disperser globalement dans la haute atmosphère des radionucléides artificiels qui se sont liés aux aérosols ensuite déposés par les précipitations. La période des essais nucléaires aériens étant relativement longue, il a été montré que les dépôts sur les sols étaient proportionnels au taux de précipitation annuelle (Mitchell et al., 1990; Renaud and Louvat, 2004). Ce n'est pas le cas des radionucléides provenant de Tchernobyl dont les dépôts ont eu lieu rapidement en avril et mai 1986 lorsque les aérosols portant les radionucléides et situés relativement bas dans la colonne étaient lessivés par les précipitations rencontrées.

Nous nous sommes donc appuyés sur la carte théorique de la répartition des radionucléides issus de Tchernobyl et des essais nucléaires aériens et avons donc sélectionné deux zones très peu impactées par les radionucléides provenant de Tchernobyl (Le Roux et al., 2010). Pour avoir un gradient de précipitations, nous avons échantillonné les sols en fonction de l'altitude (Figure 37).



Figure 37 : Geographic strategy for soil sampling in Savoie with altitude. *Illustration de la stratégie d'échantillonnages des sols avec l'altitude en Savoie.*

Nos résultats confirment la relation entre précipitations annuelles et dépôts des radionucléides artificiels (Le Roux et al., 2010). Il est possible toutefois que les dépôts soient aussi influencés par l'altitude via les dépôts orographiques ou l'accumulation locale de neige (névé).

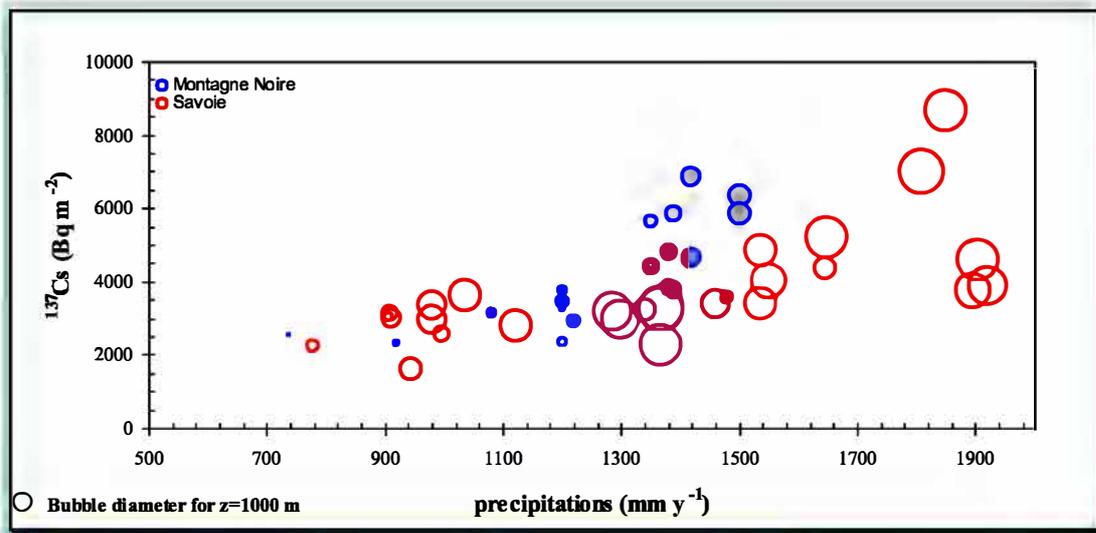


Figure 38 : Bubble chart for the relationship between  $^{239} + ^{240}\text{Pu}$  total soil inventories and annual precipitations in Savoie (empty red circles), in Montagne Noire (full blue circles) with altitude as a third parameter corresponding to the diameter of the bubble. *Diagramme en bulle pour la relation entre inventaires de sols totaux en  $^{239} + ^{240}\text{Pu}$  et les précipitations annuelles en Savoie (cercles rouges vides), en Montagne Noire (cercles pleins bleus) avec l'altitude comme troisième paramètre correspondant au diamètre de la bulle.*

Les rapports isotopiques du plutonium, du césium et de l'américium confirment qu'ils sont originaires principalement des essais nucléaires aériens ("Global Fallout") (Le Roux et al., 2010) , ceci est confirmé par l'analyse d'une tourbière en Savoie où le maximum de l'accumulation en  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{241}\text{Am}$  est datée des années 1960.

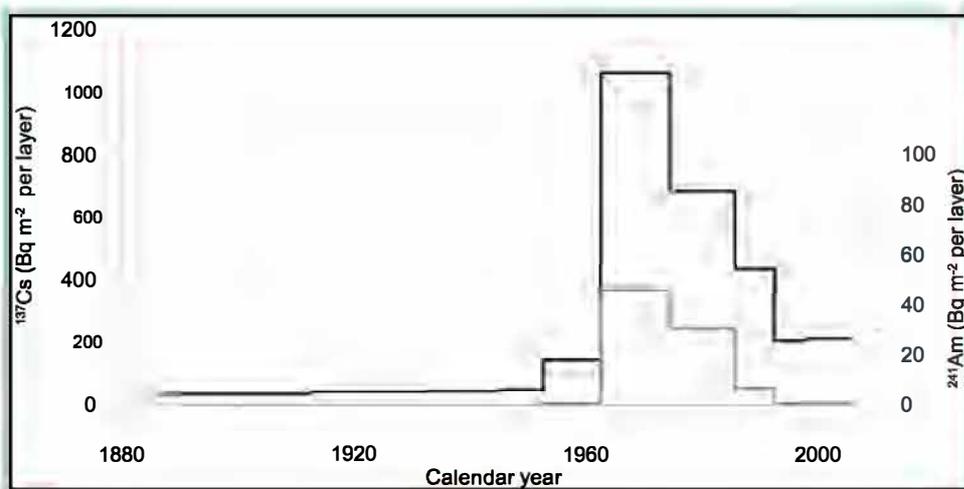


Figure 39 :  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{241}\text{Am}$  surface activities vs. age in a peat core sampled in Savoie. *Activités de  $^{137}\text{Cs}$  et de  $^{241}\text{Am}$  dans une tourbière en fonction de l'âge en Savoie.*



**Photo 2 : Orographic cloud climbing up the Etangs de Bassiès (French Pyrénées) – *Nuage orographique montant vers les Etangs de Bassiès***

## 4 Éléments trace métalliques, hommes et Environnement

La géochimie isotopique, science du traçage et de l'étude des dynamiques des transferts des éléments est une discipline ouverte vers les autres disciplines. Mes travaux s'efforcent toujours d'associer d'autres disciplines afin d'élargir mon spectre d'intérêt des sciences de l'environnement et de la Terre vers les sciences de l'Homme. C'est d'autant plus essentiel que, comme nous l'avons vu, l'Homme est désormais un rouage dominant dans le cycle biogéochimique des ETM. Comprendre les interactions entre ETM, hommes et environnement passe par des études ponctuelles ainsi que des observations plus longues.

### 4.1 Archéo-environnement

#### 4.1.1 Sidon

Initié dès mes premiers travaux de DEA sous la direction d'Alain Véron (Le Roux et al., 2003a; Le Roux et al., 2003b), la caractérisation isotopique des artefacts métalliques sur le site de Saïda (Sidon) au Liban a été poursuivie. Grâce à Claude Doumet-Serhal (British Museum) et aux nombreuses fouilles depuis les années 2000, différents objets en cuivre, argent et bronze ont été analysés pour leur composition en métaux et pour l'isotopie du plomb (Veron et al., 2011; Veron et al., 2009). L'isotopie du plomb permet de tracer la source de celui-ci pour peu qu'on connaisse également la signature isotopique des sources potentielles et que l'artefact ne soit pas issu d'un mélange ou d'un recyclage de plusieurs sources plomb. La Figure 40 (Veron et al., 2011) illustre ainsi la correspondance ou non d'artefacts en cuivre et bronze datant de l'âge du Bronze moyen avec des mines potentielles des Iles grecques (en particulier la Crête). A Sidon, port marchand et plaque tournante de la Méditerranée, les artefacts retrouvés dans les tombes proviennent de toute la Méditerranée Orientale ainsi que du Proche et Moyen Orient (Figure 41).

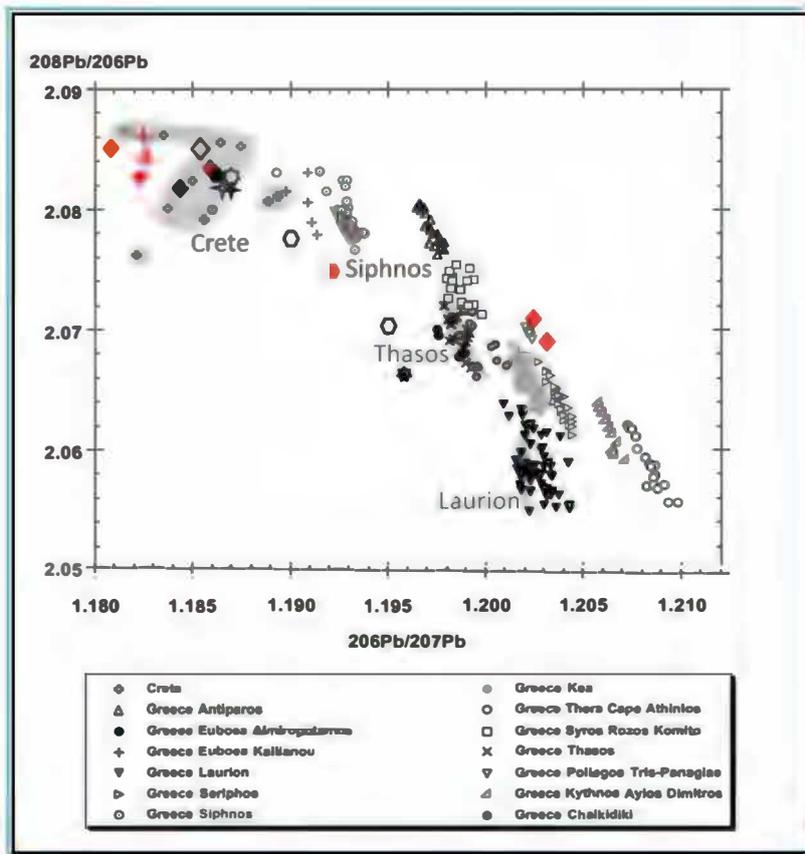


Figure 40 : Comparison of isotopic imprint ( $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  vs.  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$  ratios) of burial bronze and copper artifacts to those of Greece and Crete lead (see symbols and corresponding locations in caption under figure) and copper (grey shaded areas with corresponding location within figure) ore deposits. *Comparaison entre les signatures isotopiques ( $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  vs.  $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ ) d'artefacts en bronze et cuivre avec des minerais grecs et crétois de plomb (symboles) et de cuivre (champs grisées).*

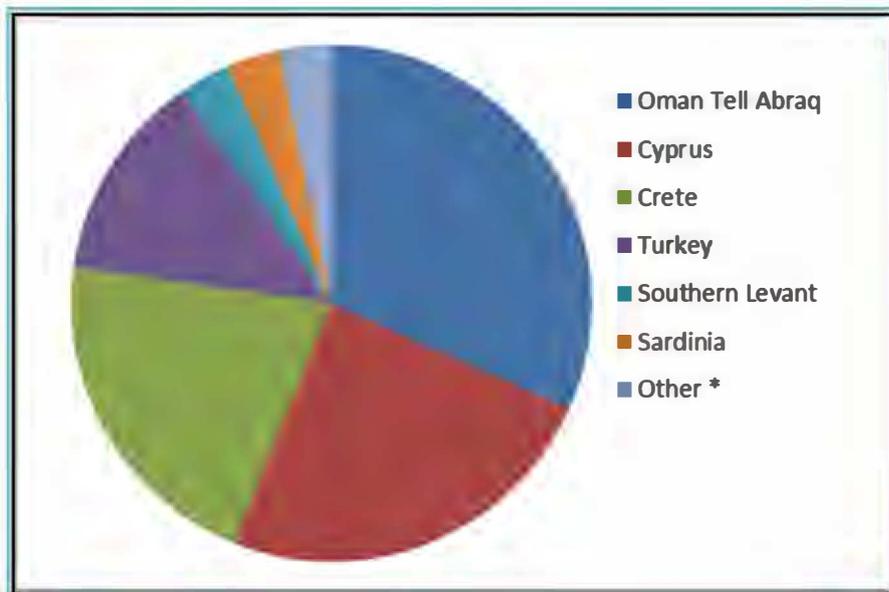


Figure 41: potential repartition of bronze and copper artefacts from Middle Bronze Age found in Sidon base on Pb isotope signatures; \* isotopic signature without any match – *Répartition potentielle de la provenance des artefacts en cuivre et en bronze trouvés à Sidon en se basant sur l'isotopie du Plomb, \*signature isotopique sans correspondance avec un minerai*

### 4.1.2 Tromelin

Tromelin est une minuscule île au large de Madagascar. En 1761, un bateau de contrebande d'esclave y fait naufrage. Les français réussissent à construire un radeau avec des restes de l'épave et laissent à leur sort une soixantaine d'esclaves dont certains survivront pendant 15 ans sur l'île (Romon and Guerout, 2013). Plusieurs missions archéologiques ont permis de reconstruire le cadre de vie de ces malgaches sur cette île sans bois et sans grande source de nourriture (Marriner et al., 2010). Dans ce cadre, notre objectif a été de démontrer si les objets en plomb refondus à partir des restes de l'épave et qui servaient d'ustensiles pour recueillir l'eau auraient pu entraîner des risques d'intoxication au plomb chez les naufragés (Le Roux and Renson, 2010). Des restes de 2 individus ont été analysés. Les concentrations et les signatures isotopiques en plomb n'ont pas démontré que les individus avaient souffert d'un transfert de plomb provenant des artefacts métalliques (Figure 42).

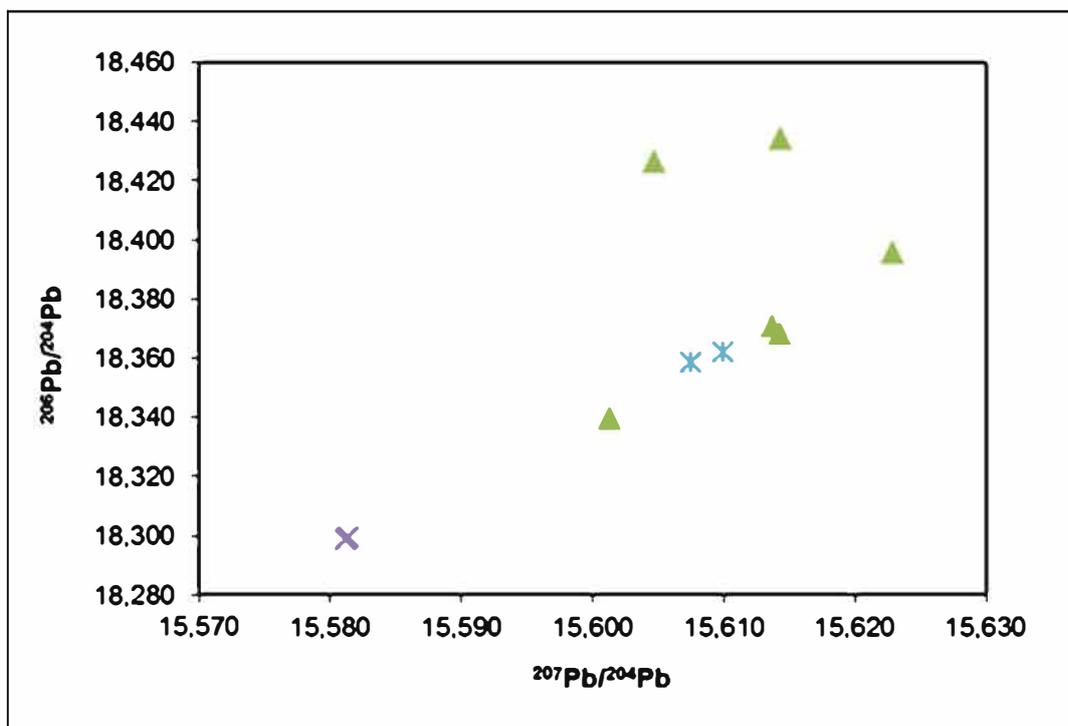


Figure 42: Pb isotope signature of archaeological artefacts in Tromelin : purple→ Pb artefacts, green→ human remains (bones and teeths), blue→ local sediments. *Signature isotopique des artefacts archéologique de Tromelin: violet→ artefacts en plomb, en vert→ restes humains (dents et os), en bleu→ sédiments locaux.*

## 4.2 Observatoires Hommes et Milieu (OHM)



Photo 3 : Etangs de Bassiès, Ariège

Les Observatoires Hommes et Milieu sont des « outils » de l'Institut National Ecologie et Environnement. Ce sont des "outils d'observation globale des conséquences d'une activité structurante sur la société et le milieu" (Lagadeuc and Chenorkian, 2009) et permettent d'étudier un système socio-écologique (Bourgeron et al., 2009) en cours de changement rapide (Figure 43). Outils pérennes de promotion de l'interdisciplinarité, ils sont actuellement financés également via le labex: Dispositif de Recherche Interdisciplinaire Interactions Hommes –Milieux (DRIIHM).



Figure 43 : The adaptive cycle: crossing a threshold from one stable state to another (Bourgeron et al., 2009). *Le cycle adaptatif: dépassement d'un seuil pour passer d'un état stable à un autre.*

Je suis impliqué par différents projets dans les Observatoires Hommes et Milieu Pyrénées-Haut Vicdessos<sup>8</sup> et Bassin Minier de Provence<sup>9</sup>. J'illustrerais ici ma participation à l'Observatoire Homme et Milieu Haut-Vicdessos Pyrénées.

L'OHM Haut-Vicdessos est localisé en Ariège, au Sud de Tarascon sur Ariège. Cette région a la particularité d'avoir connu plusieurs ruptures socio-écologiques:

- La fin de l'activité minière en Fe, Pb et Ag initiée durant l'Antiquité et cessée au XXe siècle,
- Cent ans d'activités autour de la production d'aluminium qui a cessé en 2006,

<sup>8</sup> <http://w3.ohmpyr.univ-tlse2.fr/>

<sup>9</sup> <https://www.ohm-provence.org/>

- L'abandon de l'activité agro-pastorale dans les années 1940.

Une des particularités de l'OHM Vicdessos est de rassembler de nombreux chercheurs qui utilisent les archives environnementales (tourbières, lacs, cernes, sites archéologiques) pour étudier ces ruptures.

Combinant mes travaux sur les dépôts atmosphériques en montagne, l'enregistrement des ETM stockés dans les sols et les tourbières depuis les débuts de la métallurgie ainsi que l'export de matière et des ETM liés, l'OHM Vicdessos me permet de développer et participer à des projets divers afin de mieux comprendre la dispersion des ETM à une échelle locale dans un cadre global et ce à plusieurs échelles de temps : de la journée à la dizaine de milliers d'année.

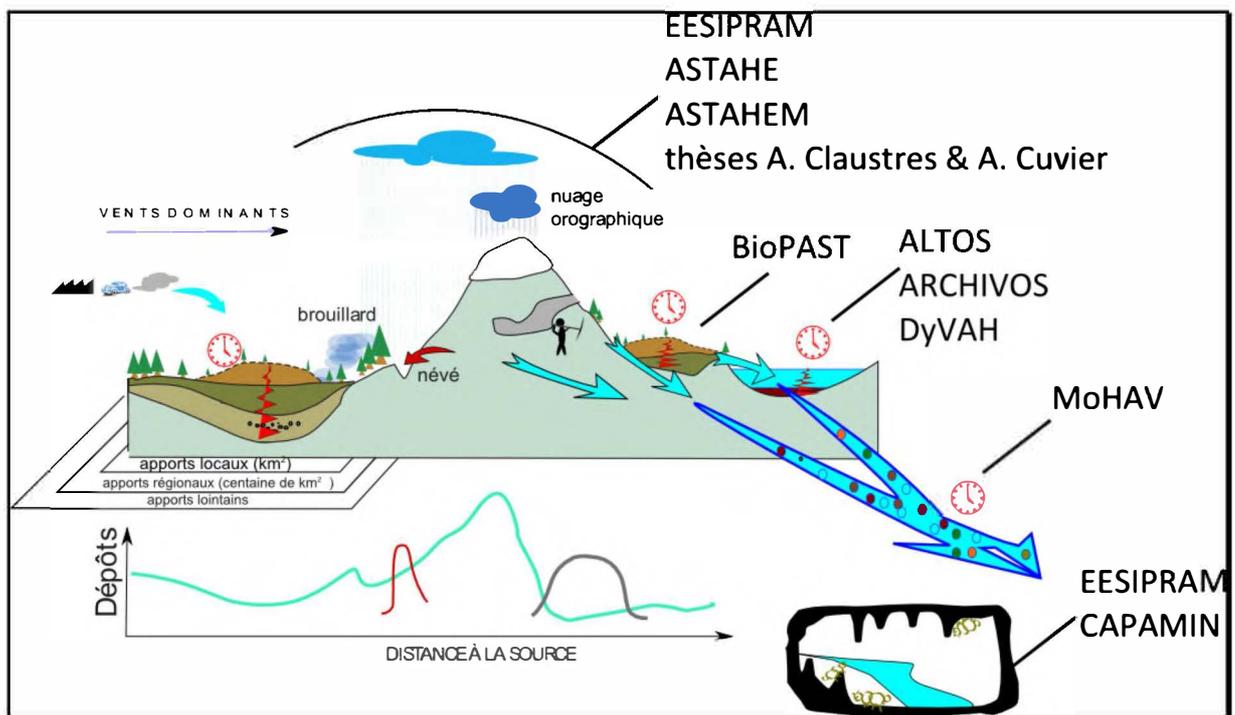


Figure 44 : Sketch of main biogeochemistry research efforts on mountainous environment and trace metals in the frame of the OHM Vicdessos Pyrénées and related projects. *Principales recherches menées en biogéochimie des ETM dans le cadre de l'OHM Vicdessos et projets relatifs*

La Figure 44 et le Tableau 3 illustrent la position des différents projets menés en Biogéochimie au sein de l'OHM dont j'assure la coordination ou auxquels je participe.

