

IRSNINSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE*Faire avancer la sûreté nucléaire*

Etude expérimental in situ du potentiel de lessivage de l'aérosol atmosphérique par les précipitations

Guillaume DEPUYDT
Décembre 2013
ISRN/IRSN-2014-171

Laboratoire d'Etude radioécologique en Milieux
Continental et Marin

RESUME

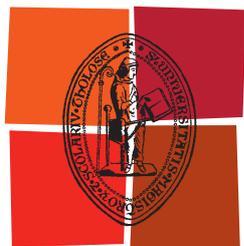
Peu de travaux expérimentaux permettent d'apprécier avec précision le potentiel de lessivage des radionucléides particuliers, au regard de la taille de l'aérosol et de celles des gouttes. Cette thèse avait donc pour objectif d'améliorer la connaissance sur le lessivage en conditions *in situ*. L'utilisation d'un couplage instrumental original (granulomètre à large spectre et disdromètre laser) sur trois sites différents a permis de déterminer les potentiels de lessivage pour des aérosols ultrafins à grossiers, en prenant compte la variabilité naturelle des caractéristiques des précipitations (type d'hydrométéore et intensités pluviométriques spécifiques notamment). Différentes méthodologies ont été mises au point afin de minimiser l'influence des sources d'aérosol à proximité et de renouvellement de la masse d'air et pour caractériser l'impact de la variabilité de l'intensité pluviométrique sur les potentiels de lessivage. Les résultats indiquent la nécessité de considérer conjointement la taille des particules et les caractéristiques des précipitations. Entre 10 nm et 10 μm , une paramétrisation robuste du coefficient de lessivage en fonction du diamètre des particules est proposée. Des pluies intenses (intensité de l'ordre de 10 mm h^{-1}) lessivent la moitié de la quantité initiale de particules en moins d'une heure quelle que soit la taille des particules, tandis qu'il faut jusqu'à plusieurs heures pour des pluies de moins de 1 mm h^{-1} . La comparaison avec le modèle LdX actuellement utilisé à l'IRSN en cas de crise montre une sous-estimation. Cette sous-estimation peut atteindre un à deux ordres de grandeur, pour les particules du mode « grossier » et des intensités pluviométriques faibles (inférieure à 1 mm h^{-1}). En cas de rejet accidentel, des particules notamment supermicroniques seraient susceptibles d'être trouvées (jusqu'à plus d'une centaine de kilomètres de distance de l'installation). Dans ces conditions il conviendrait de réajuster le paramétrage du modèle.

ABSTRACT

Few experimental studies make it possible to specify the exact washout scavenging efficiency. This study aimed improving our knowledge on *in situ* condition washout. The use of an original instrumental coupling at three different locations allowed to investigate washout efficiencies for fine to coarse aerosol fractions, taking into account the variability of rain intensity and rain type. Different methodologies were set up to minimize the influence of air mass advection and local sources. Results show the need to consider both the aerosol size and rain characteristics. A relationship of the washout coefficient (s^{-1}) was proposed for the 10 nm - 10 μm range. Intense rains (10 mm h^{-1}) scavenge half of the initial particle amount in less than one hour whatever their size while it will require up to several hours with 1 mm h^{-1} rain intensity. The comparison with the LdX model used at IRSN in emergency situation highlights some underestimation that can lead to one to two orders of magnitude for coarse particles and small rain intensities (<1 mm h^{-1}). In accident release condition, coarse radionuclide-labeled particles could spread as far as one hundred km. In such conditions, it should be necessary to adjust the model, based on these experimental study findings.

MOTS-CLES

Lessivage, aérosol, pluie, expérimentations, coefficient de lessivage.



Université
de Toulouse

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Institut National Polytechnique de Toulouse (INP Toulouse)

Présentée et soutenue par :

Guillaume DEPUYDT

le lundi 9 décembre 2013

Titre :

Etude expérimentale in situ du potentiel de lessivage de l'aérosol
atmosphérique par les précipitations

École doctorale et discipline ou spécialité :

ED SDU2E : Océan, Atmosphère et Surfaces Continentales

Unité de recherche :

CNRM-GAME

Directeur(s) de Thèse :

Jean-Louis BRENGUIER

Jury :

Karine SELLEGRI (Rapporteur)

Gilles BERGAMETTI (Rapporteur)

Yves NOACK (Rapporteur)

Jean-Louis BRENGUIER (Directeur)

Olivier MASSON (Co-directeur)

Serge CHAUZY (Examineur)

Denis BOULAUD (Examineur)

A ceux qui nous ont malheureusement quittés,
A ceux qui sont toujours avec nous,
A ceux qui seront bientôt arrivés...

REMERCIEMENTS

Pour commencer, je souhaite vivement remercier Philippe Renaud et Christelle Antonelli, chefs successifs du Laboratoire d'Etudes Radioécologiques en Milieux Continental et Marin, pour m'avoir permis de faire cette thèse dans des conditions que pourraient envier bon nombre de thésards.

Merci à L'institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), Météo-France et l'Agence de l'Eau Rhône Méditerranée Corse pour avoir financé ces travaux.

Un grand merci à Karine Sellegri, Gilles Bergametti, Yves Noack, Serge Chauzy et Denis Boulaud pour avoir accepté d'évaluer mon travail et pour les discussions lors de ma soutenance. Je tiens à remercier en particulier Denis Boulaud pour son soutien depuis le début de cette thèse.

Je voudrais remercier chaleureusement Jean-Louis Brenguier qui a toujours su me guider durant nos nombreuses discussions. Sa rigueur scientifique et son analyse toujours pertinente m'ont énormément apporté.

Difficile de trouver les mots pour remercier Olivier Masson. J'espère avant tout avoir été à la hauteur de sa confiance, de sa patience et de son soutien permanent durant ces dernières années. Aussi bien d'un point de vue scientifique que personnel, j'ai énormément appris en travaillant avec toi.

J'ai aussi une pensée pour Laurent Gomes, avec qui j'aurais aimé avoir l'occasion de travailler jusqu'au bout.

Je remercie tous les collègues avec qui j'ai eu le plaisir de travailler. Que ce soient les personnes de LGGE de Grenoble, d'Air PACA ou du CEREGE pour leur aide durant les différentes campagnes de mesures ou les collègues de l'IRSN (LECEV, BMTA, LRC entre autres) au travers de nos nombreuses et très intéressantes réunions, tous ont permis que ces travaux soient menés à bien.

Evidemment, ces remerciements ne peuvent pas ignorer tous ceux qui ont dû me supporter depuis mon stage de Master, Gilles, David & David (même mes jambes et mon cœur vous remercient !), Daniel, Vincent, Laurent, Lionel, Philippe, Mathilde, Julien, Marion, Alain, Sylvie, Fred, et avec qui j'ai pris énormément de plaisir à travailler. J'espère que la bonne ambiance qu'ils font régner au fameux bâtiment 153 continuera encore longtemps.

Plus particulièrement, un énorme merci à Franck pour ces moments « extra-labo » qu'il a su si bien organiser et ces souvenirs rugbystiques mémorables, « Papy » Pascal pour son grand cœur et dont les fameux rôlages vont beaucoup me manquer, Vanessa pour son sourire et sa bonne humeur permanente, « Maman » Sabrina (la MacGyver du secrétariat) pour sa gentillesse, et tous ces kilomètres partagés de jour comme de nuit, et à Laetitia pour

son écoute et pour avoir été un vrai rayon de soleil tous les jours (surtout ne change rien !). Sans eux et elles, ces trois années et quelques n'auraient vraiment pas eu la même saveur.

Merci aux potes asthécients pour ces week-ends et repas entrés dans la légende, et à mes petits D4E pour leur amitié, pour avoir toujours montrés de l'intérêt pour mon travail sans forcément tout comprendre et pour leur énergie positive le jour de ma soutenance. Un grand merci à ma famille, et surtout à mes parents, mes deux frangins, et mes beaux-parents pour avoir été là (en pensée ou en chair et en os) le jour de ma soutenance et pour leur soutien sans faille durant ces trois années.

Et enfin (je garde le meilleur pour la fin), aucun mot n'est assez fort pour remercier ma femme Stéphanie, qui n'a eu de cesse de me motiver quand je doutais (donc souvent en fait) et de me botter les fesses les derniers mois quand j'en avais bien besoin pour terminer. Ces trois années auraient été bien plus dur sans elle à mes côtés.

VALORISATION

Article

Wet deposition of radionuclides in France following the Fukushima accident. **Depuydt G.**, Masson O., De Vismes A., Orjollet D., Renaud P., Paulat P. Journal of Environmental Radioactivity, in revision.

Communications orales

- Etude in situ du lessivage des aérosols nanométriques à supermicronique, **Depuydt G.**, Masson O., Brenguier J.-L.. 28^e Congrès Français sur les Aérosols, 23-24 janvier 2013. Paris.
- Below-cloud scavenging by rainfalls calculated from high temporal resolution *in situ* measurements, **Depuydt G.**, Masson O., Brenguier J.L., Piot C., Jaffrezo J.L., Workshop “Aerosol emission and deposition fluxes from and onto environmental surfaces in urban and rural areas”, European Aerosol Conference, 31 août 2013, Prague.
- Below-cloud scavenging by snow and mixed precipitation events calculated from high temporal resolution *in situ* measurements. **Depuydt G.**, Masson O., Brenguier J.L., Piot C., Jaffrezo J.L., European Aerosol Conference, 1-6 septembre 2013, Prague.

Communications posters

- Wet deposition of radionuclides in France following the Fukushima accident. **Depuydt G.**, Masson O., De Vismes A., Orjollet D., Renaud P., Paulat P., 13th Congress of the International Radiation Protection Association, 13-18 mai 2012, Glasgow.
- Micro and macro-physical characterizations of precipitations in continental and Mediterranean environments, **Depuydt G.**, 16th International Conference on Clouds and Precipitation, 30 juillet-3 août 2012, Leipzig.
- Experimental study in situ conditions of below-cloud scavenging of aerosol particles. **Depuydt G.**, Masson O., Brenguier J.L., Boissery P., European Aerosol Conference, 2-7 septembre 2012, Grenade.

Collaborations

- Temporal Evolution of the Airborne ¹³⁷Cs Level at European Scale after Chernobyl and Fukushima, Masson O., **Depuydt G.**, Gurriaran R., Paulat P., Saey L., Renaud P., De Vismes A., 13th Congress of the International Radiation Protection Association, 13-18 mai 2012, Glasgow.

- Tracking of airborne radionuclides from the damaged Fukushima Dai-Ichi nuclear reactors by European Networks, Masson, O., Baeza, A., Bieringer, J., Brudecki, K., Bucci, S., et al. (**Depuydt G.** 10e co-auteurs), 2011. *Environmental Science and Technology* 45, 7670–7677.
- Semi-analytical study of aerosol washout by rain, Lemaitre P., Nuboer A., Quérel A., **Depuydt G.**, Porcheron E., 20th International Conference on Nuclear Engineering, 30 juillet-3 août 2012, Anaheim.

TABLES DES MATIERES

<u>LISTE DES FIGURES.....</u>	<u>1</u>
--------------------------------------	-----------------

<u>LISTE DES TABLEAUX</u>	<u>5</u>
----------------------------------------	-----------------

<u>INTRODUCTION GENERALE</u>	<u>7</u>
-------------------------------------------	-----------------

Préambule.....	7
-----------------------	----------

Contexte général	7
-------------------------------	----------

Contexte de l'étude	8
----------------------------------	----------

Objectifs de l'étude	10
-----------------------------------	-----------

<u>CHAPITRE 1 : ETAT DES CONNAISSANCES</u>	<u>11</u>
---------------------------------------------------------	------------------

1.1. L'aérosol atmosphérique.....	11
------------------------------------------	-----------

1.1.1. Définition	11
-------------------------	----

1.1.2. Sources.....	11
---------------------	----

1.1.3. Granulométrie	11
----------------------------	----

1.1.4. Les particules d'aérosol radioactives.....	13
---------------------------------------------------	----

1.1.4.1. Origine naturelle	13
----------------------------------	----

1.1.4.2. Origine artificielle.....	13
------------------------------------	----

1.1.4.3. Granulométrie des radionucléides artificiels.....	14
------------------------------------------------------------	----

1.1.5. Dynamique de l'aérosol atmosphérique.....	15
--------------------------------------------------	----

1.2. Le dépôt sec de l'aérosol atmosphérique	16
-----------------------------------------------------------	-----------

1.3. Le dépôt humide de l'aérosol atmosphérique.....	18
-------------------------------------------------------------	-----------

1.3.1. Le rabattement dans le nuage.....	19
------------------------------------------	----

1.3.2. Le rabattement sous le nuage	19
-------------------------------------------	----

1.3.3. Le dépôt humide des radionucléides	19
-------------------------------------------------	----

1.4. Lessivage de l'aérosol par les précipitations	20
-----------------------------------------------------------------	-----------

1.4.1. La collecte des particules d'aérosol atmosphérique par les gouttes de pluie .	20
--------------------------------------------------------------------------------------	----

1.4.2. Les mécanismes de collecte	22
-----------------------------------------	----

1.4.2.1. Les effets mécaniques.....	22
-------------------------------------	----

1.4.2.2. Les effets phorétiques	24
---------------------------------------	----

1.4.2.3. Les effets électrostatiques	26
--------------------------------------------	----

1.4.2.4. L'efficacité de collecte totale.....	27
-----------------------------------------------	----

1.4.3.	Caractérisation du lessivage de l'aérosol par les précipitations	27
1.4.3.1.	<i>Approche analytique</i>	28
1.4.3.2.	<i>Approche environnementale</i>	30
1.4.3.3.	<i>Paramétrisation du coefficient de lessivage Λ</i>	32
1.4.4.	Complémentarités et limitations des études existantes	33
1.5.	Caractérisation du lessivage dans le cadre de cette thèse.....	35
<u>CHAPITRE 2 : INSTRUMENTATION ET SITES D'ETUDES</u>		<u>37</u>
2.1.	Mesure de la granulométrie des hydrométéores	37
2.1.1.	Principales méthodes de mesure	37
2.1.2.	Le disdromètre PARSIVEL.....	37
2.1.2.1.	<i>Description</i>	37
2.1.2.2.	<i>Acquisition des données</i>	40
2.2.	Mesure de la granulométrie des particules d'aérosol	40
2.2.1.	Principales méthodes de mesures.....	40
2.2.2.	Les granulomètres EDM et WRAS	41
2.2.2.1.	<i>Principe de mesure</i>	41
2.2.2.2.	<i>Acquisition des données</i>	44
2.3.	Sites d'études.....	45
2.3.1.	Situation géographique	46
2.3.2.	Conditions d'empoussièremement	49
2.3.3.	Climat.....	50
2.3.4.	Classifications des précipitations.....	50
2.3.4.1.	<i>Selon la phase des hydrométéores</i>	51
2.3.4.2.	<i>Selon la variabilité de l'intensité pluviométrique</i>	52
2.4.	Conclusions	54
<u>CHAPITRE 3 : CARACTERISATION DU LESSIVAGE PAR UNE APPROCHE</u>		
<u>« MACROSCOPIQUE »</u>		<u>57</u>
3.1.	Détermination expérimentale du coefficient de lessivage	57
3.2.	Caractéristiques météorologiques des évènements	57
3.3.	Résultats bruts.....	60

3.4. Lessivage et autres processus atmosphériques influençant la concentration d'aérosol.....	63
3.4.1. Différentes situations possibles	63
3.4.2. Impact des processus « concurrents »	64
3.4.2.1. <i>Advection des masses d'air</i>	64
3.4.2.2. <i>La turbulence atmosphérique</i>	65
3.4.2.3. <i>Processus d'évolution de l'aérosol</i>	65
3.4.2.4. <i>Sources d'émissions de particules</i>	66
3.4.2.5. <i>Discussion</i>	67
3.4.3. Sélection des données	68
3.4.3.1. <i>Méthode de filtrage des résultats bruts</i>	68
3.4.3.2. <i>Quantification de Λ_{macro}</i>	68
3.4.3.3. <i>Estimation qualitative de Λ_{macro}</i>	70
3.4.3.3.1. Critère de sélection des évènements.....	70
3.4.3.3.2. Convergence des coefficients Λ	77
3.5. Résultats et discussions	79
3.5.1. $\Lambda_{macro} = f(D_a)$ selon les sites d'études.....	79
3.5.1.1. <i>Potentiels de lessivage de la gamme nanométrique à supermicronique</i>	79
3.5.1.2. <i>Potentiels de lessivage pour les trois sites de mesure</i>	82
3.5.2. $\Lambda_{macro} = f(D_a)$ selon le type de pluie	85
3.5.2.1. <i>Paramétrisation du coefficient de lessivage Λ_{macro}</i>	85
3.5.2.2. <i>Potentiel de lessivage selon le type de pluie</i>	87
3.5.3. Demi-vie d'efficacité de lessivage et période de quasi-disparition	90
3.5.4. $\Lambda_{macro} = f(D_a)$ pour les évènements neigeux.....	93
3.5.5. Comparaison des résultats.....	95
3.5.5.1. <i>Pluie de faible intensité</i>	95
3.5.5.1.1. Eléments de comparaison	95
3.5.5.1.2. Discussion.....	96
3.5.5.2. <i>Pluie de forte intensité</i>	98
3.6. Conclusions	100
3.7. Intérêt d'une nouvelle approche du lessivage en conditions in situ.....	101

CHAPITRE 4 : CARACTERISATION DU LESSIVAGE PAR UNE APPROCHE « INTRA-EVENEMENTIELLE »	103
4.1. Définition de l'approche	103
4.2. Critères de sélection des données	107
4.2.1. Evènements pluvieux	107
4.2.1.1. <i>Biais moyen normalisé BMN</i>	107
4.2.1.2. <i>Durée de la phase T_{intra}</i>	111
4.2.2. Evènements neigeux	115
4.2.2.1. <i>Biais moyen normalisé</i>	115
4.2.2.2. <i>Durée de la phase</i>	116
4.3. Résultats et discussions	118
4.3.1. Evènements pluvieux	119
4.3.1.1. $\Lambda_{intra} = f(D_a)$ de la gamme nanométrique à supermicronique	119
4.3.1.2. $\Lambda_{intra} = f(D_a)$ pour les trois sites de mesure	122
4.3.1.3. <i>Demi-vie d'efficacité de lessivage et période de quasi-disparition</i>	123
4.3.1.4. <i>Comparaison des résultats obtenus par les différentes approches</i>	125
4.3.1.5. <i>Paramétrisation du coefficient de lessivage</i>	126
4.3.1.5.1. En fonction du diamètre des particules d'aérosol	126
4.3.1.5.2. En fonction de l'intensité pluviométrique	129
4.3.2. Evènements neigeux	132
4.3.2.1. $\Lambda_{intra} = f(D_a)$ et demi-vie d'efficacité de lessivage	132
4.3.2.2. <i>Comparaison des résultats pour différents types de précipitation</i>	135
4.4. Conclusions	137
CONCLUSION ET PERSPECTIVES	139
REFERENCES	143

LISTE DES FIGURES

Figure 1-1 : Composantes de l'aérosol atmosphérique (Renoux et Boulaud, 1998).....	12
Figure 1-2 : Processus microphysiques influençant la dynamique de l'aérosol atmosphérique (Raes et al., 2000).....	16
Figure 1-3 : Schématisation du modèle des résistances pour le dépôt sec (Seinfeld et Pandis, 2006)	17
Figure 1-4 : Représentation schématique des processus de dépôt humide (Staehelin et al., 1993)	18
Figure 1-5 : Effets de collecte mécanique (Marchand, 2008).....	23
Figure 1-6 :Modèle de Slinn (1983)	24
Figure 1-7 : Schématisation de la collecte par thermophorèse (Marchand, 2008).....	25
Figure 1-8 : Schématisation de la collecte par diffusiophorèse (Marchand, 2008)	26
Figure 1-9 : Contributions des différents mécanismes de collecte selon le diamètre des particules d'aérosol (Wang et al., 2010)	27
Figure 1-10 : Comparaison des Λ expérimentaux et théoriques (Volken et Schumann, 1993)	34
Figure 1-11 : Comparaison des Λ expérimentaux et théoriques (Laakso et al., 2003)	35
Figure 2-1 : Disdromètre laser PARSIVEL.....	38
Figure 2-2 : Principe de mesure du disdromètre PARSIVEL (Löffler-Mang et Joss, 2000)....	38
Figure 2-3 : Représentation schématique de l'utilisation des spectres taille/vitesse des hydrométéores pour la classification du type de précipitation (Löffler-Mang et Joss, 2000) ..	39
Figure 2-4 : Granulomètre EDM180.....	41
Figure 2-5 : Principe de mesure du granulomètre EDM (Spielvogel et al., 2009).....	42
Figure 2-6 : Granulomètre WRAS.....	43
Figure 2-7 : Principe de fonctionnement du SMPS	44
Figure 2-8 : Carte des sites d'études instrumentés.....	46
Figure 2-9 : Situation géographique du site de Cadarache	46
Figure 2-10 : Situation géographique du site de Gardanne.....	47
Figure 2-11 : Situation géographique du site de Grenoble.....	48
Figure 2-12 : Distributions granulométriques moyennes des particules d'aérosol pour D_a compris entre 0,265 et 40 μm	49
Figure 2-13 : U_g en fonction de D_g pour l'ensemble des précipitations enregistrées sur les 3 sites	51
Figure 2-14 : Classification des pluies selon le profil des hyétogrammes	53
Figure 3-1 : Caractéristiques météorologiques moyennes des évènements pluvieux pour les trois sites d'étude	58

Figure 3-2 : Distribution des coefficients de lessivage Λ_{macro} pour D_a compris entre 0,265 et 40 μm	60
Figure 3-3 : Influence des processus « concurrents » sur la dynamique des particules d'aérosol par temps sec	61
Figure 3-4 : Valeurs moyennes de Λ_{macro} en fonction du diamètre D_a des particules d'aérosol	62
Figure 3-5 : Représentation schématique des biais influençant le potentiel de lessivage	64
Figure 3-6 : Tendence de la concentration en particules vers une valeur seuil (site de Cadarache)	67
Figure 3-7 : Impact du trafic routier sur les concentrations particulières (site de Grenoble) ..	70
Figure 3-8 : Cercle des corrélations pour l'ACP appliquée aux données de Cadarache et Grenoble	72
Figure 3-9 : Inertie expliquée par chacun des axes factoriels pour différentes gammes de taille de particules.....	73
Figure 3-10 : Influence de l'intensité pluviométrique I_{macro} sur les valeurs de Λ_{macro}	75
Figure 3-11 : Influence de la concentration initiale c_i sur les valeurs de Λ_{macro}	76
Figure 3-12 : Influence de la vitesse du vent U sur les valeurs de Λ_{macro}	77
Figure 3-13 : Estimation de la convergence de la série $\Lambda(t)$ vers Λ_{macro}	78
Figure 3-14 : $\Lambda_{macro} = f(D_a)$ de la gamme nanométrique à la gamme supermicronique (site de Cadarache).....	80
Figure 3-15 : $\Lambda_{macro} = f(D_a)$ de la gamme nanométrique à la gamme supermicronique ; correction des trois dernières valeurs « Mesures SMPS » (site de Cadarache).....	81
Figure 3-16 : $\Lambda_{macro} = f(D_a)$ selon les sites d'études.....	83
Figure 3-17 : Coefficient de lessivage Λ_{macro} en fonction de l'intensité pluviométrique I_{macro} (trois sites d'étude)	86
Figure 3-18 : $\Lambda_{macro} = f(D_a)$ selon le type de pluie (trois sites d'étude)	88
Figure 3-19 : $t_{1/2} = f(D_a)$ de la gamme nanométrique à supermicronique (trois sites d'étude)	91
Figure 3-20 : $t_{1/2} = f(D_a)$ selon le type de pluie (site de Gardanne)	92
Figure 3-21 : $\Lambda_{macro} = f(D_a)$ pour les chutes de neige et les événements « hybrides » (site de Grenoble).....	94
Figure 3-22 : Comparaison des coefficients de lessivage Λ (pluies de faibles intensités)	96
Figure 3-23 : Comparaison des coefficients de lessivage Λ (pluies de fortes intensités).....	99
Figure 4-1 : Illustration de la méthodologie de l'approche « intra-événementielle »	105
Figure 4-2 : Comparaison des concentrations particulières entre mesures et calculs pour deux exemples de phases.....	106
Figure 4-3 : Influence du critère $ BMN $ sur les valeurs de Λ_{intra} pour les phases de pluie (mesures OPC, trois sites d'étude).....	109

Figure 4-4 : Influence du critère BMN sur les valeurs de Λ_{intra} pour les phases de pluie (mesures SMPS, site de Cadarache)	110
Figure 4-5 : Influence du critère T_{intra} sur les valeurs de Λ_{intra} pour les phases de pluie (mesures OPC, trois sites d'étude)	113
Figure 4-6 : Influence du critère T_{intra} sur les valeurs de Λ_{intra} pour les phases de pluie (mesures SMPS, site de Cadarache)	114
Figure 4-7 : Influence du critère BMN sur les valeurs de Λ_{intra} pour les phases de neige (mesures OPC, site de Grenoble)	116
Figure 4-8 : Influence du critère T_{intra} sur les valeurs de Λ_{intra} pour les phases de neige (mesures OPC, site de Grenoble)	117
Figure 4-9 : $\Lambda_{intra} = f(D_a)$ de la gamme nanométrique à la gamme supermicronique (site de Cadarache)	119
Figure 4-10 : Cartographie du coefficient de lessivage Λ selon le diamètre des particules et l'intensité pluviométrique (Laguionie et al., 2011)	121
Figure 4-11 : $\Lambda_{intra} = f(D_a)$ selon les sites d'études	122
Figure 4-12 : $t_{1/2} = f(D_a)$ de la gamme nanométrique à supermicronique (trois sites d'étude)	124
Figure 4-13 : $\Lambda = f(D_a)$ obtenus selon les différentes approches méthodologiques	126
Figure 4-14 : Paramétrisation du coefficient Λ_{intra} selon le diamètre D_a des particules entre 10 nm et 10 μ m	127
Figure 4-15 : Comparaison des paramétrisations de la forme $\Lambda = f(D_a)$	128
Figure 4-16 : Coefficient de lessivage Λ_{intra} en fonction de l'intensité pluviométrique I_{intra} pour différentes gammes de tailles de particules (site de Cadarache)	130
Figure 4-17 : Comparaison des paramétrisations de la forme $\Lambda = f(I)$	131
Figure 4-18 : Λ_{intra} (trait plein) et $t_{1/2}$ (trait tireté) en fonction du diamètre D_a pour les chutes de neige (site de Grenoble)	133
Figure 4-19 : Comparaison des coefficients de lessivage Λ (chutes de neige)	134
Figure 4-20 : Comparaison des coefficients Λ_{intra} pour les pluies et les chutes de neige (site de Grenoble)	136

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1-1 : AMAD (en μm) des radionucléides à l'issue des rejets accidentels de Tchernobyl et de Fukushima	15
Tableau 1-2 : Lois caractérisant la distribution en taille des gouttes de pluie $n(D_g)$	29
Tableau 1-3 : Paramétrisation de la vitesse terminale de chute des gouttes $U(D_g)$	30
Tableau 2-1 : Valeurs caractéristiques de chaque classe de pluie	53
Tableau 2-2 : Nombre de précipitations selon leur type pour chaque site	54
Tableau 2-3: Caractéristiques des sites d'études	55
Tableau 3-1 : Valeurs moyennes et médianes des caractéristiques météorologiques	59
Tableau 3-2 : Etendue des valeurs des paramètres statistiques de la série $\Lambda_{\text{macro}} = f(D_a)$ la gamme nanométrique à la gamme supermicronique (site de Cadarache)	81
Tableau 3-3 : Etendue des valeurs des paramètres statistiques des séries $\Lambda_{\text{macro}} = f(D_a)$ et conditions météorologiques (trois sites d'étude)	84
Tableau 3-4 : Etendue des valeurs de μ_g et de M selon le type de pluie (trois sites d'étude) ..	89
Tableau 3-5 : Etendue des valeurs de $t_{1/2}$ et $t_{1/10}$ de la gamme nanométrique à supermicronique (trois sites d'étude)	92
Tableau 3-6 : Etendue des valeurs de $t_{1/2}$ et $t_{1/10}$ selon le type de pluie (site de Gardanne) ..	93
Tableau 4-1 : Etendue des valeurs des paramètres statistiques de la série $\Lambda_{\text{intra}} = f(D_a)$ de la gamme nanométrique à la gamme supermicronique pour les phases de pluie (site de Cadarache)	120
Tableau 4-2 : Etendue des valeurs des paramètres statistiques des séries $\Lambda_{\text{intra}} = f(D_a)$ et caractéristiques moyennes des phases de pluie (trois sites d'étude)	123
Tableau 4-3 : Etendue des valeurs de $t_{1/2}$ et $t_{1/10}$ de la gamme nanométrique à supermicronique (trois sites d'étude)	125
Tableau 4-4 : Coefficients a et b pour les paramétrisations $\Lambda_{\text{intra}} = f(I_{\text{intra}})$ et indicateurs de qualités des ajustements	131
Tableau 4-5 : Etendue des paramètres statistiques de la série $\Lambda_{\text{intra}} = f(D_a)$ et des valeurs de $t_{1/2}$ et $t_{1/10}$ pour les chutes de neige (site de Grenoble)	134

INTRODUCTION GENERALE

Préambule

Inventé par l'Allemand Schmauss en 1920, le mot aérosol désigne la suspension, dans un milieu gazeux (air, dans la plupart des cas), de particules liquides, solides ou les deux, présentant une vitesse limite de chute négligeable. En toute rigueur, le terme "aérosol" désigne un système diphasique formé par des particules et le gaz porteur. Mais dans la pratique, ce terme s'applique aux seules particules en suspension dans l'air dont la taille est typiquement comprise entre quelques nanomètres et 100 µm. Pour de nombreuses problématiques, estimer l'impact des particules d'aérosol, qu'elles soient d'origine naturelle (sels marins, résidus volcaniques...) ou anthropogénique (polluants industriels, radionucléides artificiels...), sur l'environnement et sur l'homme est essentiel.

L'intérêt pour ces problématiques n'est pas récent. En effet, dès l'Antiquité, des auteurs tels que Lao Tseu ou Hippocrate (avec son « Traité des Airs, des Eaux et des Lieux ») s'y intéressent. Au XIII^e siècle, on retrouve une des premières descriptions documentées de la qualité de l'air par Moses Maimonides (Sportisse, 2008). Mais ce n'est qu'à partir du XIX^e siècle, et l'avènement de la révolution industrielle, que les conséquences de la pollution atmosphérique sur la santé humaine d'abord, et sur l'environnement par la suite, deviennent des thèmes de recherche majeurs. Le grand smog de Londres de 1952 est historiquement l'un des événements de pollution atmosphérique ayant eu le plus de conséquences « en termes d'impact sur la recherche, la perception du public concernant la pollution de l'air, et la réglementation gouvernementale » (Bell et al., 2004). Cet épisode exceptionnel aurait fait plus de 12.000 morts dans les semaines et les mois qui suivirent.

En France, aucun événement de ce type n'a eu lieu mais les pouvoirs publics ont rapidement pris conscience des enjeux sanitaires et environnementaux liés à la qualité de l'air. Ainsi, la création en septembre 1961 du Centre Interprofessionnel Technique d'Etudes de la Pollution Atmosphérique (CITEPA) illustre la volonté d'améliorer la connaissance de la formation et du devenir des particules d'aérosol dans l'atmosphère.

Contexte général

Les épisodes de pollution atmosphérique ne sont pas les seuls cas qui inquiètent de manière croissante la population. Le développement rapide de l'industrie nucléaire civile en France dès le début des années 60 a aussi soulevé de nouvelles questions concernant la sûreté des installations nucléaires et les conséquences de rejets radiologiques sur l'homme et la

biosphère. Les rejets à l'atmosphère se font notamment sous forme d'aérosol. La recherche en radioécologie émerge de ces interrogations et consiste à détecter la présence de radionucléides dans l'environnement, à rechercher leurs origines et à comprendre leurs processus de transfert dans les écosystèmes.

Dès 1955, les premières études radioécologiques sont publiées par le Commissariat à l'Energie Atomique (CEA, appelé depuis 2009 le Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives) au sein de son Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire. Par la suite, l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, créé en février 2002, est chargé de rechercher et d'évaluer l'ensemble des risques liés aux rayonnements ionisants naturels ou utilisés dans l'industrie ou la médecine. Les laboratoires du Pôle Environnement et plus particulièrement ceux du Service de Surveillance de la Radioactivité dans l'Environnement (SESURE), sont chargés de mesurer les niveaux de radioactivité dans les différents compartiments de la biosphère (atmosphère, compartiments terrestre, fluvial, marin...), de déterminer leur origine et leur devenir, et d'estimer leurs éventuelles conséquences sur l'environnement. Pour cela, l'IRSN s'appuie notamment sur l'Observatoire Permanent de la Radioactivité dans l'Environnement (réseau OPERA). Depuis 1959, ce réseau consiste entre autres à mesurer de manière chronique les niveaux ambiants atmosphériques et les dépôts sec ou humide de radionucléides par l'intermédiaire de prélèvements atmosphériques sur filtres et par des collectes d'eaux de pluie.

Les études radioécologiques ne cessent de se développer car les conséquences d'un accident nucléaire peuvent être très importantes, comme par exemple l'évacuation de populations, l'interdiction de consommer certaines denrées alimentaires ou la contamination des nappes phréatiques. En avril 1986, l'accident nucléaire de Tchernobyl a marqué l'histoire comme étant la première catastrophe nucléaire ayant eu des conséquences environnementales et sanitaires à grande échelle, avec notamment l'évacuation de 135.000 personnes dans la semaine qui suivit (IRSN, 2007).