**Tableau 3: Main research projects focused on biogeochemistry of mountainous environments or dealing with based on analyses – Principaux projets en biogéochimie au sein de l'OHM Vicdessos ou liés par certaines mesures géochimiques**

Acronyme	Période	Cadre	Titre	Resp.
BioPAST	2009-2010	EDD	BIOdiversité et PASToralisme. Propositions méthodologiques pour une approche interdisciplinaire des relations diversité végétale – pratiques pastorales sur la longue durée.	D. Galop
EESIPRAM	2010	OHM Pyrénées	Etude Exploratoire des Sols Impactés par les Pollutions Récentes et Anciennes Métalliques	G. Le Roux
ASTAHEM	2011-	OHM Pyrénées	Approche Spatio-Temporelle de l'Accumulation Holocène des Éléments trace métalliques en milieux Montagnards	G. Le Roux
ARCHIVOS	2011	R-OHM	Activités anthropiques et Changements environnementaux dans le vicdessOS depuis 200 ans	M. Chapron
DyVAH	2010-	OHM Pyrénées	Études paléoécologiques multiproxy (Pollen, géochimie, chironomes) destinée à la reconstitution des évolutions des interactions climat/Anthropisation en haute Ariège. Étude de sédiments lacustres et tourbeux	D. Galop
ALTOS	2010-	OHM Pyrénées	Archives Lacustres d'altitudes du VicdessOS	M. Chapron
CAPAMIN	2011	OHM Pyrénées R-OHM	Quel est la capacité des terrils miniers à accueillir la faune des sols environnants et quel est le rôle des ETM (Pb, Sb, Zn, As) dans cette capacité ?	C. Gers & G. Le Roux
MoHAV	2012-	OHM Pyrénées R-OHM	Modélisations Holocène et Actuelle des transferts en éléments traces métalliques dans le bassin versant du Vicdessos	R. Teisserenc, L. Gandois, J. Sanchez, G. Le Roux
thèse A. Claustres	Sept. 2012 -	Ministériel	Répartitions des Éléments traces métalliques dans les écosystèmes montagnards : rôle et part des facteurs naturels et anthropiques à l'échelle des temps pédologiques	A. Probst & G. Le Roux
thèse A. Cuvier	Oct. 2012 -	Région + IRSN	Accumulations de l'uranium, de ses descendants et des métaux lourds dans les sols des anciens sites miniers	G. Le Roux & L. Pourcelot

#### 4.2.1 Paléo-environnement, ETM et archéoméallurgie

La métallurgie ancienne dans les Pyrénées et ses conséquences sur l'environnement sont encore très mal connues:

1. L'initiation à l'âge du Bronze voire avant des activités minières et métallurgiques dans les Pyrénées est mal caractérisée et seul le Pays Basque est documenté (Monna et al., 2004),
2. Les fouilles archéologiques sont encore lacunaires du fait de la difficulté de terrain et des reprises ultérieures des sites miniers. La chronologie des pollutions établie grâce à des archives environnementales joue alors tout son rôle,
3. L'impact de ces activités avant 1800 sur la contamination des sols est inconnu. La libération possible de ces ETM stockés depuis plusieurs centaines d'années est également inconnue.

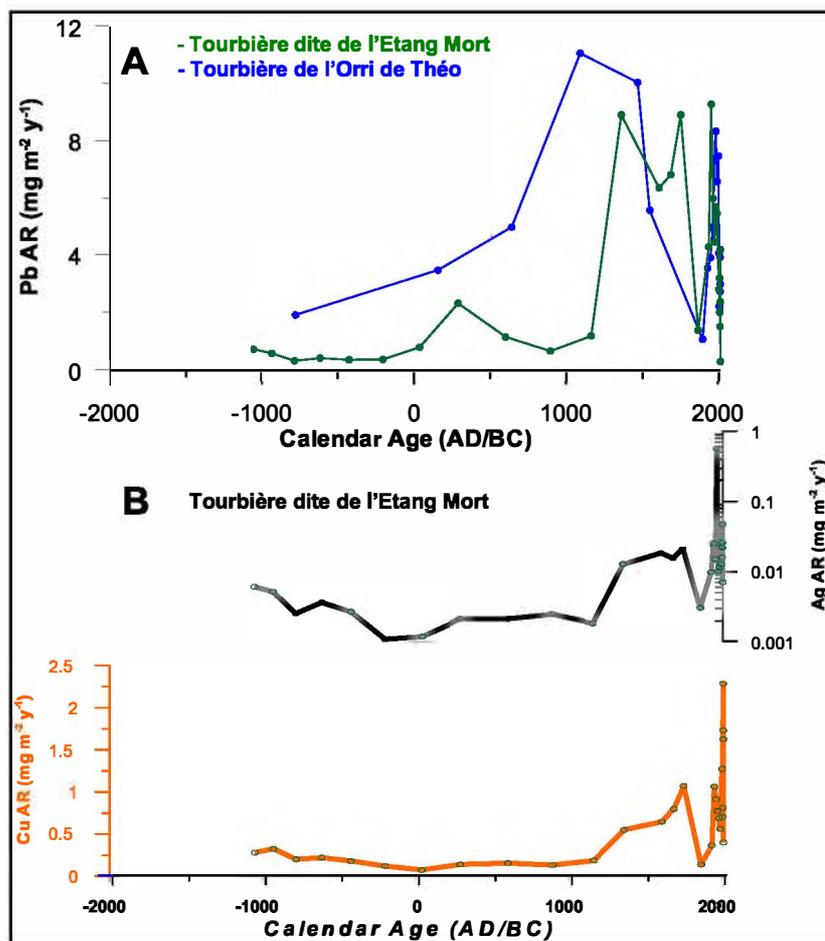


Figure 45: Pb accumulation rate at Orri de Theo peatland and Pb, Ag and Cu accumulation rates at Etang Mort peat bog, both in Vicdessos. *Taux d'accumulation de plomb dans la tourbière de l'Orri de Théo et accumulation en Pb, Ag et Cu dans la tourbière dite de l'Etang Mort.*

La Figure 45 illustre la chronologie des accumulations en plomb dans 2 tourbières des Etangs de Bassiès (Orri de Théo and Etang Mort) ainsi que l'accumulation d'argent et de cuivre dans la tourbière ombrotrophe de l'Etang Mort. Ces premiers résultats montrent que la majorité de la contamination a eu lieu vers le  $\text{XV}^{\text{e}}$  siècle vraisemblablement dû à l'activité proche de la mine de Castelminier. La tourbière dite de l'Orri de Théo, tourbière minérotrophe dont la résolution temporelle est moins bonne que celle dite de l'Etang Mort raconte une histoire du plomb sensiblement identique. La haute résolution de l'enregistrement de la tourbière dite de l'Etang Mort permet d'identifier une augmentation de la pollution au plomb dans la vallée dès l'Antiquité. Des analyses isotopiques du plomb vont permettre de tracer l'origine de ce plomb : lointain ou local. D'autres métaux comme le cuivre et l'argent montrent une augmentation lors de certaines périodes, en particulier le  $\text{XV}^{\text{e}}$  et la fin du  $\text{XIX}^{\text{e}}$  siècles. Ce n'est toutefois pas le cas lors de l'Antiquité, peut-être du fait qu'il existe deux filons (l'un riche en argent, l'autre pas) qui ont été exploités dans cette région (S. Baron, communication personnelle).

Ces travaux constituent une partie des travaux de la thèse d'Adrien Claustres.



Photo 4: Etangs de Bassiès

## 5 Nouvelles pistes pour étudier l'impact des éléments trace et radionucléides sur l'environnement

Les nouvelles techniques spectrométriques, les capteurs *in-situ* ainsi qu'une approche mutualisée des outils de recherche permettent d'améliorer à la fois la détection des contaminants ainsi que d'étudier plus exhaustivement leurs transferts dans l'environnement grâce à des mesures toujours plus rapides et des données toujours plus grandes. L'analyse de ces données nécessite et nécessitera de nouveaux outils conceptuels et numériques pour traiter et interpréter cette masse de données.

### 5.1 Nouveaux outils pour tracer les éléments trace et les radionucléides

#### 5.1.1 L'isotopie du mercure

Les développements analytiques en spectrométrie de masse permettent désormais de mesurer des isotopes des éléments relativement lourds mais non radiogéniques et d'associer les faibles différences isotopiques entre deux échantillons avec des sources ou des mécanismes induisant ces différences (Johnson et al., 2004; Le Roux, 2010; Weiss et al., 2008). On parle d'isotopes stables non traditionnels dont l'Observatoire Midi-Pyrénées est un des centres experts en France. Les isotopes du mercure (7 isotopes) sont des traceurs prometteurs des processus et des sources de ce contaminant. De plus cet élément est un des rares dont on peut mesurer un fractionnement indépendant de la masse (MIF caractérisé par ex. par  $\Delta^{199}\text{Hg}$ ). Ces signatures isotopiques promettent de tracer les processus affectant la chimie du mercure lors de sa dispersion dans l'environnement, en particulier la photochimie. Les fractionnements dépendant de la masse (i.e.  $\delta^{202}\text{Hg}$ ) semblent être plus liés aux sources de cet élément.

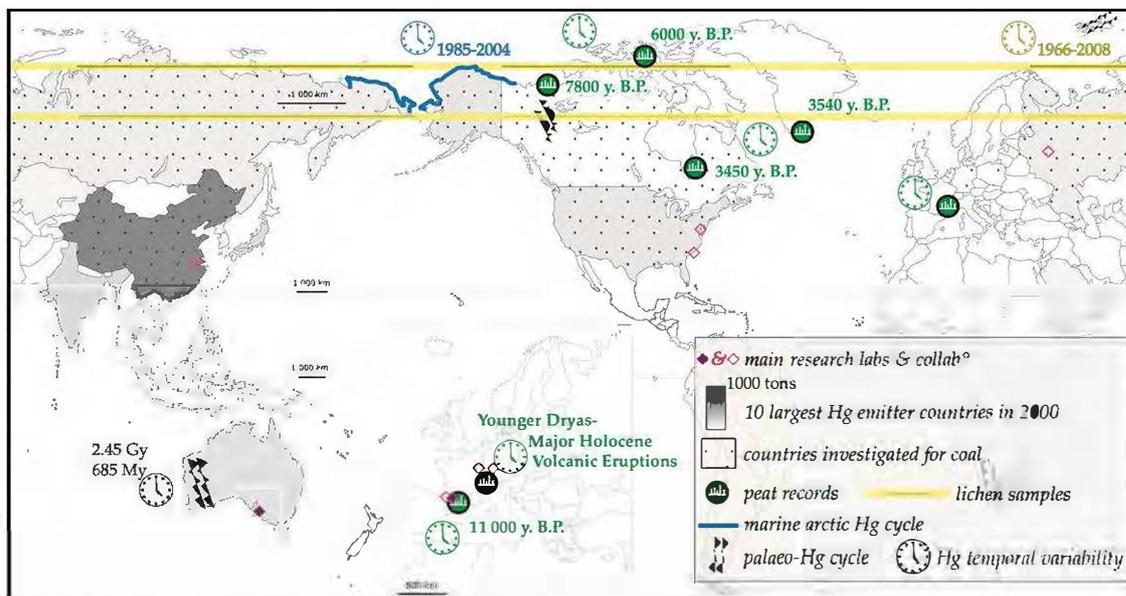


Figure 46 : map of the different compartments investigated in the ANR Mercy and the ERC Mercury Isotopes projects. Carte des différents compartiments étudiés dans le cadre des ANR Mercy et ERC Mercury Isotopes.

Les projets ANR Mercy et ERC Starting Grant Mercury Isotopes dont le leader est J. Sonke (GET, Toulouse) ont pour objectifs de mieux comprendre les cycles actuels et passés du mercure grâce aux isotopes du mercure. Je suis responsable d'un volet commun à ces 2 projets dont l'objectif est d'étudier les isotopes du mercure et leur variabilité durant l'Holocène en Europe de l'Ouest ainsi que dans l'Arctique Canadien (Figure 46). J. Sonke et moi-même sommes appuyés par L.E. Heimbürger (post-doc sur le projet ANR Mercy) et M. Enrico (doctorant 2011-2015 sur le projet ERC).

Les premiers résultats ici illustrés par un sondage de tourbe dans les Pyrénées sont prometteurs et permettent de reconstituer plus de 12000 ans d'histoire des sources de mercure. En particulier, certains pics de concentration et de variabilité isotopique semblent liés à de potentielles éruptions volcaniques. Nos résultats montrent aussi clairement que la signature isotopique du mercure est différente après la révolution industrielle par rapport à la signature préanthropique enregistrée dans les couches les plus profondes des tourbes.

Notre objectif est désormais de mieux comprendre le cycle du mercure en étudiant la variabilité spatiale et temporelle des dépôts de mercure et de son isotopie grâce à un ensemble de tourbières.

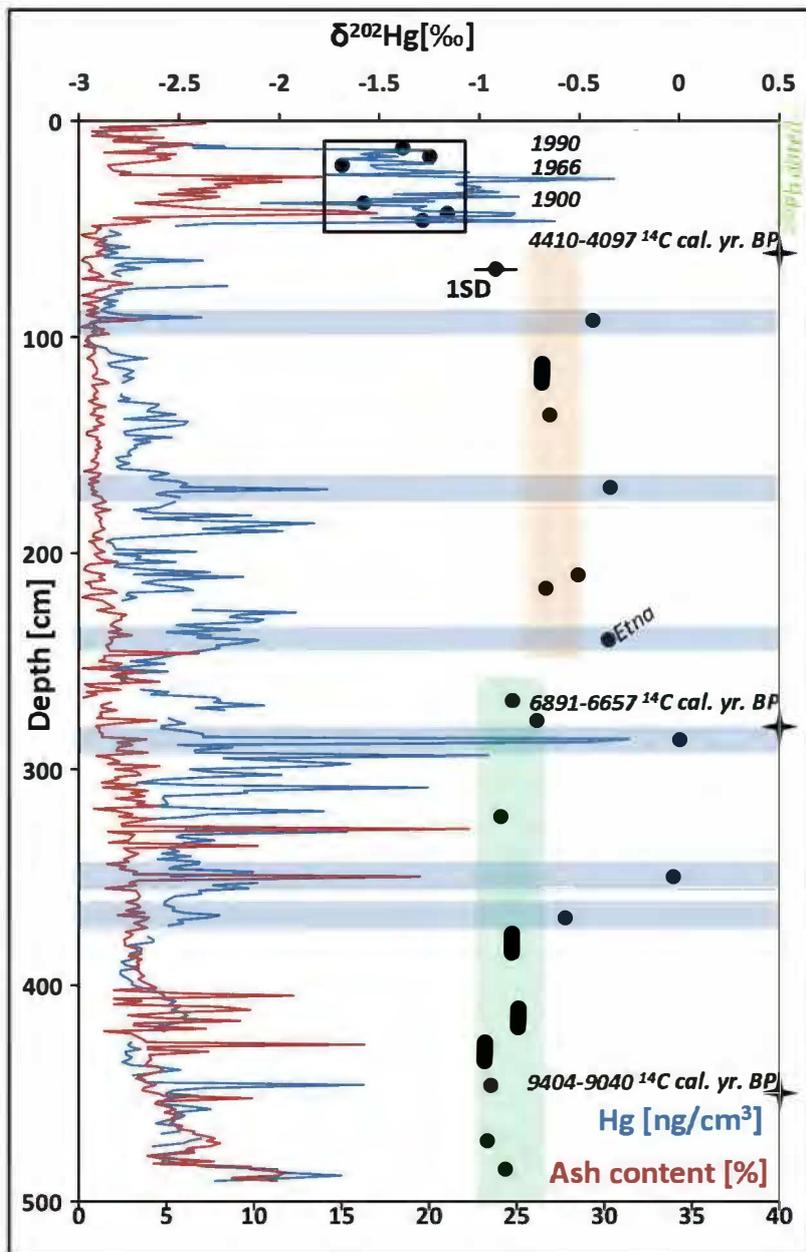


Figure 47.: Mercury concentration, ash content and  $\delta^{202}\text{Hg}$  in a peat bog from the Pyrénées. Concentration en mercure, taux de cendre et  $\delta^{202}\text{Hg}$  dans une tourbière ombrotrophe des Pyrénées

### 5.1.2 Développement de techniques ultra-traces et isotopiques "en routine" pour la biogéochimie et les échantillons lointains (Arctique et Extrême Hémisphère Sud)

La recherche en biogéochimie ainsi qu'en géochimie environnementale dans les milieux lointains requièrent des développements analytiques. Il s'agit de trouver un bon compromis entre rapidité, nombre d'analyses et coût qui sont nécessaires en écologie pour avoir une bonne idée statistique du phénomène des processus sur lesquels on travaille et précision et reproductibilité. La plupart des techniques sur lesquelles je travaille ont déjà été développées, il s'agit de les adapter pour une meilleure application pour la recherche en écologie.

Parmi les chantiers qui me tiennent à cœur:

- la mesure des isotopes du plomb par HR-ICP-MS (Krachler et al., 2004a; Krachler et al., 2004b) dans différentes matrices y compris neige et glace, et pousser ce type d'instruments au limite du possible (mesure du  $^{204}\text{Pb}$ , l'isotope du plomb le plus faible en abondance - mesures à très faible concentration dans des fluides biologiques...),
- les inter-comparaisons entre les mesures de radionucléides dans des matrices à faible densité comme les tourbes par spectrométrie gamma, alpha dans différents laboratoires (LAFARA à l'OMP, IRSN et Gliwice en Pologne),
- la mesure d'éléments ultra-traces et isotopiques dans des matrices organiques et biologiques (colloïdes, invertébrés du sol, tourbes, ...).

## 5.2 Eco-Géochimie

Un de mes objectifs en intégrant le laboratoire EcoLab était de travailler main dans la main avec les écologues et écotoxicologues pour développer des approches innovantes sur l'impact des métaux dans l'environnement. C'était plus particulièrement vrai dans la "zone critique"<sup>10</sup> (critical zone) que représente le sol à l'interface entre atmosphère et sous-sol ou aux interfaces sols-organismes.

---

<sup>10</sup> La zone critique est définie comme l'environnement hétérogène de surface dans lequel des interactions complexes, impliquant roches, sol, eau, air et organismes vivants, régulent leurs habitats naturels et la disponibilité de ressources nécessaires à la vie.

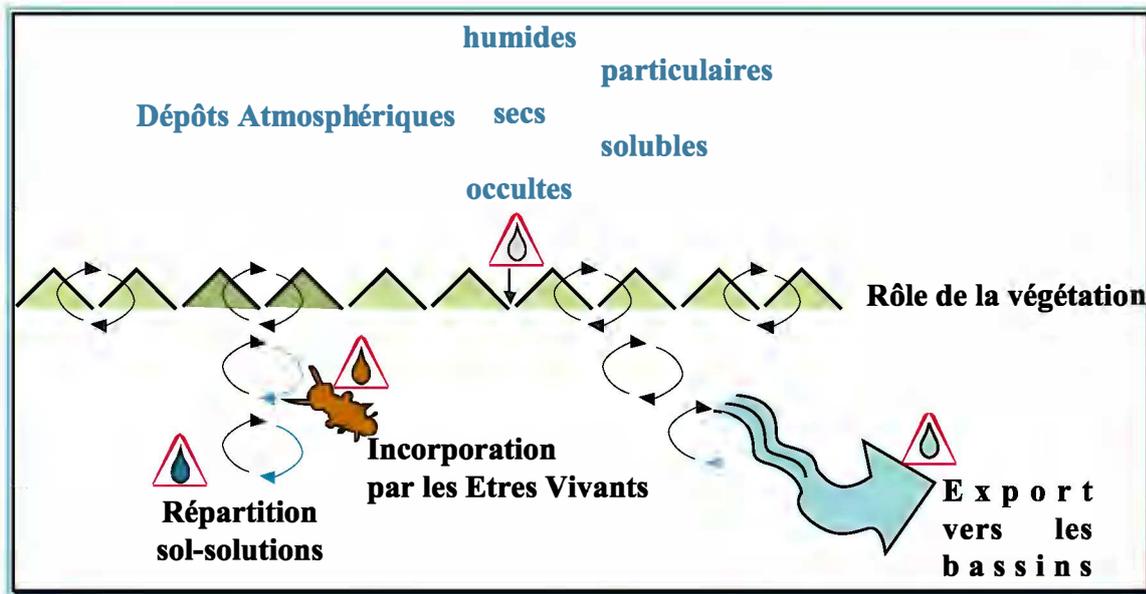


Figure 48 : The soil : a critical zone, an interface between organisms, water and atmospheric deposition – le sol: une zone critique et une interface entre organismes vivants, l'eau et les dépôts atmosphériques

### 5.2.1 En écotoxicologie

Nos premiers travaux sur l'écotoxicologie de l'antimoine soutenu par l'ADEME montrent que ce métalloïde est un élément génotoxique. Les mécanismes de dispersion de l'antimoine dans la plante sont pourtant différents de ceux d'autres métaux comme le plomb ou le cadmium. L'antimoine se disperse dans la plante via les voies transférant l'eau dans les plantes comme les aquaporines (Tschan et al., 2008; Tschan et al., 2009).

La Figure 49 montre que l'antimoine est génotoxique à des concentrations faibles de l'ordre de  $1 \mu\text{M}$  dans la solution nutritive.

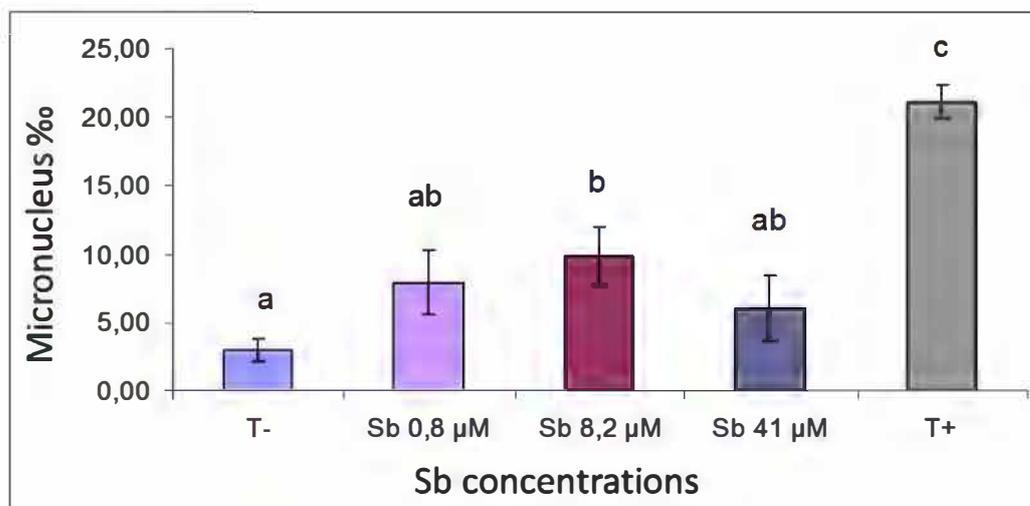


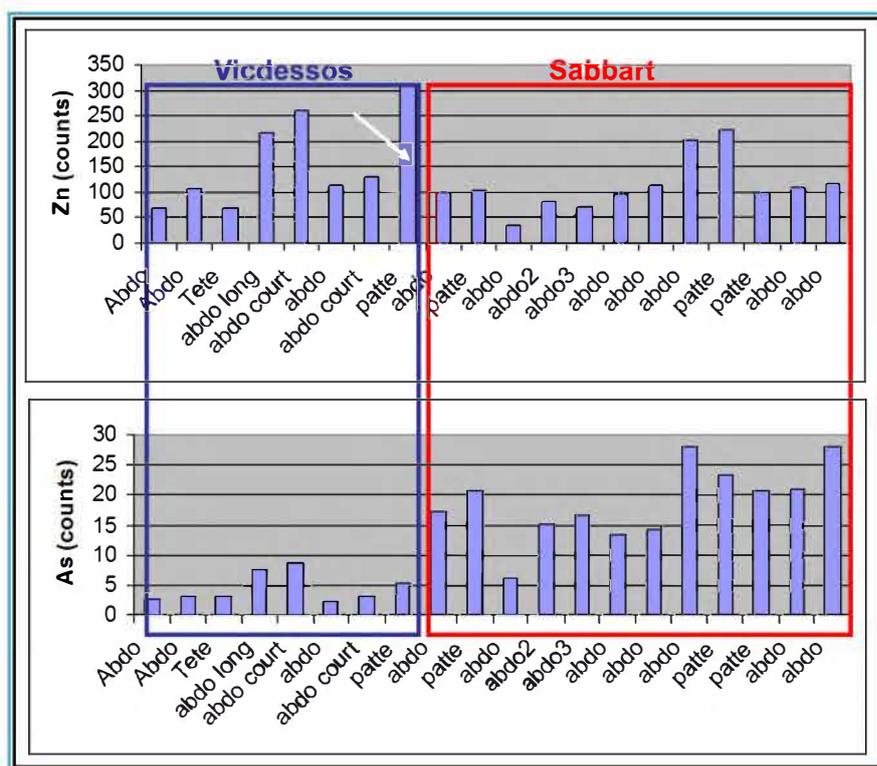
Figure 49 : Number of micronucleus for 1000 cells vs. Sb concentrations in the nutritive solution. Nombre de micronoyaux pour 1000 cellules en fonction des concentrations en antimoine dans la solution nutritive

Comme l'antimoine est transféré dans les plantes, nos futurs travaux porteront sur le comportement intra et intercellulaire de ce métal ainsi que sur sa spéciation. Les approches géochimiques ultra-traces auront alors tout leur intérêt pour comprendre l'impact de ce métalloïde sur les organismes vivants.

### 5.2.2 En écologie des invertébrés

La géochimie des éléments trace et isotopique est déjà fortement utilisée en écologie des vertébrés, en écologie humaine. Ce n'est pas encore le cas pour les invertébrés. Pourtant ces animaux sont à la fois indispensables au fonctionnement des écosystèmes (i.e. pollinisateurs, bioturbateurs, membres de la chaîne trophique... ) ainsi que de précieux indicateurs de la santé des écosystèmes.

L'application de techniques géochimiques permet à la fois de tracer et de comprendre l'impact des éléments en trace sur les invertébrés. C'est vrai dans des milieux sensibles comme les milieux de montagne. La Figure 50 illustre qualitativement la composition en métaux (Zn, As) à la surface d'invertébrés cavernicoles de 2 cavités différentes et illustre le potentiel de l'approche géochimique pour étudier l'écologie des invertébrés ainsi que leurs relations avec les contaminants.



**Figure 50 : Laser-Q-ICP-MS analyses of the surface of cave invertebrates. The Vicdessos cave is a pristine cave whereas Sabbart cave is located closed to an industrial center (Al factory and chemical wastes). Analyses par LA-Q-ICP-MS de la surface d'invertébrés cavernicoles. La grotte du Vicdessos est localisée dans un environnement relativement préservée tandis que la grotte de Sabbart se situe proche d'un pôle d'activité industrielle (usine d'aluminium, déchets chimiques).**

## 5.3 Biogéochimie spatio-temporelle des zones de montagne

### 5.3.1 Héritage de l'après-mine

Comme nous l'avons vu aux §3.1.1 & §4.2.1, les milieux montagnards ont subi des pressions anthropiques importantes dans le passé. Les activités minières ont laissé un héritage dans les sols.

Deux projets actuels de thèse étudient en partie l'"après-mine":

- Dans le cadre de sa thèse sur l'accumulation des éléments trace métalliques dans les milieux montagnards, Adrien Claustre étudie les accumulations de métaux dans les sols Pyrénéens en particulier dans le Vicdessos où les mines ont été exploitées jusqu'au début du XXe siècle,
- Alicia Cuvier étudie le devenir de l'uranium et des ETM liés autour d'anciennes mines à ciel ouvert d'uranium dans le sud du Massif Central et en Aveyron.

Les questions principales sont:

- Quel sont les stocks de contaminants dans ces zones sensibles, en tête des bassins versants?
- Quelle est leur répartition et origine?
- Quel est leur potentiel de relargage dans l'environnement, dans les ruisseaux? Actuellement et dans le Futur?

Pour cela, nous nous appuyons non seulement sur l'approche géochimique mais également sur une approche de type SIG afin mieux corrélérer données géochimiques avec les paramètres atmosphériques, topographiques, pédologiques, climatologiques et historiques.

### 5.3.2 Suivre et modéliser les stocks et les transferts en ETM lors des changements environnementaux

Nous avons montré l'utilité de la rétro-observation (§2 & §3) dans les zones de montagne. Les pressions humaines actuelles étant différentes de celles dans le passé, il est nécessaire de développer un monitoring biogéochimique adapté (Lovett et al., 2007) à ces zones. J'illustre ici 2 aspects de ce développement.

1. Dans le cadre de la thèse d'Adrien Claustres et de plusieurs projets de l'OHM Vicdessos, nous développons différentes approches.

Nous avons par exemple mis en place un réseau de collecteurs de neige et de pluie en fonction de l'altitude (1000 – 2200 m). Les collecteurs sont dessinés pour étudier les dépôts d'éléments trace. Nous complétons actuellement ce réseau par 3 autres types de collecteurs:

- Des collecteurs d'eau de pluie pour y mesurer les isotopes de l'oxygène et de l'hydrogène pour contraindre les origines des masses d'air,

- Des harpes à brouillard fabriquées pour les éléments trace pour quantifier l'importance des brouillards dans les cycles géochimiques en ETM (y compris le mercure) en montagne,
- Des harpes à brouillard fabriquées "maison" pour mesurer les isotopes de l'hydrogène et de l'oxygène.

Ces collecteurs vont nous permettre de mieux contraindre l'ensemble des dépôts atmosphériques sur des échelles courtes de temps (jour, mois) car les archives environnementales comme les tourbières ou les sédiments lacustres ont une résolution temporelle limitée de l'ordre de plusieurs années.

2. Les petits bassins versants de montagne sont aussi susceptibles de drainer les stocks d'ETM accumulés depuis les débuts de la métallurgie. Un des vecteurs principaux de ces ETM est la matière organique. Dans le cadre de l'OHM, nous allons suivre le devenir des ETM liés à la matière organique des sols et des tourbières qui peuvent potentiellement se disperser via le bassin versant. La matière organique particulaire mais également "dissoute" est susceptible de transporter les ETM. Les recherches développées par Roman Teisserenc (MCF INPT à EcoLab) et le suivi *in-situ* et régulier de ruisseaux à l'exutoire de la tourbière de Bernadouze (Vicdessos) permettront de mieux quantifier le potentiel de ces environnements dans la redistribution des ETM. Un suivi *in-situ* multiparamètre ainsi que des analyses régulières biogéochimiques sont proposées. L'intérêt de ce suivi tient aussi du fait qu'une coupe prochaine de la forêt adjacente à la tourbière va être effectuée par l'ONF. Potentiellement source de modification des conditions physicochimiques, et potentiellement libératrice de carbone organique, d'éléments trace ou bien de nitrates dans le bassin versant. Ce projet pluridisciplinaire est soutenu par le LABEX Dispositif de Recherche Interdisciplinaire pour les Interactions Hommes-Milieus (DRIHM). Ils rassemblent donc un grand nombre de chercheurs sur un même site en particulier : les biogéochimistes d'EcoLab, un hydrologue de l'ISTO MCF en détachement CNRS ainsi que les géographes de GEODE. Le site de la tourbière de Bernadouze va être également intégré dans le Service d'Observation Tourbières (CNRS INSU) qui a pour but d'étudier la réponse de plusieurs tourbières tempérées face aux perturbations climatiques et anthropiques

Au final, nous pouvons espérer obtenir dans le futur un suivi biogéochimique d'observation pluridisciplinaire (carbone, éléments majeurs, hydrochimie, éléments trace...) d'une zone de montagne. C'est une zone idéale d'observation à l'intersection de plusieurs gradients environnementaux (Brantley et al., 2007) (Figure 51) qui compléterait les observatoires actuels regroupés récemment dans le Réseau des Bassins Versants, mais également socio-écologiques (OHM, "Mountain Research Initiative"<sup>11</sup>...); cet « outil » contribuera dans le futur à développer une approche toujours plus transdisciplinaire.

---

<sup>11</sup> <http://mri.scnatweb.ch/>

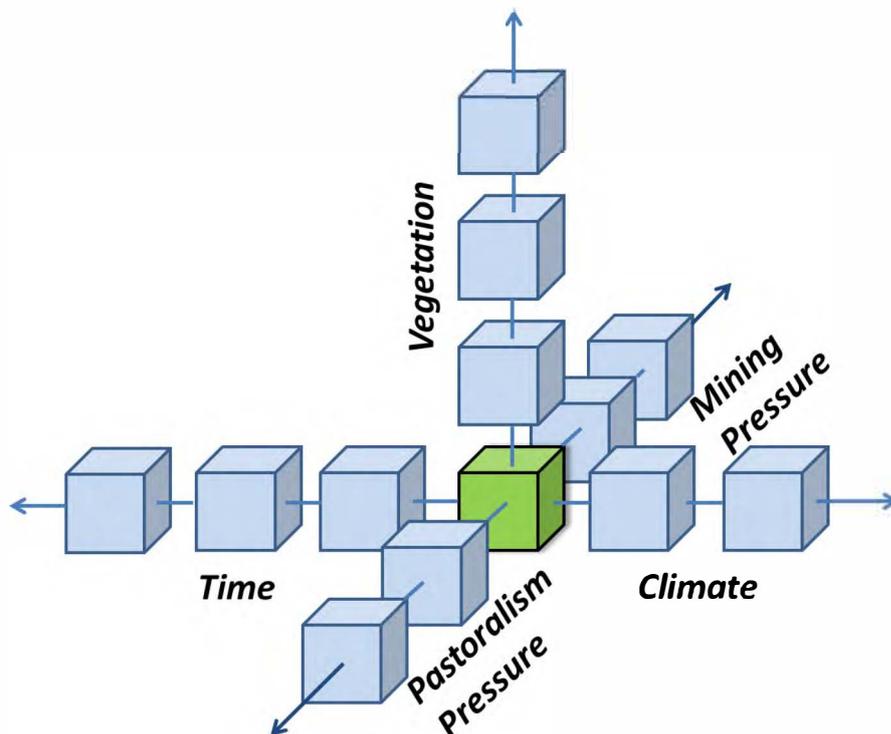


Figure 51 : OHM Pyrenees position in a network of observatories investigating Earth surface processes and human pressures on the environment (base on a original sketch by Brantley et al. (2007)). Position de l'OHM Pyrénées dans un réseau d'observatoires étudiant les processus de la surface continentale et les pressions de l'Homme sur l'environnement

Mes recherches vont donc continuer à porter principalement sur les milieux montagnards et sur l'étude de l'impact de l'homme sur l'interface entre l'atmosphère et l'eau (zone critique). Les zones de montagne sont sensibles aux changements environnementaux:

-Comment cela affecte-t-il les interactions atmosphère-sol-eau?

-Comment cela affecte-t-il les organismes vivants souvent spécifiques aux écosystèmes montagnards? (Figure 52). Etudier les montagnes permet également de mieux comprendre ce qui se passe et se passera dans les zones subarctiques. L'extrême Sud de l'Amérique du Sud, le Nord Canadien possède des points communs avec les zones de montagne. Ces régions sont aussi extrêmement sensibles au changement climatique. Si les zones montagneuses comme les Pyrénées ont déjà subi une forte influence de l'homme, ce n'était pas encore trop le cas des zones plus éloignées subarctiques. Le changement climatique, la pression démographique et la quête des ressources minières et énergétiques vont contribuer à modifier ces régions encore récemment peu impactées par l'homme.

-Comment l'étude de l'impact passé et actuel de l'Homme sur les montagnes peut nous permettre de mieux comprendre l'impact de l'Homme sur les zones arctiques et subarctiques?

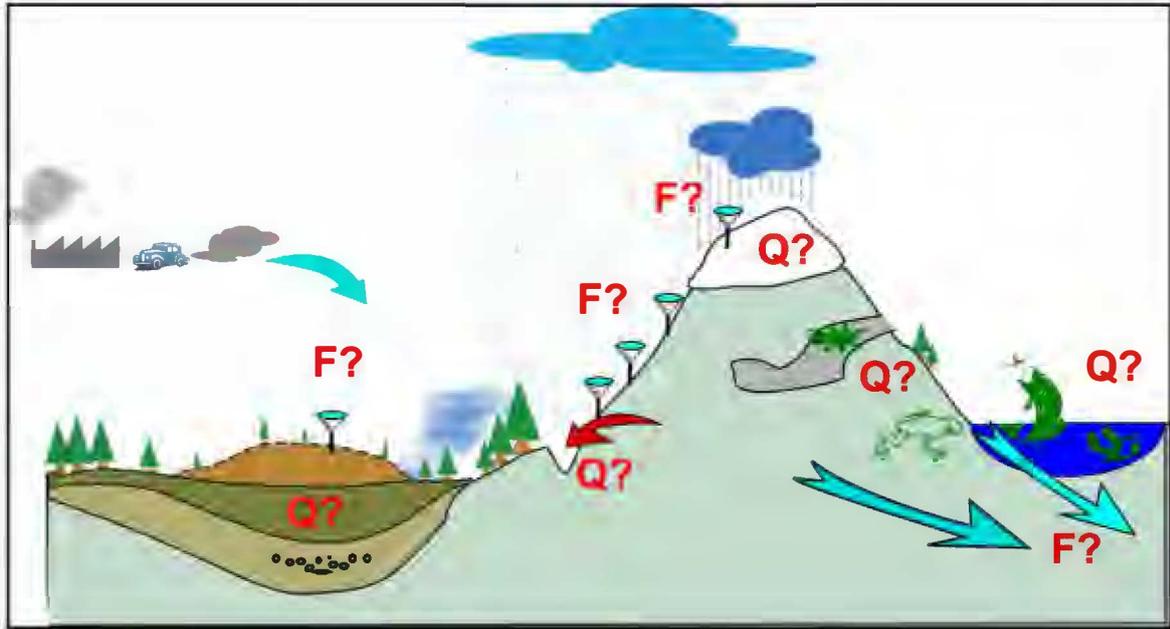


Figure 52 : Atmosphere-soil-water in mountain ecosystems: the "mountain critical zone" – in red are pools and flows (trace metals, carbon, azote...) under investigations, in green are common living organisms, where we check possible interactions between chemical contaminants and ecological vigor. *Atmosphère-sol et eau dans les écosystèmes de montagne: "la zone critique de montagne" – en rouge sont les stocks et flux de matière (ETM, carbone, azote...) en cours d'étude, les organismes vivants étudiés actuellement pour leurs interactions avec les contaminants sont indiqués en vert*

## 6 Bibliographie

- Allan, M., Le Roux, G., De Vleeschouwer, F., Bindler, R., Blaauw, M., Piotrowska, N., Sikorski, J. and Fagel, N., 2013a. High-resolution reconstruction of atmospheric deposition of trace metals and metalloids since AD 1400 recorded by ombrotrophic peat cores in Hautes-Fagnes, Belgium. *Environmental Pollution*, 178(0): 381-394.
- Allan, M., Le Roux, G., Piotrowska, N., Beghin, J., Javaux, E., Court-Picon, M., Mattielli, N., Verheyden, S. and Fagel, N., 2013b. Mid and late Holocene dust deposition in western Europe: the Misten peat bog (Hautes Fagnes & ndash; Belgium). *Clim. Past Discuss.*, 9(3): 2889-2928.
- Allan, M., Le Roux, G., Sonke, J.E., Piotrowska, N., Streel, M. and Fagel, N., 2013c. Reconstructing historical atmospheric mercury deposition in Western Europe using: Misten peat bog cores, Belgium. *Science of the Total Environment*, 442: 290-301.
- Appleby, P.G., 2001. Chronostratigraphic techniques in recent sediments. In: W.M. Last and J.P. Smol (Editors), *Tracking Environmental Change Using Lake Sediments: Basin Analysis, coring, and chronological techniques*. Kluwer Academics, Dordrecht, pp. 171-203.
- Appleby, P.G. and Oldfield, F., 1978. The calculation of lead-210 dates assuming a constant rate of supply of unsupported <sup>210</sup>Pb to the sediments. *Catena*, 5: 1-8.
- Aubert, D., Le Roux, G., Krachler, M., Cheburkin, A., Kober, B., Shotyk, W. and Stille, P., 2006. Origin and fluxes of atmospheric REE entering an ombrotrophic peat bog in Black Forest (SW Germany): Evidence from snow, lichens and mosses. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 70(11): 2815-2826.
- Austin, L.S. and Millward, G.E., 1988. Simulated effects of tropospheric emissions on the global antimony cycle. *Atmospheric Environment* (1967), 22(7): 1395-1403.
- Barbante, C., Schwikowski, M., Döring, T., Gäggeler, H.W., Schotterer, H.W., Tobler, L., Van de Velde, K., Ferrari, C.P., Cozzi, G., Turetta, A., Rosman, J.R., Bolshov, M., Capodaglio, G., Cescon, P. and Boutron, C.F., 2004. Historical Record of European Emissions on heavy metals to the Atmosphere Since the 1650s from Alpine Snow/Ice Cores Drilled near Monte Rosa. *Environmental Science & Technology*, 38(15): 4085-4090.
- Bierkens, J., Buekers, J., Van Holderbeke, M. and Torfs, R., 2012. Health impact assessment and monetary valuation of IQ loss in pre-school children due to lead exposure through locally produced food. *Science of the Total Environment*, 414: 90-97.
- Blaauw, M., 2010. Methods and code for 'classical' age-modelling of radiocarbon sequences. *Quaternary Geochronology*, 5(5): 512-518.
- Blaauw, M. and Christen, J.A., 2010. Flexible Paleoclimate Age-Depth Models Using an Autoregressive Gamma Process. *Bayesian Analysis*, 6(3): 457-474.
- Bourgeron, P.S., Humphries, H.C. and Riboli-Sasco, L., 2009. Regional analysis of social-ecological systems. *Natures Sciences Sociétés*, 17(2): 185-193.
- Brantley, S.L., Goldhaber, M.B. and Ragnarsdottir, K.V., 2007. Crossing disciplines and scales to understand the critical zone. *Elements*, 3(5): 307-314.
- Bunzl, K. and Kracke, W., 1988. Cumulative deposition of <sup>137</sup>Cs, <sup>238</sup>Pu, <sup>239+240</sup>Pu and <sup>241</sup>Am from global fallout in soils from forest, grassland and arable land in Bavaria (FRG). *Journal of Environmental Radioactivity*, 8(1): 1-14.
- Chambers, F.M., Booth, R.K., De Vleeschouwer, F., Lamentowicz, M., Le Roux, G., Mauquoy, D., Nichols, J.E. and van Geel, B., 2012. Development and refinement of proxy-climate indicators from peats. *Quaternary International*, 268: 21-33.