Contexte de l'étude

De part leur nature, les rejets radiologiques de gaz inertes (xénon-133 ou krypton-85) interagissent peu avec l'homme et l'environnement. Après Tchernobyl, ils ne se sont pas déposés et ont été dilués progressivement dans l'atmosphère. En revanche, les éléments à volatilité forte ou intermédiaire (principalement les isotopes du tellure, de l'iode et du césium) ont été transportés sur de longues distances sous forme d'aérosol (Renaud et al., 2007).

Après l'accident de Tchernobyl, les niveaux de radioactivité dans l'atmosphère les plus importants ont été constatés en Europe de l'Est, mais la contamination des masses d'air a été mesurée jusqu'en Amérique du Nord et au Japon (OCDE, 2002). Les essais nucléaires

atmosphériques opérés entre juillet 1945 et octobre 1980 ont aussi entraîné une contamination plus ou moins homogène des deux hémisphères. La rémanence de ces rejets de radionucléides antérieurement déposés est à l'heure actuelle encore observable dans le compartiment atmosphérique (Piga, 2010). Les rejets radiologiques atmosphériques consécutifs à l'accident de Fukushima en mars 2011 ont eux aussi été détectés dans tout l'hémisphère Nord (Bolsunovsky et Dementyev, 2011 ; Masson et al., 2011 ; Wetherbee et al., 2012 entre autres). Durant leur transport, les radionucléides particuliers se sont déposés au sol ou dans les eaux par dépôt sec ou humide.

L'importance du dépôt sec va principalement dépendre des conditions météorologiques, du niveau de turbulence et du type de surface sur lequel se déposent les particules d'aérosol (surfaces agricoles, urbaines...). Le dépôt humide se décompose quant à lui en deux mécanismes : le lavage (captation des particules par les gouttes d'eau lors de la formation des nuages) et le lessivage (rabattement des particules d'aérosol par les gouttes lors de la chute de celles-ci durant des précipitations). Dans le cadre de ces travaux, nous nous intéresserons uniquement à l'étude du lessivage. En effet, tant que le panache radioactif est à une altitude inférieure à la base de nuages, le lessivage est le seul processus de dépôt humide actif.

Qu'il s'agisse des dépôts de radionucléides suite aux accidents de Tchernobyl ou Fukushima, une hétérogénéité importante des dépôts a été observée, et particulièrement en ce qui concerne les dépôts humides. La variabilité spatiale des précipitations est la principale cause de la formation de « tâches » de contamination, comme en France suite à l'accident de Tchernobyl (Renaud, 2003).

De même, bien que les périodes de temps sec occupent une très grande partie du temps par rapport aux périodes de précipitations (pluie, neige) ou de brouillards, le dépôt humide est particulièrement efficace sur de courtes échelles de temps. Ainsi, 99% des dépôts de radionucléides particuliers mesurés en Suède suite à l'accident de Tchernobyl se sont fait par voie humide en quelques heures (Mattsson et Vesanen, 1988). Il est donc indispensable de bien connaître les effets du dépôt humide sur les concentrations en radionucléides.

Hors période de rejet accidentel, les concentrations atmosphériques en radionucléides sont très faibles (environ $0,2 \mu\text{g m}^{-3}$ d'air actuellement pour le césium-137). Ainsi, bien que les limites de détection actuelles soient très basses, il est nécessaire de prélever de grands volumes pour quantifier les concentrations de radionucléides artificiels dans l'air. Dans le cadre du réseau OPERA, les prélèvements d'aérosol et d'eau de pluie se font donc sur des périodes de plusieurs jours et à l'aide d'équipements à très grand débit ou très grande surface de collecte, respectivement. Ces périodes sont bien supérieures aux durées des précipitations, qui varient généralement de quelques dizaines de minutes à quelques heures. L'impact spécifique du lessivage des radionucléides artificiels sous forme d'aérosol par un

évènement précipitant unique ou par plusieurs évènements consécutifs est donc impossible à caractériser. La mise en œuvre d'une réponse rapide, cohérente et coordonnée en cas d'accident nucléaire durant ce type d'évènement est donc problématique.

Objectifs de l'étude

La variation temporelle des concentrations de radionucléides par temps de pluie ne pouvant pas être déterminée à l'heure actuelle, nous nous intéressons aux fluctuations par temps de pluie de leur phase porteuse : l'aérosol. Cette thèse porte donc sur l'étude expérimentale en conditions *in situ* du potentiel de lessivage de l'aérosol par les précipitations. L'objectif de ces travaux est de mieux appréhender les effets de ce processus de dépôt humide sur les concentrations particulières, quels que soient le type de précipitations (neige, pluie, grêle) et la taille des particules d'aérosol. Cette étude a été réalisée au Laboratoire d'Etudes Radioécologiques en Milieux Continentale et Marin de l'IRSN, à Cadarache (13).

De nombreux travaux analytiques et expérimentaux sur le lessivage des aérosols ont été menés, mais peu de ces études se sont intéressées à caractériser ce phénomène à partir de mesures *in situ*. En outre, l'instrumentation utilisée était relativement limitée, en particulier concernant la plage de valeurs mesurées et leur fréquence d'acquisition. Dans la littérature, le lessivage des particules d'aérosol nanométriques (diamètre inférieur à 100 nm) est aussi peu documenté.

Ainsi, la détermination simultanée de la granulométrie des particules d'aérosol et des caractéristiques des pluies en conditions *in situ* a pour but d'enrichir les connaissances sur le lessivage de l'aérosol. Les instruments utilisés pour cela permettent des mesures à une résolution temporelle de l'ordre de la minute, pour une large gamme de taille de particules et par tous types de précipitations.

Tout d'abord, l'état actuel des connaissances sur le lessivage de l'aérosol par les précipitations sera résumé. Le fonctionnement de l'instrumentation utilisée sera expliqué et les sites d'étude instrumentés durant cette thèse seront ensuite présentés. L'analyse des données collectées durant cette étude sera ensuite détaillée selon deux approches différentes. Une synthèse des résultats sera finalement enfin proposée.

CHAPITRE 1 : ETAT DES CONNAISSANCES

1.1. L'aérosol atmosphérique

1.1.1. Définition

Comme énoncé dans l'introduction, le terme « aérosol » désigne le système biphasique formé par les particules et le gaz porteur, pour des particules solides, liquides, ou les deux, en suspension dans un milieu gazeux et présentant une vitesse de chute négligeable. Le diamètre des particules est typiquement compris entre quelques nanomètres et 100 µm. Les particules de taille supérieures sédimentent trop vite pour avoir un temps de résidence dans l'atmosphère suffisant pour être considérées comme un aérosol. Dans le reste de ce mémoire, les termes « aérosol » et « particule » serapporteront à cette définition.

L'aérosol atmosphérique est caractérisé par la distribution dimensionnelle des particules, leur forme et leur composition. Ces caractéristiques sont conditionnées par leur origine (naturelle ou anthropique), leur nature (inorganique ou organique) ou leur source (aérosol primaire ou secondaire).

1.1.2. Sources

Le volcanisme, l'érosion éolienne, la formation de sels marins par l'éclatement de bulles de surface (sources primaires) et la conversion gaz-particule (source secondaire) constituent plus de 99% des émissions naturelles de particules dans l'air (chiffres extrait de D'Almeida et al. (1991), d'après Renoux et Boulaud (1998)). Concernant les émissions anthropogènes, les émissions directes (transports, industries...), les feux de biomasse (sources primaires) et la conversion gaz-particule sont les sources principales. Dans l'estimation des émissions totales, la part des émissions anthropogènes est faible comparée à la part biogénique¹, avec respectivement 4% et 96% (D'Almeida et al. ,1991).

1.1.3. Granulométrie

Dans de nombreuses études, la caractérisation des particules d'aérosol se fait selon leur diamètre. En effet, dans l'environnement, les particules d'aérosol sont le plus souvent de

¹ Relatif à l'évolution des organismes vivants

diamètre différents (on parle d'aérosol polydispersé). La répartition granulométrique des particules de diamètre D_p s'exprime sous forme d'une distribution en diamètre $n(D_p)$.

A partir de milliers de mesures *in situ* de distributions dimensionnelles des particules d'aérosol, Whitby (1973) exprime la granulométrie de l'aérosol comme une combinaison de trois distributions log-normales (figure 1-1).

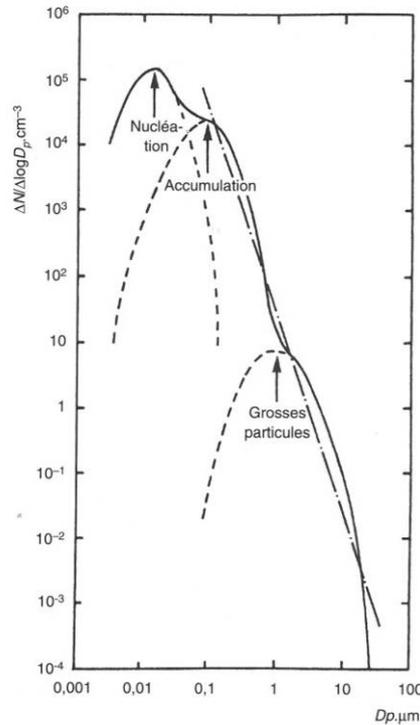


Figure 1-1 : Composantes de l'aérosol atmosphérique (Renoux et Boulaud, 1998)

Trois modes se distinguent, chacun associé à des processus physiques particuliers (cf. section 1.1.5) :

- le mode de nucléation : particules formées à partir de l'agrégation de molécules gazeuses
- le mode accumulation : formé de l'évaporation de grosses particules ou du grossissement des noyaux par condensation
- le mode « grosses particules » ou « grossier » : formé de particules primaires d'origine naturelle (poussière minérales, sel de mer...)

La valeur de D_p associée à chaque mode dépendra de la quantité considérée en fonction du diamètre des particules (nombre, masse, volume, surface) dont la fonction représente la densité de concentration volumique ou massique.

Concrètement, pour établir la distribution dimensionnelle d'un aérosol, le nombre de particules n_i dont le diamètre est compris dans chaque classe de largeur ΔD_p est mesuré par

différentes techniques instrumentales. Le principe de mesure est le même pour les distributions en masse, volume ou surface.

Selon ce principe, la distribution de la granulométrie des particules $n(D_a)$ s'exprime à partir de la concentration en nombre N de la i -ème distribution log-normale comme :

$$n(D_a) = \sum_{i=1}^3 \frac{N_i}{\sqrt{2\pi} \log \sigma_g} \exp \left[-\frac{(\log D_a - \log d_g)^2}{2(\log \sigma_g)^2} \right] \quad (1)$$

Jaenicke (1993) propose des valeurs de N_i , d_g (diamètre géométrique moyen) et σ_g (écart-type de la distribution) selon le type d'aérosol. Ainsi, il distingue sept types d'aérosols troposphériques : aérosol polaire, maritime, continental, rural, urbain, de fond, et les poussières désertiques. Ces travaux sont les plus utilisés pour paramétrer les distributions dimensionnelles d'aérosol dans les études consacrées au lessivage (Mircea et al., 2000 ; Andronache, 2003 ; Chate, 2011).

1.1.4. Les particules d'aérosol radioactives

1.1.4.1. *Origine naturelle*

La plupart de la radioactivité mesurée dans l'environnement est d'origine naturelle. Les particules d'aérosol radioactives, ou « radionucléides », naturels peuvent être d'origine cosmogénique (béryllium-7, sodium-22) et se forment à partir des réactions de spallation² entre les rayons cosmiques et certains composants de la haute atmosphère. Elles peuvent aussi provenir des roches de l'écorce terrestre ou du sol (descendants des familles de l'uranium et du thorium, potassium-40). La principale source de la radioactivité naturelle est le radon qui est issu de la chaîne de désintégrations de l'uranium.

1.1.4.2. *Origine artificielle*

La radioactivité artificielle dans l'environnement provient essentiellement de deux sources : les essais nucléaires atmosphériques réalisés pour la plupart dans l'hémisphère nord entre 1952 et 1963, et les rejets radiologiques suite à des accidents nucléaires tels que ceux de Tchernobyl en avril 1986 et Fukushima en mars 2011. Ces événements (en particulier les seconds) sont à l'origine d'une contamination significative de la biosphère sur de larges

² Réaction nucléaire pendant laquelle le noyau d'un atome éclate en de nombreuses particules sous l'effet d'une particule de haute énergie

surfaces, notamment dues aux rejets d'isotopes du tellure, de l'iode ou du césium qui peuvent être transportés sur de longues distances. Du fait de leur toxicité pour l'homme, ce sont les radionucléides les plus étudiés. A l'heure actuelle, seuls les isotopes du césium (césium 134 et 137) sont mesurés dans l'environnement du fait de leurs périodes radioactives relativement longues comparées à celles des autres éléments cités (respectivement 2,1 et 30 ans pour le ^{134}Cs et le ^{137}Cs contre quelques jours ou quelques heures pour les isotopes de l'iode et du tellure). D'autres éléments, comme le strontium-90, sont peu volatiles et se déposent rapidement à proximité de leur source, ou sont inertes et interagissent peu avec l'homme ou la biosphère, comme le xénon-133 ou le krypton-85 (Renaud et al., 2007). Bien qu'encore détectés dans l'environnement, il présente peu d'intérêt dans le cadre de la radioécologie.

1.1.4.3. *Granulométrie des radionucléides artificiels*

Comme évoqué dans l'introduction, l'influence des précipitations sur les niveaux d'activité dans l'air des radionucléides artificiels ne peut pas être déterminée directement en situation normale. Ces niveaux sont trop faibles pour être mesurables dans les eaux de pluie collectées à la suite d'un voire de plusieurs évènements précipitants. C'est pourquoi cette étude s'intéresse au lessivage des particules d'aérosol, et non pas directement au lessivage des radionucléides.

Cependant, la connaissance de la granulométrie des radionucléides artificiels peut nous permettre d'axer les recherches sur une gamme de diamètre particulière. Suite aux accidents de Tchernobyl et Fukushima, différentes études ont déterminé les valeurs d'AMAD³ (en μm) pour les principaux éléments (isotopes de l'iode, du ruthénium, du césium, du tellure). L'AMAD est défini de telle sorte que 50% de l'activité mesurée soit associée à des particules dont le diamètre aérodynamique est inférieur à l'AMAD et 50% à des particules dont le diamètre aérodynamique est supérieur à l'AMAD. Le tableau 1-1 regroupe les plages des valeurs d'AMAD pour l' ^{131}I , le ^{134}Cs et le ^{137}Cs données pour certains de ces travaux.

³ Activity Median Aerodynamic Diameter : cette valeur sert entre autres pour estimer la dose reçue par une personne en cas d'inhalation de radionucléides particuliers

Tableau 1-1 : AMAD (en μm) des radionucléides à l'issue des rejets accidentels de Tchernobyl et de Fukushima

Accident	Référence	^{131}I	^{137}Cs	^{134}Cs
Tchernobyl	Dorrian (1997) ⁴	0,32 - 0,75	0,4 - 0,83	0,4 - 0,75
Tchernobyl	Ooe et al. (1988)	0,30 - 0,70	0,32 - 0,51	0,35 - 0,51
Fukushima	Doi et al. (2013)	0,7	1 - 1,5	1 - 1,8
Fukushima	Kaneyasu et al. (2012)	n.d.	0,53 - 0,63	0,54 - 0,63
Fukushima	Masson et al. (2013)	0,29 - 0,57	0,27 - 0,71	0,17 - 0,69

Ces valeurs sont relativement cohérentes entre elles. Il est important de préciser que pour ces études les prélèvements d'aérosol ont été effectués avec des impacteurs en cascades, et les mesures les plus fines sont faites sur des particules d'aérosol de quelques dizaines de nanomètres. Ainsi, le diamètre de coupure le plus faible dans le cas de Kaneyasu et al. (2012) est de 60 nm et de 100 nm dans le cas de Masson et al. (2013). A notre connaissance, il n'y a pas d'information sur l'activité portée par les particules dont le diamètre est inférieure à 60 nm.

1.1.5. Dynamique de l'aérosol atmosphérique

Les caractéristiques des particules d'aérosol atmosphérique, et notamment leur distribution granulométrique, sont pilotées par de nombreux processus microphysiques (figure 1-2). Il est important de noter que l'intégration de l'ensemble de ces processus dans un modèle numérique détaillé est extrêmement difficile du fait de la complexité de chacun d'entre eux.

⁴ Cette publication est une compilation de données extraites de différentes études consécutives à l'accident de Tchernobyl

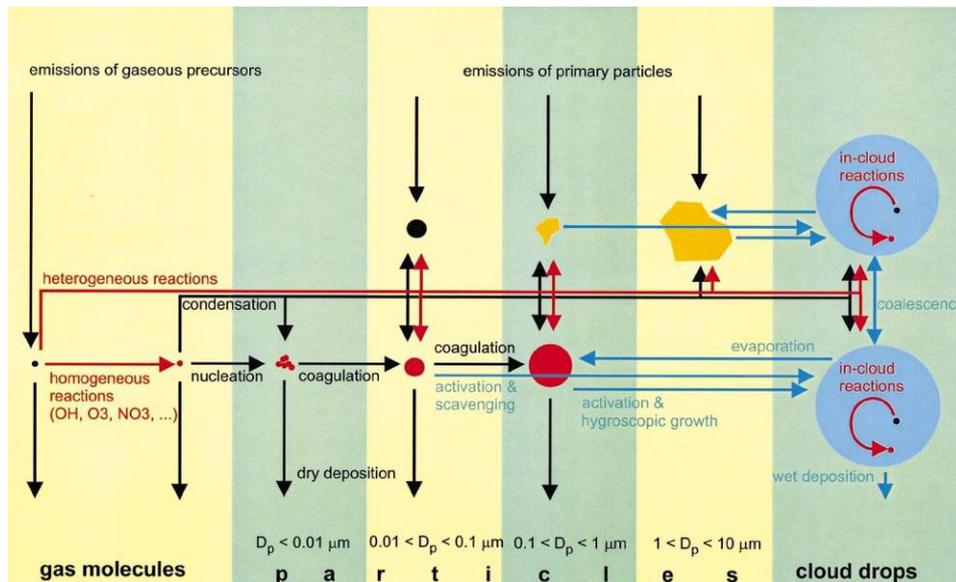


Figure 1-2 : Processus microphysiques influençant la dynamique de l'aérosol atmosphérique (Raes et al., 2000)

Parmi ces processus, les dépôts par voie sèche et humide constituent les deux modes par lesquels les particules d'aérosol, qu'elles soient d'origine naturelle ou anthropogène, vont être transférées de l'atmosphère aux autres compartiments de la biosphère. L'estimation des dépôts sec et humide est donc essentielle pour évaluer les conséquences sur l'environnement des rejets de polluants industrielles ou radiologiques.

Dans des zones au climat tempéré, les périodes de temps sec sont prépondérantes comparées aux périodes de temps humide. La plupart du temps, le dépôt des particules se fait donc par voie sèche. Mais le potentiel de rabattement par les précipitations peut être très important sur de courtes échelles de temps ; des exemples étant donnés dans l'introduction de ce mémoire.

Ce chapitre fait l'état général des connaissances sur le dépôt de l'aérosol atmosphérique. Le dépôt sec sera traité de manière succincte car l'étude décrite dans ce mémoire porte sur le dépôt humide et plus particulièrement sur le mécanisme de lessivage.

1.2. Le dépôt sec de l'aérosol atmosphérique

Le dépôt sec de l'aérosol est défini de manière générale comme le transfert d'espèces particulaires de l'atmosphère vers les surfaces terrestres ou aquatiques en l'absence de précipitation. Les paramètres qui vont influencer ce processus sont les propriétés physico-chimiques des particules considérées, les conditions météorologiques, la turbulence ainsi que les propriétés de la surface sur laquelle vont se déposer ces particules. Dans les modèles numériques, il est courant de paramétrer l'ensemble des processus mis en jeu pour

obtenir une représentation microphysique du dépôt sec de l'aérosol. Pour une altitude z inférieure à une dizaine de mètres, le flux de dépôt sec $F_{\text{sec}}(z)$ ($\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$) est donc calculé comme étant fonction de la concentration $C(z)$ (g m^{-3}) de l'espèce étudié et d'une vitesse de dépôt v_{sec} (m s^{-1}) comme :

$$F_{\text{sec}}(z) = -v_{\text{sec}} C(z) \quad (2)$$

L'avantage de cette formulation est de résumer la complexité du phénomène de dépôt sec à l'utilisation du seul paramètre v_{sec} . L'utilisation d'une analogie avec la méthode des résistances électrique permet d'exprimer la vitesse de dépôt à partir de trois résistances en série : la résistance aérodynamique R_a , la résistance quasi-laminaire R_b et la résistance de surface R_c . La résistance total R_t est par définition définie comme la somme de ces trois résistances, et est l'inverse de la vitesse de dépôt sec :

$$v_{\text{sec}}^{-1} = R_t = R_a + R_b + R_c \quad (3)$$

Le modèle par résistance est schématisé par la figure 1-3.

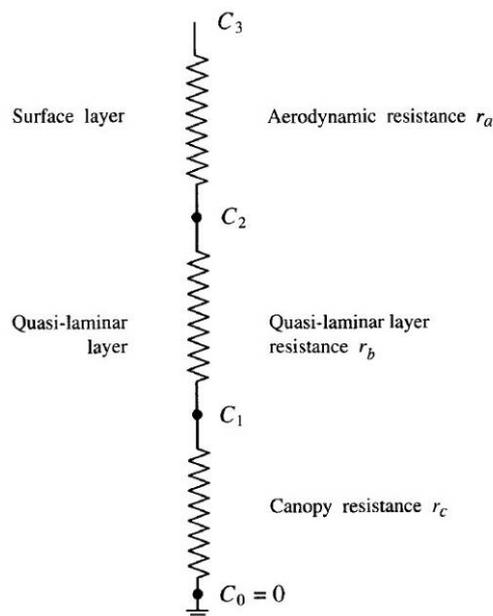


Figure 1-3 : Schématisation du modèle des résistances pour le dépôt sec
(Seinfeld et Pandis, 2006)

Le dépôt sec de l'aérosol est bien documenté dans la littérature et nous pouvons citer en particulier Seinfeld et Pandis (2006) ou de Wesely et Hicks (2000) qui décrivent de manière détaillée le modèle des résistances. Cependant, de nombreuses recherches ont encore lieu actuellement pour déterminer notamment l'impact de différents types de surfaces sur le dépôt sec de l'aérosol (entre autres Roupsard (2013) ou Colec (2013)).

Dans le cas d'un accident nucléaire grave, l'estimation du dépôt sec de radionucléides est une donnée essentielle pour évaluer les conséquences sur l'environnement et sur l'homme des rejets radiologiques. Ces dépôts sont caractérisés par l'activité surfacique déposée (en Bq m^{-2}), correspondant au rapport entre l'activité totale déposée sur les objets et matériaux présents sur une surface donnée et l'aire de cette surface » (Renaud et al., 2007).

Suite aux accidents majeurs de Tchernobyl (1986) et de Fukushima (2011), de nombreuses études ont permis de déterminer pour différents types de sols des vitesses de dépôt sec propres aux principaux radionucléides particulaires (^{137}Cs , ^{134}Cs et ^{131}I) qui peuvent contaminer l'environnement à grande échelle.

1.3. Le dépôt humide de l'aérosol atmosphérique

Le dépôt humide de l'aérosol se décompose en deux types de processus. Il est important de les distinguer car ils décrivent des interactions différentes entre aérosol et hydrométéores⁵, et ils peuvent intervenir simultanément. La figure 1-4 schématise ces deux phénomènes.

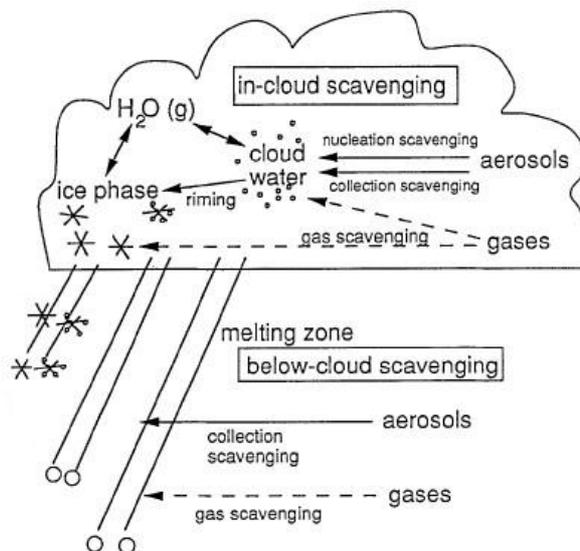


Figure 1-4 : Représentation schématique des processus de dépôt humide (Stahelin et al., 1993)

⁵ Forme condensée (solide ou liquide) de l'eau dans l'atmosphère

1.3.1. Le rabattement dans le nuage

Le rabattement dans le nuage est désigné sous le terme de « in-cloud scavenging » ou lavage. Ce processus peut être décomposé en « nucleation scavenging » et en « impaction scavenging ».

Le terme « nucleation scavenging » désigne le processus par lequel les particules d'aérosol atmosphérique sont rabattues parce qu'elles ont servi de noyaux de condensation aux hydrométéores qui composent le nuage. *In situ*, les conditions atmosphériques nécessaires à la nucléation homogène (condensation « spontanée » de la vapeur d'eau pure) ne sont pas réunies, les valeurs de sursaturation à atteindre étant bien supérieures à 100%. La formation des gouttelettes de nuage se fait donc par nucléation hétérogène. En présence de particules d'aérosol dans l'atmosphère, la vapeur d'eau va se condenser sur la surface de ces particules et entraîner leur capture au sein de la gouttelette formée. Les particules qui servent ainsi de support de formation aux gouttelettes d'eau sont désignées sous le terme de « noyaux de condensation ». Les lois de la thermodynamique décrivant le processus de nucléation hétérogène dans le cas de particules solubles ou insolubles sont notamment détaillées par Pruppacher et Klett (1996, chap. 9). La gouttelette initiée par nucléation hétérogène va ensuite continuer à grossir par condensation de vapeur d'eau puis par coalescence, ce qui entraîne le grossissement des gouttelettes jusqu'à un diamètre critique où elles vont chuter sous forme de précipitations. C'est par ce biais que les noyaux de condensation sont transférés de l'atmosphère à d'autres matrices de l'environnement.

Le terme de « impaction scavenging » désigne tous les processus physiques et dynamiques par lesquels les particules d'aérosol sont capturées par des gouttelettes déjà formées.

1.3.2. Le rabattement sous le nuage

Le rabattement sous le nuage est le plus souvent désigné sous le terme de « below-cloud scavenging » ou lessivage. Le terme de « washout » est aussi employé. Ce phénomène correspond au cas où les particules d'aérosol sont capturées par les gouttes de pluie lors de leur chute durant des événements pluvieux. Lors de la chute de neige, le terme de « snowout » est utilisé, mais le principe physique mis en jeu dans les deux cas est similaire. Ces travaux ne traitent que du lessivage, c'est pourquoi la physique élémentaire de ce processus est détaillée par la suite.

1.3.3. Le dépôt humide des radionucléides

Comme cela a déjà été dit dans ce mémoire, le dépôt des radionucléides est un sujet d'étude particulièrement sensible ; les conséquences d'une contamination radiologique

pouvant être considérables. Le lessivage des particules atmosphériques est un phénomène difficile à modéliser (cf. section 1.4). Outre les limitations météorologiques déjà évoqués, déterminer le lessivage des radionucléides à partir de la mesure de leur concentration durant des précipitations est complexe. En effet, parler de lessivage sous-entend que l'on s'intéresse uniquement à l'effet d'une précipitation sur les concentrations d'aérosol sous le nuage. Or, même si le terme source radioactif est à faible altitude (généralement quelques dizaines de mètres à quelques centaines de mètres en cas de surélévation thermocinétique du panache liée à une explosion par exemple), après quelques centaines de kilomètres de transport, l'épaisseur de la couche de mélange où l'on retrouve les concentrations en radionucléides peut être conséquente. Suite à l'accident de Fukushima, des traces de radionucléides ont été mesurées en Europe jusqu'à 10,000 m d'altitude (Masson et al., 2011), ce qui est une altitude supérieure à l'altitude de la base des nuages de pluies (typiquement entre 1500 et 3000 m). Lors d'un rejet radiologique, les réseaux de surveillance de la radioactivité dans l'environnement, comme le réseau OPERA de l'IRSN, mesurent les dépôts humides en collectant les eaux de pluie. Les profils verticaux des niveaux d'activité des radionucléides dans l'air n'étant pas connus, il n'est pas possible de dissocier les contributions respectives du rabattement dans et sous le nuage. Les études faites suite aux accidents nucléaires de Tchernobyl (Jyhlä, 1991 ; Hirose et al., 1993) et Fukushima (Depuydt et al, 2013) ont donc déterminé des coefficients de rabattement humide (rabattement dans le nuage + rabattement sous le nuage) à partir des niveaux d'activités mesurés dans des échantillons d'eaux de pluie.

1.4. Lessivage de l'aérosol par les précipitations

1.4.1. La collecte des particules d'aérosol atmosphérique par les gouttes de pluie

Lors de sa chute, une goutte d'eau va balayer par unité de temps un volume d'air V_{air} qui dépend de son diamètre D_g et de sa vitesse terminale de chute U comme,

$$V_{air} = \frac{\pi D_g^2 U (D_g)}{4} \quad (4)$$

En première approximation, toute particule présente dans ce volume V_{air} peut être capturé par la goutte. En réalité, le volume de collection V_{collec} est aussi dépendant du diamètre des particules d'aérosol atmosphérique et de leur vitesse verticale $u(D_a)$. Ainsi toute particule de diamètre D_a dont le centre est à l'intérieur d'un cylindre de diamètre $D_g + D_a$ peut être collectée par la goutte. L'expression de V_{collec} , à partir de celle de V_{air} , devient donc,

$$V_{collec} = \frac{\pi(D_g + D_a)^2 [U(D_g) - u(D_a)]}{4} \quad (5)$$

Cette approche est relativement simpliste, car la chute des gouttes d'eau dans l'air induit une divergence des lignes de courant autour de la goutte. Les forces qui en résultent perturbent la dynamique des particules d'aérosol à proximité, rendant particulièrement complexe la description microphysique des mécanismes de collecte des particules d'aérosol par les gouttes de pluie. Ces mécanismes sont ainsi dépendants de D_g et D_a et exprimés sous la forme d'efficacités de collecte E . Cette efficacité de collecte traduit la fraction de particules d'aérosol présentes dans le volume V_{collec} qui va être réellement capturée par la goutte. Sa valeur est ainsi toujours inférieure à 1.

En considérant une distribution dimensionnelle des particules d'aérosol $n(D_a)$ et une distribution dimensionnelle des gouttes $n(D_g)$, le taux de collection T_{collec} des particules d'aérosol par les gouttes de pluie est exprimé comme :

$$T_{collec} = \iint V_{collec} E(D_g, D_a) n(D_a) n(D_g) dD_a dD_g \quad (6)$$

En conditions *in situ*, $U \gg u_a$ et $D_g \gg D_a$. Ainsi, l'équation (6) devient (Slinn, 1977) :

$$T_{collec} = \iint \frac{\pi}{4} D_g^2 U(D_g) E(D_g, D_a) n(D_a) n(D_g) dD_a dD_g \quad (7)$$

Le lessivage des particules d'aérosol atmosphérique de densité de concentration (volumique ou massique) $c(D_a)$ est défini comme :

$$\frac{dc(D_a)}{dt} = -\Lambda c(D_a) \quad (8)$$

Avec Λ (s^{-1}), le coefficient de lessivage, calculé de manière analytique comme :

$$\Lambda(D_a) = \int \frac{\pi}{4} D_g^2 U(D_g) E(D_g, D_a) n(D_g) dD_g \quad (9)$$

Si les goutte de pluie sont considérées comme de taille unique D_g , alors l'équation (9) devient :

$$\Lambda(D_a) = \frac{\pi}{4} D_g^2 U(D_g) E(D_g, D_a) N_{tot} \quad (10)$$

L'intensité pluviométrique I (en $mm s^{-1}$) pour un spectre de gouttes monodispersé est définie par la formule :

$$I = \frac{\pi}{6} D_g^3 U(D_g) N_{tot} \quad (11)$$

En combinant les équations (10) et (11), le coefficient de lessivage peut être exprimé pour un spectre de goutte de pluie monodispersé :

$$\Lambda(D_a) = \frac{3}{2} \frac{E(D_a, D_g) I}{D_g} \quad (12)$$

Une autre manière de formuler ce coefficient sans prendre en compte l'efficacité de collecte et de prendre comme hypothèse que le coefficient Λ est constant au cours du temps. Ainsi l'équation (13) donne la loi d'évolution temporelle de la densité de concentration des particules d'aérosol de diamètre D_a au cours d'une précipitation :

$$c(D_a, t) = c_0(D_a) * \exp(-\Lambda * t) \quad (13)$$

$c_0(D_a)$ et $c(D_a, t)$ sont respectivement les densités de concentration particulaire en début de précipitation et au temps t .

1.4.2. Les mécanismes de collecte

Les mécanismes de collecte sont de trois types : mécanique, phorétique et électrostatique. Greenfield (1957) fut parmi les premiers à étudier l'effet combiné de ces mécanismes sur le lessivage de l'aérosol. Les équations des différents mécanismes de collecte sont présentées par la suite et notamment détaillées par Pruppacher et Klett (1996).

1.4.2.1. Les effets mécaniques

Trois effets de collecte mécaniques peuvent être distingués : l'impaction inertielle, l'interception et la diffusion brownienne (figure 1-5). Ils sont considérés dans beaucoup d'études comme les effets de collecte prépondérants (Garcia-Nieto, 1994 ; Mircea et al., 2000, entre autres).