- Claussen, M., Kubatzki, C., Brovkin, V., Ganopolski, A., Hoelzmann, P. and Pachur, H.J., 1999. Simulation of an abrupt change in Saharan vegetation in the mid-Holocene. *Geophysical Research Letters*, 26(14): 2037-2040.
- Cloy, J.M., Farmer, J.G., Graham, M.C., MacKenzie, A.B. and Cook, G.T., 2005. A comparison of antimony and lead profiles over the past 2500 years in Flanders Moss ombrotrophic peat bog, Scotland. *Journal of Environmental Monitoring*, 7: 1137-1147.
- Cziczo, D.J., Stetzer, O., Worringer, A., Ebert, M., Weinbruch, S., Kamphus, M., Gallavardin, S.J., Curtius, J., Borrmann, S., Froyd, K.D., Mertes, S., Mohler, O. and Lohmann, U., 2009. Inadvertent climate modification due to anthropogenic lead. *Nature Geosci*, 2(5): 333-336.
- de Jong, R., Blaauw, M., Chambers, F.M., Christensen, T.R., De Vleeschouwer, F., Finsinger, W., Fronzek, S., Johansson, M., Kokfelt, U., Lamentowicz, M., Le Roux, G., Mauquoy, D., Mitchell, E., Nichols, J.E., Samaritani, E. and Van Geel, B., 2010. Climate and Peatlands. In: J.Dodson (Editor), *Changing Climates, Earth Systems and Society*. Springer, pp. 85-121.
- De Laeter, J., 2011. The Rosetta Stone of isotope science and the uranium/lead system. *Mass Spectrometry Reviews*, 30(5): 757-771.
- De Vleeschouwer, F., Chambers, F.M. and Swindles, G.T., 2010a. Coring and sub-sampling of peatlands for palaeoenvironmental research. *Mires and Peat*, 7(1).
- De Vleeschouwer, F., Fagel, N., Cheburkin, A., Pazdur, A., Sikorski, J., Mattielli, N., Renson, V., Fialkiewicz, B., Piotrowska, N. and Le Roux, G., 2009a. Anthropogenic impacts in North Poland over the last 1300years—A record of Pb, Zn, Cu, Ni and S in an ombrotrophic peat bog. *Science of the Total Environment*, 407(21): 5674-5684.
- De Vleeschouwer, F., Gérard, L., Goormaghtigh, C., Mattielli, N., Le Roux, G. and Fagel, N., 2007. Atmospheric lead and heavy metal pollution records from a Belgian peat bog spanning the last two millenia: Human impact on a regional to global scale. *Science of the Total Environment*, 377(2-3): 282-295.
- De Vleeschouwer, F., Le Roux, G. and Shotyk, W., 2010b. Peat as an archive of atmospheric pollution and environmental change: A case study of lead in Europe. *PAGES Newsletter*, 18(1): 21-22.
- De Vleeschouwer, F., Pazdur, A., Luthers, C., Streel, M., Mauquoy, D., Wastiaux, C., Le Roux, G., Moschen, R., Blaauw, M., Pawlyta, J., Sikorski, J. and Piotrowska, N., 2012a. A millennial record of environmental change in peat deposits from the Misten bog (East Belgium). *Quaternary International*, 268(0): 44-57.
- De Vleeschouwer, F., Pazdur, A., Luthers, C., Streel, M., Mauquoy, D., Wastiaux, C., Le Roux, G., Moschen, R., Blaauw, M., Pawlyta, J., Sikorski, J. and Piotrowska, N., 2012b. A millennial record of environmental change in peat deposits from the Misten bog (East Belgium). *Quaternary International*, 268: 44-57.
- De Vleeschouwer, F., Piotrowska, N., Sikorski, J., Pawlyta, J., Cheburkin, A., Le Roux, G., Lamentowicz, M., Fagel, N. and Mauquoy, D., 2009b. Multiproxy evidence of 'Little Ice Age' palaeoenvironmental changes in a peat bog from northern Poland. *The Holocene*, 19(4): 625-637.
- deMenocal, P., Ortiz, J., Guilderson, T., Adkins, J., Sarnthein, M., Baker, L. and Yarusinsky, M., 2000. Abrupt onset and termination of the African Humid Period: rapid climate responses to gradual insolation forcing. *Quaternary Science Reviews*, 19(1-5): 347-361.
- Douglas, T.A., Loseto, L.L., Macdonald, R.W., Outridge, P., Dommergue, A., Poulain, A., Amyot, M., Barkay, T., Berg, T., Chételat, J., Constant, P., Evans, M., Ferrari, C., Gantner, N., Johnson, M.S., Kirk, J., Kroer, N., Larose, C., Lean, D., Nielsen, T.G., Poissant, L., Rognerud, S., Skov, H., Sørensen, S., Wang, F., Wilson, S. and Zdanowicz, C.M., 2012. The fate of mercury in Arctic terrestrial and aquatic ecosystems, a review. *Environmental Chemistry*, 9(4): 321-355.
- Driscoll, C.T., Mason, R.P., Chan, H.M., Jacob, D.J. and Pirrone, N., 2013. Mercury as a Global Pollutant: Sources, Pathways, and Effects. *Environmental Science & Technology*, 47(10): 4967-4983.

- Etchevers, A., Lecoffre, C., Le Tertre, A., Le Strat, Y., Saturn-Inf, G.I., De Launay, C., Bérat, B., Bidondo, M.-L., Pascal, M. and Fréry, N., 2010. Imprégnation des enfants par le plomb en France en 2008-2009. *BEHweb*, 3: 1-8.
- Forel, B., Monna, F., Petit, C., Bruguier, O., Losno, R., Fluck, P., Begeot, C., Richard, H., Bichet, V. and Chateau, C., 2010. Historical mining and smelting in the Vosges Mountains (France) recorded in two ombrotrophic peat bogs. *Journal of Geochemical Exploration*, 107(1): 9-20.
- Gäbler, H.-E. and Suckow, A., 2003. Chronology of anthropogenic heavy-metal fluxes and Pb isotope ratios derived from radiometrically dated lake sediments in Northern Germany. *Water, air, and soil pollution*, 144(1-4): 243-262.
- Gauthier-Lafaye, F., Pourcelot, L., Eikenberg, J., Beer, H., Le Roux, G., Rhikvanov, L., Stille, P., Renaud, P. and Mezhibor, A., 2008. Radioisotope contaminations from releases of the Tomsk-Seversk nuclear facility (Siberia, Russia). *Journal of Environmental Radioactivity*, 99(4): 680-693.
- Giaccio, L., Cicchella, D., De Vivo, B., Lombardi, G. and De Rosa, M., 2012. Does heavy metals pollution affects semen quality in men? A case of study in the metropolitan area of Naples (Italy). *Journal of Geochemical Exploration*, 112: 218-225.
- Gilbert, S.G. and Weiss, B., 2006. A rationale for lowering the blood lead action level from 10 to 2µg/dL. *Neurotoxicology*, 27(5): 693-701.
- Givelet, N., Le Roux, G., Cheburkin, A.K., Chen, B., Frank, J., Goodsite, M.E., Kempster, H., Krachler, M., Noernberg, T., Rausch, N., Rheinberger, S., Roos-Barracough, F., Sapkota, A., Scholz, C. and Shotyk, W., 2004. Suggested protocol for collecting, handling and preparing peat cores and peat samples for physical, chemical, mineralogical and isotopic analyses. *Journal of Environmental Monitoring*, 6: 481-492.
- Givelet, N., Roos-Barracough, F. and Shotyk, W., 2003. Predominant anthropogenic sources and rates of atmospheric mercury accumulation in southern Ontario recorded by peat cores from three bogs: comparison with natural "background" values (past 8,000 years). *Journal of Environmental Monitoring*, 5(6): 935-949.
- Goodsite, M.E., Rom, W., Heinemeier, J., Lange, T., Ooi, S., Appleby, P.G., Shotyk, W., Van der Knapp, W.O., Lohse, C. and Hansen, T.S., 2001. High-resolution AMS <sup>14</sup>C dating of post-bomb peat archives of atmospheric pollutants. *Radiocarbon*, 43(3): 453-473.
- Graustein, W.C. and Turekian, K.K., 1989. The effects of forests and topography on the deposition of sub- micrometer aerosols measured by lead-210 and cesium-137 in soils. *Agricultural & Forest Meteorology*, 47(2-4): 199-220.
- Grousset, F.E. and Biscaye, P.E., 2005. Tracing dust sources and transport patterns using Sr, Nd and Pb isotopes. *Chemical Geology*, 222(3-4): 149-167.
- Hernandez, L., Probst, A., Probst, J.L. and Ulrich, E., 2003. Heavy metal distribution in some French forest soils: evidence for atmospheric contamination. *Science of the Total Environment*, 312(1): 195-219.
- Hong, S., Lee, K., Hou, S., Hur, S.D., Ren, J., Burn, L.J., Rosman, K.J.R., Barbante, C. and Boutron, C.F., 2009. An 800-Year Record of Atmospheric As, Mo, Sn, and Sb in Central Asia in High-Altitude Ice Cores from Mt. Qomolangma (Everest), Himalayas. *Environmental Science & Technology*, 43(21): 8060-8065.
- Huang, P.-C., Su, P.-H., Chen, H.-Y., Huang, H.-B., Tsai, J.-L., Huang, H.-I. and Wang, S.-L., 2012. Childhood blood lead levels and intellectual development after ban of leaded gasoline in Taiwan: a 9-year prospective study. *Environment international*, 40(1): 88-96.
- IPCC, 2007. *Climate Change 2007 - The Physical Science Basis: Working Group I Contribution to the Fourth Assessment Report of the IPCC*. Cambridge University Press.
- Johnson, C.M., Beard, B.L., Albarède, F. and Union, C.G., 2004. *Geochemistry of non-traditional stable isotopes*. Mineralogical Society of America Washington, DC.
- Krachler, M., Le Roux, G., Kober, B. and Shotyk, W., 2004a. Optimising accuracy and precision of lead isotope measurement (<sup>206</sup>Pb,<sup>207</sup>Pb,<sup>208</sup>Pb) in acid digests of peat with ICP-SMS using individual mass discrimination correction. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 19(3): 354-361.

- Krachler, M. and Shotyk, W., 2009. Trace and ultratrace metals in bottled waters: Survey of sources worldwide and comparison with refillable metal bottles. *Science of the Total Environment*, 407(3): 1089-1096.
- Krachler, M., Zheng, J., Fisher, D. and Shotyk, W., 2004b. Direct determination of lead isotopes ( $^{206}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}$ ) in arctic Ice Samples at Picogram per Gram Levels Using Inductively Coupled Plasma-Sector Field Ms coupled with a High-Efficiency Sample Introduction System. *Analytical Chemistry*, 76: 5510-5517.
- Krachler, M., Zheng, J., Fisher, D. and Shotyk, W., 2008. Atmospheric Sb in the Arctic during the past 16,000 years: Responses to climate change and human impacts. *Global Biogeochem. Cycles*, 22(1): GB1015.
- Krachler, M., Zheng, J., Koerner, R., Zdanowicz, C., Fisher, D. and Shotyk, W., 2005. Increasing atmospheric antimony contamination in the northern hemisphere: Snow and ice evidence from Devon Island, Arctic Canada. *Journal of Environmental Monitoring*, 7(12): 1169-1176.
- Kylander, M.E., Weiss, D.J., Martínez Cortizas, A., Spiro, B., Garcia-Sanchez, R. and Coles, B.J., 2005. Refining the pre-industrial atmospheric Pb isotope evolution curve in Europe using an 8000 year old peat core from NW Spain. *Earth and Planetary Science Letters*, 240(2): 467-485.
- Lagadeuc, Y. and Chenorkian, R., 2009. Les systèmes socio-écologiques: vers une approche spatiale et temporelle. *Natures Sciences Sociétés*, 17(2): 194-196.
- Lanphear, B.P., Eberly, S. and Howard, C.R., 2000. Long-Term Effect of Dust Control on Blood Lead Concentrations. *Pediatrics*, 106(4).
- Lanphear, B.P., Hornung, R., Khoury, J., Yolton, K., Baghurst, P., Bellinger, D.C., Canfield, R.L., Dietrich, K.N., Bornschein, R. and Greene, T., 2005. Low-level environmental lead exposure and children's intellectual function: an international pooled analysis. *Environmental Health Perspectives*, 113(7): 894.
- Laskin, A., Laskin, J. and Nizkorodov, S.A., 2012. Mass spectrometric approaches for chemical characterisation of atmospheric aerosols: critical review of the most recent advances. *Environmental Chemistry*, 9(3): 163-189.
- Le Roux, G., 2010. Application Of Non-Traditional Stable-Isotope Systems To The Study Of Sources, Fate And Impact Of Metals In The Terrestrial Environment European Science Foundation.
- Le Roux, G., Aubert, D., Stille, P., Krachler, M., Kober, B., Cheburkin, A., Bonani, G. and Shotyk, W., 2005. Recent atmospheric Pb deposition at a rural site in southern Germany assessed using a peat core and snowpack, and comparison with other archives. *Atmospheric Environment*, 39(36): 6790-6801.
- Le Roux, G. and De Vleeschouwer, F., 2010. Preparation of peat samples for inorganic geochemistry used as palaeoenvironmental proxies. *Mires and Peat*, 7(4).
- Le Roux, G., Duffa, C., Vray, F. and Renaud, P., 2010. Deposition of artificial radionuclides from atmospheric Nuclear Weapon Tests estimated by soil inventories in French areas low-impacted by Chernobyl. *Journal of Environmental Radioactivity*, 101(3): 211-218.
- Le Roux, G., Fagel, N., De Vleeschouwer, F., Krachler, M., Debaille, V., Stille, P., Mattielli, N., van der Knaap, W.O., van Leeuwen, J.F.N. and Shotyk, W., 2012. Volcano- and climate-driven changes in atmospheric dust sources and fluxes since the Late Glacial in Central Europe. *Geology*, 40(4): 335-338.
- Le Roux, G., Laverret, E. and Shotyk, W., 2006. Fate of calcite, apatite and feldspars in an ombrotrophic peat bog, Black Forest, Germany. *Journal of the Geological Society*, 163(4): 641-646.
- Le Roux, G. and Marshall, W.A., 2010. Constructing recent peat accumulation chronologies using atmospheric fall-out radionuclides. *Mires and Peat*, 7(8).
- Le Roux, G., Pourcelot, L., Masson, O., Duffa, C., Vray, F. and Renaud, P., 2008. Aerosol deposition and origin in French mountains estimated with soil inventories of  $^{210}\text{Pb}$  and artificial radionuclides. *Atmospheric Environment*, 42(7): 1517-1524.
- Le Roux, G. and Renson, V., 2010. Analyse du plomb contenu dans les ossements. In: M. Guérout, T. Romon and O. Zimmermann (Editors), *Tromelin: l'île aux esclaves oubliés*. CNRS.

- Le Roux, G. and Shotyk, W., 2006. Chapter 9 Weathering of inorganic matter in bogs. In: A.M.C. I.P. Martini and W. Chesworth (Editors), *Developments in Earth Surface Processes*. Elsevier, pp. 197-215.
- Le Roux, G., Véron, A. and Morhange, C., 2003a. Geochemical evidences of early anthropogenic activity in harbour sediments from Sidon. *Archaeology & History in Lebanon*(Autumn 2003): 115-119.
- Le Roux, G., Veron, A., Scholz, C. and Doumet-Serhal, C., 2003b. Chemical and isotopical analyses on weapons from the Middle Bronze Age in Sidon. *Archaeology & History in Lebanon*(18): 58-61.
- Le Roux, G., Weiss, D., Grattan, J.P., Givélet, N., Krachler, M., Cheburkin, A.K., Rausch, N., Kober, B. and Shotyk, W., 2004. Identifying the sources and timing of ancient and medieval atmospheric lead pollution in England using a peat profile from Lindow bog, Manchester. *Journal of Environmental Monitoring*, 6: 502-510.
- Lovett, G.M., 1994. Atmospheric deposition of nutrients and pollutants in North America: an ecological perspective. *Ecological Applications*: 630-650.
- Lovett, G.M., Burns, D.A., Driscoll, C.T., Jenkins, J.C., Mitchell, M.J., Rustad, L., Shanley, J.B., Likens, G.E. and Haeuber, R., 2007. Who needs environmental monitoring? *Frontiers in Ecology and the Environment*, 5(5): 253-260.
- Mahowald, N., 2011. Aerosol Indirect Effect on Biogeochemical Cycles and Climate. *Science*, 334(6057): 794-796.
- Mahowald, N., Ward, D.S., Kloster, S., Flanner, M.G., Heald, C.L., Heavens, N.G., Hess, P.G., Lamarque, J.-F. and Chuang, P.Y., 2011. Aerosol Impacts on Climate and Biogeochemistry. *Annual Review of Environment and Resources*, 36(1): 45-74.
- Marriner, N., Guérout, M. and Romon, T., 2010. The forgotten slaves of Tromelin (Indian Ocean): new geoarchaeological data. *Journal of Archaeological Science*, 37(6): 1293-1304.
- Masson, O., Baeza, A., Bieringer, J., Brudecki, K., Bucci, S., Cappai, M., Carvalho, F.P., Connan, O., Cosma, C., Dalheimer, A., Didier, D., Depuydt, G., De Geer, L.E., De Vismes, A., Gini, L., Groppi, F., Gudnason, K., Gurriaran, R., Hainz, D., Halldórsson, Ó., Hammond, D., Hanley, O., Holeý, K., Homoki, Z., Ioannidou, A., Isajenko, K., Jankovic, M., Katzlberger, C., Kettunen, M., Kierepko, R., Kontro, R., Kwakman, P.J.M., Lecomte, M., Leon Vintro, L., Leppänen, A.P., Lind, B., Lujanienė, G., Mc Ginnity, P., Mahon, C.M., Malá, H., Manenti, S., Manolopoulou, M., Mattila, A., Mäuring, A., Mietelski, J.W., Møller, B., Nielsen, S.P., Nikolic, J., Overwater, R.M.W., Pálsson, S.E., Papastefanou, C., Penev, I., Pham, M.K., Povinec, P.P., Ramebäck, H., Reis, M.C., Ringer, W., Rodriguez, A., Rulík, P., Saey, P.R.J., Samsonov, V., Schlosser, C., Sgorbati, G., Silobritiene, B.V., Söderström, C., Sogni, R., Solier, L., Sonck, M., Steinhauser, G., Steinkopff, T., Steinmann, P., Stoulos, S., Sýkora, I., Todorovic, D., Tooloutalaie, N., Tositti, L., Tschiersch, J., Ugron, A., Vagena, E., Vargas, A., Wershofen, H. and Zhukova, O., 2011. Tracking of Airborne Radionuclides from the Damaged Fukushima Dai-ichi Nuclear Reactors by European Networks. *Environmental Science & Technology*, 45(18): 7670-7677.
- Mayewski, P.A., Meeker, L.D., Twickler, M.S., Whitlow, S., Yang, Q., Lyons, W.B. and Prentice, M., 1997. Major features and forcing of high-latitude northern hemisphere atmospheric circulation using a 110,000-year-long glaciochemical series. *J. Geophys. Res.*, 102(C12): 26345-26366.
- Mielke, H., 1999. Lead in the Inner Cities Policies to reduce children's exposure to lead may be overlooking a major source of lead in the environment. *American scientist*, 87(1): 62-73.
- Mitchell, P.I., Sanchez-Cabeza, J.A., Ryan, T.P. and McGarry, A.T., 1990. Preliminary estimates of cumulative caesium and plutonium deposition in the Irish terrestrial environment. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 138(2): 241-256.
- Monna, F., Galop, D., Carozza, L., Tual, M., Beyrie, A., Marembert, F., Chateau, C., Dominik, J. and Grousset, F.E., 2004. Environmental impact of early Basque mining and smelting recorded in a high ash minerogenic peat deposit. *Science of the Total Environment*, 327(1-3): 197-214.
- Murozumi, M. and Nakamura, S., 1982. The isotopic abundance of lead in the Ozegahara moor, Ozegahara: Scientific Researches of the highmoor in Central Japan, pp. 119-122.

- Nevin, R., 2007. Understanding international crime trends: the legacy of preschool lead exposure. *Environmental Research*, 104(3): 315-336.
- Novak, M., Erel, Y., Zemanova, L., Bottrell, S.H. and Adamova, M., 2008. A comparison of lead pollution record in Sphagnum peat with known historical Pb emission rates in the British Isles and the Czech Republic. *Atmospheric Environment*, 42(40): 8997-9006.
- Patterson, C., Ericson, J., Manea-Krichthen, M. and Shirahata, H., 1991. Natural skeletal levels of lead in *Homo sapiens sapiens* uncontaminated by technological lead. *Science of the Total Environment*, 107: 205-236.
- Patterson, C.C., 1965. Contaminated and Natural Lead Environments of Man. *Arch Environ Health*, 11: 344-360.
- Piotrowska, N., Blaauw, M., Mauquoy, D. and Chambers, F.M., 2010. Constructing deposition chronologies for peat deposits using radiocarbon dating. *Mires and Peat*, 7(10).
- Pourcelot, L., Mercat, C. and Le Roux, G., 2008. Radioactivité des eaux de forage autour du site de Tricastin-Pierrelatte, Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire.
- Preiss, N., Mélières, M.-A. and Pourchet, M., 1996. A compilation of data on lead 210 concentration in surface air and fluxes at the air-surface and water-sediment interfaces. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 101(D22): 28847-28862.
- Rausch, N., Nieminen, T., Ukonmaanaho, L., Le Roux, G., Krachler, M., Cheburkin, A., Bonani, G. and Shotyk, W., 2005. Comparison of atmospheric deposition of copper, nickel, cobalt, zinc and cadmium recorded by peat cores from three ombrotrophic bogs in Finland with monitoring data and emission records. Submitted to *Environmental Science & Technology*.
- Reimer, P.J., Baillie, M.G., Bard, E., Bayliss, A., Beck, J.W., Blackwell, P.G., Ramsey, C.B., Buck, C.E., Burr, G.S. and Edwards, R.L., 2009. IntCal09 and Marine09 radiocarbon age calibration curves, 0-50,000 years cal BP.
- Renaud, P. and Louvat, D., 2004. Magnitude of fission product depositions from atmospheric nuclear weapon test fallout in France. *Health Physics*, 86(4): 353-358.
- Rockström, J., Steffen, W., Noone, K., Persson, Å., Chapin, F.S., III, Lambin, E., Lenton, T.M., Scheffer, M., Folke, C., Schellnhuber, H.J., Nykvist, B., de Wit, C.A., Hughes, T., van der Leeuw, S., Rodhe, H., Sörlin, S., Snyder, P.K., Costanza, R., Svedin, U., Falkenmark, M., Karlberg, L., Corell, R.W., Fabry, V.J., Hansen, J., Walker, B., Liverman, D., Richardson, K., Crutzen, P. and Foley, J., 2009. Planetary Boundaries: Exploring the Safe Operating Space for Humanity. *Ecology and Society*, 14(2).
- Rockstrom, J., Steffen, W., Noone, K., Persson, A., Chapin, F.S., Lambin, E.F., Lenton, T.M., Scheffer, M., Folke, C., Schellnhuber, H.J., Nykvist, B., de Wit, C.A., Hughes, T., van der Leeuw, S., Rodhe, H., Sorlin, S., Snyder, P.K., Costanza, R., Svedin, U., Falkenmark, M., Karlberg, L., Corell, R.W., Fabry, V.J., Hansen, J., Walker, B., Liverman, D., Richardson, K., Crutzen, P. and Foley, J.A., 2009. A safe operating space for humanity. *Nature*, 461(7263): 472-475.
- Romon, T. and Guerout, M., 2013. La culture matérielle comme support de la mémoire historique: l'exemple des naufragés de Tromelin. In *Situ. Revue des patrimoines*.
- Rosman, K.J.R., Chisholm, W., Boutron, C.F., Candelone, J.P., Jaffrezo, J.-L. and Davidson, C.I., 1998. Seasonal variations in the origin of lead in snow at Dye 3, Greenland. *Earth and Planetary Science Letters*, 160: 383-389.
- Rosman, K.J.R., Chisholm, W., Hong, S., Candelone, J.-P. and Boutron, C.F., 1997. Lead from Carthaginian and Roman Spanish Mines Isotopically Identified in Greenland Ice Dated from 600 B.C. to 300 A.D. *Environmental Science and Technology*, 31(12): 3413-3416.
- Schwikowski, M., Barbante, C., Doering, T., Gaggeler, H.W., Boutron, C.F., Schotterer, U., Tobler, L., Van de Velde, K., Ferrari, C.P., Cozzi, G., Rosman, K. and Cescon, P., 2004. Post 17th Century changes of European Lead emissions recorded in high-alpine snow and ice. *Environmental Science and Technology*.
- Selin, N.E., 2009. Global biogeochemical cycling of mercury: A review. *Annual Review of Environment and Resources*, 34(1): 43.

- Settle, D.M. and Patterson, C.C., 1980. Lead in Albacore: Guide to lead pollution in Americans. *Science*, 207(14): 1167-1176.
- Shortland, #160 and Andrew, 2002. An antimony bead from Jerablus Tahtani, 36. Historical Metallurgy Society, [S.I.], ROYAUME-UNI, 5 pp.
- Shotyk, W., 2001. The chronology of anthropogenic, atmospheric Pb deposition recorded by peat cores in three minerogenic peat deposits from Switzerland. *Science of the Total Environment*(soumis).
- Shotyk, W., Goodsite, M.E., Roos-Barraclough, F., Frei, R., Heinemeier, J., Asmund, G., Lohse, C. and Hansen, T.S., 2003. Anthropogenic contributions to atmospheric Hg, Pb and As accumulation recorded by peat cores from southern Greenland and Denmark dated using the <sup>14</sup>C "bomb pulse curve". *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 67(21): 3991-4011.
- Shotyk, W., Goodsite, M.E., Roos-Barraclough, F., Givélet, N., Le Roux, G., Weiss, D., Cheburkin, A., Knudsen, K., Heinemeier, J. and van Der Knaap, W., 2005. Accumulation rates and predominant atmospheric sources of natural and anthropogenic Hg and Pb on the Faroe Islands. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 69(1): 1-17.
- Shotyk, W. and Krachler, M., 2007. Contamination of bottled waters with antimony leaching from polyethylene terephthalate (PET) increases upon storage. *Environmental Science and Technology*, 41(5): 1560-1563.
- Shotyk, W., Krachler, M. and Chen, B., 2004. Antimony in recent, ombrotrophic peat from Switzerland and Scotland: Comparison with natural background values (5,320 to 8,020 <sup>14</sup>C yr BP) and implications for the global atmospheric Sb cycle. *Global Biogeochemical Cycles*, 18(1).
- Shotyk, W. and Le Roux, G., 2005a. Biogeochemistry and Cycling of Lead. In: A. Sigel, H. Sigel and R.K.O. Sigel (Editors), *Biogeochemical Cycles of the elements*. M.Dekker, New York.
- Shotyk, W. and Le Roux, G., 2005b. Biogeochemistry and cycling of lead. *Metal Ions in Biological Systems*, 239-275 pp.
- Swindles, G.T., De Vleeschouwer, F. and Plunkett, G., 2010. Dating peat profiles using tephra: stratigraphy, geochemistry and chronology. *Mires and Peat*, 7(Art. 5).
- Thompson, L.G., Mosley-Thompson, E., Davis, M.E., Henderson, K.A., Brecher, H.H., Zagorodnov, V.S., Mashiotta, T.A., Lin, P.-N., Mikhalenko, V.N., Hardy, D.R. and Beer, J., 2002. Kilimanjaro Ice Core Records: Evidence of Holocene Climate Change in Tropical Africa. *Science*, 298(5593): 589-593.
- Tian, H.Z., Zhao, D., He, M.C., Wang, Y. and Cheng, K., 2011. Temporal and spatial distribution of atmospheric antimony emission inventories from coal combustion in China. *Environmental Pollution*, 159(6): 1613-1619.
- Triantafyllidou, S. and Edwards, M., 2012. Lead (Pb) in tap water and in blood: implications for lead exposure in the United States. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, 42(13): 1297-1352.
- Tschan, M., Robinson, B. and Schulin, R., 2008. Antimony uptake by *Zea mays* (L.) and *Helianthus annuus* (L.) from nutrient solution. *Environmental Geochemistry and Health*, 30(2): 187-191.
- Tschan, M., Robinson, B.H., Nodari, M. and Schulin, R., 2009. Antimony uptake by different plant species from nutrient solution, agar and soil. *Environmental Chemistry*, 6(2): 144-152.
- Turekian, K.K. and Graustein, W.C., 2003. 4.10 - Natural Radionuclides in the Atmosphere. In: D.H. Editors-in-Chief: Heinrich and K.T. Karl (Editors), *Treatise on Geochemistry*. Pergamon, Oxford, pp. 261-279.
- Turekian, K.K. and Graustein, W.C., 2004. Natural Radionuclides in the Atmosphere. In: H.D. Holland and K.K. Turekian (Editors), *Treatise on geochemistry*. Elsevier, pp. 261-279.
- Vallelonga, P., Van de Velde, K., Candelone, J.P., Morgan, V.I., Boutron, C.F. and Rosman, K.J.R., 2002. The lead pollution history of Law Dome, Antarctica, from isotopic measurements on ice cores: 1500 AD to 1989. *Earth and Planetary Science Letters*, 6347: 1-16.

- Véron, A., Lambert Claude, E., Isley, A., Linet, P. and Grousset, F., 1987. Evidence of recent lead pollution in deep north-east Atlantic sediments. *Nature*, 326: 278-281.
- Veron, A., Le Roux, G., POIRIER, A. and BAQUE, D., 2011. ORIGIN OF COPPER USED IN BRONZE ARTEFACTS FROM MIDDLE BRONZE AGE BURIALS IN SIDON: A SYNTHESIS FROM LEAD ISOTOPE IMPRINTS AND CHEMICAL ANALYSES. *Archaeology & History in Lebanon*(34-35): 68-78.
- Veron, A., Poirier, A. and Le Roux, G., 2009. LEAD ISOTOPES REVEAL THE ORIGIN OF MIDDLE BRONZE AGE ARTEFACTS FOUND IN SIDON (BURIAL 42). *Archaeology & History in Lebanon*(29): 68-74.
- Wagner, F., Aaby, B. and Visscher, H., 2002. Rapid atmospheric CO<sub>2</sub> changes associated with the 8,200-years-B.P. cooling event. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 99(19): 12011-12014.
- Wanner, H., Solomina, O., Grosjean, M., Ritz, S.P. and Jetel, M., 2011. Structure and origin of Holocene cold events. *Quaternary Science Reviews*, 30(21): 3109-3123.
- Weathers, K.C., Lovett, G.M., Likens, G.E. and Lathrop, R., 2000. The effect of landscape features on deposition to hunter mountain, Catskill Mountains, New York. *Ecological Applications*, 10(2): 528-540.
- Weiss, D.J., Rehkemper, M., Schoenberg, R., McLaughlin, M., Kirby, J., Campbell, P.G., Arnold, T., Chapman, J., Peel, K., Gioia and Simone, 2008. Application of nontraditional stable-isotope systems to the study of sources and fate of metals in the environment. *Environmental science & technology*, 42(3): 655-664.
- Westerhoff, P., Prapaipong, P., Shock, E. and Hillaireau, A., 2008. Antimony leaching from polyethylene terephthalate (PET) plastic used for bottled drinking water. *Water Research*, 42(3): 551-556.
- Wetherbee, G.A., Gay, D.A., Debey, T.M., Lehmann, C.M.B. and Nilles, M.A., 2012. Wet Deposition of Fission-Product Isotopes to North America from the Fukushima Dai-ichi Incident, March 2011. *Environmental Science & Technology*, 46(5): 2574-2582.
- Wood, J.M., 1974. Biological Cycles for Toxic Elements in the Environment. *Science*, 183(4129): 1049-1052.

## 7 Curriculum Vitae

### 7.1 Informations personnelles et professionnelles

#### Situation personnelle et état civil

**Date et Lieu de naissance :** 3 Février 1978 à Paris  
**Nationalité:** française  
**Adresse:** EcoLab / Campus Ensat  
Avenue de l'Agrobiopole  
BP 32607 Auzeville tolosane  
31326 Castanet-Tolosan  
France

**Téléphones:** 06.88.98.41.35 05.62.19.39.40  
**Courriels:** [gael.leroux@ensat.fr](mailto:gael.leroux@ensat.fr) [gael.le.roux.pro@gmail.com](mailto:gael.le.roux.pro@gmail.com)  
**Page web:** <http://sites.google.com/site/gaellerouxpro/>

#### Situation professionnelle actuelle

Chargé de recherche première classe CNRS au laboratoire d'écologie fonctionnelle et environnement  
EcoLab UMR5245 CNRS/Université Paul Sabatier/Institut National Polytechnique de Toulouse

#### Expériences précédentes

2008-janvier 2009: Contrat postdoctoral de l'Université de Liège, Belgique :  
*Etude à haute résolution temporelle des sources et flux des poussières atmosphériques grâce à des tourbières ombrotrophes durant l'Holocène: géochimie des isotopes du Nd et REE*

Aout 2005 – janvier 2008 : Ingénieur-chercheur à l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN) au sein du Laboratoire d'Etudes Radioécologiques en Milieu Continental et Marin (LERCM, Cadarache):  
*Utilisation des radionucléides artificiels et naturels pour tracer l'origine et les mécanismes de dépôt des aérosols,*  
*Evaluation et interprétation des niveaux et des transferts en radionucléides naturels et artificiels dans les différents compartiments environnementaux en milieu naturel et autour des sites AREVA.*

Oct.2001-juillet 2005: Géochimie des écosystèmes continentaux - traçage isotopique, Institut de Géochimie Environnementale Heidelberg, Allemagne

#### Formation

*oct.2001-mai 2005*      Doctorat en Géochimie Environnementale soutenu le 9 Mai 2005, Université de Heidelberg, Allemagne  
 Titre: "Fate of natural and anthropogenic particles in peat bogs" sous la direction de William Shotyk  
 Mention: *Summa Cum Laude* ("excellent")

*2000-2001*              Diplôme d'Études Approfondies en Géosciences de l'Environnement CEREGE (Université de Aix-Marseille I, France)  
 Recherche (février–juin 2001): "Etude des pollutions antiques au plomb dans les ports antiques de Marseille, Arles et Sidon"; sous la direction d'A. Véron

*1998-2001*              Magistère Sciences de la Terre de l'Ecole Normale Supérieure de Lyon

*1999-2000*              Maîtrise de Sciences de la Terre (Université Lyon 1, France)

*1998-1999*              Licence de Sciences de la Terre (Université Lyon 1, France)

*1996-1998*              D.E.U.G de Sciences de la matière option physique et géosciences (Université Rennes 1, France)

### Langues

Français	Langue maternelle
Anglais	Courant
Allemand	Courant
Espagnol	Notions

### Techniques analytiques

Travail en salle blanche et "ultra-blanche",  
 Spectrométrie de masse des isotopes du Pb, Sr, Nd, Zn et Cu (TIMS, MC-ICPMS, SF-ICPMS),  
 Mesures d'éléments traces (GF-AAS, ICP-OES, ICP-MS),  
 Géochronologie de l'Holocène ( $^{14}\text{C}$ : classique, "bomb-pulse curve" et "wigggle-match" dating,  $^{210}\text{Pb}$ ).

## 7.2 Formation à la recherche, enseignement, animation et diffusion de la culture scientifique

### *Formation à la recherche*

#### *Thèses dirigées*

**Depuis Octobre 2011:** Direction (avec Jeroen Sonke en co-direction- GET) de la thèse de Maxime Enrico: " Post-glacial Atmospheric Hg dynamics at Arctic and Temperate Latitudes" – financement ERC Starting Grant

#### Summary:

To quantify the effects of human activities on the atmospheric geochemical cycle of Hg, the natural variability in the Hg cycle must be known, and this can only be obtained using long-term records of Hg accumulation. Ombrotrophic peat bogs receive inputs exclusively from the air and the first long-term reconstruction of atmospheric Hg deposition was obtained using a Spanish bog which has been accumulating peat since 4070 (radiocarbon years) BP; this study not only showed that anthropogenic sources have exceeded natural contributions for more than a millennium (MARTINEZ-CORTIZAS et al., 1999), but also suggested that cold climate phases promote atmospheric Hg accumulation which has important implications for polar regions. A peat bog in Switzerland (Etang de la Gruère in the Jura Mountains) has been used to create a high-resolution reconstruction of atmospheric Hg deposition extending back 14500 calendar years (Roos-Barraclough et al., 2002a): here, the natural range of Hg fluxes (0.3 to 8  $\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{yr}$ ) was found to be impacted both by Holocene climate change and volcanic emissions.

We propose to study the Hg isotope geochemistry of multiple peat records over a large geographical area, in order to assess past atmospheric Hg dynamics. Samples will be obtained from the collections of Prof. W.SHOTYK (Univ. Heidelberg, Germany), Prof. P.OURIDGE (Univ. Manitoba, Canada) and our own collection.

1. Bathurst Island (75o N) minerotrophic peat record (5,900 yr BP) from Northern Canada (GIVELET et al., 2004).
2. Inuvik peat record (68o N; 7,800 yr BP) from northwest Canada.
3. Narsaq peat record (61o N; 3,540 yr BP) from southern Greenland.
4. A south-east Hudson Bay peat core (50o N; 1,700 yr BP) covering more recent deposition, in the area we performed our preliminary lichen study (Figure 1).
5. The Pinet ombrotrophic peat record from the Pyrenees Mountains (43o N; ~10,000 yr BP). Radiogenic Pb isotope analyses, stable Hg isotope analyses.
6. The well-characterized Etang de la Gruère peat record from the Swiss Jura Mountains (43o N; ~14,500 yr BP).

The analysis of the Hg concentration and isotopic composition of the above peat archives should allow us to better understand 1) the sensitivity of Hg deposition to climate, and 2) the identification of natural volcanic and anthropogenic components in atmospheric Hg deposition.

**Depuis Septembre 2012:** Co-direction (avec Anne Probst -EcoLab)- de la thèse d'Adrien Claustres: "Répartition des Eléments traces métalliques dans les écosystèmes montagnards : Rôle et part des facteurs naturels et anthropiques à l'échelle des temps pédologiques" – financement bourse Ecole Doctorale SDU2E – Ministère

#### Résumé:

Les milieux montagnards sont sensibles aux pollutions aux éléments trace métalliques (ETM). Les contaminations des écosystèmes associés peuvent être importantes, du fait par exemple du lessivage accru d'aérosols porteurs de polluants ou bien encore de l'accumulation dans des creux topographiques.

Il est décisif de comprendre comment sont impactés les écosystèmes de montagne car ceux-ci sont des milieux sensibles à l'ensemble des actuels et futurs changements environnementaux. De plus, situés en tête de bassins versants, leurs perturbations impactent originellement la qualité de l'eau. Il est nécessaire de comprendre quels sont les réservoirs en ETM contenus dans ces milieux montagnards et quel est leur potentiel de remobilisation face aux changements environnementaux?

L'objectif du sujet de thèse est de comprendre quels sont les facteurs contribuant à la présence et l'importance d'ETM exogènes afin de pouvoir cartographier et intégrer les différents pools métalliques des milieux montagnards.