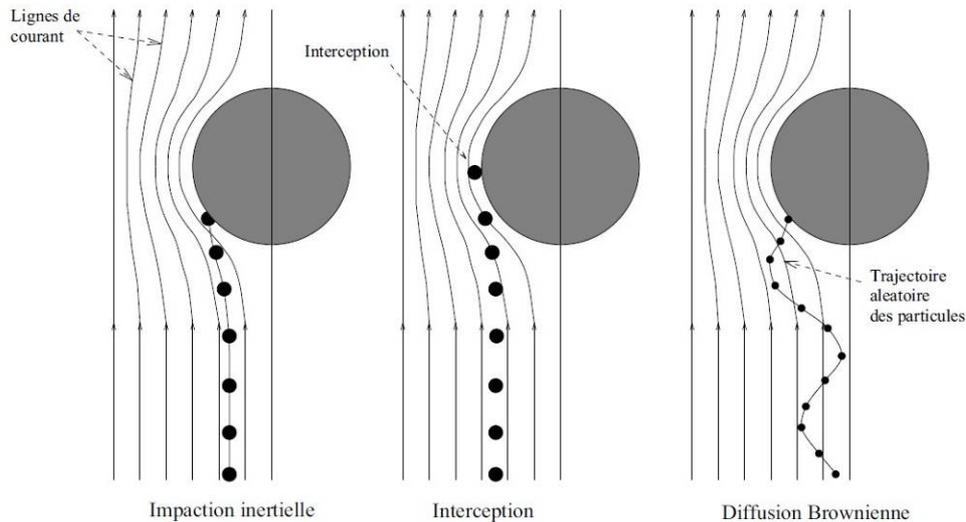


Figure 1-5 : Effets de collecte mécanique (Marchand, 2008)

L'impaction inertielle

La collecte par impaction inertielle intervient lorsque l'inertie d'une particule d'aérosol est trop grande pour qu'elle suive les lignes de courant induites par la chute d'une goutte de pluie. L'importance de ce mécanisme de collecte diminue avec le diamètre des particules d'aérosol, mais il est prépondérant pour les particules de diamètre supérieur à $2 \mu\text{m}$ (Kerker et Hampl, 1974).

L'interception

La collecte par interception se produit lorsque la particule passe à une distance de la goutte inférieure à $D_p/2$. Le mécanisme d'interception est relativement similaire à l'impaction inertielle, à la différence que l'interception prend en compte la géométrie de la particule d'aérosol tandis que l'impaction inertielle dépend de sa masse.

La diffusion brownienne

Pour une certaine taille, les particules d'aérosol vont suivre un mouvement aléatoire brownien qui peut entraîner leur collecte par les gouttes d'eau. La collecte par diffusion brownienne est prépondérante pour les particules d'aérosol dont le diamètre est inférieur à $0,2 \mu\text{m}$ (Slinn, 1983).

Modèle de Slinn

Slinn (1983) a proposé une expression semi-empirique de l'efficacité de collecte d'une particule d'aérosol par une goutte de pluie selon le rayon de la particule en considérant les

trois effets de collecte mécaniques présentés (figure 1-6). La prédominance de chacun de ces effets selon la gamme de rayon des particules est aussi indiquée.

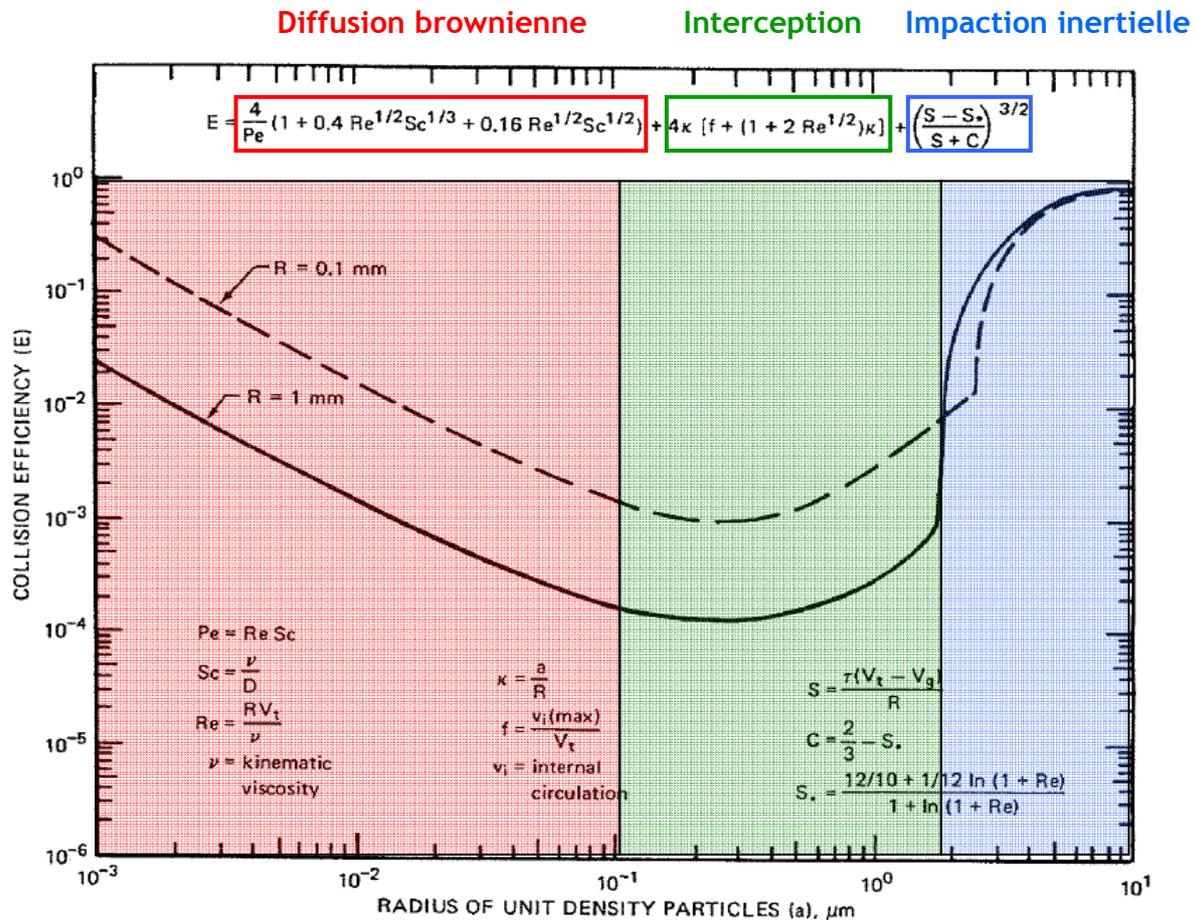


Figure 1-6 :Modèle de Slinn (1983)

Pour des particules de rayon compris entre 0,1 et 1 μm , la diffusion brownienne est peu efficace en tant que mécanisme de collecte, et les particules n'ont pas une taille ou une masse suffisante pour être collectées efficacement par interception ou impaction inertielle. Ce minimum d'efficacité de collecte est appelé « Greenfield gap » (Greenfield, 1957). Le modèle de Slinn est encore aujourd'hui largement utilisé pour paramétrer l'efficacité de collecte des particules d'aérosol par les gouttes de pluie. Cependant, il présente des lacunes car il ne tient pas compte des effets phorétiques ou des effets de charges électriques.

1.4.2.2. Les effets phorétiques

Les effets de collecte phorétique sont induits par un gradient d'une grandeur scalaire dans l'air et à proximité des gouttes de pluie. Dans le cas du lessivage des particules d'aérosol, deux types d'effets phorétiques sont identifiés : la diffusiophorèse et la thermophorèse. Ces

deux effets de collecte sont particulièrement importants car ils augmentent de manière significative la collecte des particules par des gouttes d'eau (Grover et al., 1977).

La thermophorèse

La collecte par thermophorèse intervient en présence d'un gradient thermique dans l'air. L'asymétrie des chocs des molécules de gaz à la surface de la particule va induire une force F_{th} qui va provoquer le mouvement de celle-ci des zones « chaudes » vers les zones « froides » (figure 1-7).

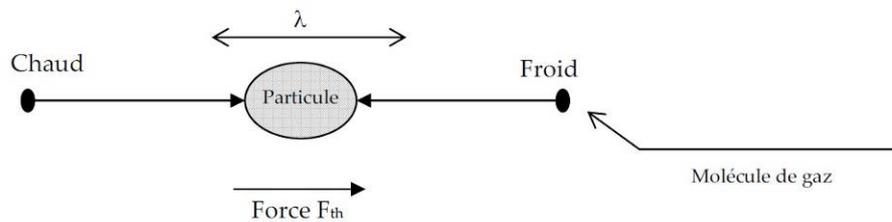


Figure 1-7 : Schématisation de la collecte par thermophorèse (Marchand, 2008)

L'efficacité de collecte E_{therph} induite par la force de thermophorèse s'exprime comme (Davenport et Peter, 1978) :

$$E_{therph} = \frac{4\alpha(2 + 0,6 Re^{1/2} Pr^{1/3})(T_{air} - T_g)}{U(D_g)D_g} \quad (14)$$

Avec

$$\alpha = \frac{2C_c(k_{air} + 5\frac{\lambda}{D_g}k_a)k_{air}}{5P_{atm}(1 + 6\frac{\lambda}{D_g})(2k_{air} + k_a + 10\frac{\lambda}{D_a}k_a)}$$

La diffusiophorèse

La collecte par diffusiophorèse intervient lorsque le milieu gazeux dans lequel les particules sont en suspension est isotherme, isobare mais hétérogène. Sous l'effet des gradients de concentration X_i des différents constituants du milieu, les particules vont migrer dans la direction du gradient de concentration sous l'effet de la force F_{difph} (figure 1-8).

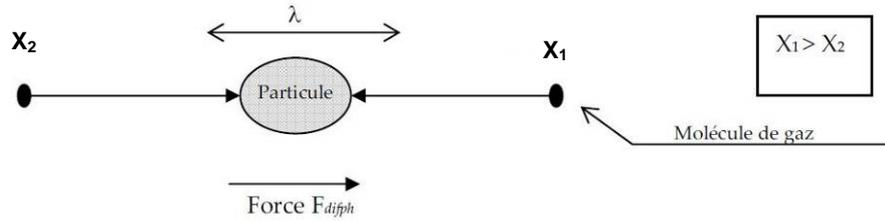


Figure 1-8 : Schématisation de la collecte par diffusiophorèse (Marchand, 2008)

L'efficacité de collecte E_{difph} résultante de cette force de diffusiophorèse s'exprime telle que (Davenport et Peter, 1978) :

$$E_{difph} = \frac{4\beta(2 + 0,6Re^{1/2} Sc_w^{1/3})\left(\frac{P_g^0}{T_g} - \frac{P_{air}^0 RH}{T_{air}}\right)}{U_t(D_g)D_g} \quad (15)$$

Avec

$$\beta = \frac{T_{air} \delta_{eau}}{P_{atm}} \sqrt{\frac{M_{air}}{M_{eau}}} \quad \text{et} \quad Sc_w = \frac{\mu_{air}}{\rho_{air} D_{diffeau}}$$

1.4.2.3. Les effets électrostatiques

Dans l'atmosphère, les particules d'aérosol peuvent être chargées par ionisation naturelle ou anthropique. Dans la plupart des cas, le rayonnement solaire est à l'origine de ce phénomène. De plus, lors de certains types d'évènements pluvieux, les gouttes de pluie peuvent être porteuses d'un certain nombre de charges électriques (cas des orages en particulier).

Aux effets de collecte mécaniques et phorétiques s'ajoutent donc les effets de collecte électrostatiques. A partir des travaux de Greenfield, Grover et al. (1977) montrent que les forces électriques augmentent l'efficacité de collecte des particules d'aérosol par des gouttes chargées.

L'efficacité de collecte électrostatique est exprimée telle que (Davenport et Peter, 1978) :

$$E_{elec} = \frac{16k_c C_f q_g q_a}{3\pi\mu_{air} U_t(D_g) D_g^2 D_a} \quad (16)$$

La prise en compte de ce mécanisme de collecte entraîne une augmentation de deux ordres de grandeur de l'efficacité de collecte due à l'impaction inertielle et à l'interception. Cet effet diminue aussi l'amplitude du « Greenfield gap » (Grover et al., 1977).

1.4.2.4. L'efficacité de collecte totale

Les mécanismes de collecte présentés ici sont considérés comme indépendants les uns des autres. Selon cette hypothèse, l'efficacité de collecte totale E_{tot} est la somme des efficacités de collecte des différents mécanismes considérés : l'impaction (E_{imp}), l'interception (E_{int}), la diffusion brownienne (E_{dif}), la diffusiophorèse (E_{difph}), la thermophorèse (E_{therph}) et les effets électrostatiques (E_{elec}). Ainsi E_{tot} s'exprime comme :

$$E_{tot} = E_{imp} + E_{int} + E_{dif} + E_{difph} + E_{therph} + E_{elec} \quad (17)$$

La figure 1-9 illustre, pour un diamètre de goutte de 1 mm, la contribution de chacun d'entre eux selon le diamètre des particules d'aérosol.

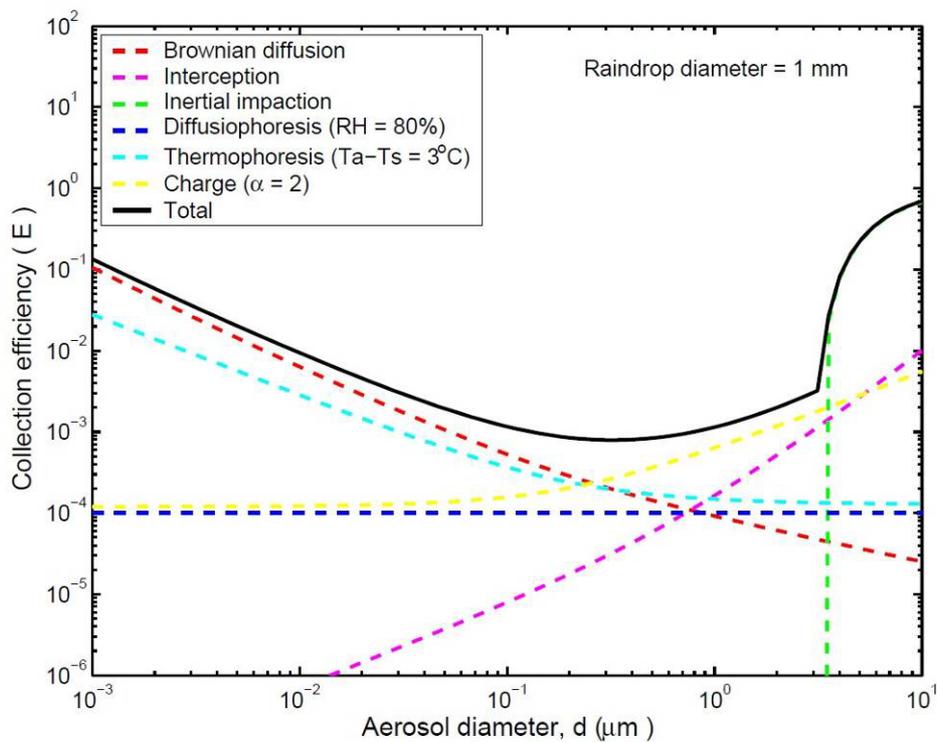


Figure 1-9 : Contributions des différents mécanismes de collecte selon le diamètre des particules d'aérosol (Wang et al., 2010)

1.4.3. Caractérisation du lessivage de l'aérosol par les précipitations

Le coefficient de lessivage Λ est le paramètre principal qui permet de caractériser la diminution de la concentration des particules d'aérosol atmosphérique sous l'effet des précipitations. Ce coefficient peut être calculé à partir de l'équation (9) lorsque les caractéristiques des particules d'aérosol lessivées et des hydrométéores lessivants sont connues. En conditions *in situ*, il n'est pas toujours possible de déterminer simultanément

l'ensemble de ces paramètres ; c'est même rarement le cas. Deux types d'approches peuvent ainsi être distingués pour déterminer Λ :

- les approches dites « analytiques » : l'expérimentateur connaît *a priori* les caractéristiques de l'aérosol et/ou des hydrométéores, ou utilise des lois paramétriques pour les décrire et étudie certains mécanismes de collecte particuliers
- les approches dites « environnementales » : la caractérisation du lessivage est faite à partir de mesures *in situ* sans avoir fixé les paramètres de l'étude (conditions atmosphériques, états microphysiques de l'aérosol et/ou des hydrométéores)

1.4.3.1. Approche analytique

Comme l'équation (9) le montre, il est nécessaire de prendre en compte beaucoup d'éléments pour calculer le coefficient de lessivage Λ . Il n'est pas toujours possible de les déterminer expérimentalement et il existe donc dans la littérature de nombreux travaux de paramétrisation de ces variables. Sportisse (2007) ou Duhanyan et Roustan (2011) résument les principales paramétrisations utilisées dans le cadre d'étude sur le lessivage par une approche analytique. Nous ne détaillerons pas ici ces lois, mais nous parlerons des principes généraux.

Distributions dimensionnelles des hydrométéores

Pour les distributions dimensionnelles des gouttes de pluie $n(D_g)$, quatre types de lois sont utilisés : les lois exponentielles, gamma, log-normale ou Weibull ; les trois premières étant les plus utilisées dans la littérature. Le tableau 1-2 regroupe les expressions mathématiques avec les paramètres de ces lois à déterminer et quelques exemples de travaux qui y font référence dans la littérature.

Tableau 1-2 : Loix caractérisant la distribution en taille des gouttes de pluie $n(D_g)$

Type de loi	Expression mathématique de $n(D_g)$ (paramètres nécessaires)	Référence
Exponentielle	$Ae^{-\beta D_g} (A, \beta)$	Marshall et Palmer (1948) ⁶ , Joss et al. (1967)
Gamma	$AD_g^\alpha e^{-\beta D_g \gamma} (A, \alpha, \beta, \gamma)$	Best (1950), Ulbrich (1983)
Log-normale	$\frac{C_{tot}}{D_g \sqrt{2\pi(\ln \sigma_g)^2}} e^{-\frac{(\ln D_g - \ln \bar{D}_g)^2}{2(\ln \sigma_g)^2}} (C_{tot}, D_g, \sigma_g)$	Feingold et Levin (1986), Cerro et al., (1997)
Weibull	$C_{tot} \frac{c}{b} \left(\frac{D_g}{b}\right)^{c-1} e^{-\left(\frac{D_g}{b}\right)^c} (C_{tot}, b, c)$	Sekine et Lind (1982), Jiang et al. (1997)

Vitesse de chute des hydrométéores

De même, des lois paramétrant la vitesse terminale de chute des gouttes selon leur diamètre $U(D_g)$ existent. Elles sont déterminées dans la plupart des cas suite à des expérimentations en laboratoire où la vitesse de chute de gouttes de diamètres connus est mesurée. Malgré leur ancienneté, les travaux de Gunn et Kinzer (1949) et Beard et Pruppacher (1969) constituent encore aujourd'hui des travaux de référence. Le tableau 1-3 regroupe quelques unes des expressions régulièrement utilisés dans la littérature pour paramétrer la vitesse de chute des hydrométéores.

⁶ Encore aujourd'hui, ces travaux sont une référence largement utilisée

Tableau 1-3 : Paramétrisation de la vitesse terminale de chute des gouttes $U(D_g)$

Expression de $U(D_g)$ (en $m\ s^{-1}$)	Référence
$9,43 \left[1 - e^{-\left(\frac{1000D_g}{1,77}\right)^{1,147}} \right]$	Best (1950)
$130\sqrt{D_g}$	Kessler (1969)
$9,65 - 10,3e^{-600D_g} (D_g > 10^{-4} m)$	Atlas et al. (1973)
$386,577D_g^{0,67}$	Atlas et Ulbrich (1977)

Efficacité de collecte

Comme la section 1.4.2 l'a montré, les expressions mathématiques des mécanismes de collecte sont relativement complexes et dépendent d'un grand nombre de variables liées aux conditions atmosphériques. Il est donc particulièrement difficile de modéliser le lessivage de l'aérosol en prenant en compte l'ensemble des effets de collecte. Il est ainsi commun que les études analytiques ne s'intéressent pas à l'ensemble des effets de collecte mais n'étudie que les effets prépondérants relatifs à la gamme de taille des dimensionnelles considérée. Bien que le modèle de Slinn soit largement utilisé, certaines études ont montré ses limitations et proposent des améliorations, notamment les travaux de Tripathi et Harrison (2001) ou Pranesha et Kamra (1997) pour les effets électrostatiques ou encore Quérel (2012) pour la collecte par recirculation arrière.

1.4.3.2. Approche environnementale

L'approche analytique a l'intérêt de prendre en compte une grande variété de paramètres microphysiques pour déterminer le potentiel de lessivage par les précipitations. Toutefois son utilisation n'est pas toujours la plus appropriée, en particulier dans le cas d'une application à un accident nucléaire. En effet, comme montré précédemment, il existe de nombreuses descriptions possibles d'un même paramètre. Dans le cas de $n(D_g)$, il peut être difficile de choisir la loi à appliquer sachant que ces lois ont été souvent établies pour des pluies spécifiques (orage, averse ou bruine). Smith (2003) estime d'ailleurs que le choix d'un type de loi par rapport à un autre a peu d'importance compte tenu des incertitudes liées aux mesures en conditions *in situ*. Inversement, Wang et al. (2010) montrent que les valeurs de Λ calculées à partir de l'équation (9) peuvent varier d'un facteur 3 à 5 selon l'expression de $n(D_g)$ choisie.

Concernant la vitesse terminale de chute des gouttes, sa paramétrisation n'a que peu d'importance sur la valeur de Λ , avec une différence inférieure à un facteur 2 quel que soit l'expression utilisée (Wang et al., 2010). Ce résultat est aussi confirmé par Duhanyan et Roustan (2011).

La variabilité des caractéristiques des pluies entre les évènements pluvieux voire durant un même évènement peut aussi être très importante ; notamment en ce qui concerne la distribution granulométrique des gouttes (Waldvogel, 1974). C'est un élément qu'il n'est pas possible de prendre en compte par une approche analytique.

L'intégration de lois paramétriques pour toutes les variables de l'équation (9) entraîne aussi des temps de calcul importants, ce qui n'est pas adapté à certaines applications qui ont besoin de résultats rapidement (modèle de crise notamment).

Pour ces différentes raisons, de nombreuses études se basent sur la mesure dans l'environnement du potentiel de lessivage de l'aérosol par les précipitations. La plupart de ces études calcule le coefficient de lessivage Λ à partir d'une forme dérivée de l'équation (8), en supposant que le coefficient Λ reste constant dans le temps. Ainsi, à partir de la concentration particulaire $c(D_a)$ et de la durée de précipitations, Λ s'exprime tel que :

$$\Lambda(D_a) = \frac{1}{T} \ln \left(\frac{c_0(D_a)}{c_1(D_a)} \right) \quad (18)$$

T est la période des précipitations définie par les bornes de temps t_0 et t_1 . c_0 et c_1 sont respectivement les densités de concentration (massique ou volumique) des particules d'aérosol de diamètre D_a mesurées au temps t_0 et t_1 .

Le calcul de Λ se fait généralement sur la période totale de l'évènement précipitant considéré, soit t_0 le début de cet évènement et t_1 la fin (Davenport et Peters, 1978 ; Chate et Pranisha, 2004,...). Les densités de concentration c_0 et c_1 sont donc les concentrations initiales et finales lorsqu'on se rapporte à l'évènement considéré.

Dans les études dites « analytiques », les effets de collecte sont étudiés au travers de mesures sur des gouttes et des particules générés artificiellement. Dans les études dites « environnementales », les mesures de $c(D_a)$ sont faites durant des précipitations naturelles. Cependant, la source des concentrations d'aérosol mesurées ne l'est pas systématiquement. En effet, certaines études utilisent un aérosol généré monodispersé (souvent marqué par un traceur) pour déterminer le potentiel de lessivage. C'est le cas notamment de Nicholson et al. (1991), Frank et Tschiersch (1992) ou bien encore Sparmarcher et al. (1993). L'intérêt de cette méthodologie est de connaître *a priori* les diamètres et les caractéristiques physiques et chimiques (forme, solubilité) des particules que l'on veut étudier. Cela permet de s'affranchir de certaines hypothèses concernant les effets de collecte. Par exemple, la diffusion brownienne est un effet prédominant pour les particules inférieures à 0,2 μm . Cet

effet de collecte n'est donc pas considéré dans le cas où l'aérosol généré est bien supérieur à cette taille.

Dans la plupart des cas, l'aérosol mesuré n'est pas généré artificiellement pour l'étude mais il est d'origine anthropique ou naturelle. Les coefficients Λ seront donc déterminés pour chaque gamme de diamètre D_a que l'instrument utilisé est capable de mesurer. Cette méthode présente l'avantage majeur de permettre le calcul simultané de $\Lambda(D_a)$ pour une large gamme de diamètres de particules (de quelques nanomètres à quelques micromètres), ce qui est difficilement possible avec un aérosol généré. Parmi les nombreuses études utilisant cette méthode pour déterminer le potentiel de lessivage, nous pouvons citer les études de Davenport et Peters (1978), Radke et al. (1980), Chate et Pranesha (2004), Schumann (1989) ou bien encore Laakso et al. (2003).

C'est cette approche « purement » environnementale qui a été mise en œuvre dans cette étude sur le lessivage de l'aérosol par les précipitations.

1.4.3.3. Paramétrisation du coefficient de lessivage Λ

Lors d'un accident, les conséquences sur l'environnement du lessivage d'une masse d'air contaminée par des rejets atmosphériques de radionucléides ou de polluants ne peuvent pas toujours être évaluées rapidement par des mesures de terrain. La zone concernée n'est pas forcément accessible (zone d'exclusion, impraticable ou trop éloignée) ou l'instrumentation nécessaire pour ces mesures n'est pas disponible au moment voulu. Pourtant, les autorités ont besoin de connaître rapidement l'ampleur de cette contamination pour prendre des décisions (évacuation des populations, interdiction de denrées à la consommation...). De plus, calculer le coefficient de lessivage Λ à partir de l'équation (9) nécessite de connaître précisément un nombre important de paramètres (distribution en taille des gouttes et vitesse terminale de chute, efficacité de collecte), ces mesures n'étant en général pas disponibles. L'utilisation de relations entre le coefficient de lessivage Λ et les caractéristiques des précipitations (notées X_i) est une solution, à la condition que le paramètre X_i soit disponible rapidement et sur une échelle spatiale relativement grande (idéalement à méso-échelle). Il peut être issu de réseaux de mesures préexistants (stations météorologiques notamment) ou être déterminé lui aussi par un modèle numérique.

L'utilisation de ces relations dans des modèles numériques est aussi intéressante dans le cadre d'études de risque. En effet, étudier les conséquences de rejets de polluants ou de matière radioactive à partir de mesures *in situ* ne peut être fait que si un accident se produit. Ce type d'accident étant peu fréquent, leurs conséquences sur la biosphère et les populations peuvent être estimées en utilisant ces modèles dans lesquels différents scénarios (pollution atmosphérique suite à un accident nucléaire, rejets liquides d'une usine

chimique) sont implémentés. En faisant varier le terme X_i , il est donc possible d'évaluer la contamination des milieux terrestres et aquatiques suite au lessivage sans aucune mesure *in situ*.

Par une approche théorique, Scott (1982) propose de paramétrer le coefficient de lessivage Λ en fonction de l'intensité pluviométrique I selon une relation de type puissance de la forme :

$$\Lambda = aI^b \quad (19)$$

Les coefficients a et b dépendent du type d'aérosol et des caractéristiques des précipitations. Les valeurs que peuvent prendre ces coefficients pour différents types de précipitations (liquide et solide) sont notamment données par Mircea et Stefan (1998). Dans le cas d'études sur le lessivage en conditions *in situ*, cette relation en loi puissance est aussi proposée, notamment par Sparmacher et al. (1993) ou Jyhlä (1991).

D'autres formes de paramétrisation existent. Laakso et al. (2003) suggère une paramétrisation plus complexe basée sur la somme d'expressions logarithmiques, tandis que Henzing et al. (2006) propose une forme exponentielle dont les paramètres dépendent du diamètre des particules.

1.4.4. Complémentarités et limitations des études existantes

Les approches analytiques et environnementales, à défaut d'être basées sur la même méthodologie, sont des méthodes tout à fait complémentaires. En effet, tous les modèles numériques nécessitent des mesures expérimentales *in situ* pour tester leur validité. De leur côté, à l'inverse des études analytiques, les expérimentations dans l'environnement sont soumises à des biais et des limitations inhérentes aux conditions dans lesquelles elles sont réalisées.

Toutefois, bien que les études sur le lessivage soit relativement nombreuses et qu'elles s'appuient sur des approches différentes, il est encore nécessaire à l'heure actuelle d'étudier le lessivage de l'aérosol par les précipitations par une approche « environnementale ». En effet, les études recensées dans la littérature s'appuient généralement sur des ensembles de mesures relativement faibles pour déduire des coefficients de lessivage. De manière générale, même si les mesures sont effectuées durant plusieurs mois ou années, les données sélectionnées pour déterminer les potentiels de lessivage correspondent à certains événements particuliers équivalents à quelques heures de précipitations. A titre d'exemple, Davenport et Peters (1978) n'utilisent qu'environ 18 heures de mesures correspondant à 3 événements distincts. Sur 3 ans de mesures, Radke et al. (1980) n'utilisent quant à eux que

8 évènements, soit environ 2 heures. Seul Laakso et al. (2003) s'appuie sur un volume de données conséquent (presque 600 heures de mesures durant des pluies).

La diversité des caractéristiques des précipitations (intensité pluviométrique, distributions dimensionnelles des gouttes) pour lesquelles les Λ sont déterminés est aussi à investiguer plus amplement. Peu de résultats sont donnés pour des précipitations intenses. Des études existent pour des intensités pluviométriques de l'ordre de quelques mm h^{-1} à quelques dizaines de mm h^{-1} mais elles se limitent à une zone géographique particulière de l'Inde (Chate et Pranesha, 2004 ; Chate, 2005).

De plus, le lessivage des particules d'aérosol submicroniques et nanométriques est assez peu documenté. A notre connaissance, seuls Davenport et Peters (1980), Radke et al. (1980), Schumann (1989), Laakso et al. (2003) et Chate et Pranesha (2004) ont étudié le lessivage des particules d'aérosol nanométriques en conditions *in situ*. Encore une fois, ces résultats sont formulés à partir d'un nombre d'évènements pluvieux relativement faible.

Les instruments utilisés sont aussi souvent limités quant à la discrétisation des mesures de diamètre des particules (26 classes entre 0,01 et 10 μm dans le cas de Radke et al. (1980) ou 23 classes entre 0,05 et 10 μm pour Schumann (1989)).

Enfin, toutes les études réalisées jusqu'à présent ont souligné les écarts observés entre les coefficients de lessivage théoriques (calculés le plus souvent avec l'équation (9) et le modèle de Slinn pour E_{tot}) et ceux déterminés expérimentalement. Volken et Schumann (1993) compare la dépendance du coefficient de lessivage selon le diamètre des particules à partir de leurs données avec différentes études « environnementales », ainsi qu'avec les coefficients de lessivage théoriques. Ces Λ théoriques sont calculés à partir des données d'efficacité de collecte recueillies par Flossmann (1987) et des caractéristiques des pluies mesurées sur leur site d'étude (figure 1-10).

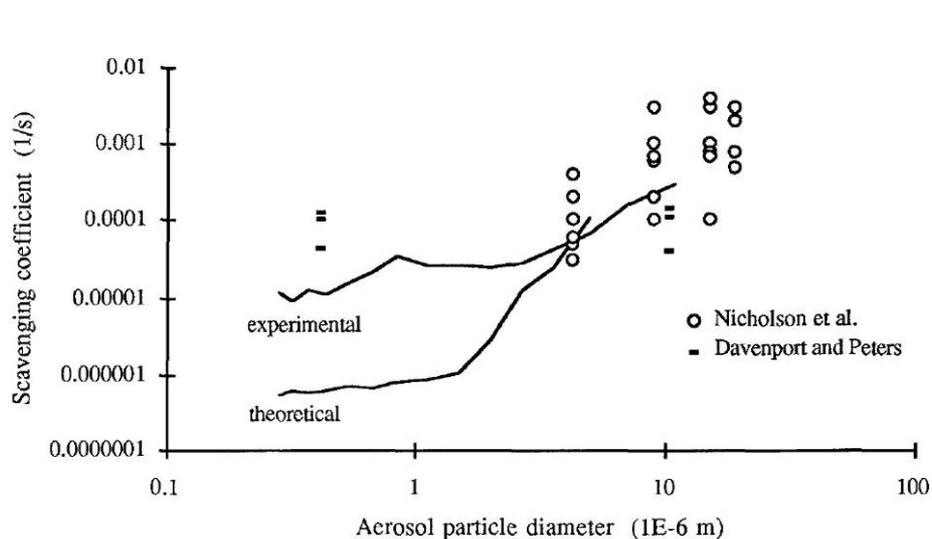


Figure 1-10 : Comparaison des Λ expérimentaux et théoriques (Volken et Schumann, 1993)

De la même manière, Laakso et al. (2003) compare les Λ pour différentes intensités pluviométriques avec les résultats de Volken et le modèle de Slinn (figure 1-11).