L'accent sera mis sur les métaux émergents (Sb, platinoïdes) dont les comportements lors du transport et dépôt atmosphérique sont moins bien connus. D'autres éléments trace métalliques comme le plomb seront également mesurés afin d'étudier leurs associations avec l'antimoine ou les platinoïdes.

La thèse se focalisera sur le massif des Pyrénées en adoptant une approche pluri-échelles spatiales et temporelles, en mettant en parallèle l'enregistrement des sols avec l'enregistrement des tourbières et en s'appuyant comme point central sur le Haut-Videssos en Ariège:

1/ les chronologies des dépôts en ETM seront reconstituées dans le Haut-Videssos à l'aide de 2 tourbières enregistrant un signal atmosphérique depuis 10000 ans. Ces signaux seront comparés au signal enregistré dans les sédiments d'un lac voisin. La variabilité spatiale et temporelle de l'accumulation des ETM au niveau local sera ainsi établie pour différentes périodes: pré-anthropique, préindustrielle et industrielle. Les tourbières comme archives environnementales permettront ainsi de décrire l'ensemble de l'histoire des dépôts en ETM contemporains de la pédogénèse des sols de montagne suite au retrait des glaciers.

2/ des transects altitudinaux dans les sols, les sphaignes et les dépôts neigeux permettront de quantifier les mécanismes intensifiant les dépôts atmosphériques en fonction de l'altitude, du couvert végétal etc. Au niveau des sols, un modèle numérique de terrain permettra de comprendre les mécanismes topographiques d'accumulation de certains polluants sur des petites surfaces – par exemple là où se situent des névés.

3/ l'étude comportera un site jumeau dans l'Aude où une chronologie des dépôts atmosphériques en ETM a déjà été établie et où les dépôts atmosphériques actuels sont relativement bien établis (Gandois et al., 2010). L'intérêt d'une comparaison entre ces 2 sites tient à leurs profondes différences géologiques (granite vs. calcaire) et géomorphologiques (montagnes découpées vs. plateau)

4/ Des enregistrements tourbeux des 300 dernières années dans plusieurs sites pyrénéens seront étudiés afin de déterminer la variabilité intra-régionale des dépôts atmosphériques en ETM.

Le doctorant effectuera ensuite une synthèse sur l'ensemble du massif Pyrénéen en s'appuyant sur les exemples précis du Videssos et du Plateau de Sault tout en ayant un œil critique et intégrateur grâce aux études sur les tourbières de l'ensemble du massif.

**Depuis Octobre 2012:** Co-direction (avec Laurent Pourcelot (IRSN-LERCM)) de la thèse d'Alicia Cuvier: "Accumulations de l'uranium, de ses descendants et des métaux lourds dans les sols des anciens sites miniers" – financement Région Midi-Pyrénées-Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire

#### **Résumé:**

Des accumulations de radioactivité sont souvent observées dans les zones humides ou sur les berges des rivières, situées à l'aval d'anciens sites miniers [1] ainsi que dans des zones naturellement uranifères [2]. Les élévations locales du débit de dose proviennent d'excès des isotopes de l'uranium et de leurs descendants. L'accumulation d'éléments traces métalliques (ETM) a également été montrée et est modulée selon différents mécanismes physico-chimiques [3].

Le Groupe d'Expertise Pluraliste sur les sites miniers d'uranium du Limousin a récemment souligné la nécessité d'améliorer la caractérisation des sites en vue de disposer d'une connaissance exhaustive des sources de pollution potentielle. Ces préconisations relaient celles émises par l'AIEA, qui souligne le besoin de connaître avec précision la nature/l'intensité des contaminations mais aussi les processus et les transferts qui accentuent les risques d'exposition de l'environnement et des populations. Selon cette agence, les principaux obstacles résident dans le fait que les recherches restent spécifiques à chaque site (d'où la nécessité de développer une démarche de terrain de type « zone atelier ») et, par ailleurs, dans le fait que les rejets associés à l'exploitation minière sont difficiles à déconvoluer des radioéléments naturellement présents dans le milieu.

L'objectif du projet est d'évaluer les sources, les stocks et les flux des radioéléments et des ETM des sols de zones humides localisés à l'aval d'une mine d'uranium ou bien naturellement enrichis en uranium en utilisant des techniques isotopiques.

Une première phase du travail de thèse s'appuiera sur deux approches complémentaires:

a/ des techniques de traçage géochimique telles les terres rares et les isotopes du plomb, radium et uranium permettront de distinguer les différentes sources des ETM et de l'uranium,

b/ des archives environnementales (tourbes et dépôts alluviaux) permettront de reconstituer la chronologie des accumulations avant, pendant et après l'exploitation minière. Si les dépôts alluviaux enregistrent l'intégralité des accumulations en ETM et en uranium, les tourbières permettront de quantifier l'apport atmosphérique via les poussières.

La deuxième phase du sujet de thèse proposé est l'évaluation du relargage des contaminants radioactifs et des éléments trace métalliques à partir des sols et des tourbières. Il s'agit de comprendre dans quelle mesure les zones contaminées

peuvent devenir des sources secondaires de polluants pour les milieux terrestres et aquatiques, en cas de forçages hydrologique et/ou climatique sur les zones humides concernées. Le bilan de lessivages séquentiels et des extractions des différentes solutions de sol doit permettre de classer les radioéléments et les ETM les plus mobiles/ceux qui présentent de fortes affinités pour les sols.

Le projet de thèse s'appuie sur deux zones ateliers en Région Midi-Pyrénées:

1. la mine de Bertholène (exploitée entre 1982 et 1994) située dans la forêt des Palanges à l'Est de Rodez, ainsi que des travaux d'exploration menés dans le Massif du Lézou,
2. le Haut-Vicdessos où existe depuis 2010 un Observatoire Hommes & Milieu-OHM, lieu de recherches interdisciplinaires et où ont été mis en évidence des concentrations supérieures à 500 mg/kg en uranium dans des sols saturés, riches en matière organique et vieux de plusieurs milliers d'années.

A/ le doctorant devra mettre en évidence les zones d'accumulation préférentielle de l'uranium, ses descendants et des ETM dans les deux zones ateliers grâce à des mesures in situ du débit de dose, des prélèvements selon un schéma cartographique défini, puis des analyses/des interprétations des données radio- et géochimiques en laboratoire.

B/ il identifiera à l'aide de sondages sédimentaires, les périodes d'accumulation accrues de l'uranium, de ses descendants et des ETM.

C/ ces résultats associés aux données d'émission (rejets aqueux et atmosphériques) et à la topographie des lieux établie grâce à un modèle numérique de terrain ultra-précis (déjà disponible dans la zone atelier OHM), lui permettront de comprendre les raisons de l'enrichissement de certains ETM ainsi que de l'uranium et de ses descendants. Cette cartographie associée aux paramètres physico-chimiques déterminant la mobilité de l'uranium et des ETM dans les sols permettra d'établir les stocks de ces contaminants susceptibles d'être relargués dans le futur.

[1] Schöner A. et al. (2009) Geochemistry of natural wetlands in former uranium milling sites (eastern Germany) and implications for uranium retention, *Chemie der Erde*, 69, 91–107.

[2] Regenspurg S. et al. (2010) Speciation of naturally-accumulated uranium in an organic-rich soil of an alpine region (Switzerland), *Geo. Cosmo. Acta*, 74, 2082-2098.

[3] González ZI et al. (2006) Spatial distribution of natural enrichments of arsenic, selenium, and uranium in a minerotrophic peatland, Gola di Lago, Canton Ticino, Switzerland, *ES&T*, 40, 6568-6574.

**Depuis 2011:** Membre du comité de thèse de Yannick Agnan (doctorant à l'université de Toulouse)

**Depuis 2010:** Membre du comité de thèse de Mohammed Allan (doctorant à l'université de Liège)  
Encadrant de Mohammed Allan pour le volet géochimie des éléments traces et ses séjours à Toulouse

Le comité de thèse ne comprend que trois membres: moi-même, Sophie Verheyden (Museum des Sciences Naturelles, Bruxelles) et Nathalie Fagel (directrice de thèse, Université de Liège)

**2007:** Participation à la thèse de F. De Vleeschouwer (Uni.Liège) soutenue en décembre 2007 (cf. liste publications)

"Heavy metal records in peat. Archives of natural vs. anthropogenic influences", ULg, 160 pp. + annexes.

### ***Post-doctorats encadrés***

**2010-2012:** Post-doctorat de Lars Eric Heimbürger dans le cadre du projet *ANR-MERCY*: Holocene Mercury cycle avec J. Sonke (GET)

**2012-2014:** Post-doctorat d'Helen Vanneste dans le cadre du projet *ANR-PARAD*: geochemical tracers of Holocene Dust in Southern America avec F. D. Vleeschouwer (EcoLab)

### **Etudiants de 2<sup>ième</sup> cycle:**

**2012. Frédéric Pinglot** (co. Respo. J. Miguel Sanchez Perez: "Modélisation sous conditions actuelles et passées du débit d'un petit bassin versant des Pyrénées ariégeoises à l'aide de l'extension ArcSWAT pour ArcGIS". INP Toulouse-Ensats. 2<sup>ième</sup> année d'école d'ingénieur

**2011-2012. Céline Charve** (co.resp. E. Pinelli): "Ecotoxicologie du plomb et de l'antimoine vis à vis de *Vicia faba*". Master 2 EBEN UPS-INPT

**2011. Pauline Bérard** (co.resp. Guiresse): "Influence du trafic périurbain sur la concentration en antimoine dans la solution de sol" Master 2 EBEN UPS-INPT

**2011. Maxime Enrico** (co.resp. J. Sonke et L.E. Heimbürger): "Atmospheric mercury deposition and emission sources recorded in an ombrotrophic peat bog in the French Pyrenees over the past 10,000 years". Master 2 H2SE UPS-INPT

**2011. Xavier Lassudrie Duchêne** (co.resp. M.Hedde): " Disponibilité et impact de l'antimoine en milieu périurbain" Master 2 Université Bordeaux 1

**2010. Murielle Kombila** (co.resp. E. Pinelli): "Impact et transfert de l'antimoine chez la fève (*Vicia faba*)" . Master FEA INPT-UPS

**2009. Brice Campredon** (co.resp. A. Probst): " Influence des précipitations orographiques dans la pollution aux éléments traces métalliques (ETM) dans les sols du Puy de Dôme ?" Master H2SE UPS-INPT

**2009-2010. Mohammed Allan** (co.resp. N. Fagel): " Étude des apports en éléments traces métalliques dans la tourbière du Misten (Hautes-Fagnes): Niveau de contamination et variabilité spatiale." Université de Liège

**2007. Aurélie Ruffinatti** (co. Resp O. Masson): " Les bryophytes: un bioindicateur des radionucléides atmosphériques" 1<sup>ère</sup> année ingénieur Polytech'Savoie

### **ENSEIGNEMENT**

2013: Cours magistral dans le cadre de la deuxième année d'école d'ingénieurs de l'ENSAT: module Biogéochimie de l'environnement: "géochimie isotopique appliquée à l'environnement"

2010 & 2011: Cours magistral, TD et terrain dans le cadre de la deuxième année d'école d'ingénieurs de l'ENSAT: module Biogéochimie de l'environnement: "géochimie isotopique" & "géochimie des tourbières" ~16h/an

2010-2013: Cours magistral, TD et terrain dans le cadre du Master 2, EBEN, UPS et INP Toulouse: "Métaux et isotopie" & "géochimie des tourbières" ~16h/an

### **PARTICIPATION A L'ORGANISATION DE CONFERENCES & WORKSHOPS**

Co-convener de la session Dust variability during the Holocene: a multidisciplinary perspective, Castellana Marina (Italy), 1-6 June, 2014

Co-Convener de la session Spatial and Temporal Geochemical Records of Pollution including catchment studies à la SEGH, Toulouse, 8-12 July, 2013

Organisateur avec F. de Vleeschouwer (EcoLab) et R. Bindler (Umea, Suède) de la session Peatlands and lakes as dynamic geochemical systems à la Goldschmidt Conference, 2012, Montreal.

Co-Chairman de la session Peat and lakes à la SEGH 2011, 10-15 Avril 2011

Organisateur du Workshop ESF: Application Of Non-Traditional Stable-Isotope Systems To The Study Of Sources, Fate And Impact Of Metals In The Terrestrial Environment ESF Exploratory Workshop – LESC, Location: 10-12 May 2010, Toulouse, France

*Participation à la diffusion de l'information scientifique et technique vers des publics non spécialistes:*  
Maison de la Philosophie, Université Populaire de Philosophie, Toulouse, 2013: "pollutions et contaminations anciennes: Les archives sédimentaires des métaux et l'impact de l'homme sur ceux-ci depuis le Néolithique"

Intervention au lycée Fermat-Toulouse auprès des élèves en Biologie et Science de la Terre, 14 Mars 2012: " Les Tourbières: Archives environnementales & Rôles Actuels et Passés dans les changements environnementaux" – séminaire

Colporteur des Savoirs, Novela, Festival des Savoirs Partagés, Octobre 2011: "La mondialisation vue de l'œil d'un géochimiste" - séminaire

Colporteur des Savoirs, Novela, Festival des Savoirs Partagés, Octobre 2010: "Les tourbières, un œil sur le passé qui nous renseigne sur le futur" - séminaire

Fête de la Science, Cité de l'Espace, 2010 – atelier

Rencontres CNRS Chercheurs-Jeunes Citoyens, Novembre 2010, Futuroscope "Sauver la Terre" avec Yves Godderis, Sylvestre Huet, Catherine Jeandel, Didier Roche et moi-même

#### *Interventions dans la presse écrite et audiovisuelle*

Journal du CNRS, septembre-octobre 2010 pp.14-16: "Une vallée à la loupe"

Ariège News: "La vallée du Haut Vicdessos observée à la loupe l'OHM", <http://www.ariegenews.com/news-26515.html>

Journal régional Soir 3 France 3 Midi-Pyrénées, juillet 2010, 2min13s, <http://w3.ohmpyr.univ-tlse2.fr/video.php>

Faits marquants de l'Observatoire Midi-Pyrénées, 2010 "Tourbières: marqueurs des temps", pp.20-21

#### *Participations à des travaux d'expertise*

Reviewer pour le FNRS belge pour l'attribution de financements relevant de mes spécialités (4 reviews depuis 2010)

Reviewer pour des projets du labex de l'Université de Grenoble 2012-2013 (3 reviews)

Reviewer d'une ANR blanche (2013)

#### **CONTRATS SCIENTIFIQUES – SUPPORT et RESPONSABILITES DANS L'ANIMATION de PROJETS**

2012-2014: Co-resp. volet géochimie inorganique ANR Jeunes chercheurs PARAD : PeAt bog Records of Atmospheric Dust fluxes - Holocene palaeoenvironmental and paleoclimatic implications for Southern South America (resp. F. De Vleschouwer, EcoLab, Toulouse) ~380k€

2010-2012: Co-Responsable avec A. Probst (EcoLab) projet ADEME BioGeoSTIB: **Biogéochimie de l'antimoine: Sources, Transferts, Impacts et Bilan** ~132k€

2010-2012: Co-resp. volet Holocène & Arctique ANR Jeunes chercheurs Mercy : Exploring the isotopic dimension of the global mercury cycle (resp. Jeroen Sonke, GET, TOULOUSE)

2010-2015: Co-resp. volet Holocène & Arctique ERC Starting Grant (resp. Jeroen Sonke): Mercury Isotopes ~1M€

2012-2013: Responsable MoHAV avec José Miguel Sanchez Perez (EcoLab) - Réseau des OHM – INEE – CNRS – 10 k€

2009-2013: Responsable ASTAHE- Approche Spatio-Temporelle de l'Accumulation Holocène des Éléments trace métalliques – Observatoire Hommes & Milieu Pyrénées– INEE – CNRS – entre 1k€ et 5k€ par an (appel annuel)

2011-2012: Co-reponsable CAPAMIN (C. Gers)- "Quelle est la capacité des terrils miniers à accueillir la faune des sols environnants et quel est le rôle des ETM (Pb, Sb, Zn, As) dans cette capacité?" – OHM Pyrénées et Réseau des OHM – INEE – CNRS – 12.5 k€

## **ENCADREMENT, ANIMATION ET MANAGEMENT DE LA RECHERCHE**

### **- responsabilités et activités de laboratoire**

*Gestion scientifique de la salle blanche EcoLab:*

une technicienne, environ une douzaine d'utilisateurs

*Représentant EcoLab* au comité de gestion ICP-MS de l'Observatoire Midi-Pyrénées (parc de 3 instruments et accessoires dont lasers)

Membre de la commission équipement d'EcoLab

### **- animation scientifique**

Membre du "International Scientific Advisory Committee" et du "International Organising Committee" pour la conférence de la Society of Environmental Geochemistry and Health, 2013 à Toulouse.

Membre du "International Scientific Advisory Committee" et du "International Organising Committee" pour la conférence de la Society of Environmental Geochemistry and Health, 2011 à Edge Hill University

Membre du comité de projet NEEDS (Nucléaire, énergie, environnement, déchets, société) Environnement . NEEDS Environnement a pour vocation de favoriser les recherches sur le cycle du nucléaire et l'environnement et a un budget de ~300k€.

- **commission de recrutement**

Membre du vivier interne de spécialistes section 64-66-68 de l'INPT 2011 - 2012

Participation à la commission de recrutement MCF en biogéochimie INPT-ENSAT 2011

Participation à la commission de recrutement MCF en agronomie du territoire INPT-ENSAT 2012

- **Relecteur (~6/an) pour**

Geochimica et Cosmochimica Acta, Applied Geochemistry, Environmental Chemistry; Atmospheric Environment, Radioprotection, Journal of Environmental Radioactivity, Quaternary Science Reviews, Environmental Science & Technology, Plant & Soil...

**Prix**

Viktor und Sigrid Dulger-Stiftung Preis de l'université de Heidelberg pour mes travaux de thèse (5000€)

## 8 Liste de publications

### Liste de Publications:<sup>12</sup>

#### Revues internationales indexées

#### Géosciences et Sciences de l'environnement

#### En tant que premier auteur

- **G. Le Roux**, N. Fagel, F. De Vleeschouwer, M. Krachler, V. Debaille, P. Stille, N. Mattielli, W.O. van der Knaap, J. F.N. van Leeuwen and W. Shotyk: Volcano- and climate-driven changes in atmospheric dust sources and fluxes since the Late Glacial in Central Europe *Geology*, April 2012, v. 40, p. 335-338
- **G. Le Roux**, C. Duffa, F. Vray, P. Renaud: Deposition of artificial radionuclides from atmospheric Nuclear Weapon Tests estimated by soil inventories in French areas low-impacted by Chernobyl *Journal of Environmental Radioactivity* 101 (2010) 211–218
- **G. Le Roux**, J. E. Sonke, C. Cloquet, D. Aubert and F. de Vleeschouwer: Comment on “The biosphere: A homogeniser of Pb-isotope signals” by C. Reimann, B. Flem, A. Arnoldussen, P. Englmaier, T.E. Finne, F. Koller and Ø. Nordgulen *Applied Geochemistry* Volume 23, Issue 9, September 2008, Pages 2789-2792
- **G. Le Roux**, L. Pourcelot, Olivier Masson, Celine Duffa, Françoise Vray, Philippe Renaud, Aerosol deposition and origin in French mountains estimated with soil inventories of <sup>210</sup>Pb and artificial radionuclides, *Atmospheric Environment*, Volume 42, Issue 7, March 2008, Pages 1517-1524
- **G. Le Roux**, E. Laverret and W. Shotyk: Fate of minerals in ombrotrophic peat bog, *Journal of the Geological Society of London*, 2006, 163, 641-646
- **G. Le Roux**, D. Aubert, P. Stille, M. Krachler, B. Kober, A. Cheburkin, G. Bonani, W. Shotyk: Recent atmospheric Pb deposition at a rural site in southern Germany assessed using a peat core and snowpack, and comparison with other archives, *Atmospheric Environment*, 2005, 39 (36), 6790-6801
- **G. Le Roux**, D. Weiss, J. Grattan, N. Givélet, M. Krachler, A. Cheburkin, N. Rausch, B. Kober, W. Shotyk: Identifying the sources and timing of ancient and medieval atmospheric lead pollution in England using a peat profile from Lindow bog, Manchester, *Journal of Environmental Monitoring*, 2004, 6 (5), 502-510

#### En tant que co-auteur

---

<sup>12</sup> En violet, les étudiants en master, doctorants ou post-doctorants encadrés ou co-encadrés dans le cadre de cette publication