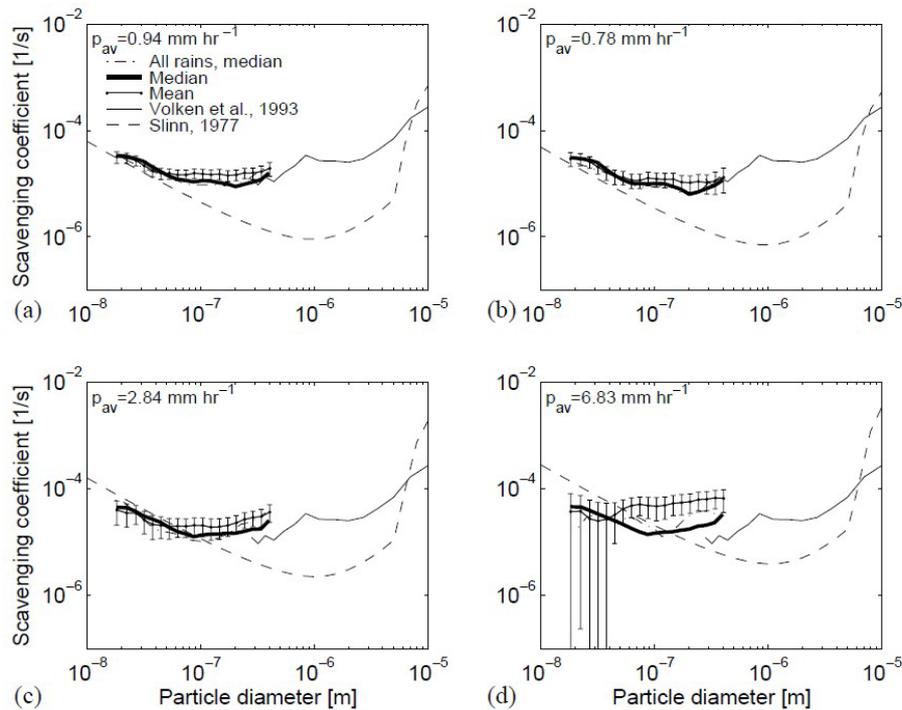


Figure 1-11 : Comparaison des Λ expérimentaux et théoriques (Laakso et al., 2003)

Dans les deux cas, les différences entre modèle et expérimentation peuvent être importantes, jusqu'à deux ordres de grandeur. Dans le cas des particules nanométriques, cet écart est cependant moins important.

1.5. Caractérisation du lessivage dans le cadre de cette thèse

L'état des connaissances a fait apparaître des pistes d'études pour améliorer la compréhension du lessivage en conditions *in situ*. L'objectif de cette thèse est d'affiner la représentativité des coefficients de lessivage Λ déterminés dans l'environnement et d'enrichir la connaissance des potentiels de lessivage pour une large gamme de taille de particules, en particulier pour la gamme nanométrique. *In fine*, les corrélations entre les coefficients de lessivage et d'autres paramètres aisément mesurables à une grande échelle spatiale ou facilement récupérables auprès de réseaux météorologiques seront étudiées. Identifier de telles relations est un enjeu majeur car elles peuvent être utilisables dans des modèles numériques pour prédire ou étudier *a posteriori* les conséquences éventuelles sur l'environnement d'un accident radiologique ou industriel.

Pour répondre à ces questions, la stratégie mise en place dans le cadre de cette thèse est similaire aux précédentes études « environnementales ». Pour des précipitations de différents types (pluie, neige, grêle), l'évolution temporelle des concentrations particulières et les caractéristiques de ces précipitations ont été mesurées simultanément. L'efficacité avec laquelle ces précipitations lessivent l'atmosphère a ainsi pu être déterminée.

Pour appliquer cette stratégie, nous avons choisi d'utiliser une instrumentation capable de mesurer d'une part la granulométrie des particules d'aérosol de taille nanométrique à supermicronique pour un grand nombre de diamètres et d'autre part les caractéristiques des précipitations quelque soit le type des précipitations (solide ou liquide). Un des critères de choix a aussi été la résolution temporelle des mesures spectrales, afin de caractériser avec le plus de précision la variabilité des précipitations et l'influence de cette variabilité sur l'évolution temporelle des concentrations particulières. Différents sites d'études aux conditions climatiques et d'empoussièrement distincts ont été instrumentés pour disposer d'une palette de situations précipitation/empoussièrement la plus variée possible. Ces mesures ont été effectuées durant plusieurs mois pour obtenir une base de données suffisante sur l'évolution temporelle des concentrations particulières durant des précipitations.

CHAPITRE 2 : INSTRUMENTATION ET SITES D'ETUDES

2.1. Mesure de la granulométrie des hydrométéores

2.1.1. Principales méthodes de mesure

A la fin du 19^{ème} siècle, la méthode la plus courante pour déterminer la granulométrie des hydrométéores (forme condensée de l'eau atmosphérique) consistait à mesurer les impacts au sol des gouttes de pluie, leurs tailles étant corrélées à celles des taches formées. La surface utilisée pour les relevés était le plus souvent du papier absorbant (Wiesner, 1895 d'après Robertson, 1965) ou une plaque recouverte de farine (Bentley, 1904). Certains des travaux basés sur cette méthode servent encore aujourd'hui de référence, les plus citées étant ceux de Marshall et Palmer (1948). Dans les années 1960, de nouveaux instruments, les disdromètres, ont été mis au point pour la mesure de la taille des gouttes de pluie ou des cristaux de glace. Parmi les disdromètres existant aujourd'hui, deux principaux types se distinguent : les disdromètres à impaction, et les disdromètres optiques. Un disdromètre à impaction est basé sur les propriétés mécaniques des hydrométéores. La quantité de mouvement résultant de l'impact des gouttes d'eau sur le capteur de l'appareil va être convertie en une impulsion électrique dont l'amplitude est proportionnelle à sa masse (et donc sa taille). Cet appareil est limité à la détection des hydrométéores liquides, les flocons de neige ayant une vitesse de chute (et donc une énergie cinétique) trop faible pour être détectés. Un disdromètre optique se base quant à lui sur l'interaction entre un faisceau lumineux et un hydrométéore. De part son principe de mesure, ce type d'instrument permet de déterminer la taille de tous les types d'hydrométéores (solide ou liquide) ainsi que leur vitesse de chute.

2.1.2. Le disdromètre PARSIVEL

2.1.2.1. *Description*

Le disdromètre optique utilisé pour cette étude est un disdromètre PARSIVEL (pour PARticle SIze and VELOCITY) de la société allemande OTT. Ce modèle a été conçu à partir des travaux de Löffler-Mang et Joss (2000). Il consiste en un émetteur laser et un récepteur monté sur un support permettant la formation d'un faisceau horizontal de lumière d'une surface de 54 cm² et d'une épaisseur de 1 mm (figure 2-1). Ce faisceau laser est pulsé pour éliminer les effets de la lumière du soleil.



Figure 2-1 : Disdromètre laser PARSIVEL

Son principe de mesure du diamètre et de la vitesse de chute de chaque hydrométéore est illustré par la figure 2-2.

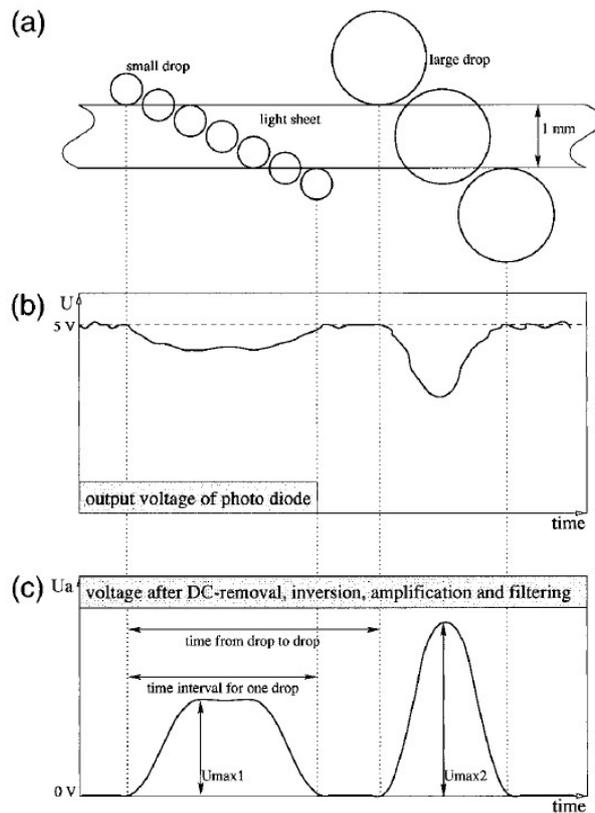


Figure 2-2 : Principe de mesure du disdromètre PARSIVEL (Löffler-Mang et Joss, 2000)

Le passage d'un hydrométéore au travers du faisceau laser (figure 2-2-a) entraîne une diminution de l'énergie transmise. Le récepteur détecte donc des fluctuations d'énergie, qui sont converties en variation de tension (figure 2-2-b). Partant du principe que les hydrométéores mesurés sont opaques, leur taille selon l'axe horizontal va être fonction de l'amplitude de l'extinction du signal tandis que leur vitesse terminale de chute va dépendre

de la durée de cette extinction (figure 2-2-c). Le diamètre équivalent est ensuite calculé à partir de différents rapports d'axes (vertical/horizontal) selon la forme de l'hydrométéore. Les hydrométéores de diamètre inférieurs à 1 mm sont considérés comme sphériques (rapport d'axe = 1). Pour des diamètres compris entre 1 et 5 mm, le rapport d'axe varie linéairement de 1 à 0,7. Pour des hydrométéores de diamètre supérieur à 5 mm, le rapport d'axe est constant et d'une valeur de 0,7. Le principe de l'extraction des informations de taille et vitesse des hydrométéores à partir du signal mesuré est donné en détail par Battaglia et al. (2010). Les valeurs des autres caractéristiques des précipitations (intensité pluviométrique, cumul d'eau tombé, réflectivité radar) sont ensuite dérivées des mesures de taille et de vitesse de chute des hydrométéores.

Les spectres diamètre/vitesse mesurés par le disdromètre PARSIVEL sont donnés sous la forme matrice 32*32 correspondant à 32 classes de diamètre non-équidistantes : de 0,062 à 24,5 mm, et à 32 classes de vitesse de chute non-équidistantes : de 0,05 à 20,8 m s⁻¹. Pour chaque classe, les valeurs sont assignées au centre de la classe. Les valeurs des deux premières classes de diamètre (0,062 et 0,187 mm) sont systématiquement nulle à cause de leur rapport signal sur bruit trop faible.

Le disdromètre PARSIVEL permet de classer les précipitations en différents types (pluie, grésil, neige, grêle...) à partir des spectres taille/vitesse mesurés (figure 2-3). Bien que relativement ancien, les travaux de Gunn et Kinzer (1948) et de Locatelli et Hobbs (1974) servent de référence pour cette classification.

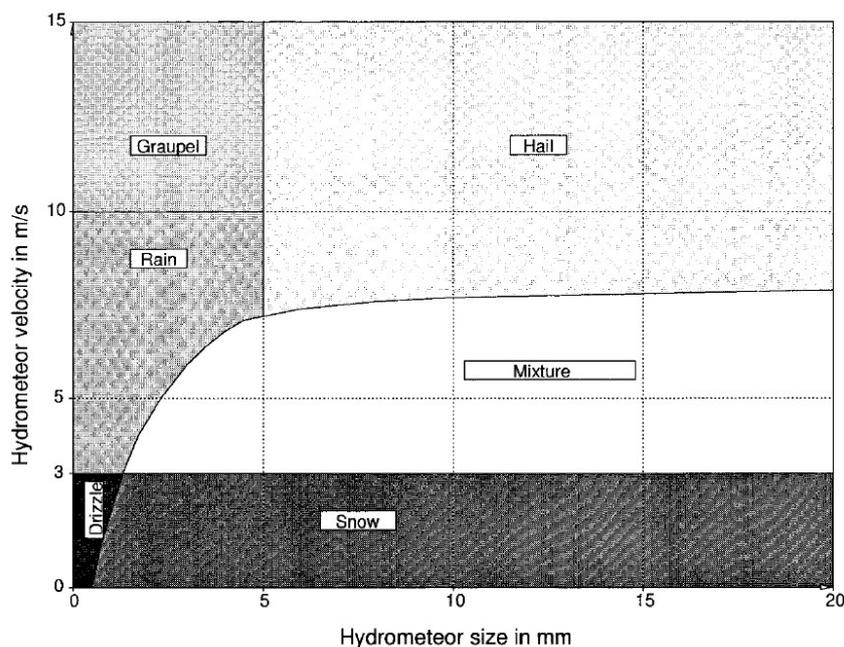


Figure 2-3 : Représentation schématique de l'utilisation des spectres taille/vitesse des hydrométéores pour la classification du type de précipitation (Löffler-Mang et Joss, 2000)

Pour éviter la détection d'éclaboussures liées à l'éclatement des gouttes sur l'appareil les têtes émettrice et réceptrice sont couvertes de plaques micro-perforées. De plus, un système de chauffage par résistance empêche la formation de givre sur les surfaces d'émission et de détection, permettant le fonctionnement du disdromètre en période de gel. Cependant, le principe de mesure du PARSIVEL ne permet pas de mesurer le diamètre des gouttelettes qui forment les brouillards. En effet, ces gouttelettes ont une vitesse de chute très faible et produisent une atténuation du faisceau laser non détectable.

2.1.2.2. Acquisition des données

Le logiciel d'exploitation ASDO permet de régler l'intervalle de temps pour l'acquisition des spectres, de 10 secondes à 60 minutes. Afin de caractériser au mieux les variations temporelles des caractéristiques des précipitations, nous avons décidé d'utiliser une période d'enregistrement de 1 spectre par minute. Cette valeur semble être un bon compromis entre l'échelle temporelle de fluctuation des paramètres pluviométriques, notamment l'intensité, et la masse de données collectées à analyser par la suite. Le disdromètre est réglé pour acquérir l'ensemble des données brutes (spectres taille/vitesse et des paramètres dérivés) y compris par temps sec. Le passage au travers du faisceau laser de poussières générées par l'érosion éolienne des sols ou par des travaux effectués à proximité de l'appareil peut alors être interprété « à tort » par le disdromètre comme le passage de gouttes. Contrairement à une succession de plusieurs dizaines ou centaines de mesures cohérentes interprétables comme la signature d'une précipitation, ces « faux » signaux correspondent la plupart du temps à des mesures ponctuelles et irrégulières. Il est donc facile d'éliminer ces données pour ne prendre en compte que les données représentatives de précipitations. Ce paramétrage est gourmand en espace mémoire (jusqu'à 100 Mo en 3 mois selon la pluviométrie). Il facilite cependant le traitement informatique des données pluviométriques. A partir de n'importe quel PC équipé du logiciel ASDO, il est ainsi possible d'extraire de la base les informations voulues sur une période donnée. Ces données peuvent ensuite être exportées sous un format paramétrable et analysées.

2.2. Mesure de la granulométrie des particules d'aérosol

2.2.1. Principales méthodes de mesures

De nombreux domaines scientifiques et techniques sont liés à l'étude des caractéristiques physiques et chimiques des aérosols. La grande variabilité de leurs origines (naturelles ou anthropogéniques) implique l'utilisation de différents moyens instrumentaux pour mesurer

leurs propriétés (optiques, électriques, dynamiques...). Parmi tous ces paramètres, la mesure de la granulométrie des particules d'aérosol est une composante essentielle. Il est donc nécessaire de mettre au point des instruments, basés sur différentes techniques instrumentales, capables de déterminer les concentrations en particules quelle que soit leur taille, forme ou densité. Parmi toutes les techniques existantes, celles basées sur les propriétés optiques, aérodynamiques ou électriques des particules d'aérosol et leur collection par filtration sont les plus répandues. Ces méthodes ne seront pas détaillées ici, mais les livres de Renoux et Boulaud (1998, chap. 5) ou de Baron et Willeke (2001, partie 2) le font de manière très explicite.

2.2.2. Les granulomètres EDM et WRAS

Dans le cadre de cette thèse, l'instrumentation utilisée pour la mesure de la granulométrie des particules d'aérosol atmosphérique repose sur deux types de granulomètres. Le premier est un granulomètre optique, tandis que le deuxième combine deux modules, optique et électrique.

2.2.2.1. Principe de mesure

- Granulomètre EDM

Le granulomètre EDM (pour Environmental Dust Monitor) est un appareil conçu par la société allemande Grimm Aerosol (figure 2-4).



Figure 2-4 : Granulomètre EDM180

La mesure de la granulométrie des particules d'aérosol est basée sur les propriétés optiques des particules, plus particulièrement sur les principes de la diffusion de Mie. En effet, les travaux de Mie et Lorentz au début du 20^e siècle ont démontré l'existence d'une forte interaction entre des particules sphériques et un faisceau lumineux incident, relation dépendante du diamètre de ces particules et de leur indice de réfraction. Ainsi, la mesure de l'intensité de la lumière diffusée par les particules d'aérosol atmosphérique permet de déterminer leur diamètre pour un indice de réfraction donné. La figure 2-5 illustre le principe de mesure du granulomètre EDM.

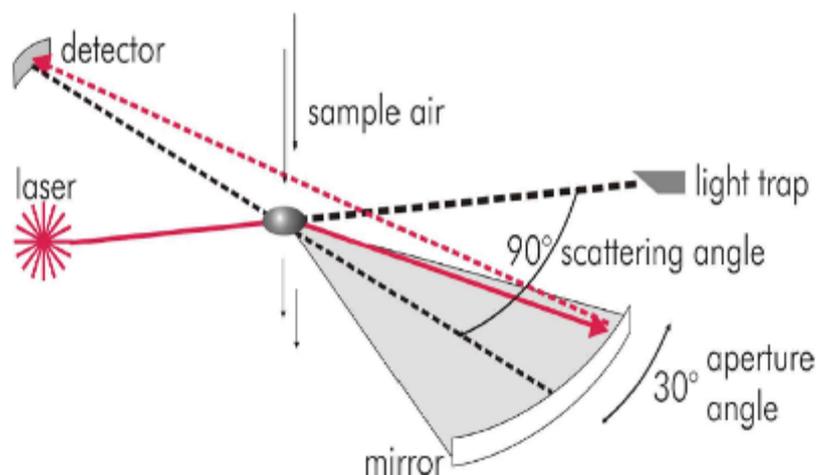


Figure 2-5 : Principe de mesure du granulomètre EDM (Spielvogel et al., 2009)

Les particules présentes dans le flux d'air échantillonné traversent un faisceau laser (longueur d'onde de 665 nm) et diffusent une partie de ce rayonnement. Cette fraction diffusée est renvoyée par un miroir placé à 90° avec un angle d'ouverture de 30° vers un capteur optique multicanaux à photodiode. Cette géométrie permet principalement de minimiser les ambiguïtés liées au diagramme de rayonnement inhérent à la diffusion de Mie (Spielvogel et al., 2009). Par ce principe, le granulomètre EDM permet de discrétiser la concentration volumique sur 31 classes des particules de diamètre compris entre 0,265 et 32 μm .

Cependant, il n'est pas possible de distinguer les particules en phase solide de celles en phase liquide. Pour éliminer la fraction liquide de l'aérosol, la ligne de prélèvement du granulomètre est équipée d'une colonne en membrane Nafion® (Resnick, 2006) qui permet l'assèchement du flux d'air échantillonné par échange ionique entre ce flux entrant et un flux d'air sec qui circule à contre-courant. Le « contre-flux » est mis en route dès que l'humidité relative de l'air (mesurée par une sonde PTU relié à l'appareil) dépasse 55%. De plus, ce système évite la perte de la fraction volatile de l'aérosol puisqu'il n'y a aucun élément chauffant.

- Le granulomètre WRAS

Le granulomètre WRAS (pour Wide Range Aerosol Spectrometer) est aussi un instrument de la société Grimm Aerosol (figure 2-6). Pour la mesure respective des particules fines et ultra-fines, cet appareil est composé de deux parties : une partie optique identique à celle de l'EDM et une partie associant un analyseur de mobilité électrique (DMA) à un compteur de noyaux de condensation (CPC).



Figure 2-6 : Granulomètre WRAS

Les particules nanométriques sont trop petites pour être mesurées directement par une méthode optique. Il est cependant possible d'augmenter artificiellement leur diamètre optique après avoir sélectionné les particules d'une certaine taille.

La colonne DMA est basée sur la mesure de la mobilité électrique des particules d'aérosol pour sélectionner une taille donnée de particules.

Le module CPC (pour Condensation Particle Counter) permet ensuite de déterminer leur concentration.

C'est l'association de la colonne DMA et du module CPC qui est ensuite désigné sous le terme de SMPS (pour Scanning Mobility Particle Sizer). La figure 2-7 schématise le principe de fonctionnement du SMPS.

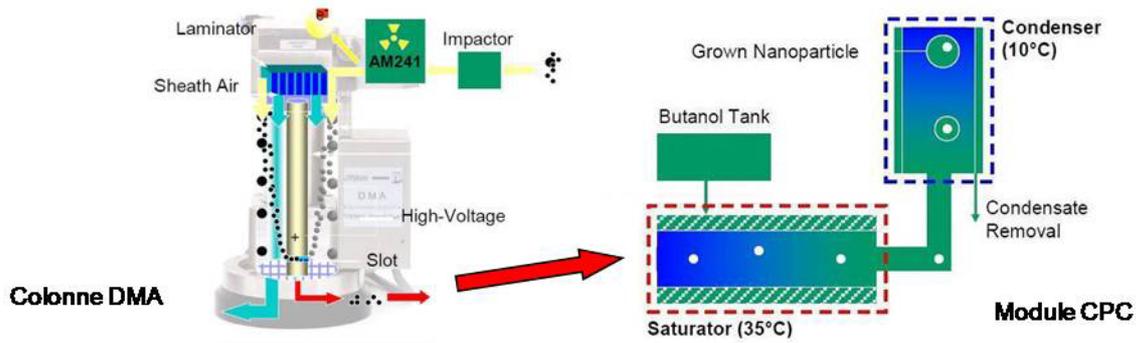


Figure 2-7 : Principe de fonctionnement du SMPS

Après avoir éliminé les « grosses » particules (diamètre supérieur à $0,4 \mu\text{m}$) avec un impacteur inertiel, le flux de particules atmosphériques est ionisé par une source radioactive d'américium-241 (activité de $3,7 \text{ MBq}$ et période de $432,7 \text{ ans}$) pour être mis à un équilibre de charges défini par la loi de Boltzmann. La mobilité des particules d'aérosol dépend du nombre de charges électriques qu'ils portent et plus la particule est grosse plus elle est potentiellement porteuse de charges. Ainsi, le changement à intervalle régulier du champ électrique appliqué dans la colonne DMA (Differential Mobility Analyser) permet de sélectionner des particules avec un diamètre particulier. Ces particules passent ensuite dans le CPC. Elles sont plongées dans un milieu saturé en butanol (saturateur) à 35°C avant d'être refroidies à 10°C dans le condenseur. Cela entraîne la condensation du butanol sur les particules et donc l'augmentation de leur diamètre optique. Les gouttelettes ainsi formées sont ensuite comptées par une méthode optique identique à celle utilisée par le granulomètre EDM. Le module SMPS+CPC détermine ainsi la concentration volumique sur 45 classes des particules d'un diamètre compris entre 5 et 350 nm . La ligne de prélèvement du granulomètre WRAS est aussi équipée d'une colonne Nafion® pour assécher le flux d'air échantillonné.

2.2.2.2. Acquisition des données

Les spectres granulométriques peuvent être mesurés par le granulomètre EDM avec une résolution temporelle d'une minute à une heure. Pour le disdromètre, une résolution temporelle d'une minute a été choisie. Afin de corrélérer au mieux les données granulométriques et les données pluviométriques, la périodicité d'un spectre toutes les minutes a été choisie pour les mesures faites par le granulomètre EDM. Ces données sont enregistrées sur une carte mémoire spécifique ou envoyées via une centrale d'acquisition sur un serveur web. Le module SMPS+CPC a en revanche une résolution temporelle plus élevée, avec au mieux une mesure toutes les cinq minutes. Les données peuvent là aussi être téléchargées via le serveur web ou directement de l'ordinateur connecté à l'appareil.

Etant donné que les résolutions temporelles des deux modules composant le WRAS sont différentes, leurs bases de données ont été dissociées. La base de données du WRAS est composée des spectres « submicroniques » (entre 0,265 et 32 μm) enregistrés sur carte mémoire toutes les minutes, et des spectres « nanométriques » (entre 5 et 350 nm) envoyés sur le serveur web toutes les cinq minutes.

2.3. Sites d'études

Dans le cadre de cette étude, le choix des sites s'est fait selon deux critères. Le premier critère a été de choisir des lieux où les conditions climatiques et les niveaux d'empoussièrement étaient les plus représentatives à l'échelle du territoire français. Le second a été de choisir des emplacements où les instruments pourraient être installés durant une période importante (de l'ordre de plusieurs mois, voire plusieurs années). Ainsi, en cas d'accident nucléaire, les résultats obtenus pourront être appliqués à une majorité de situations.

L'acquisition d'un grand nombre de données granulométriques au cours d'évènements précipitants présentant des caractéristiques différentes est une condition nécessaire à la représentativité de cette étude sur le lessivage. Les deux couplages disdromètre/granulomètre disponibles ont donc été déployés sur trois sites aux conditions climatologiques et d'empoussièrement distinctes durant plusieurs mois au minimum. Ces trois sites sont : le centre d'étude de Cadarache, le centre-ville de Gardanne et l'université de Grenoble (figure 2-8). Les conditions géographiques, climatiques et d'empoussièrement de chacun de ces sites sont décrites par la suite.

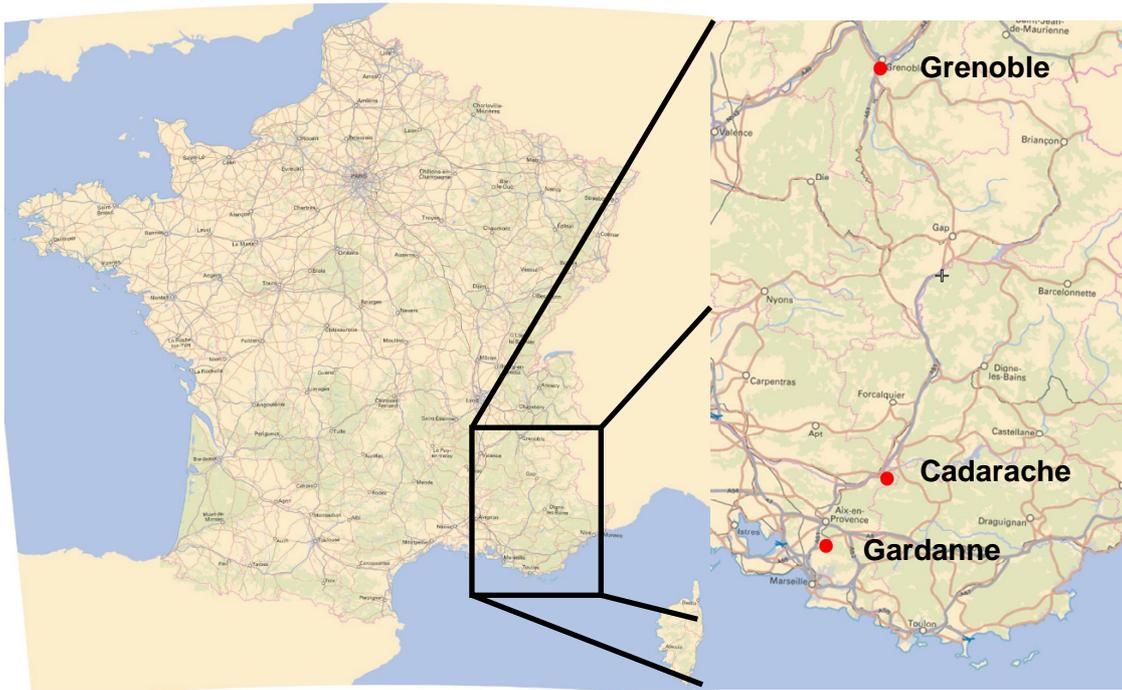


Figure 2-8 : Carte des sites d'études instrumentés

2.3.1. Situation géographique

Le granulomètre WRAS ainsi qu'un disdromètre PARSIVEL ont été déployés entre octobre 2010 et septembre 2013 sur le centre de Cadarache (figure 2-9), situé dans une zone rurale à 50 km au nord-est de Marseille. Dans un premier temps ce dispositif a été installé à proximité du bâtiment du LERCM (+43,6982° ; +5,7501°), puis déplacé dans un espace plus dégagé des bâtiments (+43,7001° ; +5,7470°).



Figure 2-9 : Situation géographique du site de Cadarache

Il n'existe pas de station de mesure de particules (PM_{10}) à proximité. Pour autant, les mesures d'empoussièrément faites sur ce site durant une étude précédente montrent un faible empoussièrément ambiant, avec une concentration moyenne en PM_{10} de l'ordre de $10 \mu\text{g m}^{-3}$. Selon la typologie employée par les AASQA⁷, le site de Cadarache peut être considéré comme un site rural. Le trafic routier du centre de Cadarache et les villes de Manosque et Pertuis (respectivement à 15 et 18 km du centre) sont les sources principales de particules qui impactent ce site de mesure.

Dans un premier temps, le couplage instrumental PARSIVEL/EDM a été installé de décembre 2010 à juin 2011 sur un site de mesures de l'AASQA Air-PACA au centre-ville de Gardanne (+43,4536° ; +5,4667°), à 20 km au nord de Marseille (figure 2-10).

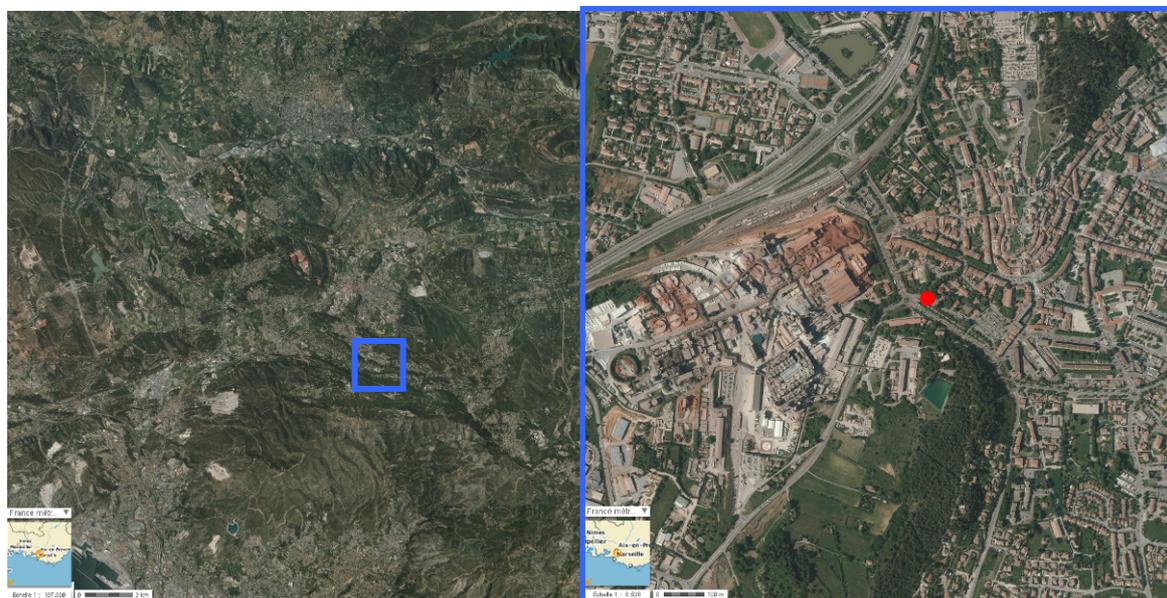


Figure 2-10 : Situation géographique du site de Gardanne

Sur ce site (de type industriel selon la classification adoptée par Air-PACA), la concentration moyenne en PM_{10} mesurée par Air-PACA (données journalières entre janvier 2007 et décembre 2011) est d'environ $40 \mu\text{g m}^{-3}$. La variabilité des émissions des sources de particules à proximité du site est relativement importante, avec un coefficient de variation de 0,5. La proximité immédiate d'une usine d'alumine (partie ocre sur la figure 2-10) et la

⁷ Association Agréée de Surveillance de la Qualité de l'Air, créée en décembre 1996 suite à la Loi sur l'Air et l'Utilisation Rationnelle de l'Energie et agréée par le Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable pour la surveillance et l'étude de la pollution atmosphérique

proximité relative de nombreuses sources de particules (centrale thermique, cimenterie, autoroute avec un trafic important) impliquent que le site de Gardanne est en permanence impacté par de nombreuses sources locales, entraînant ainsi une variation significative du niveau d'empoussièrément moyen.

Les conditions climatiques du site de Cadarache et de Gardanne sont relativement similaires (cf. 2.3.3). A partir de juin 2011, le couplage EDM / PARSIVEL a donc été déplacé dans un environnement différent.

Pour son climat continental et son environnement urbain (mais sans la proximité de sources industrielles), le choix a été fait d'instrumenter le toit du bâtiment CERMO du Laboratoire de Glaciologie et de Géophysique de l'Environnement (LGGE) (+45,1939° ; +5,7627°) à l'université de Grenoble (figure 2-11).

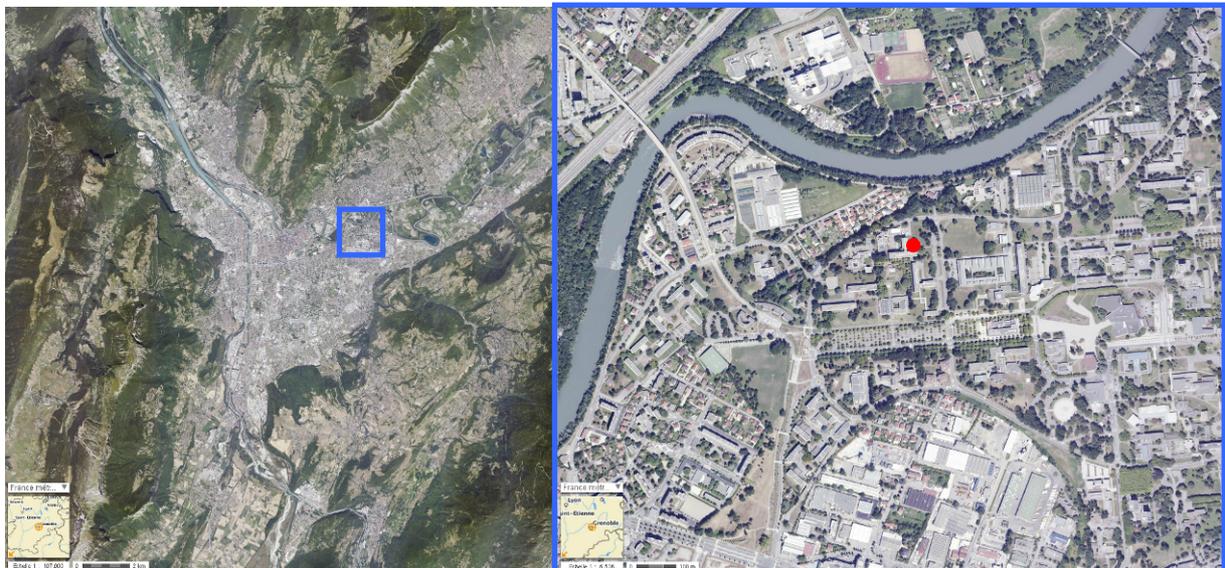


Figure 2-11 : Situation géographique du site de Grenoble

Il n'y a pas de complexe industriel à proximité de ce site et l'AASQA Atmo-Rhône-Alpes l'identifie comme une station urbaine. La rocade Est de Grenoble se trouve à une distance proche (1,5 km), ainsi qu'une zone commerciale importante. Entre janvier 2007 et décembre 2011, la station d'Atmo-Rhône-Alpes située au centre-ville de Saint-Martin-d'Hères à 1,4 km des instruments a relevé une concentration moyenne en PM_{10} d'environ $30 \mu g m^{-3}$. Là encore, les nombreuses sources de particules impactant le site entraînent une variabilité significative de ces valeurs avec un coefficient de variation d'environ 0,5.