- **Allan, M., Le Roux, G.,** Piotrowska, N., Beghin, J., Javaux, E., Court-Picon, M., Mattielli, N., Verheyden, S., and Fagel, N.: Mid and late Holocene dust deposition in Western Europe: the Misten peat bog (Hautes Fagnes – Belgium), *Clim. Past Discuss.*, 9, 2889-2928, doi:10.5194/cpd-9-2889-2013, 2013.
- **Mohammed Allan, Gaël Le Roux,** François De Vleeschouwer, Richard Bindler, Maarten Blaauw, Natalia Piotrowska, Jaroslaw Sikorski, Nathalie Fagel, High-resolution reconstruction of atmospheric deposition of trace metals and metalloids since AD 1400 recorded by ombrotrophic peat cores in Hautes-Fagnes, Belgium, *Environmental Pollution*, Volume 178, July 2013, Pages 381-394, ISSN 0269-7491, 10.1016/j.envpol.2013.03.018.
- **Mohammed Allan, Gael Le Roux,** Jeroen E. Sonke, Natalia Piotrowska, Maurice Streel, Nathalie Fagel, Reconstructing historical atmospheric mercury deposition in Western Europe using: Misten peat bog cores, Belgium, *Science of Total Environment*, Volume 442, 1 January 2013, Pages 290–301
- D. J. Charman, D. W. Beilman, M. Blaauw, R. K. Booth, S. Brewer, F. M. Chambers, J. A. Christen, A. Gallego-Sala, S. P. Harrison, P. D. M. Hughes, S. T. Jackson, A. Korhola, D. Mauquoy, F. J. G. Mitchell, I. C. Prentice, M. van der Linden, F. De Vleeschouwer, Z. C. Yu, J. Alm, I. E. Bauer, Y. M. C. Corish, M. Garneau, V. Hohl, Y. Huang, E. Karofeld, **G. Le Roux,** et al., Climate-related changes in peatland carbon accumulation during the last millennium, *Biogeosciences*, 10, 121, 929-944, 2013
- F. M. Chambers, R. K. Booth, F. De Vleeschouwer, M. Lamentowicz, **G. Le Roux,** D. Mauquoy, J. E. Nichols, B. van Geel, Development and refinement of proxy-climate indicators from peats, *Quaternary International*, Volume 268, 3 August 2012, Pages 21–33
- F. D. Vleeschouwer, A. Pazdur, C. Luthers, M. Streel, D. Mauquoy, C. Wastiaux, **G. Le Roux,** R. Moschen, M. Blaauw, J. Pawlyta, Jarek Sikorski, N. Piotrowska. A millennial record of environmental change in peat deposits from the Misten bog (East Belgium) *Quaternary International* Volume 268, 3 August 2012, Pages 44–57
- N. Piotrowska, F. De Vleeschouwer, J. Sikorski, J. Pawlyta, N. Fagel, **G. Le Roux,** A. Pazdur, Intercomparison of radiocarbon bomb pulse and <sup>210</sup>Pb age models. A study in a peat bog core from North Poland, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, Volume 268, Issues 7-8, Proceedings of the Eleventh International Conference on Accelerator Mass Spectrometry, April 2010, Pages 1163-1166,
- F. De Vleeschouwer, N. Fagel, A. Cheburkin, A. Pazdur, J. Sikorski, N. Mattielli, V. Renson, B. Fialkiewicz, N. Piotrowska and **G. Le Roux,** Anthropogenic impacts in North Poland over the last 1300 years and possible influence of climate on human activities, *Science of the Total Environment* 407–421 (2009), pp. 5674–5684
- F. De Vleeschouwer, N. Piotrowska, J. Sikorski, J. Pawlyta, A. Cheburkin, **G. Le Roux,** M. Lamentowicz, N. Fagel and D. Mauquoy, Multiproxy evidences of Little Ice Age palaeoenvironmental changes in a peat bog from northern Poland, *The Holocene* 19 (4) (2009), pp. 625–637

- F. Monna ,, F. van Oort, P. Hubert, J. Dominik, J. Bolte, J.-L. Loizeau, J. Labanowski , J. Lamri, C. Petit, **G. Le Roux**, C. Chateau, Modeling of <sup>137</sup>Cs migration in soils using an 80-year soil archive: role of fertilizers and agricultural amendments 2009, *J. Environ. Radioact.*, 100 (2009) 9–16
- Gauthier-Lafaye F., Pourcelot L., Eikenberg J., Beer H., **Le Roux G.**, Rhikvanov L.P., Stille P., Renaud P., Mezhibor A. (2008). Radioisotope contaminations from releases of the Tomsk–Seversk nuclear facility ( Siberia , Russia ). *J. Environ. Radioact.* , 99, 4, 680-693.
- De Vleeschouwer F., Gérard F., Goormaghtigh C., Mattielli N., **Le Roux G.** and Fagel N. Last two Millennia atmospheric lead and heavy metals inputs in a Belgian peat bog: regional to global Human impacts. *The Science of the Total Environment*, 377 (2.3), 2007, pp. 297-310
- L. Ukonmaanaho, T.M. Nieminen, N. Rausch, A. Cheburkin, **G. Le Roux** and W. Shotyk Recent organic matter accumulation in relation to some climatic factors in ombrotrophic peat bogs near heavy metal emission sources in Finland *Global and Planetary Change*, Volume 53, Issue 4, 2006, Pages 259-268
- D. Aubert, **G. Le Roux**, M. Krachler, A. Cheburkin, B. Kober, W. Shotyk and P. Stille: Fate of atmospheric REE entering an ombrotrophic peat bog in Black Forest (SW Germany): evidence from snow, lichens and mosses, *Geochimica Cosmochimica Acta*, 2006, 70, 2815-2826
- N. Rausch, T. Nieminen, L. Ukonmaanaho, **G. Le Roux**, M. Krachler, A.K. Cheburkin, G. Bonani and W. Shotyk : Comparison of Atmospheric Deposition of Copper, Nickel, Cobalt, Zinc, and Cadmium Recorded by Finnish Peat Cores with Monitoring Data and Emission Records, *Environmental Science and Technology*, 2005, 39(16), 5989-5998
- W. Shotyk, M. Goodsite, F. Roos-Barraclough, N. Givelet, **G. Le Roux**, D. Weiss, A.K. Cheburkin, K. Knudsen, J. Heinemeier, W.O. van Der Knaap, S.A. Norton, C. Lohse, Accumulation rates and predominant atmospheric sources of natural and anthropogenic Hg and Pb on the Faroe Islands , *Geochimica and Cosmochimica Acta*, 2005, 69 (1), 1-17

## Développements méthodologiques, géochimie analytique

### En tant que co-auteur

- N. Givelet, **G. Le Roux**, A. Cheburkin, B. Chen, J. Frank, M. Goodsite, H. Kempter, M. Krachler, T. Noernberg, N. Rausch, S. Rheinberger, F. Roos-Barraclough, A. Sapkota, C. Scholz, W. Shotyk : Suggested protocol for collecting, handling and preparing peat cores and peat samples for physical, chemical, mineralogical and isotopic analyses, *Journal of Environmental Monitoring*, 2004, 6 (5), 481–492
- N. Rausch, L. Ukonmaanaho, T. Nieminen, M. Krachler, **G. Le Roux**, W. Shotyk: Evaluation of samplers and filter materials for the establishment of trace metal concentration profiles in porewaters using ICP-MS, 2005, *Analytica Chimica Acta*, 558 (1-2), pp. 201-210.

- D.J. Weiss, B. Kober, A. Dolgoplova, K. Gallagher, B. Spiro, **G. Le Roux**, T. Mason, M. Kylander, B.J. Coles: Accurate and precise Pb isotope ratio measurements in environmental samples by MC-ICP-MS, *International Journal of Mass Spectrometry*, 2004, 232, 205-215
- M. Krachler, **G. Le Roux**, B. Kober and W. Shotyk: Optimising accuracy and precision of lead isotope measurement ( $^{206}\text{Pb}$ ,  $^{207}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}$ ) in acid digests of peat with ICP-SMS using individual mass discrimination correction, *Journal of Atomic Analytical Spectrometry*, 2004, 19 (3), 354-361

## Autres revues internationales à comité de lecture

### Géosciences

- **Le Roux, G.** & Marshall, W.A. (2011): Constructing recent peat accumulation chronologies using atmospheric fall-out radionuclides. *Mires and Peat* 7: Art. 8. (Online: [http://www.mires-and-peat.net/map07/map\\_07\\_08.htm](http://www.mires-and-peat.net/map07/map_07_08.htm))
- **Le Roux, G.** & De Vleeschouwer, F. (2010): Preparation of peat samples for inorganic geochemistry used as palaeoenvironmental proxies. *Mires and Peat* 7: Art. 4. (Online: [http://www.mires-and-peat.net/map07/map\\_07\\_04.htm](http://www.mires-and-peat.net/map07/map_07_04.htm))
- **G. Le Roux**, D. Weiss, A. Cheburkin, N. Rausch, J. Grattan, M. Krachler and W. Shotyk: Heavy metals, especially lead, deposition recorded in an ombrotrophic peat bog near Manchester, United Kingdom, *Journal de Physique IV*, 2003, 107, 739

### Archéométrie

- A. Véron, **G. Le Roux**, A. Poirier, D. Baqué. Origin of copper used in bronze artefacts from middle bronze age burials in Sidon: a synthesis from lead isotope imprints and chemical analyses, *Archaeology and History in Lebanon*, 2011, 34-35
- **G. Le Roux**, A. Véron, C. Scholz. Metal and Pb isotope analyses on weapons from the bronze ages in Sidon, *Archaeology and History in Lebanon*, 2009, 29, 75-78.
- A. Véron, A. Poirier, **G. Le Roux**: Lead isotopes reveal the origin of middle bronze artefact found in Sidon (Burial 42), *Archaeology and History in Lebanon*, 2009, 29, 68-74.
- **G. Le Roux**, A. Véron and C. Morhange : Lead pollution in the ancient harbour of Marseilles, *Méditerranée*, 2005, 104 (1/2), 31-36
- **G. Le Roux**, A. Véron, C. Scholz and C. Doumet-Serhal: Chemical and isotopical analyses on weapons from the middle Bronze Age in Sidon, *Archaeology and History in Lebanon*, 2004, 18, 58-61.
- **G. Le Roux**, A. Véron, C. Morhange: Geochemical evidences of early anthropogenic activity in harbour sediments from Sidon, *Archaeology and History of Lebanon*, 2004, 18, 115-119
- **G. Le Roux**, A. Véron and C. Morhange: Caractérisation géochimique de l'anthropisation dans le port antique de Sidon. *Archaeology and History in Lebanon*, 2003, 15, 37-41.

- A. Véron and **G. Le Roux**: Provenance of Silver artefacts from Burial 27 at Sidon. *Archaeology and History in Lebanon*, 2004, 20, 34-38.

### Géographie

- Anaëlle Simonneau , Emmanuel Chapron, T. Courp, K. Tachikawa, **G. Le Roux**, G. Galop, M. Garcia, Marc Desmet, E. Bard. Archives lacustres de l'évolution du climat et des activités humaines récentes dans les Pyrénées Ariégeoises au cours de l'holocène (Etang Majeur, vallée du Haut-Vicdessos, Pyrénées - France). *Sud-Ouest Européen* 33 (2012) 101-116

### Chapitres de livres:

- de Jong, R., Blaauw, M., Chambers, F.M., Christensen, T.R., De Vleeschouwer, F., Finsinger, W., Fronzek, S., Johansson, M., Kokfelt, U., Lamentowicz, M., **Le Roux, G.**, Mitchell, E.A.D., Mauquoy, D., Nichols, J.E., Samaritani, E., van Geel, B., 2010. Peatlands and Climate. In: Dodson, J. (Ed.), *Changing Climates, Earth Systems, and Society*. Springer, Heidelberg, pp. 85-121
- **G. Le Roux** and William Shotyk (2006): Alteration of minerals in peat bogs, Chapter 9 in "Peatlands: Evolution and records of environmental and climatic changes", (éditeurs: P. Martini, A. Martinez-Cortizas), *Developments in Earth Surface Processes*, Volume 9, 606p., Elsevier.
- W. Shotyk and **G. Le Roux** (2005): Biogeochemistry and Cycling of Lead. , pp. 239-268 in *Biogeochemical Cycles of the elements*, Vol. 43, 301 p. (editors: A. Sigel, H. Sigel, and R. K. O. Sigel), M. Dekker.
- W. Shotyk, M.E. Goodsite, F. Roos-Barraclough, N. Givelet, **G. Le Roux** ,D. Weiss, S. Norton, and K. Knudsen (2003) Atmospheric Mercury and Lead Accumulation Since 5420 14C yr BP at Myrarnar, Faroe Islands. In Hoydal K. and Dam M. (eds.): *AMAP Greenland and the Faroe Islands 1997-2001*, Vol. 3: The Environment of the Faroe Islands, pp 9-19, Danish Environmental Protection Agency.

### Articles invités:

- D. Galop, T. Houet, F. Mazier, **G. Le Roux** and D. Rius, Grazing activities and biodiversity history in the Pyrenees: New insights on high altitude ecosystems in the framework of a Human-Environment Observatory *PAGES news* • Vol 19 • No 2 • July 2011
- F. De Vleeschouwer, **G. Le Roux** and W. Shotyk, Peat as an archive of atmospheric pollution and environmental change: a case study of lead in Europe *PAGES news* • Vol 18 • No 1 • April 2010

## Présentations dans des conférences internationales avec résumés:

### En tant que premier auteur

#### Auteurs

- **G. Le Roux**, Eric Pinelli, Mickael Hedde, Maritxu Guiresse, François De Vleeschouwer, Jérôme Silvestre, Charles Gers, Anne Probst (poster) BioGeochemistry of antimony, Sources, Transfers, Impacts and Assessment, EGU, 07 – 12 April 2013, Vienna, Austria
- **G. Le Roux**, N. Fagel, F. De Vleeschouwer, N. Matielli and W. Shotyk, Holocene deposition of atmospheric REE in Europe (Poster), Goldschmidt conference, 24-20 June, 2012, Montreal Canada
- **Le Roux G.** et Galop D., Spatial and temporal variability of Pb deposition in the French Pyrenees (talk). Environmental & Pyrenees International Conference (EPIC) Sciences Building Hall, School of Sciences, University of Navarra, 19-21 October 2011
- **G. Le Roux**, N. Fagel, M. Krachler, V. Debaille, P. Stille, F. De Vleeschouwer, N. Matielli, W.O. van der Knaap, J. F.N. van Leeuwen and W. Shotyk (talk) Dust record over Central Europe and the Holocene history of Sahara, INQUA Conference, 21-27 July 2011, Bern, Switzerland
- **G. Le Roux**, J. Sylvestre, **M. Kombilla**, A. Probst, E. Pinelli (poster) Co-exposure and genotoxicity to Sb and Pb: a micronucleus test on *Vicia faba*, International conference on environment and health, 10<sup>th</sup> – 15<sup>th</sup> april 2011, Edge Hill University, UK
- **G. Le Roux**, N. Fagel, M. Krachler, V. Debaille, P. Stille, F. De Vleeschouwer, N. Matielli, W.O. van der Knaap, J. F.N. van Leeuwen and W. Shotyk (talk) Dust input – Climate interactions through the Holocene in Central Europe, Réunion des Sciences de la Terre, Bordeaux, 25-29 Octobre 2010
- **G. Le Roux**, F. De Vleeschouwer, A. Probst (talk) Spatial and temporal of atmospheric deposition of antimony at different scales, Réunion des Sciences de la Terre, Bordeaux, 25-29 Octobre 2010
- **G. Le Roux**, F. De Vleeschouwer, A. Cheburkin, M. Krachler, W. Shotyk, N. Mattielli, N. Fagel (poster) Holocene records of regional dust deposition using peat bogs., Goldschmidt 2008, Geochimica Cosmochimica Acta, Vol. 72, Issue 12, Supplement 1, A535
- **G. Le Roux**, De Vleeschouwer F., Cheburkin A., Krachler M., Mattielli N., Renson V., Shotyk W. and Fagel N. (2008). Development of a "pre-anthropogenic" peat standard for geochemical, paleo-environmental and archaeological investigations. Réunion des Sciences de la Terre. Nancy, France, 21–27 April 2008. Abstract + poster.
- **G. Le Roux**, **L. Bourcier**, O. Connan, D. Maro, O. Mason (talk). 7Be, excess 210Pb and artificial radionuclides as tracers of orographic deposition of aerosols by direct and indirect measurements, 23ième congrès français sur les aerosols, CFA 2007-2008, 16-17 janvier 2008, Paris
- **G. Le Roux**, C. Antonelli, F. Eyrolle, M. Krachler, J. Loyen, O. Masson, C. Mercat-Rommens, W. Shotyk; poster: Nouvelles données sur les radionucléides naturels des chaînes de désintégration de l'Uranium-Thorium dans les eaux françaises (7ième congrès international du GRUTTEE sur le suivi et le devenir des contaminants dans l'environnement, 29-31/10/2007)
- **G. Le Roux**, L. Pourcelot, O. Masson, C. Duffa, F. Vray, P. Renaud; poster: Use of inventories of natural and artificial radionuclides in soils to estimate total aerosols deposition and origin in French mountains (European Aerosol Conference, Salzburg, Austria, 9-14/09/2007)
- **G. Le Roux**, **L. Bourcier**, O. Masson: 7Be, excess 210Pb and artificial radionuclides as tracers of orographic deposition of aerosols, talk: (Goldschmidt Conference, Köln, Germany, 19-24/08/2007)
- **G. Le Roux**; talk: Limitations of stable Pb isotopes as tracers applied to archaeology and paleometallurgy in absence of clear possible sources: local vs. global sources in atmospheric european archives (Mines et métallurgies anciennes du Plomb dans leurs environnements. Apports des méthodes contribuant à leurs études, Florac, 8-10/09/2006)
- **G. Le Roux**, A. Véron, C. Morhange et C. Scholz; talk: Heavy metals and lead isotopic characterisation of anthropisation in mediterranean harbours (Mines et métallurgies anciennes du Plomb dans leurs environnements. Apports des méthodes contribuant à leurs études, Florac, 8-10/09/2006)
- **G. Le Roux**, D. Aubert, M. Krachler, N. Givélet, A. Cheburkin, B. Kober, P. Stille, W. Shotyk ; talk: Multi-element and isotopic characterisation of atmospheric lead pollution in a rural site in Southern Germany (Joint Earth Sciences Meeting, Strasbourg, 2004)

- **G. Le Roux**, D. Aubert, M. Krachler, N. Givelet, A. Cheburkin, B. Kober, P. Stille, W. Shotyk ; talk: Multi-element and isotopic characterisation of atmospheric lead pollution in a rural site in Southern Germany (Joint Earth Sciences Meeting, Strasbourg, 2004)
- **G. Le Roux**, N. Givelet, D. Aubert, A. Cheburkin, M. Krachler, B. Kober, P. Stille, W. Shotyk; talk: Ombrotrophic peat bogs. Sensitive and continuous archives of past deposition (Joint Earth Sciences Meeting, Strasbourg, 2004)
- **G. Le Roux**, N. Givelet, D. Aubert, A. Cheburkin, M. Krachler, B. Kober, P. Stille, W. Shotyk; talk: Ombrotrophic peat bogs. Sensitive and continuous archives of past deposition (The Quaternary Research Association Third International Postgraduate Symposium, Bruxelles, 2004)
- **G. Le Roux**, A. Cheburkin, B. Kober, W. Shotyk, M. Krachler, H.J. Küster; poster : Weathering of minerals as a source of metals in peat bogs (International Symposium on Environmental Geochemistry conference, Edinburgh, 2003)
- **G. Le Roux**, A Véron, C. Morhange, K. Espic; talk: Lead isotopic characterisation of anthropisation in a mediterranean ancient harbour (International Symposium on Environmental Geochemistry conference, Edinburgh, 2003)
- **G. Le Roux**, D. Weiss, A. Cheburkin, N. Rausch, J. Grattan, M. Krachler and W. Shotyk ; talk: Heavy metals, especially lead, deposition recorded in an ombrotrophic peat bog near Manchester, United Kingdom (XII international conference on "Heavy Metals in the Environment", Grenoble, 2003)