2.3.2. Conditions d'empoussièrment

Les sources d'émissions de particules qui impactent les sites d'étude sont relativement hétérogènes, en particulier pour le site de Gardanne avec une composante industrielle non identifiée sur les autres sites. Cette hétérogénéité se retrouve en partie sur les distributions granulométriques des trois sites (figure 2-12).

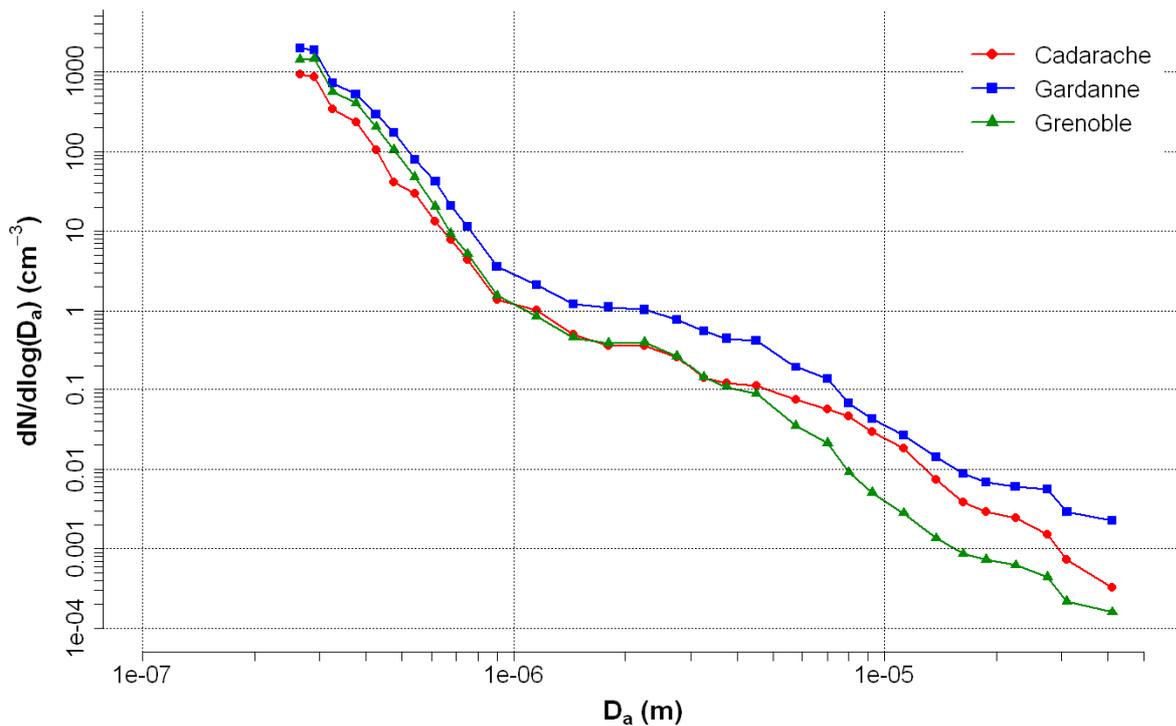


Figure 2-12 : Distributions granulométriques moyennes des particules d'aérosol pour D_a compris entre 0,265 et 40 μm

Pour les particules d'aérosol de diamètre compris entre 0,265 et 1 μm , les distributions granulométriques moyennes des trois sites sont similaires. L'influence sur les trois sites du trafic routier qui est source de particules fines explique la similarité des distributions pour cette gamme de taille. Pour $D_a > 1 \mu\text{m}$, les concentrations les plus importantes sont mesurées à Gardanne. L'influence des particules d'alumine (entre 1 et 2 μm) issues du procédé industriel de l'usine et des particules de bauxite (diamètre supérieur à 10 μm) issues des stocks de l'usine entreposés de manière semi-ouverte explique cette différence (communication personnelle, Noack Y.). Les concentrations de « grosses » particules ($D_a > 4 \mu\text{m}$) mesurées à Grenoble sont inférieures d'un ordre de grandeur à celles mesurées à Gardanne. Etant donné que le granulomètre est installé sur le toit d'un bâtiment d'une dizaine de mètres à Grenoble, il est normal de mesurer peu de « grosses » particules (du fait

de leur sédimentation rapide à proximité de leur source d'émission et du gradient vertical issue de la remise en suspension des particules à partir des sols). Pour Cadarache, ces concentrations de « grosses » particules sont sensiblement identiques à celles de Gardanne. Toutefois, la remise en suspension de particules issues de l'érosion éolienne est vraisemblablement à l'origine des particules d'aérosol de cette gamme de taille.

2.3.3. Climat

Le climat de Cadarache est de type méditerranéen, avec une composante continental. La moyenne de pluviométrie est relativement faible, avec entre les années 1999 et 2009, 630 mm de cumul annuel en moyenne répartie sur environ 80 jours par an (source : données météorologiques fournies par le CEA de Cadarache). Les événements pluvieux peuvent être particulièrement intenses et courts, avec des intensités pluviométriques de plusieurs dizaines de mm h⁻¹ durant plusieurs minutes. Les rares chutes de neige ont lieu principalement durant les mois de janvier et février.

Concernant le site de Gardanne, les données météorologiques issues de la station de Marseille-Marignane à environ 20 km donnent sur la période 1981-2010 une pluviométrie moyenne d'environ 560 mm (source : site Infoclimat). La pluviométrie de ce site est du même ordre que celle du site de Cadarache, mais le climat n'est pas sous l'influence d'une composante continentale du fait d'une plus grande proximité avec la mer Méditerranée.

Le climat de Grenoble est de type continental, et le cumul annuel de précipitation est d'environ 1000 mm, sur 110 jours. Les événements pluvieux sont généralement de faible intensité et relativement longs. Même si le site n'est pas en milieu montagneux, les chutes de neige ou les événements neigeux et pluvieux (flocons et gouttes présents durant le même événement) sont relativement fréquents.

2.3.4. Classifications des précipitations

L'un des objectifs de cette étude est de déterminer le potentiel de lessivage pour différents types de précipitations enregistrés sur des sites aux conditions climatiques différentes. A partir des données mesurées par le disdromètre, deux niveaux de classification peuvent être définis. Dans un premier temps, les précipitations sont distinguées selon la phase (solide et liquide) des hydrométéores qui les composent. Dans un second temps, une attention particulière est portée sur la variabilité des caractéristiques des pluies uniquement. Etant donné que l'intensité pluviométrique est régulièrement identifiée dans la littérature comme

un paramètre clé, l'intérêt d'une classification faisant intervenir le profil des hyétoigrammes⁸ est étudié.

2.3.4.1. Selon la phase des hydrométéores

Le disdromètre PARSIVEL mesure toutes les minutes les spectres taille/vitesse des hydrométéores. A partir de ces données, il est possible de différencier les pluies, les chutes de neige et les événements durant lesquels des gouttes d'eau et des flocons cohabitent. Un premier tri entre les événements pluvieux et les événements « non-pluvieux » est fait en utilisant la relation entre le diamètre moyen des hydrométéores et leur vitesse moyenne de chute (figure 2-13).

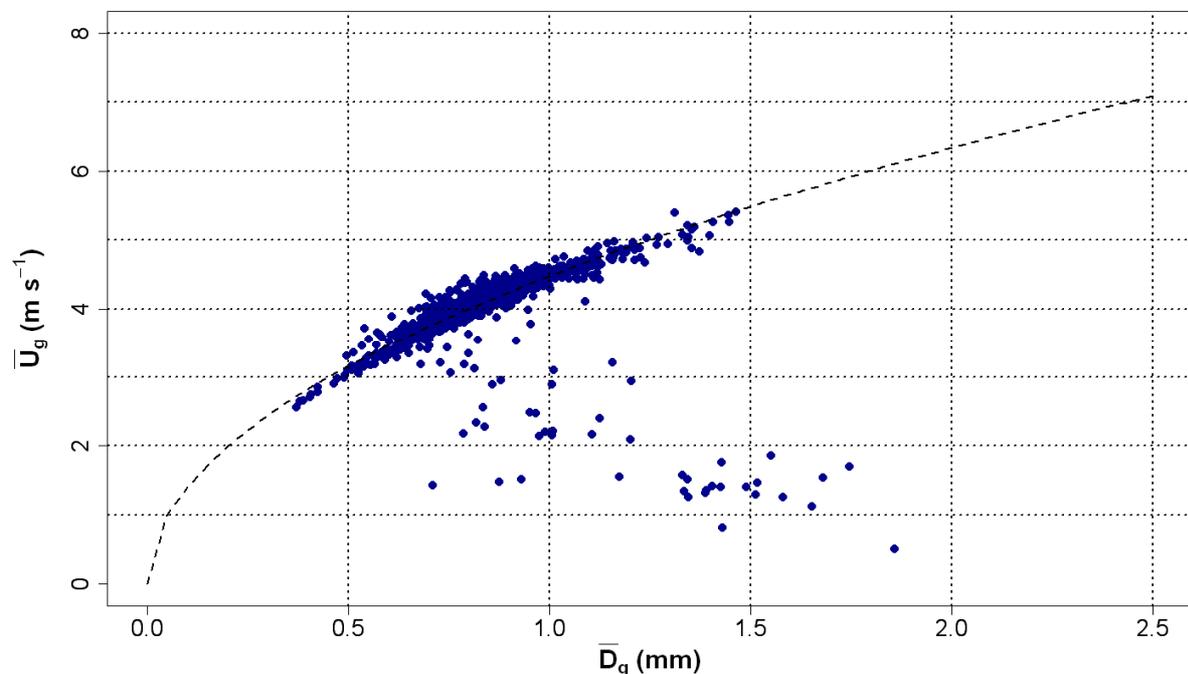


Figure 2-13 : U_g en fonction de D_g pour l'ensemble des précipitations enregistrées sur les 3 sites

Dans la très grande majorité des cas, la relation entre le diamètre moyen et la vitesse terminale de chute moyenne suit une loi puissance (représentée par la courbe noir sur la figure) ce qui correspond à la plupart des paramétrisations proposées dans la littérature (Atlas et Ulbrich, 1977 ; Kessler, 1969,...). Cependant, pour les événements « non-

⁸ Enregistrement de l'intensité pluviométrique en fonction du temps

pluvieux », une relation du même genre ne peut pas être mise en évidence. Cela s'explique par la nature très variable (en termes de forme, de masses et de vitesse de chute) des flocons de neige susceptibles d'être mesurés durant des chutes de neige (Locatelli et Hobbs, 1974). Pour déterminer les événements durant lesquels seuls des flocons de neige sont mesurés de ceux pour lesquels des hydrométéores solides et liquides cohabitent, une analyse au cas par cas des spectres taille/vitesse des précipitations « non-pluvieuses » est effectuée.

2.3.4.2. Selon la variabilité de l'intensité pluviométrique

Pour classer les pluies enregistrées, deux critères (K_i et T_i) traduisant la variabilité de l'intensité pluviométrique durant un événement pluvieux sont croisés. Ces critères sont définis tel que :

- K_i est le ratio du cumul d'eau consécutif à des intensités pluvieuses supérieures ou égales à i mm h⁻¹ sur le cumul total d'eau tombé (en %) (Bouvier et al., 1999)
- T_i est le ratio de la durée durant laquelle l'intensité pluviométrique est supérieure à i mm h⁻¹ sur la durée totale de l'évènement (en %)

Les intensités de 8, 10 et 12 mm h⁻¹ sont utilisées pour la valeur de i . L'intensité pluviométrique de 10 mm/h est celle permettant la classification la plus distincte pour l'ensemble des pluies enregistrées sur les trois sites d'étude selon trois classes : convective (CVF), stratiforme (ST) et mixte (MX). La figure 2-14 schématise les valeurs des critères K_{10} et T_{10} ayant permis cette classification. Les valeurs caractéristiques des intensités pluviométriques I_m et des diamètres de gouttes D_g de ces trois classes de pluies sont données dans le tableau 2-1 (moyenne géométrique et coefficient de variation cv associé).

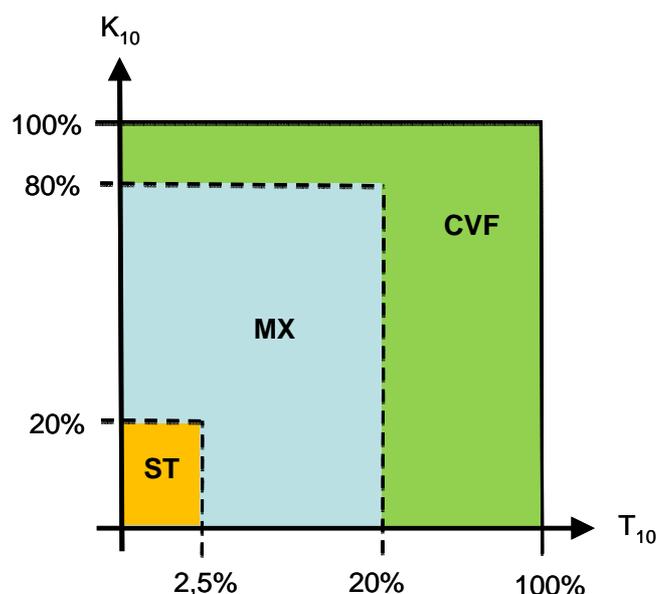


Figure 2-14 : Classification des pluies selon le profil des hyétogrammes

Tableau 2-1 : Valeurs caractéristiques de chaque classe de pluie

Classe de pluie	I_m (mm h ⁻¹)	cv	D_g (mm)	cv
Convective - CVF	11,9	0,5	1,16	0,11
Mixte - MX	3,1	0,6	0,97	0,18
Stratiforme - ST	0,6	1,0	0,78	0,21

Malgré une variabilité significative des valeurs de I_m , chaque classe de pluie est caractérisée par une intensité pluviométrique moyenne spécifique. Les valeurs moyennes de D_g sont aussi distinctes et la variabilité associée à ces moyennes est faible. La classification des pluies établie ici à partir des profils des hyétogrammes est considérée comme bien adaptée pour distinguer trois classes de pluies couramment mesurées dans des environnements continental et méditerranéen.

Le tableau 2-2 donne la répartition des précipitations selon les deux niveaux de classification (phase des hydrométéores et profils des hyétogrammes) définis dans cette section.

Tableau 2-2 : Nombre de précipitations selon leur type pour chaque site

Site	Pluie			Neige	Pluie et neige mêlée	Total
	Type ST	Type MX	Type CVF			
Cadarache	206 (69,6%)	74 (25%)	9 (3%)	4 (1,4%)	3 (1%)	296
Gardanne	52 (78,8%)	12 (18,2%)	2 (3%)	0	0	66
Grenoble	393 (78,9%)	59 (11,9%)	6 (1,2%)	16 (3,2%)	24 (4,8%)	498

Pour les trois sites, les pluies stratiformes représentent une très grande partie des évènements enregistrés (70 à 80%) et les pluies convectives sont largement minoritaires (moins de 5%). Les pluies mixtes sont enregistrées plus fréquemment en milieu méditerranéen (Cadarache et Gardanne) qu'en milieu continental (Grenoble). Les chutes de neige sont aussi bien plus récurrentes sur Grenoble, ainsi que les évènements mêlant pluie et neige.

2.4. Conclusions

Les trois sites que nous avons choisis d'instrumenter ne sont pas fondamentalement différents en termes de climatologie et d'empoussièrement ambiant. Cependant, l'influence de certaines composantes uniquement présentes sur certains sites (évènement pluvieux violent sur Cadarache, pollution industrielle à Gardanne ou chutes de neige fréquentes à Grenoble par exemple) sur les potentiels de lessivage efficients est intéressante à étudier. De plus, les instruments utilisés dans cette étude présentent deux intérêts particuliers : leur résolution temporelle élevée et leur large gamme de mesure. Leur utilisation doit permettre de déterminer les potentiels de lessivage pour une large gamme de taille de particules d'aérosol et pour une large diversité de situations pluviométriques. Le tableau 2-3 résume les différentes caractéristiques des trois sites d'études.

Tableau 2-3: Caractéristiques des sites d'études

Site	Période de déploiement	Type station	Climat	Gamme de taille mesurée (nm)
Cadarache	10/2010 -> 02/2013	Rurale	Méditerranéen sous influence continentale	5 – 32.10 ³
Gardanne	12/2010 -> 06/2011	Industrielle	Méditerranéen	265 – 32.10 ³
Grenoble	06/2011 -> 02/2013	Urbaine	Continental	265 – 32.10 ³

CHAPITRE 3 : CARACTERISATION DU LESSIVAGE PAR UNE APPROCHE « MACROSCOPIQUE »

Dans cette section, le lessivage est étudié en s'inspirant des précédentes études expérimentales du processus et en considérant chaque évènement pluvieux dans sa globalité.

3.1. Détermination expérimentale du coefficient de lessivage

La recherche bibliographique a montré que la plupart des études *in situ* sur le lessivage déterminent les valeurs du coefficient Λ sans prendre en compte l'expression de l'efficacité de collecte des gouttes E_{tot} . Sur cette base, pour chaque évènement, le coefficient de lessivage est calculé par l'équation (18) pour chaque diamètre de particules d'aérosol D_a mesuré. La période de temps est la durée totale de l'évènement considéré (noté T_{macro}) et les concentrations c_i et c_f sont les concentrations respectivement initiale et finale en aérosol, soit respectivement juste avant et juste après la précipitation considérée. Par la suite, cette approche sera qualifiée de « macroscopique » puisque les coefficients ainsi déterminés caractérisent l'effet global des précipitations sur les concentrations de particules en fonction de leurs diamètres. Ces coefficients sont désignés par Λ_{macro} et sont donc calculés tel que :

$$\Lambda_{macro}(D_a) = \frac{1}{T_{macro}} \ln \left(\frac{c_i(D_a)}{c_f(D_a)} \right) \quad (20)$$

Durant cette étude, le nombre total d'évènements pluvieux pour lesquels ces coefficients ont été calculés est de 223 pour Cadarache (entre octobre 2010 et février 2013), 66 pour Gardanne (entre décembre 2010 et juin 2011) et 448 pour Grenoble (entre septembre 2011 et février 2013).

3.2. Caractéristiques météorologiques des évènements

Les histogrammes de la durée T_{macro} , de l'intensité moyenne I_{macro} , de la vitesse moyenne du vent U et du coefficient de variation⁹ cv_U de cette vitesse, associés à ces évènements

⁹ Rapport entre l'écart-type et la moyenne

pluvieux sont représentées sur la figure 3-1. Les valeurs des moyennes géométriques μ_g et des médianes M correspondant à ces distributions sont rassemblées dans le tableau 3-1.

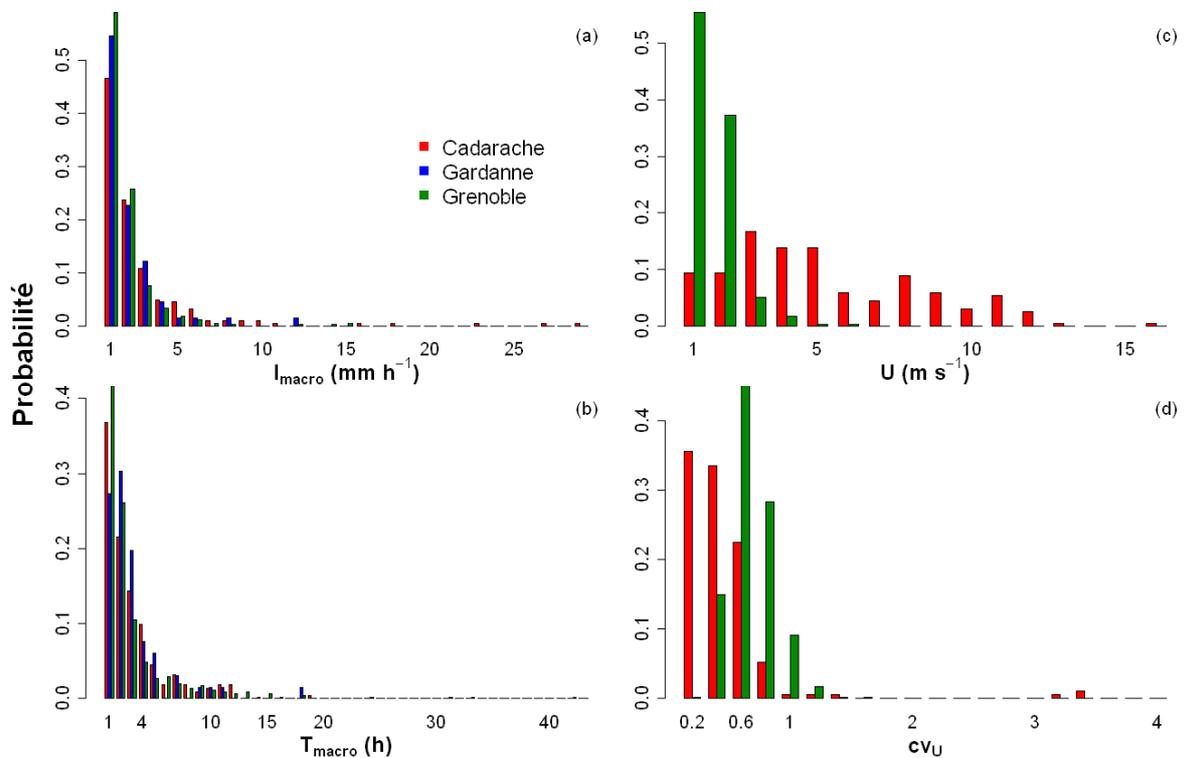


Figure 3-1 : Caractéristiques météorologiques moyennes des événements pluvieux pour les trois sites d'étude

La distribution des intensités pluviométriques moyennes (figure 3-1-a) ne permet pas de distinguer des différences notables entre les trois sites. Les événements enregistrés d'intensités inférieures à $1\ mm\ h^{-1}$ représentent une proportion importante, avec respectivement 46%, 55% et 59% des pluies de Cadarache, Gardanne et Grenoble. Pour les intensités inférieures à $5\ mm\ h^{-1}$, cette proportion passe à plus de 90%. Cadarache se distingue toutefois par 5 événements violents (intensité supérieure à $15\ mm\ h^{-1}$), pluies qui n'ont pas été enregistrées sur Grenoble. Concernant Gardanne, les instruments ont été déplacés avant la période estivale durant laquelle ces événements violents sont le plus souvent observés.

Les distributions des durées moyennes des pluies (figure 3-1-b) sont globalement similaires entre les trois sites. Les événements enregistrés ont en majorité une durée inférieure à 2 h, dans 57% des cas pour Cadarache et Gardanne et 67% pour Grenoble. Pour des durées inférieures à 5 h, la proportion est d'environ 90% pour les trois sites. Cinq événements particulièrement longs de plus de 20 h ont été enregistrés sur Grenoble, dont un événement

de presque 42 h de pluie continue. Pour Cadarache et Gardanne, la durée maximale est d'environ 18 h.

Les différences observées sur la distribution des vitesses de vent (figure 3-1-c) mesurées à Cadarache et Grenoble s'expliquent par les différentes conditions dans lesquelles sont faites les mesures. Pour Cadarache, un anémomètre ultrasonique est placé à une altitude de 100 m sur un mât météo, tandis que pour Grenoble, un capteur de vent à ultrason est installé à une altitude d'environ 20 m sur le toit du bâtiment du CERMO. Du fait de l'altitude de mesure plus basse qu'à Cadarache, les vitesses de vent sont plus faibles à Grenoble. Dans la plupart des cas, les vitesses de vent enregistrées durant les pluies peuvent être considérées comme faible, avec sur Cadarache 57% des pluies associées à un vent moyen inférieur à 5 m s^{-1} , et sur Grenoble 55% des pluies dont les vents associés sont inférieurs à 1 m s^{-1} . Pour des valeurs limites de 10 et 3 m s^{-1} , ces pourcentages sont respectivement de 83% et 98%.

Les différences liées à l'altitude de mesure se retrouvent aussi sur les valeurs de coefficients de variation cv_U de la vitesse du vent (figure 3-1-d). Les variations significatives de vitesse de vents sur Grenoble sont fréquentes, avec 60% des événements avec $cv_U \geq 0,6$ (mode de la distribution). A l'inverse, sur Cadarache le vent mesuré est en général relativement constant en vitesse avec 69% des événements où $cv_U \leq 0,4$ (mode de la distribution).

Cette analyse succincte des paramètres météorologiques des événements pluvieux enregistrés ne permet pas de mettre en évidence une typologie des conditions météorologiques associée aux pluies enregistrées sur les trois sites.

Tableau 3-1 : Valeurs moyennes et médianes des caractéristiques météorologiques

		Cadarache	Gardanne	Grenoble
I_{macro} (mm h^{-1})	μ_g	1,2	0,9	0,7
	M	1,1	0,8	0,8
T_{macro} (h)	μ_g	1,5	1,7	1,4
	M	1,6	1,8	1,2
U (m s^{-1})	μ_g	4,1	n.d.	0,9
	M	4,1	n.d.	0,9
cv_U	μ_g	0,3	n.d.	0,6
	M	0,3	n.d.	0,6

3.3. Résultats bruts

Les coefficients Λ_{macro} sont dans un premier temps analysés sans aucun critère de sélection. Cela revient à considérer que le lessivage est le seul processus agissant de manière significative sur la dynamique des particules d'aérosol atmosphérique par temps de pluie. La figure 3-2 représente pour chacun des trois sites les histogrammes des valeurs de Λ_{macro} calculés pour les particules de diamètre compris entre 0,265 et 40 μm . Sur cette figure sont aussi indiquées les valeurs moyennes et médianes de ces distributions, ainsi que la valeur $\Lambda_{\text{macro}} = 0$ (trait tireté rouge).

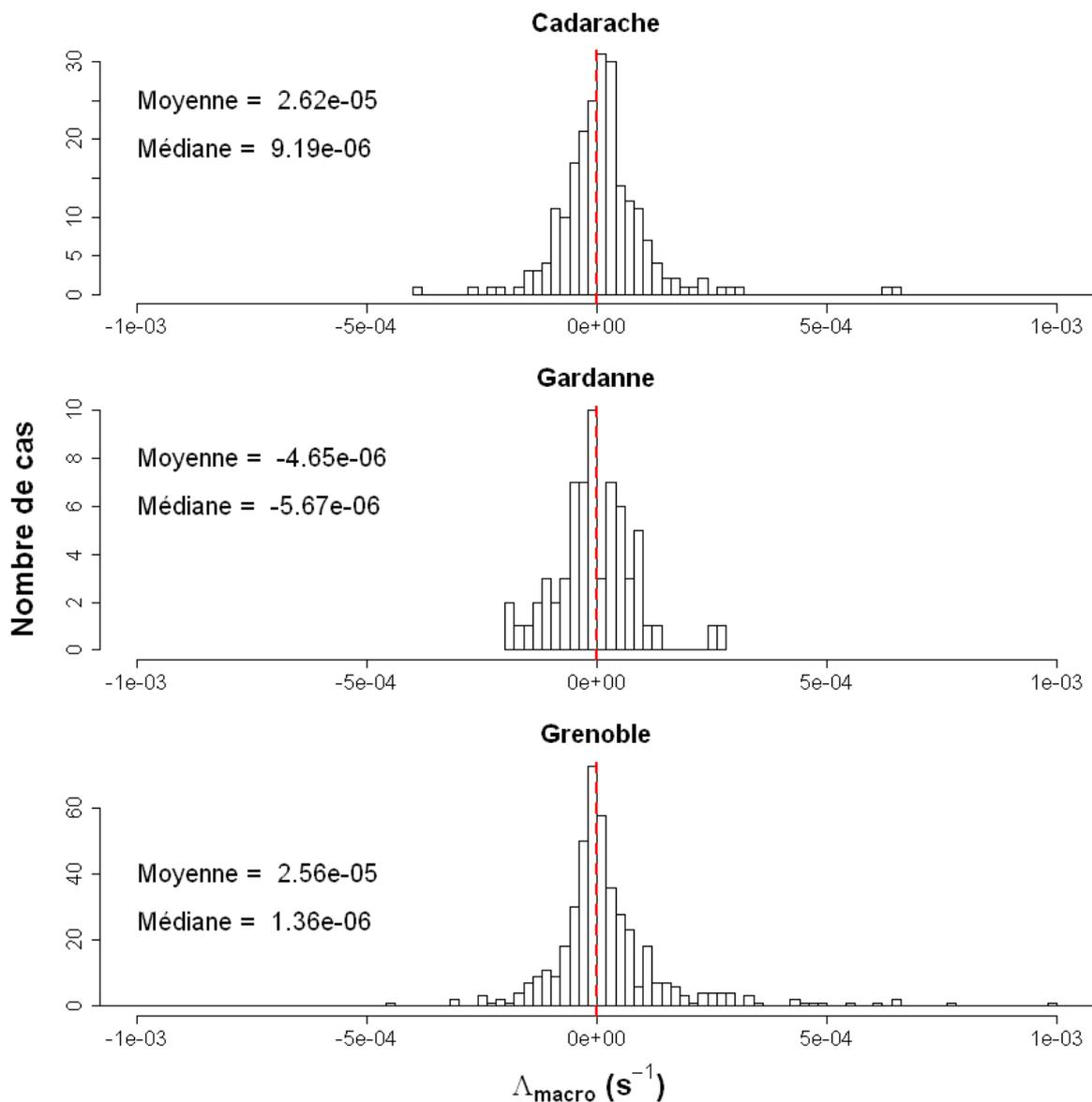


Figure 3-2 : Distribution des coefficients de lessivage Λ_{macro} pour D_a compris entre 0,265 et 40 μm

Les trois distributions sont unimodales avec un mode relativement proche de 0. L'étendue des valeurs est de plusieurs ordres de grandeur, aussi bien en négatif qu'en positif. Pour Cadarache et Grenoble, les valeurs moyennes et médianes sont respectivement différentes d'un facteur d'environ 3 et 20. Pour Gardanne ces deux valeurs sont négatives. Cela indique que sur ces sites des processus « concurrents » semblent influencer de manière significative la dynamique des particules d'aérosol durant la pluie. Leurs effets entraînent dans presque la moitié des cas une augmentation des concentrations particulières entre le début et la fin de l'évènement ($c_f > c_i$) et donc un coefficient de lessivage Λ_{macro} négatif.

Pour confirmer l'influence de ces processus « concurrents » sur la distribution des coefficients Λ_{macro} , l'équation (20) est utilisée pour calculer des coefficients Λ pour des périodes de temps sec. La figure 3-3 représente l'histogramme de ces valeurs, ainsi que les valeurs moyenne et médiane de la distribution.

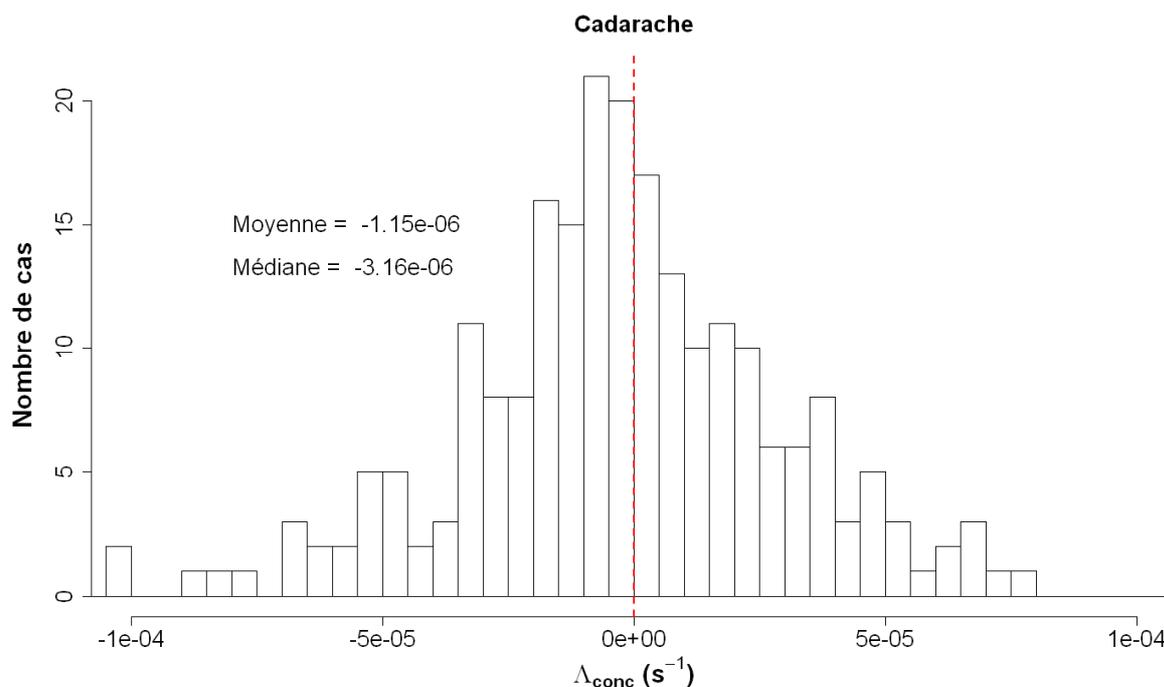


Figure 3-3 : Influence des processus « concurrents » sur la dynamique des particules d'aérosol par temps sec

Ici, le mode de la distribution et les valeurs moyennes et médianes sont négatifs. Sur la gamme $[0,265 - 40] \mu m$, les processus « concurrents » ont donc bien pour effet de minimiser les coefficients de lessivage Λ_{macro} calculés durant des évènements précipitants.