#### En tant que co-auteur:

- **Allan M**, **Le Roux G**, Verheyden S, Mattiel N, Piotrowska N, Fagel N & Beghin J, Holocene Dust Record in a NW European Peat Bog: A Multiproxy Approach (talk), Goldschmidt 2013, August 25-30, Florence, Italy
- De Vleeschouwer F, **Vanneste H**, Mattielli N, Vanderstraten A, Piotrowska N, Coronato A & **Le Roux G**, Holocene Peat Bog Records of Atmospheric Dust Fluxes in Southern South America (invited talk), Goldschmidt 2013, August 25-30, Florence, Italy
- **Allan, Mouhamad**; Fagel, Nathalie; **Le Roux, Gael**; Mattielli, Nadine; Piotrowska, Natalia; Sikorski, Jarek; Dust historical record in ombrotrophic peat: The case study of a NW European bog, 11 th International Conference "Methods of Absolute Chronology", 15-18th May 2013, Podlesice, Poland
- François De Vleeschouwer, **Heleen Vanneste**, Pierre Falba, Nadine Mattielli, Aubry Vanderstraeten, Natalia Piotrowska, **Gaël Le Roux**, Peat bog records of atmospheric dust fluxes in Chilean Tierra del Fuego. Preliminary results and perspectives, 11 th International Conference "Methods of Absolute Chronology", 15-18th May 2013, Podlesice, Poland
- **Heleen Vanneste**, François De Vleeschouwer, Aubry Vanderstraeten, Nadine Mattielli, Delphine Triquet, Natalia Piotrowska, **G. Le Roux (oral presenter)**, Rare earth element and Nd isotope geochemistry of an ombrotrophic peat bog at Karukinka (Chile, 53.9° S): a palaeo-record of Holocene dust deposition in Tierra del Fuego. EGU, 07 – 12 April 2013, Vienna, Austria
- F De Vleeschouwer, **H Vanneste**, S Bertrand, A Coronato, D Gaiero, **G. Le Roux (oral presenter)**, Peat bog Records of Atmospheric Dust fluxes-Holocene palaeoenvironmental and paleoclimatic implications for South America, EGU, 07 – 12 April 2013, Vienna, Austria
- **Allan, Mouhamad**; Fagel, Nathalie; **Le Roux, Gael**; Mattielli, Nadine; Piotrowska, Natalia; Sikorski, Jarek; ,Dust historical record in ombrotrophic peat: The case study of a NW European bog, EGU, 07 – 12 April 2013, Vienna, Austria
- **Heleen Vanneste**, François De Vleeschouwer, Gaël Le Roux (talk) Holocene dust deposition in Tierra del Fuego (Argentina): a REE and Nd isotopic record from a pristine peat bog, Harberton (54.9° S) 4-5 April 2013, Holocene Climate change workshop, The Geological Society, London
- **M. Enrico**, **L-E. Heimbürger**, **Le Roux G.**, Sonke, J. (talk) Atmospheric mercury deposition in South-west Europe, Goldschmidt conference, 24-20 June, 2012, Montreal Canada
- **L-E. Heimbürger**, **M. Enrico**, **Le Roux G.**, Sonke, J. (talk) Tracing anthropogenic Hg deposition to peat with Hg stable isotopes, Goldschmidt conference, 24-20 June, 2012, Montreal Canada

- F. De Vleeschouwer, [H. Vanneste](#), S. Bertrand, A. Coronata, D. Gaiero, **G. Le Roux** and the PARAD TEAM Members. PARAD (poster): Peat bog Records of Atmospheric Dust fluxes - Holocene palaeoenvironmental and paleoclimatic implications for Southern South America, Goldschmidt conference, 24-20 June, 2012, Montreal Canada
- **M. Allan**, **G. Le Roux**, N. Mattielli, N. Piotrowska and N. Fagel (poster). Mid and late Holocene dust deposition in Western Europe: The Misten peat bog (Hautes Fagnes - Belgium), Goldschmidt conference, 24-20 June, 2012, Montreal Canada
- L. Pourcelot, **G. Le Roux**, D. Claval, X. Cagnat (poster) Uranium and decay products in some soils in the vicinity of former uranium mining sites 2-6 July, Eurosoils 2012 Bari Italy
- **M. Allan**, **G. Le Roux**, F. De Vleeschouwer, N. Mattielli, N. Fagel. Atmospheric deposition of Pb, Cu, Ni, As, Sb, V, Cr, Co, Cd and Zn recorded in the Misten peat bog (Hautes-Fagnes, Belgium) during the Industrial Revolution, EGU General Assembly Conference, April 2012
- A. Simonneau, E. Chapron, T. Courp, D. Galop, **G. Le Roux**, K. Tachikawa, M. Desmet, E. Bard, caractérisation pluridisciplinaire de la sédimentation lacustre pyrénéenne en moyenne montagne (Etang Majeur, Haut Vicdessos, Ariège, France). 13ème Congrès Français de Sédimentologie, Dijon – Livre des résumés, 2011, Publ. ASF, Paris, n° 68, 342 p.312 - 14 au 16 novembre 2011
- **Enrico M. Heimbürger LE**, Sonke JE, **Le Roux G**, De Vleeschouwer F. (poster) Evolution of atmospheric mercury deposition and emission sources recorded in an ombrotrophic peat bog in the French Pyrenees over the past 10,000 years. Environmental & Pyrenees International Conference (EPIC) Sciences Building Hall, School of Sciences, University of Navarra, 19-21 October 2011
- Galop D, Houet T, Mazier F, **Le Roux G**, Rius D. Learning From the Past: grazing and biodiversity in the Pyrenees. Environmental & Pyrenees International Conference (EPIC) Sciences Building Hall, School of Sciences, University of Navarra, 19-21 October 2011
- **Heimbürger LE, Enrico M**, De Vleeschouwer F, **Le Roux G** and Sonke JE (poster), Evolution of atmospheric mercury deposition and emission sources recorded in an ombrotrophic peat bog in the french Pyrenees over the past 10.000 years 10th International Conference on Mercury as a Global Pollutant, Halifax, Canada, 24-29 July 2011
- F. De Vleeschouwer, R. de Jong, **G. Le Roux**, P. Hughes. (poster). Is there anything other than human-induced dust in the last millennium air? INQUA Conference, 21-27 July 2011, Bern, Switzerland
- De Vleeschouwer F., Mattielli N., Renson V., **Le Roux G.** and Fagel N. (2010). A paleorecord of atmospheric lead deposition in France. New data from La Godivelle peat bog (Puy de Dôme). SEGH Symposium, July 2010, Galway. Abstract + Poster.
- De Vleeschouwer F., Fagel N., Gerrienne P., Javaux E., Streeel M., Luthers C., Damblon F., Court-Picon M., Le Roux G., Mauquoy D., Piotrowska N., Sikorski J., Allan M., Mattielli N., Brack J., Wastiaux C., Hindrycks M.-N. and Leclercq L. (2010). Spatio-temporal natural and anthropogenic environmental variability during the last 1500yrs in an ombrotrophic bog (East Belgium). EGU general assembly, May 2010, Vienna. Abstract + Poster.
- De Vleeschouwer F., Fagel N., Piotrowska N., Sikorski J., Pawlyta J., Cheburkin A., Lamentowicz M., Pazdur A., Mattielli N., Renson V., Fialkiewicz-Koziel B., Mauquoy D. and **Le Roux G.** (2010). Multiproxy investigation of climatic changes and human activities in a Baltic bog (N. Poland) during the last millennium. EGU general assembly, May 2010, Vienna. Abstract + Poster.
- **Allan M.**, Fagel N., De Vleeschouwer F., Mattielli N., Sikorski J., Sonke J. and **Le Roux G.** (2010). Traces metal inputs in the Misten bog (East Belgium). Level of contamination and spatial variability. EGU general assembly, May 2010, Vienna. Abstract + Poster.
- De Vleeschouwer F., Luthers C., Court-Picon M., Mauquoy D., Wastiaux C., **Le Roux G.**, Pawlyta J., Pazdur A., Sikorski J. and Piotrowska N. (2009). Multiproxy study in the Misten bog (East Belgium) during the last millenium. Palaeoclimatic vs. anthropogenic signals. 11th International Paleolimnology Symposium, Mexico, June 2009. Abstract + poster.
- Pawlyta J., Lamentowicz M., De Vleeschouwer F., Mauquoy D., Piotrowska N., Sikorski J. and **Le Roux G.** (2009). Isotopic composition of carbon in Sphagnum peat in Central Europe during the last Millenium. 6th International Symposium on Ecosystem behavior. 29th June-3rd July, Helsinki, Finland. Abstract + Poster.

- L. Pourcelot, Ph. Renaud and **G. Le Roux** (poster) Variability of atmospheric deposition on mountainous area., *Goldschmidt 2008, Geochimica Cosmochimica Acta*, Vol. 72, Issue 12, Supplement 1, A758
- De Vleeschouwer F., Lamentowicz M., Piotrowska N., Mauquoy D., Cheburkin A., **Le Roux G.**, Fagel N., Sikorski J., Renson V., Fialkiewicz B. (2008). Recent climatic instability in Poland and the effect of the Little Ice Age on human activities. EGU General Assembly, Vienna, April 2008. Abstract + poster.
- O. Masson, **D. Piga**, **G. Le Roux**, L. Bourcier, L. Saey, P. Paulat, X. Cagnat (2007) Relationship between origin of air masses and <sup>137</sup>Cs activities in French aerosols, 2000-2006 (European Aerosol Conference, Salzburg, Austria, 9-14/09/2007)
- De Vleeschouwer F., **Gérard L.**, Goormaghtigh C., Mattielli N., **Le Roux G.** and Fagel N. (2007) Two millennia of atmospheric lead and heavy metals pollution in Belgium: a record from an ombrotrophic bog. (9th Conference on absolute Chronology. 25th-27th April, Gadam Center, Gliwice, Poland). Abstract + talk.
- De Vleeschouwer F., **Gérard L.**, Goormaghtigh C., Mattielli N., **Le Roux G.** and Fagel N. (2007) Last two Millennia atmospheric lead and heavy metals inputs in a Belgian peat bog: regional to global Human impacts. EGU meeting, Vienna, 15th-21st April 2007. Abstract + talk.
- F. De Vleeschouwer, **L. Gérard**, M. Streel, **G. Le Roux** and N. Fagel, présentation orale : Holocene record of atmospheric flux geochemical in a Belgian Hautes Fagnes peat bog: Preliminary geochemical results. (BELQUA, Tervuren, mai 2004)
- F. De Vleeschouwer, **L. Gerard**, N. Mattielli, **G. Le Roux**, S. Leclercq, N. Fagel and H. Kemper, présentation orale: Recent and past atmospheric lead and heavy metals inputs in North West Europe: Sources and Origin (The Quaternary Research Association Third International Postgraduate Symposium, Bruxelles, 2004)
- **L. Gérard**, F. De Vleeschouwer, N. Mattielli, M. Streel, **G. Le Roux** et N. Fagel ; poster : Holocene record of atmospheric flux by geochemical and Pb isotopes signatures in a Belgian Hautes Fagnes peat bog: Preliminary results (Goldschmidt conference, Copenhagen, 2004)
- D. J. Weiss, B. Kober, T.F. Mason, A. Dolgoplova, B.J. Coles, K. Gallagher, **G. Le Roux**, B. Spiro, R. Seltmann; présentation orale: Lead as transient geochemical tracers in the environment: Assessing high precision isotope ratio measurements in lichens, peat, and silicates using multi-collector ICP-MS (EGS-AGU-EUG Joint Assembly, Nice, 2003)
- M. Krachler, N. Rausch, J. Frank, **G. Le Roux**, W. Shotyk; présentation orale: Sektorfeld ICP MS für die Bestimmung von Spurenelementen und Isotopenverhältnissen in Torfkernen und Porenwässern (6. Symposium Massenspektrometrische Verfahren der Elementspurenanalyse/18. ICP-MS Anwendertreffen, Berlin, Germany, 2003)

#### Conférences invitées:

2005: Université de Gand, Dpt de Chimie analytique: "Isotope geochemistry of Pb in peat and snow"

2006: Université de Toulouse, EcoLab: " Dépôts atmosphériques en métaux lourds et en radionucléides en Europe : sources et archives environnementales "

2007: Université de Besançon, Géosciences: "Past chronologies of atmospheric deposition of Pb and other metals"

Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement-CEA-CNRS, Orsay: "Use of radiogenic and radioactive isotopes in environmental geochemistry"

Université de Liège, Dpt de Géologie: "Atmospheric deposition of trace elements and radionuclides"

Université de Aberystwyth: Cours magistral donné: "Sources and timing of metal mining activity in Europe: the ombrotrophic peat archive" dans le cadre de l'Action européenne COST A27 Landmarks Action "From Local to Global: Scales and implications of historic mining", Training School d'Aberystwyth (Pays de Galles) "Analytical techniques and Mining Landscapes".

2009: LMTG, Toulouse: "Atmospheric deposition of trace elements and radionuclides at different spatial and time scales"

2011: CRPG, Nancy: "Atmospheric deposition of atmospheric particles over Europe on different time and spatial scales"

2012: ENSAT Toulouse: "Perturbation par l'Homme du cycle biogéochimique d'un métal peu connu l'antimoine: son impact sur l'environnement", Journée de la recherche ENSAT jeudi 22 Mars 2012

2013: LHYGES, Université de Strasbourg: "Atmospheric deposition of trace elements during the Holocene: new environmental and paleoclimatic insights on atmospheric metals and dust cycles", 7 mars 2013

#### News médias:

• Journal du CNRS, septembre-octobre 2010 pp.14-16: "Une vallée à la loupe"

• Ariège News: "La vallée du Haut Vicdessos observée à la loupe l'OHM",  
<http://www.ariegenews.com/news-26515.html>

• Journal régional Soir 3 France 3 Midi-Pyrénées, juillet 2010, 2min13s, <http://w3.ohmpyr.univ-tlse2.fr/video.php>

• Faits marquants de l'Observatoire Midi-Pyrénées, 2010 "Tourbières: marqueurs des temps", pp.20-21

• Planet ULg: "Notre spécialité? La carotte de tourbe" (N. Delaunay),  
[http://reflexions.ulg.ac.be/cms/c\\_23612/notre-specialite-la-carotte-de-tourbe?cid=j\\_15781](http://reflexions.ulg.ac.be/cms/c_23612/notre-specialite-la-carotte-de-tourbe?cid=j_15781)

• Planet ULg: "Les tourbières, un œil sur le passé qui nous renseigne sur notre environnement futur" (G. Le Roux), [http://reflexions.ulg.ac.be/cms/c\\_17264/les-tourbieres-un-il-sur-le-passe-qui-nous-renseigne-sur-notre-environnement-futur?cid=j\\_15781](http://reflexions.ulg.ac.be/cms/c_17264/les-tourbieres-un-il-sur-le-passe-qui-nous-renseigne-sur-notre-environnement-futur?cid=j_15781)

• "Des universitaires visitent la tourbière du Pinet" par Caroline Valenti, L'Indépendant du mardi 19 Août 2008

• De Vleeschouwer, L. Gérard, G. Le Roux and N. Fagel : "Les métaux en trace dans la tourbière du Misten. Historique de la pollution dans les Hautes-Fagnes depuis l'époque Romaine", dans "Hautes Fagnes", revue trimestrielle de la Société Royale "Les Amis de la Fagne", Fascicule 256, 2004-4, pp.108-110

• "Moore erzählen die Geschichte der Umweltverschmutzung", Chemie in Labor und Technik, December 2004, pp. 450-455. by Uta Neubauer

• "Digging up evidence of metal pollution", Chemistry World, Royal Society of Chemistry, UK, October 2004, pp. 44-47. by Katharine Sanderson

#### Conférences grands publics:

Novela 2010: "Un œil sur le passé qui nous renseigne sur notre environnement futur"

Novela 2011: " la mondialisation vue par l'œil du géochimiste"

Maison de la Philosophie, Université Populaire de Philosophie, Toulouse, 2013: "pollutions

et contaminations anciennes: Les archives sédimentaires des métaux et l'impact de l'homme sur ceux-ci depuis le Néolithique"

#### Rapports d'expertise:

- L. Pourcelot, **G. Le Roux**: Etude radioécologique de l'environnement du site de Malvési (société COMURHEX). Rapport IRSN/DEI/SESURE/2008-20
- **G. Le Roux**, C. Mercat-Rommens, G. Gontier, D. Claval, P. Renaud: descriptif de l'étude radioécologique des eaux de nappe en aval du site de Tricastin. Note technique IRSN/DEI/SESURE/2007-42
- **G. Le Roux**, C. Mercat-Rommens: avis et observation de l'IRSN sur l'état radiologique et chimique des eaux de nappe du site de Tricastin. Rapport IRSN/DEI/SESURE/2007-19
- **G. Le Roux**.: Radionucléides naturels en France: approche géochimique de la variabilité des radionucléides naturels d'origine tellurique (40K et chaînes U-Th) dans les sols et sédiments fluviaux. Rapport IRSN/DEI/SESURE/2007/21

## 9 Sélection de publications

### Traceurs géochimiques: l'exemple des isotopes du plomb

▪ **G. Le Roux**, J. E. Sonke, C. Cloquet, D. Aubert and F. de Vleeschouwer: Comment on “The biosphere: A homogeniser of Pb-isotope signals” by C. Reimann, B. Flem, A. Arnoldussen, P. Englmaier, T.E. Finne, F. Koller and Ø. Nordgulen *Applied Geochemistry* Volume 23, Issue 9, September 2008, Pages 2789-2792

### Variabilité temporelle durant l'Holocène

#### *Etablir une chronologie précise et inter-comparable des dépôts atmosphériques durant l'Holocène en Europe*

▪ N. Piotrowska, F. De Vleeschouwer, J. Sikorski, J. Pawlyta, N. Fagel, **G. Le Roux**, A. Pazdur, Intercomparison of radiocarbon bomb pulse and <sup>210</sup>Pb age models. A study in a peat bog core from North Poland, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, Volume 268, Issues 7-8, Proceedings of the Eleventh International Conference on Accelerator Mass Spectrometry, April 2010, Pages 1163-1166,

#### *Transport et dépôt des poussières enregistrés en Europe durant l'Holocène: influence des poussières d'origine saharienne, volcanique et locale*

▪ D. Aubert, **G. Le Roux**, M. Krachler, A. Cheburkin, B. Kober, W. Shotyk and P. Stille: Fate of atmospheric REE entering an ombrotrophic peat bog in Black Forest (SW Germany): evidence from snow, lichens and mosses, *Geochimica Cosmochimica Acta*, 2006, 70, 2815-2826

▪ **G. Le Roux**, N. Fagel, F. De Vleeschouwer, M. Krachler, V. Debaille, P. Stille, N. Mattielli, W.O. van der Knaap, J. F.N. van Leeuwen and W. Shotyk: Volcano- and climate-driven changes in atmospheric dust sources and fluxes since the Late Glacial in Central Europe *Geology*, April 2012, v. 40, p. 335-338

### Variabilité spatiale de l'intensité et des sources des dépôts des aérosols

▪ **G. Le Roux**, L. Pourcelot, Olivier Masson, Celine Duffa, Françoise Vray, Philippe Renaud, Aerosol deposition and origin in French mountains estimated with soil inventories of <sup>210</sup>Pb and artificial radionuclides, *Atmospheric Environment*, Volume 42, Issue 7, March 2008, Pages 1517-1524

### Perturbation par l'homme des cycles biogéochimiques des ETM

#### *Le plomb*

▪ F. De Vleeschouwer, N. Fagel, A. Cheburkin, A. Pazdur, J. Sikorski, N. Mattielli, V. Renson, B. Fialkiewicz, N. Piotrowska and **G. Le Roux**, Anthropogenic impacts in North Poland over the last 1300 years and possible influence of climate on human activities, *Science of the Total Environment* 407–421 (2009), pp. 5674–5684

▪ **Mohammed Allan, Gaël Le Roux, François De Vleeschouwer, Richard Bindler, Maarten Blaauw, Natalia Piotrowska, Jaroslaw Sikorski, Nathalie Fagel**, High-resolution reconstruction of atmospheric deposition of trace metals and metalloids since AD 1400 recorded by ombrotrophic peat cores in Hautes-Fagnes, Belgium, *Environmental Pollution*, Volume 178, July 2013, Pages 381-394, ISSN 0269-7491, 10.1016/j.envpol.2013.03.018.

#### *Le mercure*

▪ **Mohammed Allan, Gael Le Roux, Jeroen E. Sonke, Natalia Piotrowska, Maurice Streel, Nathalie Fagel**, Reconstructing historical atmospheric mercury deposition in Western Europe using: Misten peat bog cores, Belgium, *Science of Total Environment*, Volume 442, 1 January 2013, Pages 290–301

#### *Radionucléides*

##### *Dispersion locale*

▪ **Gauthier-Lafaye F., Pourcelot L., Eikenberg J., Beer H., Le Roux G., Rhikvanov L.P., Stille P., Renaud P., Mezhibor A. (2008)**. Radioisotope contaminations from releases of the Tomsk–Seversk nuclear facility ( Siberia , Russia ). *J. Environ. Radioact.* , 99, 4, 680-693.

##### *Dispersion globale*

▪ **G. Le Roux, C. Duffa, F. Vray, P. Renaud**: Deposition of artificial radionuclides from atmospheric Nuclear Weapon Tests estimated by soil inventories in French areas low-impacted by Chernobyl *Journal of Environmental Radioactivity* 101 (2010) 211–218

#### **Éléments trace métalliques, hommes et Environnement**

##### *Sidon*

▪ **A. Véron, G. Le Roux, A. Poirier, D. Baqué**. Origin of copper used in bronze artefacts from middle bronze age burials in Sidon: a synthesis from lead isotope imprints and chemical analyses, *Archaeology and History in Lebanon*, 2011,34-35

##### *Observatoires Hommes et Milieu*

▪ **D. Galop, T. Houet, F. Mazier, G. Le Roux and D. Rius**, Grazing activities and biodiversity history in the Pyrenees: New insights on high altitude ecosystems in the framework of a Human-Environment Observatory *PAGES news* • Vol 19 • No 2 • July 2011