Pour les trois sites, les particules dont le diamètre optique est inférieur à $1 \mu m$ représentent plus de 99% du nombre total de particules mesurées. Pour avoir des informations sur le

lessivage des particules de taille supérieures à 1 μm , la relation entre le coefficient Λ_{macro} et le diamètre D_a des particules est étudiée (figure 3-4).

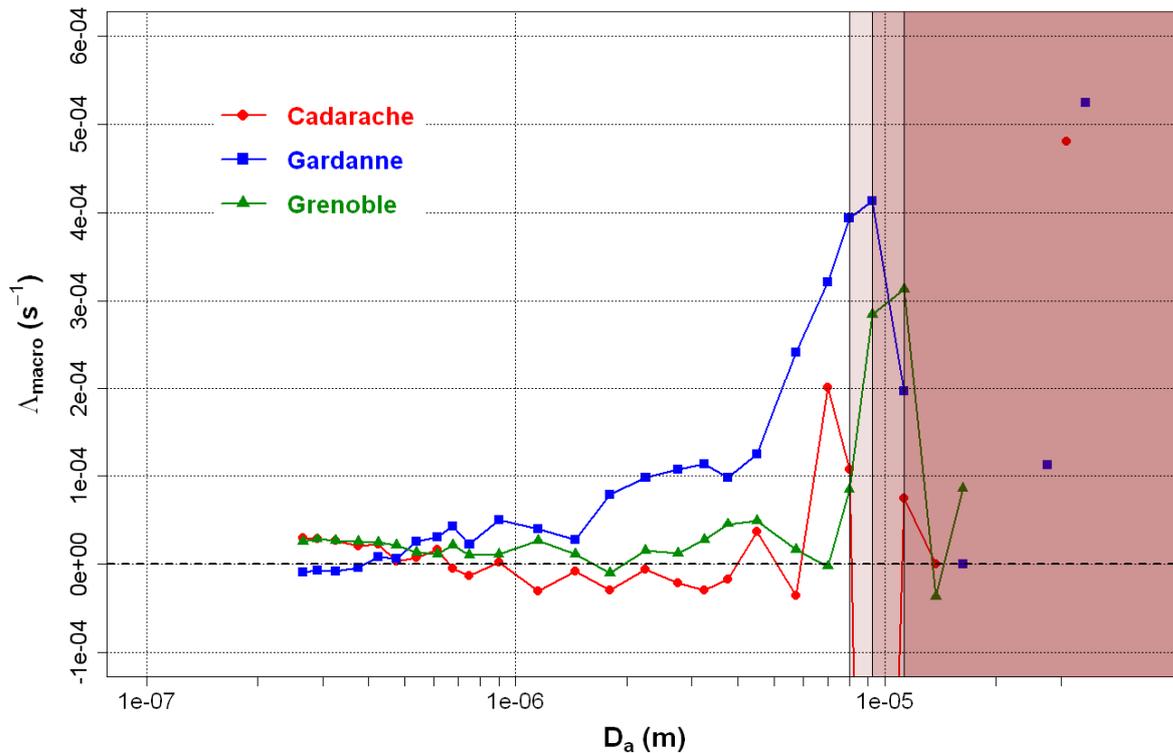


Figure 3-4 : Valeurs moyennes de Λ_{macro} en fonction du diamètre D_a des particules d'aérosol

Entre 0,265 et 10 μm , la variabilité des valeurs de Λ_{macro} diffèrent selon les sites. Pour Cadarache et Grenoble, les valeurs de Λ_{macro} diminuent avec le diamètre pour des valeurs de D_a comprises entre 0,265 et 3 μm . Sur cette gamme de taille, les coefficients Λ_{macro} passent d'une valeur positive à une valeur négative. Dans le cas de Gardanne, les valeurs augmentent avec le diamètre, de négatives à positives.

Pour les trois sites, les valeurs de Λ_{macro} sont comprises :

- pour Cadarache entre $-3,6 \cdot 10^{-5}$ et $2,0 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ pour $D_a \in [0,265 - 8] \mu\text{m}$
- pour Gardanne entre $-8,7 \cdot 10^{-6}$ et $4,1 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ pour $D_a \in [0,265 - 9,25] \mu\text{m}$
- pour Grenoble entre $-1,0 \cdot 10^{-5}$ et $3,1 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ pour $D_a \in [0,265 - 11,25] \mu\text{m}$

Sur la figure sont indiqués les diamètres au-delà desquels les valeurs de Λ_{macro} sont très variables pour des valeurs successives de D_a (zones rouges du plus clair au plus sombre respectivement pour Cadarache, Gardanne et Grenoble). Le peu de données exploitables pour ces diamètres explique cette variabilité importante. En effet, même si les granulomètres de type OPC mesurent les concentrations particulières jusqu'à plusieurs dizaines de microns, en conditions *in situ*, au-delà de 10 μm , il existe très peu de particules

supermicroniques dans l'atmosphère (quelques particules par litres d'air). Cela n'est pas très surprenant car les particules d'aérosol du mode grossier ($D_a \approx 10 \mu\text{m}$) se déposent par sédimentation proche de leurs sources d'émission du fait de leur vitesse de dépôt significative (quelques mm par secondes). Dans la plupart des cas les quantités c_i associées à ces classes sont soit nulles en début de précipitation soit présentes en début de pluie mais elles disparaissent rapidement de l'atmosphère et ne sont plus mesurables en fin d'évènement ($c_f = 0$). Dans ces deux cas, le calcul de Λ_{macro} est caduc. Les quelques évènements pour lesquels un coefficient de lessivage a pu être calculé ne constituent pas un échantillon suffisant pour garantir une représentativité statistique. Pour la suite, les valeurs maximales de D_a utilisables pour Cadarache, Gardanne et Grenoble sont respectivement fixées à 8, 9,25 et 11,25 μm .

Comme le montrent les figures 3-2 et 3-4, cette approche « macroscopique » ne donne pas de bons résultats si l'on considère l'ensemble des coefficients Λ_{macro} . En effet, dans cette étude, d'autres processus intervenant simultanément ont un impact significatif voire prépondérant sur l'évolution temporelle des concentrations particulières par temps humide. Une fois ces processus identifiés, il faudra déterminer comment il est possible de ne considérer que les coefficients Λ_{macro} représentant uniquement l'effet du lessivage.

3.4. Lessivage et autres processus atmosphériques influençant la concentration d'aérosol

3.4.1. Différentes situations possibles

En laboratoire, il est possible de simuler expérimentalement le processus de lessivage des particules d'aérosol en minimisant l'impact des autres processus qui seraient susceptibles d'en modifier la concentration. Dans l'atmosphère, en milieu naturel ouvert, ceci n'est pas possible et d'autres processus viennent perturber la mesure.

Ces processus, qu'on a qualifié de « concurrents » sont illustrés sur la figure suivante.

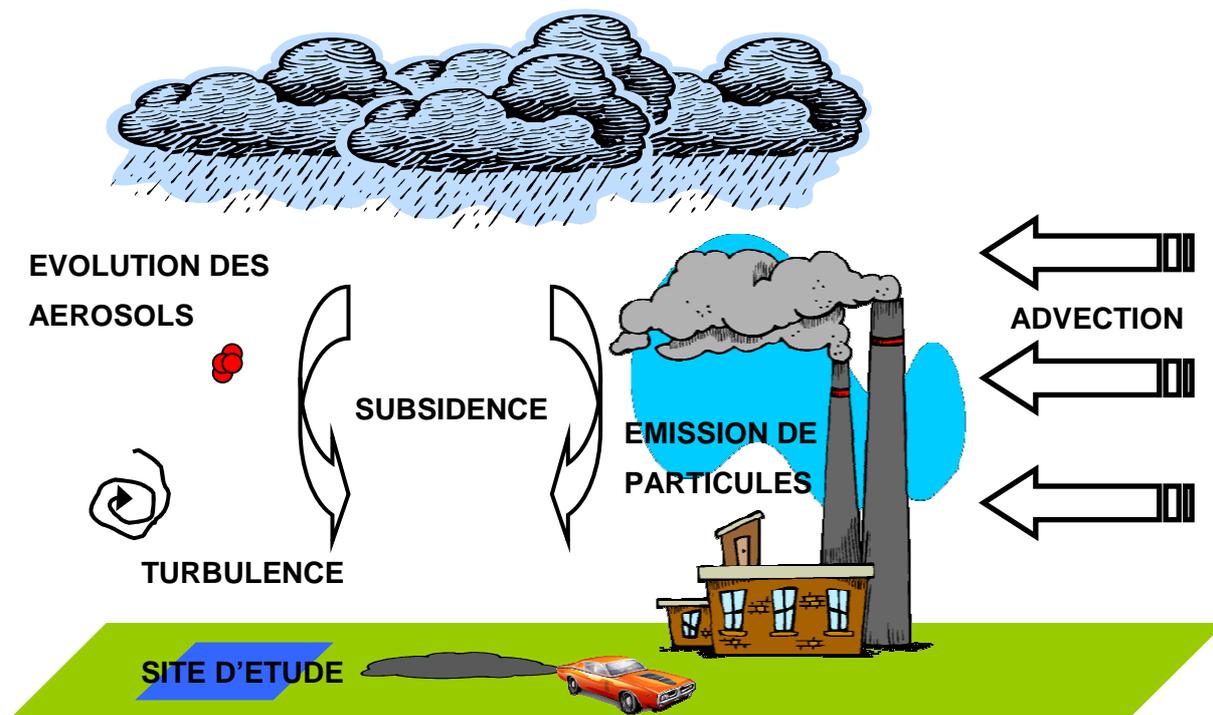


Figure 3-5 : Représentation schématique des biais influençant le potentiel de lessivage

3.4.2. Impact des processus « concurrents »

3.4.2.1. Advection des masses d'air

Le premier processus à considérer en milieu ouvert est l'advection des masses d'air. Suivant que la concentration en particules d'aérosol est plus grande ou plus faible en amont du site de mesure que sur le site lui-même, l'advection produira un artefact qui apparaîtra dans l'analyse comme un terme source ou puits. La vitesse d'advection peut être mesurée par la force du vent mais les concentrations en amont sont plus difficiles à quantifier dans la mesure où elles ne sont pas stationnaires. Des termes sources, en particulier la pollution anthropique, peuvent augmenter ces concentrations et, inversement, une pluie affectant l'amont du site de mesure peut les réduire de manière indicative, sans que la pluie ait été détectée sur les sites de mesures qui concerne cette étude.

L'advection peut aussi affecter la population d'aérosol dans le plan vertical. En effet, Quérel (2012) a montré par l'étude d'un événement modélisé que dans le cas de pluies convectives très intenses, les effets dynamiques de l'atmosphère devaient être pris en considération en tant que « puits ». En effet, les mécanismes de subsidence entraînent vers la surface des masses d'air moins chargée en particules en provenance des hautes couches de l'atmosphère. On peut cependant noter que la situation étudiée est relativement extrême (intensité pluviométrique moyenne de 80 mm h^{-1}). Même dans ce cas, le lessivage reste le

mécanisme prédominant si l'on considère que les particules d'aérosol potentiellement lessivés sont concentrés dans les basses couches atmosphériques.

Ce type de pluie n'ayant jamais été rencontré durant notre étude, les effets de la subsidence sont négligés pour l'ensemble de nos données.

3.4.2.2. *La turbulence atmosphérique*

En affectant l'efficacité de collecte par impaction E_{imp} entre les hydrométéores et les particules d'aérosol, la turbulence est aussi un phénomène susceptible de modifier la valeur des coefficients de lessivage Λ . Vohl et al. (2001) ont simulé différentes situations de turbulence, représentatives de conditions réelles au sens *in situ*. Ils ont mesuré l'efficacité de collecte de plusieurs tailles de goutte et comparé ces données aux efficacités de collecte mesurées dans des conditions laminaires. Leur étude n'a pas mis en évidence de changement notable dans l'efficacité de collecte par impaction entre des conditions laminaires et turbulentes.

3.4.2.3. *Processus d'évolution de l'aérosol*

Les processus qui gouvernent la dynamique de l'aérosol en milieu fermé sont la nucléation, la condensation, la coagulation. La nucléation homogène désigne le processus de formation de nouvelles particules d'aérosol à partir des gaz. Par conséquent, la nucléation homogène augmente la concentration relative des particules les plus petites. La nucléation hétérogène transforme des particules déjà formées et elle modifie la distribution dimensionnelle de l'aérosol $n(D_a)$. La condensation désigne la croissance réversible des particules d'aérosol en phase gazeuse sursaturée. Les processus de nucléation sont des processus lents à l'échelle des événements pluvieux, sauf pour la nucléation homogène dans certaines situations, mais elle n'affecte que la concentration des particules les plus fines. La coagulation désigne le processus d'agglomération des particules entre elles. La concentration de petites particules diminue donc au profit d'un nombre réduit de particules plus grosses. La cinétique de ce processus dépend principalement de la concentration des particules d'aérosol. Pour un aérosol monodispersé de concentration $c = 10^4 \# \text{cm}^{-3}$ (ordre de grandeur pour une atmosphère semi-urbaine), le temps au bout duquel c a diminué de moitié est de l'ordre de plusieurs dizaines d'heures (55 heures d'après le tableau 3.13 dans Renoux et Boulaud, 1998). Ainsi, même si l'aérosol dans l'environnement est polydispersé, on peut considérer que la cinétique de la coagulation est plus lente que celle du lessivage (de l'ordre de quelques minutes à quelques heures).

Selon l'humidité relative dans l'air, la vapeur d'eau s'adsorbe à la surface des particules d'aérosol hygroscopiques et augmente leur diamètre apparent. Ce phénomène est qualifié de croissance hygroscopique. Ainsi, le nombre de petites particules va diminuer tandis que le nombre de grosses augmentent. La distribution des coefficients Λ en fonction du diamètre des particules D_a est donc altérée.

Les granulomètres EDM180 et WRAS étant équipés de colonne Nafion® pour assécher le volume d'air échantillonné, ce phénomène est considéré comme négligeable dans cette étude.

3.4.2.4. Sources d'émissions de particules

Les sources anthropiques de particules sont des processus « concurrents » notables pour notre étude qui se situe en milieu urbain et/ou industriel, ou dans des zones où le trafic automobile est important et très variable. En émettant des particules dans l'atmosphère à proximité du site, ces « sources » vont recharger le volume d'air échantillonné durant les précipitations. Les coefficients de lessivage calculés à partir de données marquées par l'effet de ces sources seront sous-estimés par rapport à la valeur réellement imputable à l'effet du lessivage. Même si ces sources sont éloignées du site, elles peuvent impacter les mesures durant des précipitations par advection.

Le bruit de mesure apporté par les sources locales d'aérosol peut aussi être vu comme une limite à la détection des faibles valeurs de concentration en fin d'évènement. En effet, la forte concentration en début d'évènement décroît sous l'effet des précipitations de façon exponentielle. En fin d'évènement, la vraie valeur induite par l'action du lessivage peut être plus faible que le bruit introduit par les sources locales. La concentration mesurée ne diminuera donc pas au-dessous d'un certain seuil résultant de l'équilibre entre la quantité de matière injectée dans l'atmosphère par les sources locales et la quantité lessivée par les précipitations. Dans le cas des fortes intensités de pluie, les concentrations de particules vont donc tendre vers une valeur seuil (figure 3-6-a). Dans le cas d'une pluie d'intensité plus variable (figure 3-6-b), les phases de diminution des concentrations particulières jusqu'à cette valeur seuil vont alterner avec des phases d'augmentation jusqu'à une concentration pour laquelle le lessivage va redevenir le processus dominant. Globalement, les sources locales conduiront à une sous-estimation du coefficient de lessivage.

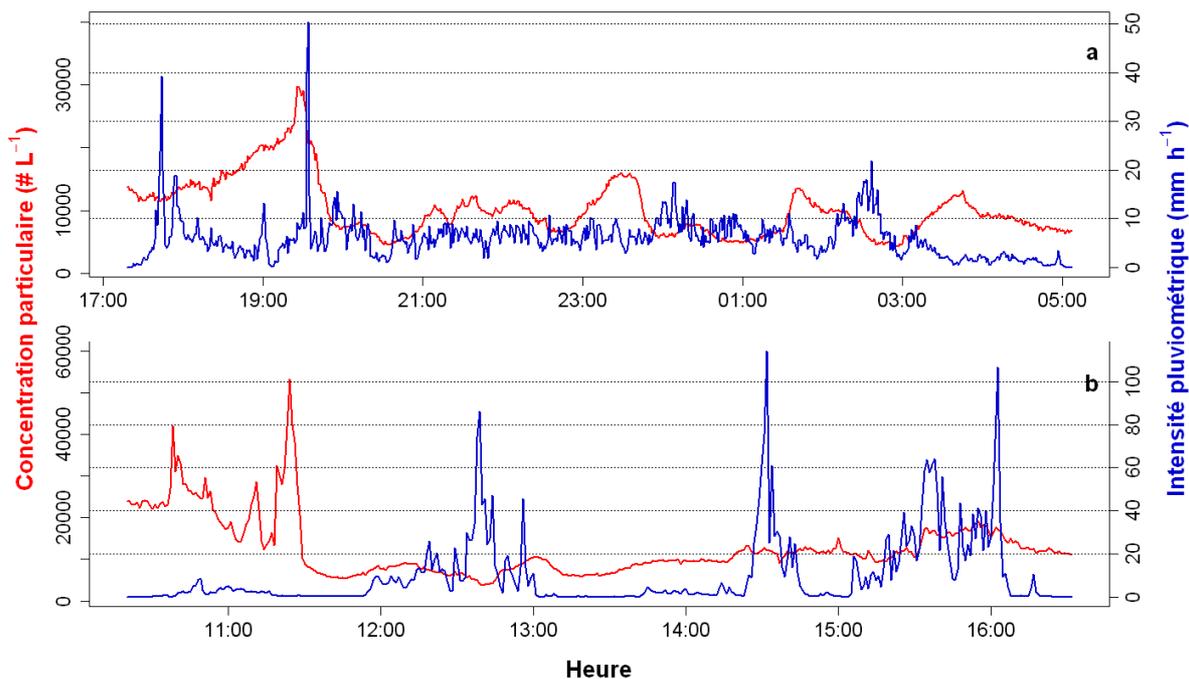


Figure 3-6 : Tendence de la concentration en particules vers une valeur seuil (site de Cadarache)

Ces valeurs seuils sont de l'ordre de 10% des concentrations moyennes sur les sites pour D_a supérieur à $0,265 \mu\text{m}$, soit respectivement 1.10^4 et 3.10^4 et 2.10^4 # L^{-1} pour Cadarache, Gardanne et Grenoble.

Les évènements pour lesquels la concentration initiale c_i en début de précipitation est faible sont donc bien plus sujets à des biais par l'effet des émissions locales que les évènements pour lesquels la valeur initiale c_i est importante.

3.4.2.5. Discussion

Au regard de la durée des évènements pluvieux, les processus d'évolution de la population d'aérosol peuvent être négligés parce que plus lents. En revanche, l'advection des masses d'air et la présence de sources anthropiques d'aérosol sur et à proximité du site de mesure restent des obstacles majeurs à la détermination précise du coefficient de lessivage. Il en résulte une distribution spatiale hétérogène des concentrations d'aérosol et, par conséquent, un impact significatif des processus d'advection sur la détermination des concentrations initiales et finales. De plus, l'apport variable durant la journée des diverses sources locales constitue une limite à la détection de valeurs faibles en fin d'évènement qui conduit à une sous-estimation du coefficient de lessivage.

3.4.3. Sélection des données

3.4.3.1. Méthode de filtrage des résultats bruts

Les mesures faites durant des précipitations représentent donc la résultante de tous les processus qui impactent les concentrations particulaires par temps humide. Ainsi, le coefficient de lessivage Λ_{tot} calculé à partir de ces mesures est la somme de deux termes :

$$\Lambda_{tot} = \Lambda_{para} + \Lambda_{macro} \quad (21)$$

Avec :

- Λ_{conc} , le coefficient traduisant les variations de la concentration particulaire induite par les phénomènes « concurrents »
- Λ_{macro} , le coefficient de lessivage traduisant uniquement l'effet du lessivage sur les concentrations en particules d'aérosol ($\Lambda_{macro} > 0$)

Pour estimer la valeur de Λ_{macro} , deux méthodes sont possibles :

- **quantifier** le coefficient Λ_{macro} en calculant le coefficient Λ_{conc} pour soustraire cette valeur au coefficient Λ_{tot} déterminé par les mesures
- **qualifier** le coefficient Λ_{macro} par rapport au coefficient Λ_{conc} pour déterminer dans quelles situations $\Lambda_{macro} \gg \Lambda_{conc}$

3.4.3.2. Quantification de Λ_{macro}

La méthode la plus pertinente pour quantifier la contribution des sources locales ou de l'advection durant les précipitations est l'utilisation d'un modèle numérique. Déterminer le terme Λ_{para} en utilisant un modèle revient à résoudre en 4D les équations d'advection-diffusion-réaction qui définissent l'évolution de la concentration c_i d'une espèce X_i , tel que (Sportisse, 2008, p. 267) :

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} + \text{div}(U(x,t)c_i) = \text{div}(K_{molec} \nabla c_i) + \eta_i(c, T(x,t), t) + S_i(x,t) \quad (22)$$

Où x et t désignent les coordonnées d'espace et de temps, et c le vecteur des concentrations.

Pour résoudre cette équation, différents types de données sont donc nécessaires :

- Les données météorologiques, avec le champ de vent $U(x,t)$ et de température $T(x,t)$, et la matrice de diffusion moléculaire K_{molec} ,
- Les données d'émissions, avec le terme source $S_i(x,t)$ pour l'espèce X_i ,
- η_i , le taux de production chimique de l'espèce X_i en phase gazeuse.

Pour utiliser un modèle numérique à maille fine tel que AROME, il est nécessaire de constituer les bases de données d'initialisation et d'interfaces (source et puits d'aérosol) à une résolution aussi fine que le modèle (2,5 km).

Concernant les données météorologiques, la distance entre les sites instrumentés et les stations météorologiques de Météo-France les plus proches est relativement grande (respectivement 5 et 7 km pour Gardanne et Grenoble). De plus, la fréquence temporelle des données fournies par ces stations est au minimum horaire, ce qui n'est pas suffisant pour évaluer correctement les phénomènes d'advection durant les précipitations qui durent moins d'une heure dans 30% des cas (figure 3-1). Le granulomètre EDM180 installé à Grenoble est toutefois équipé d'une station météorologique compacte de la marque Lufft (modèle WS-U600). La hauteur à laquelle est installée cette station (2 m au-dessus du toit) n'est pas suffisante pour garantir des données exemptes de biais liés à la présence du bâtiment. Ces données ne seront utilisées que d'un point de vue qualitatif. Le site de Cadarache est le seul pour lequel des données météorologiques sont disponibles (fournies par le CEA) à environ 500 m des instruments de mesure, à une altitude de 100 m et à une fréquence temporelle de 10 minutes.

Pour ce qui est des données d'émissions, il est possible de recenser les sources locales à proximité des sites d'études en utilisant les informations fournies par le registre européen des rejets et transferts de polluants (<http://prtr.ec.europa.eu>), les AASQA ou même en étudiant les données des granulomètres par temps sec. Pour le site de Grenoble, une augmentation importante et récurrente des concentrations particulières est clairement identifiable le samedi en fin de journée (illustré au travers de deux chroniques sur la figure 3-7-b), périodes durant lesquelles les centres commerciaux proches du campus universitaire sont très fréquentés. Des pics de concentrations coïncident aussi avec les périodes de départ et de retour de week-end (figure 3-7-a et c), les vendredis et dimanches en fin de journée, ce qui est cohérent compte tenu de la proximité du bâtiment CERMO avec la rocade sud de l'agglomération grenobloise. Cela permet de mettre clairement en évidence l'influence du trafic routier.

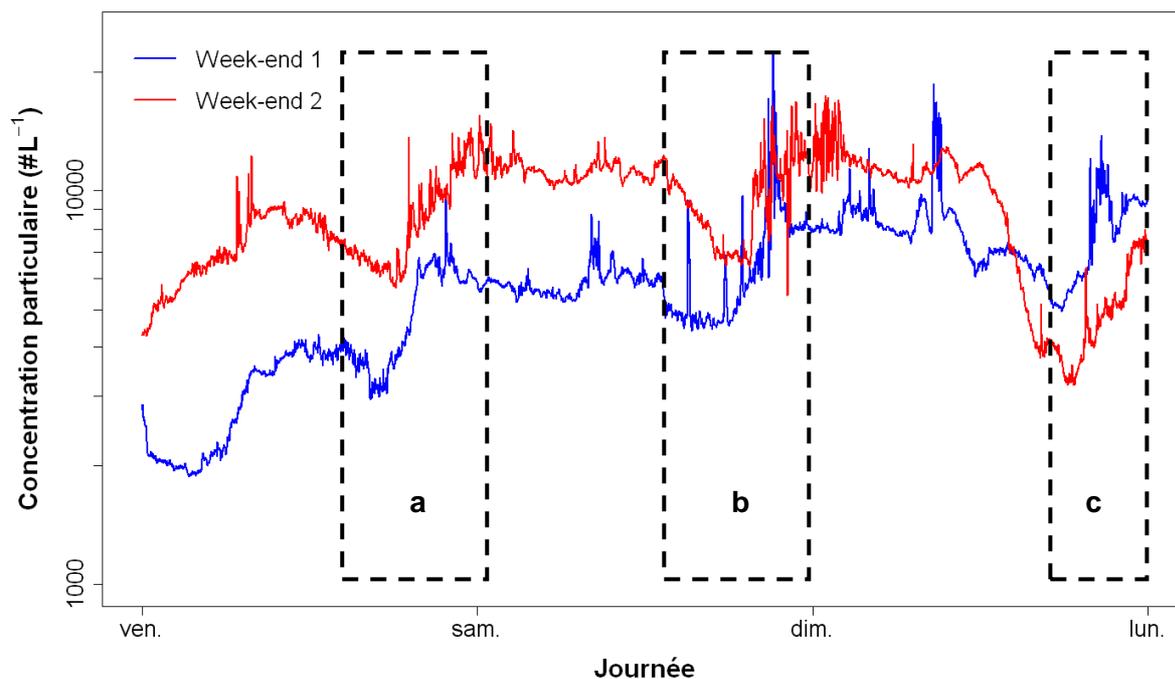


Figure 3-7 : Impact du trafic routier sur les concentrations particulaires (site de Grenoble)

Même s'il est possible d'identifier les périodes durant lesquelles les émissions sont importantes, les quantités de particules émises dans l'atmosphère durant ces périodes ne sont pas connues.

A partir des données dont nous disposons, quantifier l'influence des processus « concurrents » n'est pas la meilleure solution pour extraire les potentiels de lessivage des mesures faites sur les trois sites durant les précipitations.

3.4.3.3. Estimation qualitative de Λ_{macro}

3.4.3.3.1. Critère de sélection des évènements

Les ressources nécessaires pour quantifier le terme Λ_{conc} n'étant pas disponibles, nous avons choisi d'estimer qualitativement le terme Λ_{macro} en ne sélectionnant que les évènements où le lessivage pouvait être considéré comme le phénomène prédominant sur la base des évènements répondant à des critères de sélection.

- Analyse en composantes principales

Dans un premier temps, une analyse en composantes principales (ACP) a été effectuée. L'ACP est un outil de statistique multivariée qui sert à décrire des tableaux « individus-variables quantitatives » de grande dimension. Le but est d'expliquer et de condenser

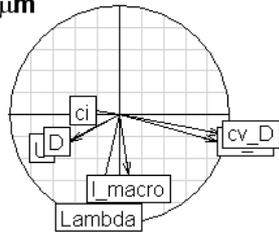
l'essentiel de l'information contenue dans ces tableaux en étudiant les corrélations éventuelles entre les variables. Cet outil semble adapté à notre problématique puisque le but est de savoir si la variabilité des coefficients Λ_{macro} peut être expliquée par des liens avec certaines variables. Ces variables sont caractéristiques des « sources », des « puits » ou des précipitations (en tant que vecteur du lessivage). A partir de l'inventaire des phénomènes « concurrents » fait précédemment, les variables choisies sont :

- L'intensité moyenne I_{macro} des précipitations.
- La concentration en début de précipitations c_i .
- La vitesse moyenne du vent U durant les précipitations et le coefficient de variation cv_U associé.
- La direction moyenne du vent D durant les précipitations et le coefficient de variation cv_D associé.

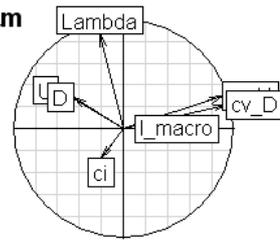
L'ACP est faite séparément sur les données de Cadarache et Grenoble, mais pas sur les données de Gardanne car les paramètres météorologiques n'ont pas été mesurés sur ce site. Pour faciliter l'interprétation, l'ACP est appliquée à six différentes gammes de tailles de particules. L'ACP est centrée et réduite car les variables choisies sont dans des unités et des ordres de grandeur différents. Pour le choix du nombre d'axes, le critère de Kaiser est utilisé. Ce critère consiste à ne choisir que les axes dont la valeur propre est supérieure à 1. Ainsi, seuls les trois premiers axes sont retenus, à l'exception d'un seul cas où deux axes sont retenus. Les cercles de corrélation pour différentes gammes de diamètre de particules d'aérosol (figure 3-8) donnent des indications quant aux liaisons entre les variables retenues pour cette analyse et le coefficient de lessivage Λ_{macro} .

Cadarache

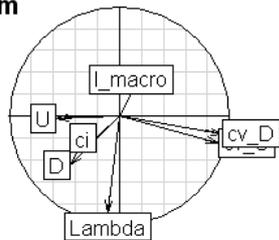
[0,25 - 0.5] μm



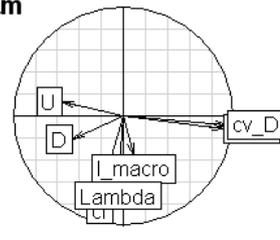
[0,5 - 1] μm



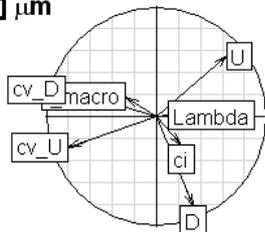
]1 - 2,5] μm



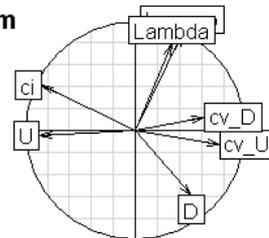
]2,5 - 5] μm



]5 - 10] μm

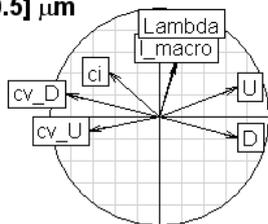


> 10 μm

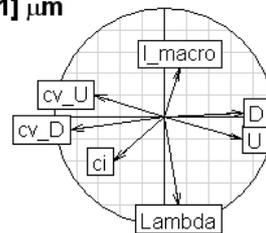


Grenoble

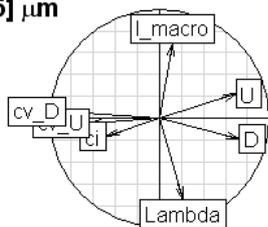
]0,25 - 0.5] μm



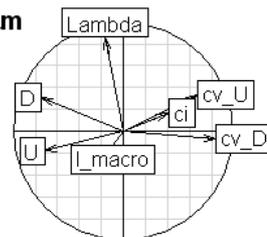
]0,5 - 1] μm



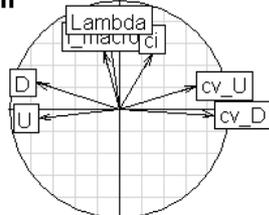
]1 - 2,5] μm



]2,5 - 5] μm



]5 - 10] μm



> 10 μm

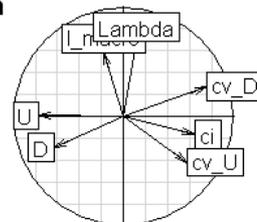


Figure 3-8 : Cercle des corrélations pour l'ACP appliquée aux données de Cadarache et Grenoble

Un lien entre la variable Λ_{macro} et l'intensité pluviométrique I_{macro} est constaté pour les gammes «]0,265 - 0,5] », «]2,5 - 5] » et « > 10 » μm dans le cas de Cadarache, et «]0,265 - 0,5] », «]5 - 10] » et « > 10 » μm pour Grenoble. Même quand ce lien est identifié les points-variables sont relativement éloignés du cercle, ce qui indique que ces points ne sont pas bien représentés par le plan factoriel composé des axes factoriels 1 et 2 Cette observation est aussi valable dans le cas où le plan factoriel est composé des axes 1 et 3 ou des axes 2 et 3.

Les ACP appliquées sur les différentes gammes de tailles ne permettent donc pas de retrouver des relations claires entre le coefficient de lessivage et les différentes variables identifiées comme pouvant expliquer la variabilité des valeurs de Λ_{macro} . Ce manque d'information est illustré sur la figure 3-9. En effet, l'inertie portée par les trois premiers axes retenus est dans tous les cas d'environ 65%, ce qui est relativement faible. Les résultats des différentes ACP n'expliquent donc qu'une partie limitée de l'information contenue dans la base de données.

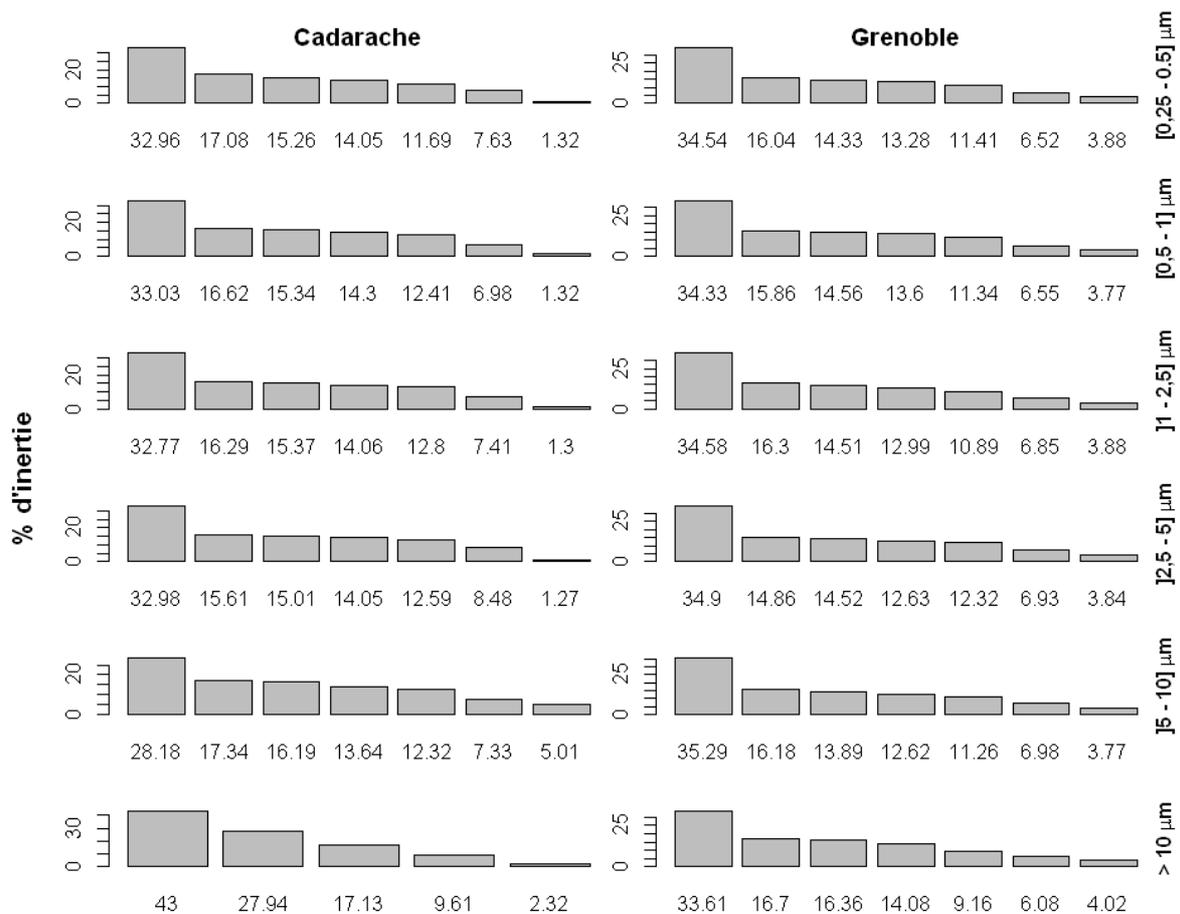


Figure 3-9 : Inertie expliquée par chacun des axes factoriels pour différentes gammes de taille de particules

Dans le cas de cette étude, l'ACP n'est pas un outil permettant de déterminer quels critères utiliser pour ne garder que les pluies qui sont le moins biaisées par l'influence des phénomènes « concurrents ».

Pour pouvoir néanmoins faire le choix de ces critères, l'influence de chacun des paramètres considérés individuellement sur les valeurs de Λ_{macro} est étudiée (figure 3-10 à figure 3-12).

- Influence de l'intensité pluviométrique I_{macro}

Pour Gardanne, la courbe $\Lambda_{\text{macro}} = f(D_a)$ correspondant à l'ensemble des évènements diffère peu de la courbe pour laquelle l'intensité moyenne est inférieure à 1 mm h^{-1} (courbe verte) et de la courbe pour laquelle l'intensité est comprise entre 1 et 5 mm h^{-1} (courbe bleue claire). Par contre, les coefficients Λ_{macro} des évènements pour lesquels $I_{\text{macro}} > 5 \text{ mm h}^{-1}$ sont supérieurs d'un facteur 5 à 38. La représentativité de cette différence est à prendre avec précaution au vu du faible nombre d'évènements (trois pluies) où l'intensité pluviométrique moyenne est supérieure à 5 mm h^{-1} .

Pour Cadarache et Grenoble, il n'y a pas non plus de différence notable entre les coefficients Λ_{macro} pour les classes d'intensités « $\leq 1 \text{ mm h}^{-1}$ » et «]1 - 5] mm h^{-1} » d'une part et l'ensemble des valeurs d'autre part. Pour des évènements plus intenses, la courbe $\Lambda_{\text{macro}} = f(D_a)$ passe par un minimum autour de $1 \mu\text{m}$. Cette zone correspond au « Greenfield gap », zone du minimum d'efficacité de collecte des particules par les gouttes de pluies identifiée dans la plupart des études sur le lessivage qu'elles soient en conditions *in situ* ou en laboratoire. Entre 0,5 et 2-3 μm , les valeurs de Λ_{macro} sont négatives et donc inutilisables (figure 3-10).

Utiliser l'intensité pluviométrique moyenne durant l'évènement pour sélectionner les cas où les phénomènes « concurrents » peuvent être négligés n'est donc pas satisfaisant.

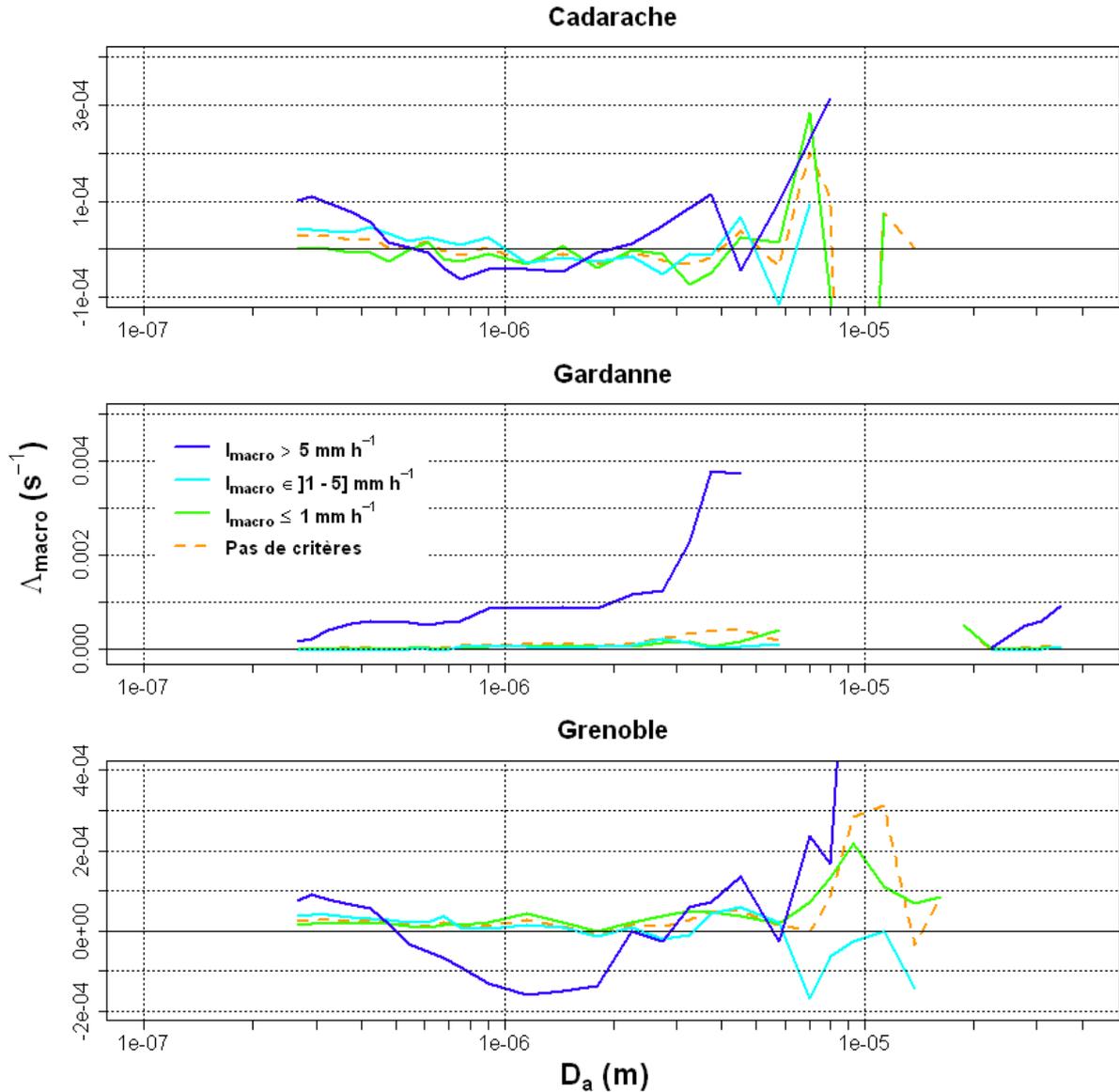


Figure 3-10 : Influence de l'intensité pluviométrique I_{macro} sur les valeurs de Λ_{macro}

- Influence de la concentration initiale c_i

Les valeurs de c_i utilisées pour différencier les évènements correspondent respectivement à 10 et 50% de la concentration moyenne par temps sec sur chacun des sites d'études. Concernant l'influence de la valeur de la concentration initiale sur les valeurs de Λ_{macro} , dans le cas des trois sites, ce critère n'est pas suffisamment discriminant pour être utile à la sélection d'évènements non biaisés (figure 3-11).

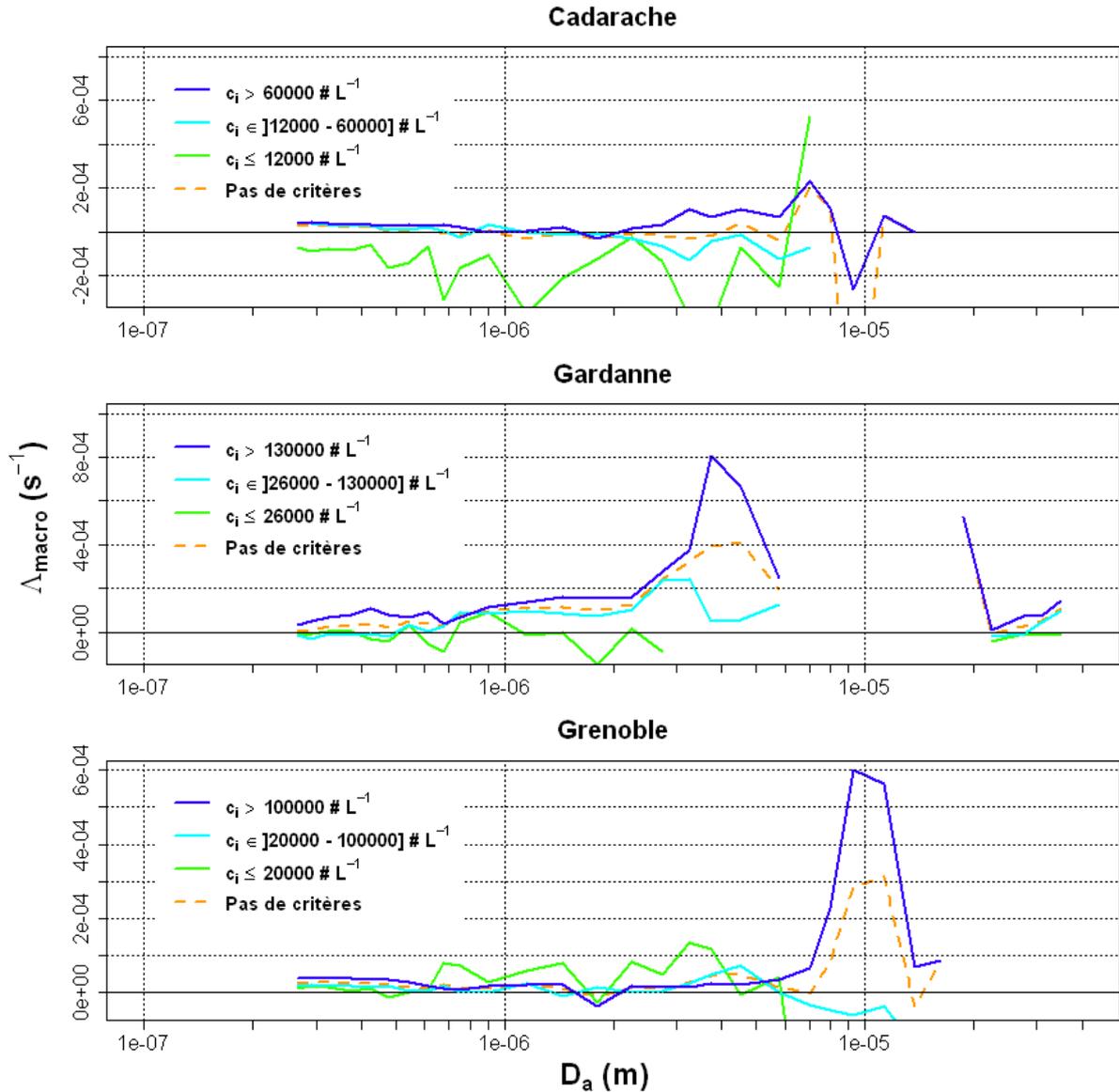


Figure 3-11 : Influence de la concentration initiale c_i sur les valeurs de Λ_{macro}

- Influence de la vitesse du vent U

Les valeurs de Λ_{macro} augmentent avec la vitesse du vent. L'advection a donc globalement un effet de « puits » en tant que phénomène « concurrent ». Cependant, cela n'exclue pas le rôle de « source » que ce phénomène peut avoir dans certains cas particuliers. Ces résultats montrent aussi que sélectionner les événements où le vent est faible ne permet pas de négliger le rôle des phénomènes « concurrents ». Au contraire, les valeurs de Λ_{macro} sont encore plus faibles que dans le cas où aucun critère de sélection n'est pris en compte (figure 3-12).

A partir des mesures faites sur Cadarache et Grenoble, il n'est pas pertinent de sélectionner les événements en fonction du vent moyen.

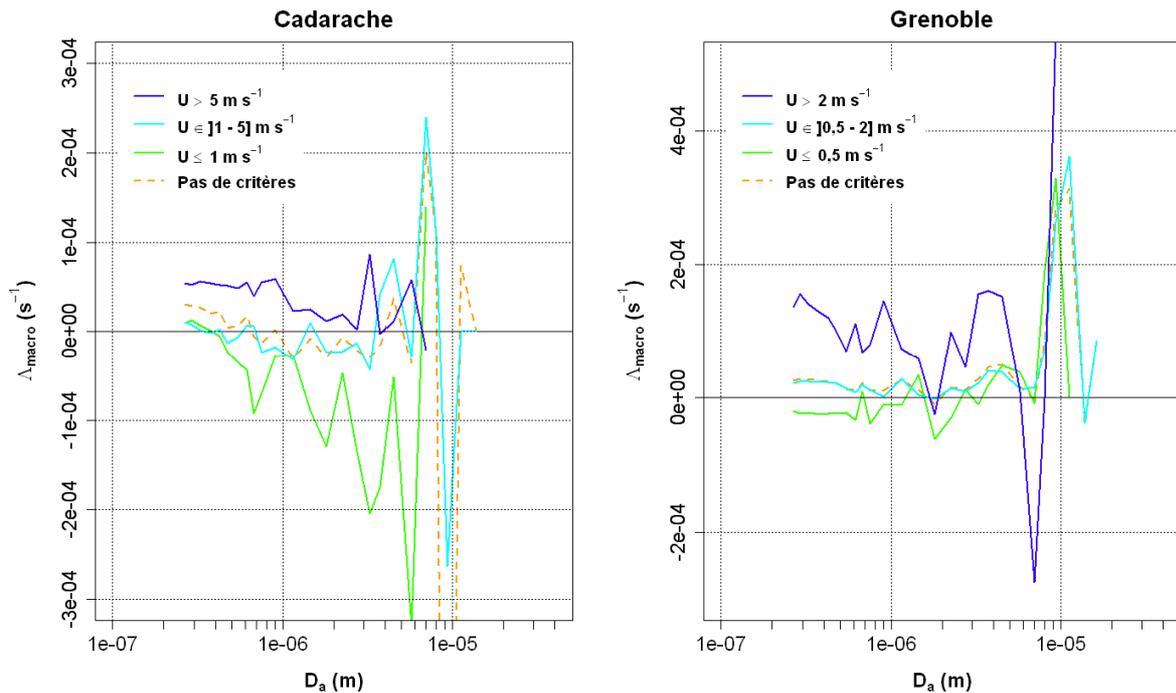


Figure 3-12 : Influence de la vitesse du vent U sur les valeurs de Λ_{macro}

Utiliser des critères de sélection pour ne garder que les évènements où les phénomènes « concurrents » peuvent être considérés comme négligeables n'est pas satisfaisant. Des critères qui *a priori* auraient pu permettre d'éliminer les évènements pour lesquels le lessivage est un processus secondaire ne sont en réalité pas suffisamment discriminants. En particulier, il n'est pas possible de sélectionner les précipitations selon la vitesse du vent pour éliminer les effets de l'advection ou de considérer des évènements où la concentration initiale est forte pour minimiser les effets des sources locales. Les conditions *in situ* dans lesquelles sont effectuées les mesures sont beaucoup trop variables pour pouvoir appliquer des critères universels à l'ensemble des données.

3.4.3.3.2. Convergence des coefficients Λ

Les résultats précédents montrent que la grande variabilité des coefficients de lessivage calculés est due principalement à la variabilité des conditions *in situ* (impact des processus concurrents) dans lesquelles les mesures sont effectuées. L'hypothèse est donc faite que dans des conditions atmosphériques stationnaires, cette variabilité serait moins importante et les coefficients Λ_{tot} déterminés durant ces pluies pourraient être considérés comme une meilleure approximation des valeurs vraies de Λ_{macro} . Cependant, comme indiqué précédemment, il n'est pas possible de déterminer directement quels sont les évènements pour lesquels la stationnarité des conditions *in situ* est établie. Pour l'estimer, l'évolution

temporelle des coefficients de lessivage $\Lambda(t)$ est analysée pour chaque diamètre D_a . Ces coefficients sont calculés pour chaque évènement tel que :

$$\Lambda(D_a, t) = \frac{1}{T_t} \ln \left(\frac{c_i(D_a)}{c_t(D_a)} \right) \quad (23)$$

On obtient ainsi pour chaque évènement une série de valeurs $\Lambda(t)$ calculées à partir de la concentration c_i mesurée au début de l'évènement et des concentrations c_t mesurées à chaque temps t . T_t est la période entre le début de l'évènement et le l'instant t considéré ; la valeur de T_t est donc comprise entre 0 et T_{macro} . Pour sélectionner les cas dits « stationnaires », la convergence entre les valeurs de $\Lambda(t)$ et la valeur de Λ_{macro} lorsqu'elle est positive est estimée en calculant l'écart moyen E_m entre les valeurs de $\Lambda(t)$ et la valeur de Λ_{macro} pour chaque diamètre D_a . En début d'évènement, l'arrivée de la cellule de pluie sur le site de mesure entraine des conditions atmosphériques très fluctuantes, avec notamment un régime pluviométrique changeant. Cette variabilité se retrouve sur les valeurs de $\Lambda(t)$, et il convient d'éliminer cette période de temps pour que l'estimation de la convergence des valeurs de $\Lambda(t)$ vers la valeur de Λ_{macro} ait un sens. Nous choisissons donc de ne pas prendre en compte les valeurs du premier tiers de l'évènement pour le calcul de l'écart moyen E_m . Lorsque $E_m < \Lambda_{\text{macro}}$, nous considérons que le lessivage est le processus prédominant durant l'évènement. La figure 3-13 illustre cette méthode de sélection.

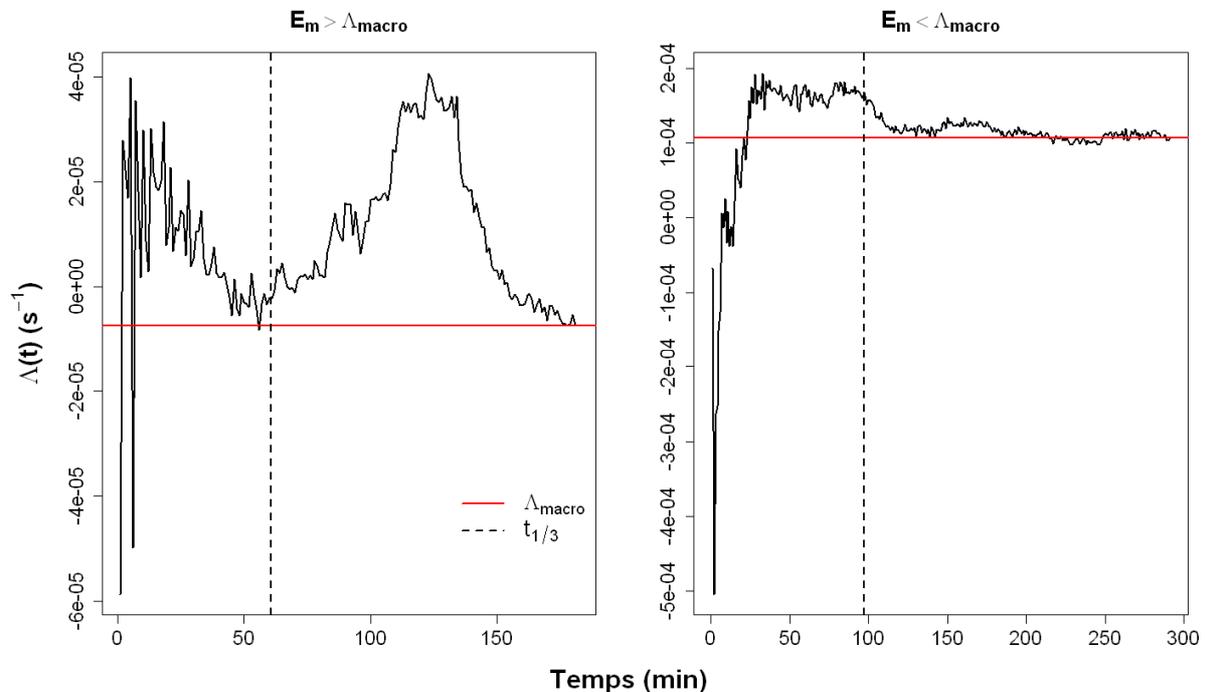


Figure 3-13 : Estimation de la convergence de la série $\Lambda(t)$ vers Λ_{macro}

Dans le cas de la figure de gauche, les valeurs de $\Lambda(t)$ sont très variables et différentes de la valeur de Λ_{macro} (symbolisée par le trait rouge) sur l'ensemble de la période de pluie. Pour cet évènement, le ratio entre l'écart moyen E_m et la valeur de Λ_{macro} est de 7,5, ce qui traduit une influence significative des processus « concurrents ». A l'inverse, sur la figure de droite, la série $\Lambda(t)$ converge rapidement vers une valeur relativement constante qui est similaire à la valeur de Λ_{macro} . Le ratio $E_m/\Lambda_{\text{macro}}$ est ici de 0,5 et le lessivage est considéré comme le processus prédominant sur l'ensemble de l'évènement.

3.5. Résultats et discussions

3.5.1. $\Lambda_{\text{macro}} = f(D_a)$ selon les sites d'études

Dans les figures suivantes la moyenne géométrique μ_g est représentée car ce paramètre statistique est moins sensible aux valeurs extrêmes que la moyenne arithmétique. Pour apprécier la dispersion des valeurs de Λ_{macro} , la médiane M et les 1^e et 9^e déciles (notés respectivement 1d et 9d) sont indiqués pour chaque diamètre. La différence entre 9d et 1d correspond à l'intervalle où sont contenus 80% des valeurs de Λ_{macro} . Pour quantifier la variabilité des valeurs de Λ_{macro} représentées graphiquement, nous utilisons un paramètre correspondant au rapport entre cet intervalle et la valeur de μ_g . Ce paramètre est appelé « coefficient de dispersion » et noté CD. La valeur de CD n'est pas fonction de la taille de l'échantillon statistique (à l'inverse de l'erreur standard) et elle est considérée comme une évaluation plus réaliste de la variabilité des valeurs de Λ_{macro} . Par la suite, un coefficient CD inférieur à 5 sera associé à une faible variabilité des coefficients Λ , tandis qu'une valeur de CD comprise entre 5 et 10 sera associée à une variabilité modérée, et une valeur de CD supérieure à 10 traduira une dispersion importante des coefficients Λ .

3.5.1.1. *Potentiels de lessivage de la gamme nanométrique à supermicronique*

La figure 3-14 représente à partir des mesures faites sur le site de Cadarache le coefficient de lessivage Λ_{macro} en fonction du diamètre D_a compris entre 10 nm et 7 μm . Les résultats issus des mesures du SMPS (en rouge sombre) sont différenciés des résultats issus des mesures du granulomètre OPC (en rouge claire).

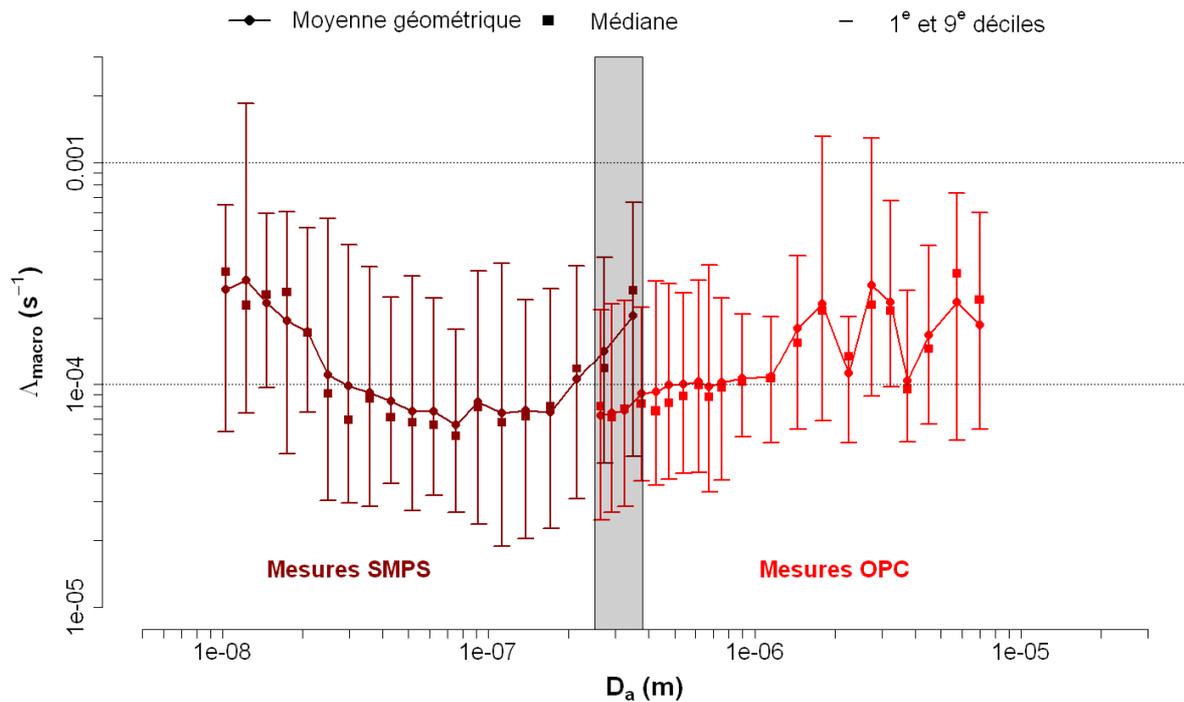


Figure 3-14 : $\Lambda_{macro} = f(D_a)$ de la gamme nanométrique à la gamme supermicronique (site de Cadarache)

Les résultats « SMPS » et « OPC » sont cohérents entre eux sur la quasi-intégralité du spectre granulométrique. Entre 200 nm et 350 nm, les coefficients Λ_{macro} divergent de manière significative selon l'appareil de mesure. Cette divergence correspond à la plage de recouvrement du SMPS et de l'OPC (entre 250 et 350 nm, zone grise), avec des valeurs deux à trois fois supérieures dans le cas des résultats « SMPS ».

Le coefficient de lessivage Λ_{macro} est calculé à partir de deux valeurs de concentrations $c_i(D_a)$ et $c_f(D_a)$. Le SMPS mesure les concentrations pour un unique diamètre D_a toutes les 20 secondes, tandis que le granulomètre OPC effectue un comptage en parallèle de tous les diamètres durant une minute. Du fait de cette résolution temporelle plus élevée, les résultats dérivés des mesures SMPS peuvent donc être beaucoup plus sensibles aux fluctuations de concentrations. Pour vérifier cette hypothèse, pour les diamètres compris entre 200 et 350 nm, les coefficients Λ_{macro} issus des mesures du SMPS sont recalculés. La concentration initiale est ici la moyenne entre la valeur de c_i et les valeurs des concentrations mesurées 5 minutes avant et 5 minutes après le début de la pluie. De même, la concentration finale est la moyenne entre la valeur de c_f et des concentrations mesurées 5 minutes avant et 5 minutes après la fin de la pluie. En moyennant les concentrations initiales et finales sur trois mesures consécutives, l'effet des fluctuations potentiellement importantes entre deux mesures doit logiquement être minimisé (effet de lissage). La figure 3-15 représente le coefficient de lessivage Λ_{macro} en fonction du diamètre D_a une fois cette correction appliquée.

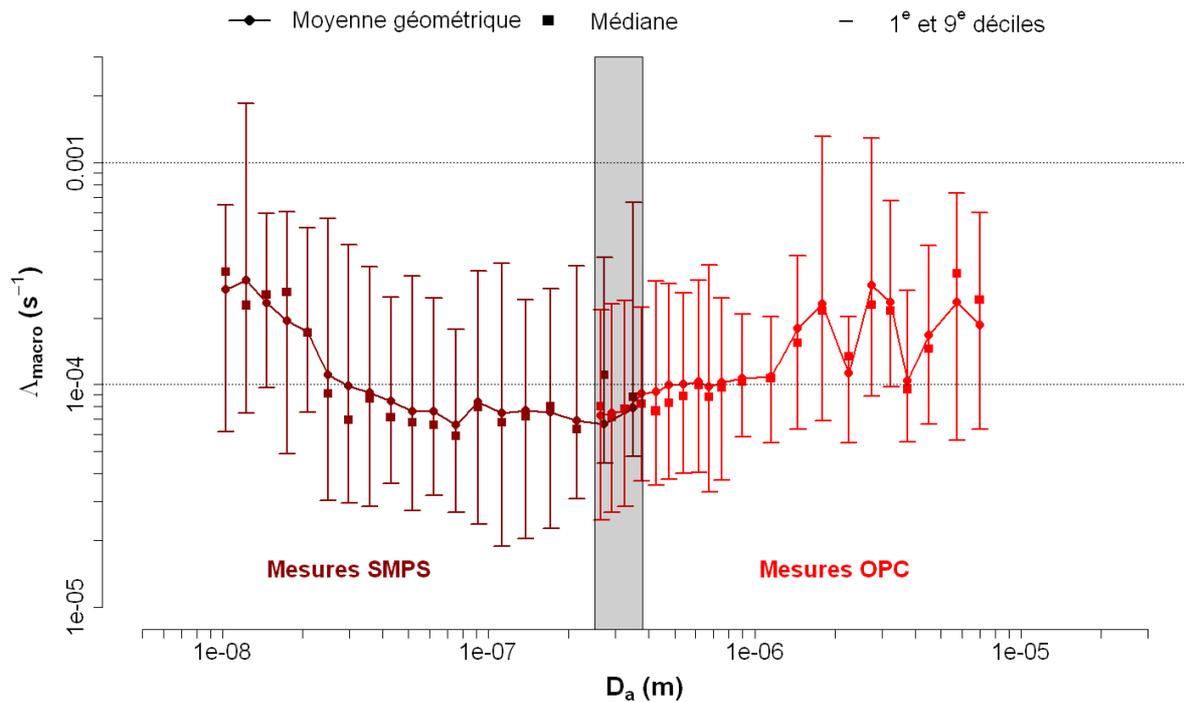


Figure 3-15 : $\Lambda_{\text{macro}} = f(D_a)$ de la gamme nanométrique à la gamme supermicronique ;
correction des trois dernières valeurs « Mesures SMPS » (site de Cadarache)

Une fois la méthode de correction appliquée, la continuité des coefficients Λ_{macro} entre 200 et 350 nm est nettement améliorée.

Pour les données de cette figure, les valeurs minimum et maximum de μ_g , M et CD correspondant à la figure 3-15 sont rassemblées dans le tableau 3-2.

Tableau 3-2 : Etendue des valeurs des paramètres statistiques de la série $\Lambda_{\text{macro}} = f(D_a)$ la gamme nanométrique à la gamme supermicronique (site de Cadarache)

	D_a (μm)		μ_g		M		CD	
	Min	Max	Min	Max	Min	Max	Min	Max
SMPS	0,010	0,350	$6,57 \cdot 10^{-5}$	$2,97 \cdot 10^{-4}$	$5,90 \cdot 10^{-5}$	$3,24 \cdot 10^{-4}$	2,1	7,9
OPC	0,265	7	$7,23 \cdot 10^{-5}$	$2,81 \cdot 10^{-4}$	$7,15 \cdot 10^{-5}$	$3,19 \cdot 10^{-4}$	1,3	5,4

Entre 10 nm et 7 μm , les valeurs de μ_g et M sont peu différentes, ce qui indique une répartition homogène de chaque échantillon autour des valeurs moyennes associées. Sur l'ensemble du spectre granulométrique, la variabilité des valeurs de Λ_{macro} est faible à modérée, avec un coefficient de dispersion CD compris entre 1,3 à 8.

La valeur minimale de Λ_{macro} est obtenue pour $D_a = 75,4$ nm. Ce diamètre est sensiblement plus faible que la plage de diamètres associée au minimum d'efficacité de collecte

(« Greenfield gap » situé entre 100 et 1000 nm) décrit par le modèle de Slinn (figure 2-6) mais reste cohérent avec ce minimum théorique. Il faut cependant noter que la courbe $\Lambda_{\text{macro}} = f(D_a)$ ne présente pas réellement de point d'inflexion. Pour D_a compris entre 50 et 350 nm, le coefficient Λ_{macro} varie très peu, avec une valeur de μ_g entre $6,57 \cdot 10^{-5}$ et $8,37 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$. Il est donc difficile de fixer un potentiel de lessivage minimum qui soit réellement caractéristique.

Pour D_a inférieur à 50 nm ou supérieur à 350 nm, les variations de Λ_{macro} sont significatives, avec respectivement $\Lambda_{\text{macro}} \in [8,40 \cdot 10^{-5} - 2,97 \cdot 10^{-4}] \text{ s}^{-1}$ et $\Lambda_{\text{macro}} \in [9,11 \cdot 10^{-5} - 2,81 \cdot 10^{-4}] \text{ s}^{-1}$. Pour les particules de diamètre supérieur à $1 \mu\text{m}$, il n'est toutefois pas observé d'augmentation importante du coefficient de lessivage comme le laisse supposer le modèle de Slinn basé sur une combinaison des mécanismes de collecte de diffusion brownienne, d'interception et d'impaction inertielle. Les fluctuations de Λ_{macro} sont même notables pour cette gamme de taille. A partir de $D_a = 1 \mu\text{m}$, le nombre de valeurs ayant permis de calculer chaque coefficient Λ_{macro} est significativement plus faible que dans le cas où $D_a < 1 \mu\text{m}$ (respectivement 10 à 15 valeurs contre plus du double). Cette différence dans la taille des échantillons statistiques peut être une explication aux fluctuations observées.

3.5.1.2. Potentiels de lessivage pour les trois sites de mesure

La figure 3-16 représente, pour D_a compris entre 0,265 et $11,25 \mu\text{m}$, les coefficients Λ_{macro} calculés à partir des mesures faites sur les sites de Cadarache, Gardanne et Grenoble. Pour faciliter la comparaison des résultats, l'étendue des valeurs des paramètres statistiques se rapportant à ces trois jeux de données est agrégée dans le tableau 3-3. Les caractéristiques météorologiques (I_{macro} , T_{macro} et U) des évènements retenus sont aussi indiquées.

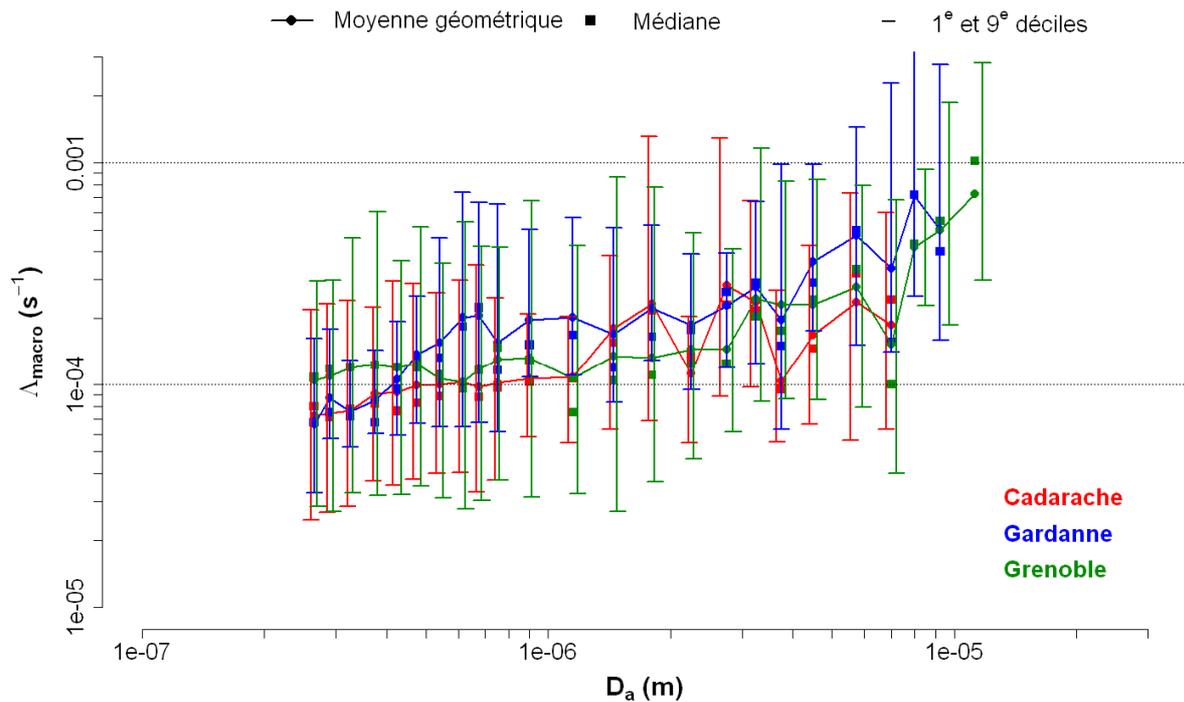


Figure 3-16 : $\Lambda_{macro} = f(D_a)$ selon les sites d'études

Les courbes $\Lambda_{macro} = f(D_a)$ sont comparables entre les trois sites. Pour chacun des trois sites, les valeurs de μ_g sont semblables aux valeurs de M , ce qui indique une répartition homogène des coefficients Λ_{macro} autour des valeurs moyennes. Par la suite, les valeurs de μ_g seront utilisées pour la comparaison des données entre les sites ou avec des données issues d'autres études. La variabilité des valeurs est dans tous les cas modérée, avec un coefficient de dispersion CD compris entre 1 et 8. Pour chaque site, les pluies dont les coefficients Λ_{macro} ont été retenus sont dans l'ensemble des événements relativement courts et de faible intensité, avec T_{macro} de l'ordre de deux heures et I_{macro} inférieur à 2 mm h^{-1} . Avec une valeur de $4,4 \text{ m s}^{-1}$ à 100 m pour Cadarache et de 1 m s^{-1} à 20 m pour Grenoble, le vent est considéré comme faible durant les événements retenus. Les valeurs des caractéristiques météorologiques moyennes sont aussi comparables aux valeurs décrivant les conditions météorologiques durant l'ensemble des événements pluvieux (tableau 3-1). Les pluies retenues sont donc bien représentatives des conditions pluviométriques qui ont lieu sur chacun de sites. Les résultats de la figure 3-16 peuvent donc être considérés comme caractéristique des potentiels de lessivage affectant chacun des sites d'étude.

Tableau 3-3 : Etendue des valeurs des paramètres statistiques des séries $\Lambda_{\text{macro}} = f(D_a)$ et conditions météorologiques (trois sites d'étude)

		Cadarache	Gardanne	Grenoble
D_a (μm)	Min	0,265	0,265	0,265
	Max	7	9,25	11,25
μ_g	Min	$7,23 \cdot 10^{-5}$	$6,63 \cdot 10^{-5}$	$1,03 \cdot 10^{-4}$
	Max	$2,81 \cdot 10^{-4}$	$7,14 \cdot 10^{-4}$	$7,28 \cdot 10^{-4}$
M	Min	$7,15 \cdot 10^{-5}$	$6,75 \cdot 10^{-5}$	$7,49 \cdot 10^{-5}$
	Max	$3,19 \cdot 10^{-3}$	$7,22 \cdot 10^{-4}$	$1,02 \cdot 10^{-3}$
CD	Min	1,3	1	1,6
	Max	5,4	$6,5^{*10}$	7,9
I_{macro} (mm h^{-1})	μ_g	1,6	1,3	1
T_{macro} (h)	μ_g	2,3	1,6	1,8
U (m s^{-1})	μ_g	4,4	X	1

Mircea et al. (2000) ont mis en évidence à partir de paramétrisations microphysiques des variations importantes du coefficient de lessivage Λ selon le type d'aérosol. En particulier, deux ordres de grandeur différencient les coefficients Λ calculés avec une distribution d'aérosol de type urbain de ceux déterminés à partir d'une distribution décrivant l'aérosol marin ou continental. Cette dépendance entre le type de particules et le coefficient de lessivage a aussi été mis en évidence numériquement par Andronache (2003). Dans le cas de notre étude, les trois sites ne se distinguent pas par des distributions granulométriques spécifiques pour des particules de diamètres inférieurs à $10 \mu\text{m}$ (figure 2-12). Il n'est donc pas surprenant de constater que les résultats représentés sur la figure 3-16 ne mettent en évidence de relations $\Lambda_{\text{macro}} = f(D_a)$ particulières selon les sites de mesure.

Par ailleurs, les travaux de Chate et Kamra (1997) sur la variabilité de l'efficacité de collecte en fonction de la densité des particules laissaient supposer que des différences entre les

¹⁰ La valeur maximale est en réalité de 13,6 mais elle est isolée et considérée comme une valeur aberrante. La valeur de 6,5 est plus représentative de la dispersion de l'échantillon.

trois sites auraient pu être mises en exergue, en particulier entre les données du site de Gardanne d'une part et celles des sites de Cadarache et Grenoble d'autre part. En effet, la composante industrielle est présente uniquement sur Gardanne pour les particules de diamètre supérieur à 1 μm . Cependant, malgré l'hétérogénéité des sources d'émissions de particules à proximité des sites, aucune différence liée à l'origine des particules d'aérosol ne ressort des résultats de cette étude. Étant donné qu'aucune caractérisation physico-chimique des particules n'a été faite sur les sites, il est difficile d'infirmer ou de confirmer un lien entre les caractéristiques des particules (notamment leur densité) et le potentiel de lessivage. On doit toutefois noter que le lessivage des particules d'un diamètre supérieur à 10 μm n'a pas pu être déterminé, alors que la composante industrielle est en partie représentée par des particules d'aérosol de cette gamme de taille (cf. section 2.3.2).

3.5.2. $\Lambda_{\text{macro}} = f(D_a)$ selon le type de pluie

3.5.2.1. *Paramétrisation du coefficient de lessivage Λ_{macro}*

Dans la partie précédente, les coefficients Λ_{macro} ont été moyennés sur l'ensemble des données sélectionnées. Ces résultats ne permettent donc pas d'étudier une éventuelle dépendance des potentiels de lessivage avec l'intensité pluviométrique. Comme expliqué dans la section 1.4.3.3, une paramétrisation du type $\Lambda = f(I)$ est particulièrement intéressante pour la modélisation numérique.

La figure 3-17 représente le coefficient de lessivage Λ_{macro} en fonction de l'intensité pluviométrique I_{macro} pour trois diamètres D_a considérés comme représentatifs des distributions granulométriques mesurées sur chacun des sites (cf. section 2.3.2).

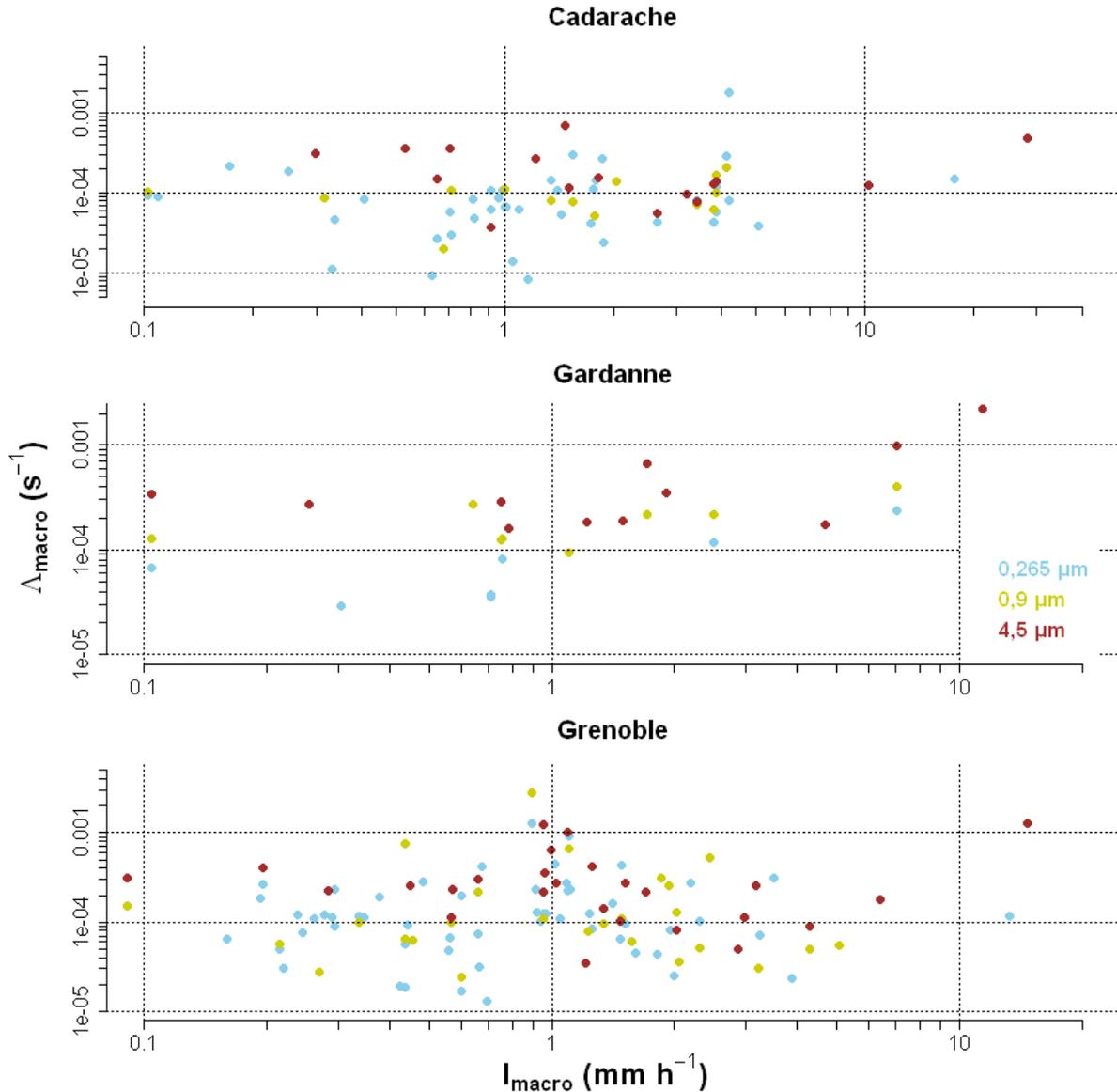


Figure 3-17 : Coefficient de lessivage Λ_{macro} en fonction de l'intensité pluviométrique I_{macro} (trois sites d'étude)

Entre 0,1 et 20 mm h^{-1} , quels que soient le diamètre des particules et le site, aucune relation robuste entre le coefficient de lessivage Λ_{macro} et l'intensité pluviométrique moyenne I_{macro} n'est identifiable. Le calcul des coefficients Λ_{macro} par l'équation (18) suppose que ce coefficient soit constant dans le temps. Par un principe d'équivalence, cela implique que les paramètres de l'équation (9) ou ceux de l'équation (12) sont eux aussi invariables. Toutefois, pour certains événements, ces paramètres peuvent être très variables. A titre d'exemple, pour une pluie enregistrée le 4 septembre 2011 sur Cadarache, l'intensité pluviométrique a varié en cinq minutes de 1 mm h^{-1} à presque 100 mm h^{-1} . Cette variabilité importante sur de courtes échelles de temps est mentionnée par Waldvogel (1974). Lorsque la structure d'une pluie change sur un site de mesure (passage d'une cellule stratiforme suivie d'une cellule

convective), les fluctuations sur la distribution en taille des gouttes $n(D_g)$ sont importantes et rapides. En plus de dépendre de la taille D_g des hydrométéores, l'efficacité de collecte E dépend aussi d'un certain nombre de paramètres thermodynamiques qui ne sont pas nécessairement constant durant des précipitations.

3.5.2.2. *Potentiel de lessivage selon le type de pluie*

Les résultats obtenus ne révèlent pas de paramétrisation explicite du coefficient de lessivage avec l'intensité pluviométrique. Il est tout de même possible d'étudier la distinction entre les potentiels de lessivage déterminés par une approche « macroscopique » pour des pluies aux régimes pluviométriques typiques. Dans la section 2.3.4.2, une classification des pluies a été établie à partir de l'analyse des hyétoigrammes enregistrées par le disdromètre PARSIVEL. Trois types de pluies ont été mis en évidence selon la variabilité de l'intensité pluviométrique : convectif CVF, stratiforme ST et mixte MX. Ici, les potentiels de lessivage Λ_{macro} de ces trois types de pluie sont donc comparés en fonction du diamètre D_a (figure 3-18). A partir des constatations précédentes sur l'influence de la fluctuation des concentrations sur la valeur de Λ_{macro} , le diamètre maximal est fixé à 215 nm pour la partie « Mesures SMPS ». Le tableau 3-4 rassemble pour chaque site et chaque type de pluie les informations sur les valeurs limites de μ_g et M . Considérant que la moyenne géométrique est représentative de la relation entre le coefficient Λ_{macro} et D_a , seules les valeurs de μ_g sont représentées sur la figure 3-18.

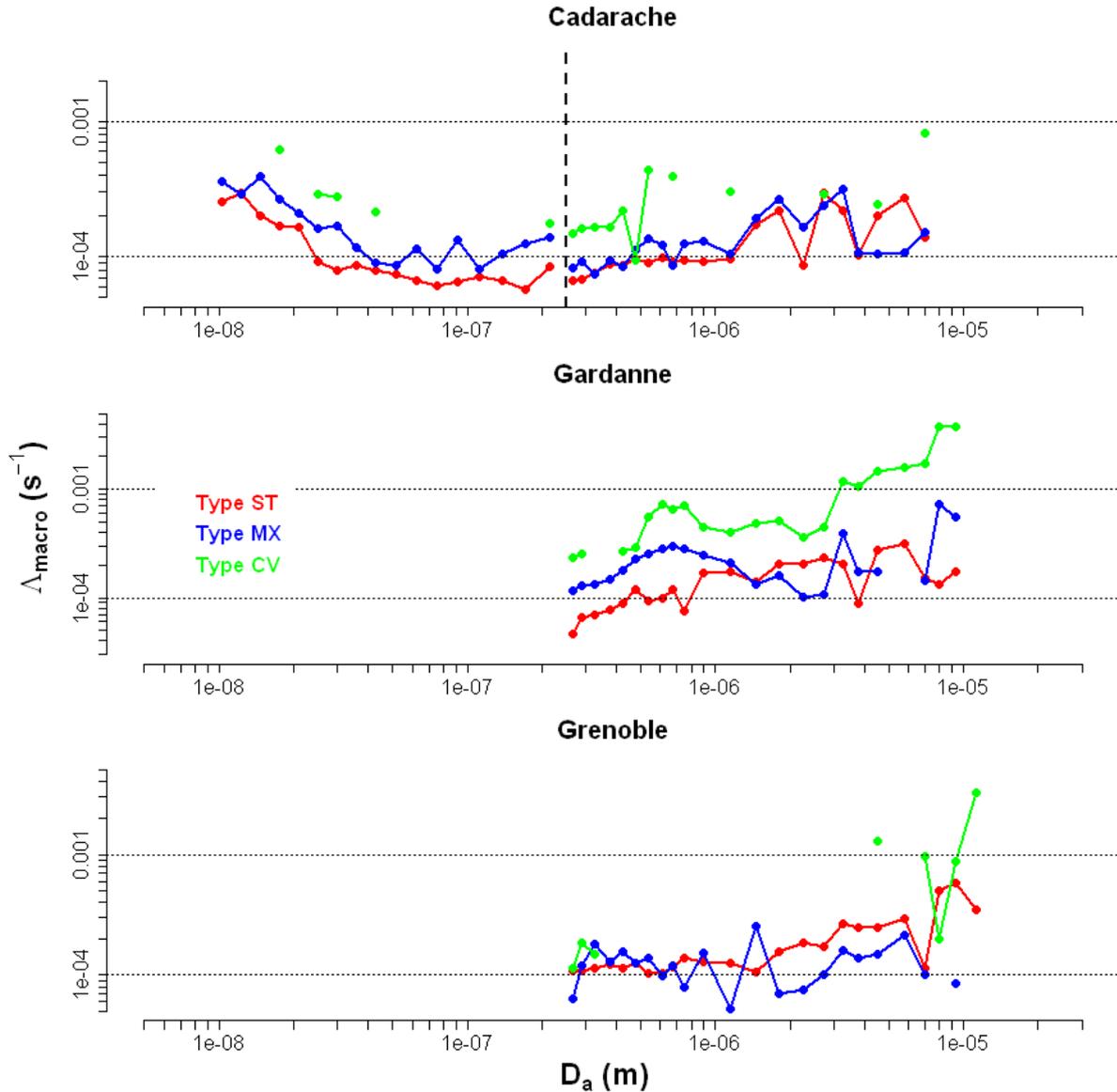


Figure 3-18 : $\Lambda_{\text{macro}} = f(D_a)$ selon le type de pluie (trois sites d'étude)

Dans les cas de Cadarache et Grenoble, les potentiels de lessivage des pluies stratiformes et mixtes ne sont pas significativement différents pour D_a compris entre 0,265 et 10 μm . L'écart entre les valeurs de μ_g pour les pluies ST et pour les pluies MX est faible, avec un rapport $\mu_g[\text{MX}]/\mu_g[\text{ST}]$ compris entre 0,4 et 1,9 pour Cadarache et entre 0,15 et 2,4 pour Grenoble. En prenant en compte les quelques valeurs disponibles sur Cadarache, l'écart en termes de lessivage entre les valeurs de μ_g des pluies mixtes ou convectives est compris entre 1 et 5,5.

Pour $D_a < 0,265 \mu\text{m}$, les potentiels de lessivage des pluies de type stratiforme et mixte sont plus différenciés, avec un rapport $\mu_g[\text{MX}]/\mu_g[\text{ST}]$ compris entre 1 et 2,7. Peu de valeurs sont disponibles dans le cas des pluies de type convectif, mais ces valeurs sont systématiquement supérieures aux valeurs des pluies de type mixte d'un facteur 1,3 à 2,4.

Dans le cas de Gardanne, des valeurs de Λ_{macro} sont exploitables pour la quasi-intégralité¹¹ des diamètres D_a inférieurs à 10 μm et pour chaque type de pluie. Les valeurs de Λ_{macro} pour les pluies MX et ST sont clairement distinctes pour D_a compris entre 0,265 et 1,15 μm , avec un rapport $\mu_g[MX]/\mu_g[ST]$ compris entre 1,2 et 2,8. Pour des diamètres supérieurs, ce rapport est proche de 1. Entre les pluies CVF d'une part et ST et MX d'autre part, la différence est claire pour l'intégralité du spectre granulométrique représenté, avec un rapport $\mu_g[CVF]/\mu_g[ST]$ ou $\mu_g[CVF]/\mu_g[MX]$ compris entre 1,3 et 28.

Tableau 3-4 : Etendue des valeurs de μ_g et de M selon le type de pluie (trois sites d'étude)

Site	Type de pluie	μ_g		M	
		Min	Max	Min	Max
Cadarache - SMPS	ST	5,74.10 ⁻⁵	2,99.10 ⁻⁴	4,82.10 ⁻⁵	3,24.10 ⁻⁴
	MX	8,10.10 ⁻⁵	3,89.10 ⁻⁴	5,49.10 ⁻⁵	3,95.10 ⁻⁴
	CVF	1,78.10 ⁻⁴	6,18.10 ⁻⁴	1,78.10 ⁻⁴	6,18.10 ⁻⁴
Cadarache - OPC	ST	6,72.10 ⁻⁵	4,26.10 ⁻⁴	6,56.10 ⁻⁵	4,26.10 ⁻⁴
	MX	7,46.10 ⁻⁵	3,17.10 ⁻⁴	6,93.10 ⁻⁵	3,81.10 ⁻⁴
	CVF	9,45.10 ⁻⁵	8,24.10 ⁻⁴	9,45.10 ⁻⁵	8,25.10 ⁻⁴
Gardanne	ST	4,61.10 ⁻⁵	3,16.10 ⁻⁴	3,77.10 ⁻⁵	4,03.10 ⁻⁴
	MX	1,02.10 ⁻⁴	7,22.10 ⁻⁴	1,06.10 ⁻⁴	7,22.10 ⁻⁴
	CVF	2,33.10 ⁻⁴	3,79.10 ⁻³	2,33.10 ⁻⁴	3,79.10 ⁻³
Grenoble	ST	1,03.10 ⁻⁴	5,83.10 ⁻⁴	7,47.10 ⁻⁵	5,94.10 ⁻⁴
	MX	5,22.10 ⁻⁵	2,54.10 ⁻⁴	4,08.10 ⁻⁵	3,73.10 ⁻⁴
	CVF	1,15.10 ⁻⁴	3,26.10 ⁻³	1,15.10 ⁻⁴	3,26.10 ⁻³

La distinction des courbes $\Lambda_{macro} = f(D_a)$ selon le type de pluie a mis en évidence le potentiel de lessivage significativement plus important des pluies convectives par rapport autres types de pluie. Cependant, même si les pluies MX et ST présentent des caractéristiques distinctives en terme pluviométrique, ces différences ne se traduisent pas par des potentiels de lessivage singulièrement différents. Cette similitude peut être expliquée par les

¹¹ seules deux valeurs pour les pluies CVF et une pour les pluies MX manquent

caractéristiques de chacun des types de pluies. Durant les pluies stratiformes, l'intensité pluviométrique varie relativement peu et reste presque exclusivement inférieure à 10 mm h⁻¹. Les pluies mixtes sont caractérisées par un ou plusieurs pics d'intensité pluviométrique supérieure à 10 mm h⁻¹ dont les durées cumulées sont inférieures à 20% de la durée totale de la pluie. Ainsi, selon le moment où ont lieu ces pics, l'impact de ces pics d'intensité sur les concentrations de particules d'aérosol est lissé par la prise en compte uniquement des concentrations c_i et c_f . Le lessivage de ces deux types de pluie est alors identique lorsqu'il est estimé par une approche « macroscopique ». Il est à noter que pour les trois sites ces pics ont lieu dans la première moitié de la période de pluie dans au moins 60% des pluies MX.

3.5.3. Demi-vie d'efficacité de lessivage et période de quasi-disparition

Le coefficient de lessivage est un paramètre relativement abstrait. Pour avoir une information traduisant de manière tangible l'efficacité du lessivage, le temps au bout duquel la moitié de la quantité initiale de particules est lessivée peut être utilisé. Ce paramètre est similaire à la période (ou demi-vie) radioactive caractérisant les radioéléments. Nous le notons donc $t_{1/2}$ et nous l'appelons « demi-vie d'efficacité de lessivage » par la suite. Pour rappel, l'évolution temporelle des concentrations de particules d'aérosol de diamètre D_a au cours d'une précipitation est exprimée telle que :

$$c(D_a, t) = c_0(D_a) * \exp(-\Lambda * t) \quad (24)$$

$c_0(D_a)$ et $c(D_a, t)$ sont respectivement les concentrations particulières en début de précipitation et au temps t . La méthode de calcul de $t_{1/2}$ est identique à celle définissant la demi-vie radioactive. Ainsi, concernant le lessivage, $t_{1/2}$ s'exprime tel que :

$$t_{1/2} = \frac{\ln 2}{\Lambda} \quad (25)$$

Ou plus généralement,

$$t_{1/X} = \frac{\ln X}{\Lambda} \quad (26)$$

$t_{1/X}$ étant le temps au bout duquel il ne reste que la fraction $1/X$ de la quantité initiale de particules d'aérosol dans l'atmosphère suite au lessivage des précipitations. La valeur de $t_{1/10}$ correspondant au temps nécessaire pour lessiver 90% de la quantité initiale est aussi indiquée par la suite. Ce temps est qualifié de « période de quasi-disparition ».

Les valeurs de $t_{1/2}$ et $t_{1/10}$ sont valables uniquement si les coefficients de lessivage Λ_{macro} dont ils découlent sont constants durant la période de précipitation considérée (et qu'il n'y a donc pas de phénomènes « concurrents » qui interviennent durant ces périodes).

- Résultats de la gamme nanométrique à supermicronique (trois sites d'étude)

Dans la figure 3-19, les temps $t_{1/2}$ correspondant aux coefficients Λ_{macro} précédemment calculés pour les trois sites de mesures et de la gamme nanométrique à supermicronique sont représentés. Les valeurs de $t_{1/2}$ et $t_{1/10}$ correspondantes sont rassemblées dans le tableau 3-5.

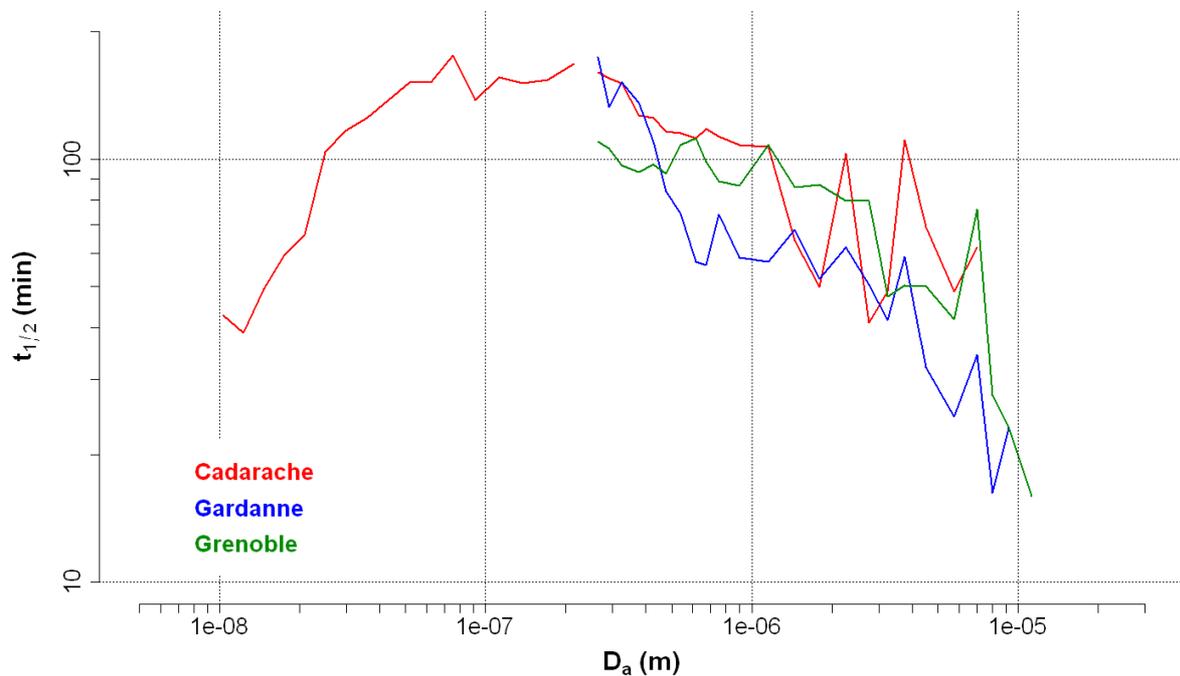


Figure 3-19 : $t_{1/2} = f(D_a)$ de la gamme nanométrique à supermicronique (trois sites d'étude)

L'utilisation des demi-vies d'efficacité de lessivage et des périodes de quasi-disparition illustre de manière très concrète l'intérêt de distinguer les potentiels de lessivage selon le diamètre des particules d'aérosol. En effet, la cinétique du lessivage est significativement différente selon la gamme de diamètre des particules. Ainsi, pour D_a compris entre 50 et 350 nm, la moitié de la concentration initiale en particules est lessivée au bout de 160 minutes. Pour $D_a < 50$ nm, ce temps varie entre environ 40 et 140 minutes. Pour $D_a > 350$ nm, $t_{1/2}$ diminue de 130 à 40 minutes pour Cadarache, de 140 à 16 minutes pour Gardanne, et de 112 à 16 minutes pour Grenoble.

Pour la gamme de diamètre [50 - 350] nm, la période de quasi-disparition est de 8,6 heures. Pour les diamètres inférieurs, les valeurs de $t_{1/10}$ varient entre 2,2 et 7,6 heures. Pour les

diamètres supérieurs, $t_{1/10}$ diminue de 7 à 2,3 heures pour Cadarache, de 7,5 à 0,9 heures pour Gardanne, et de 6,2 à 0,9 heures pour Grenoble.

Tableau 3-5 : Etendue des valeurs de $t_{1/2}$ et $t_{1/10}$ de la gamme nanométrique à supermicronique (trois sites d'étude)

Site	D_a (μm)		$t_{1/2}$ (min)		$t_{1/10}$ (h)	
	Min	Max	Min	Max	Min	Max
Cadarache-SMPS	0,010	0,215	39	176	2,2	9,7
Cadarache-OPC	0,265	7	41	160	2,3	8,9
Gardanne	0,265	9,25	16	174	0,9	9,6
Grenoble	0,265	11,25	16	112	0,9	6,2

- Selon le type de pluie (résultats du site de Gardanne)

Pour illustrer la cinétique du lessivage représentative des différents types de pluie, les coefficients Λ_{macro} de Gardanne ont été utilisés puisqu'il s'agit de la base de données la plus complète. La figure 3-20 représente la valeur de la demi-vie d'efficacité de lessivage selon le type de pluie pour D_a compris entre 0,265 et 9,25 μm . Le tableau 3-6 regroupe l'étendue des valeurs de $t_{1/2}$ et de $t_{1/10}$ associées.

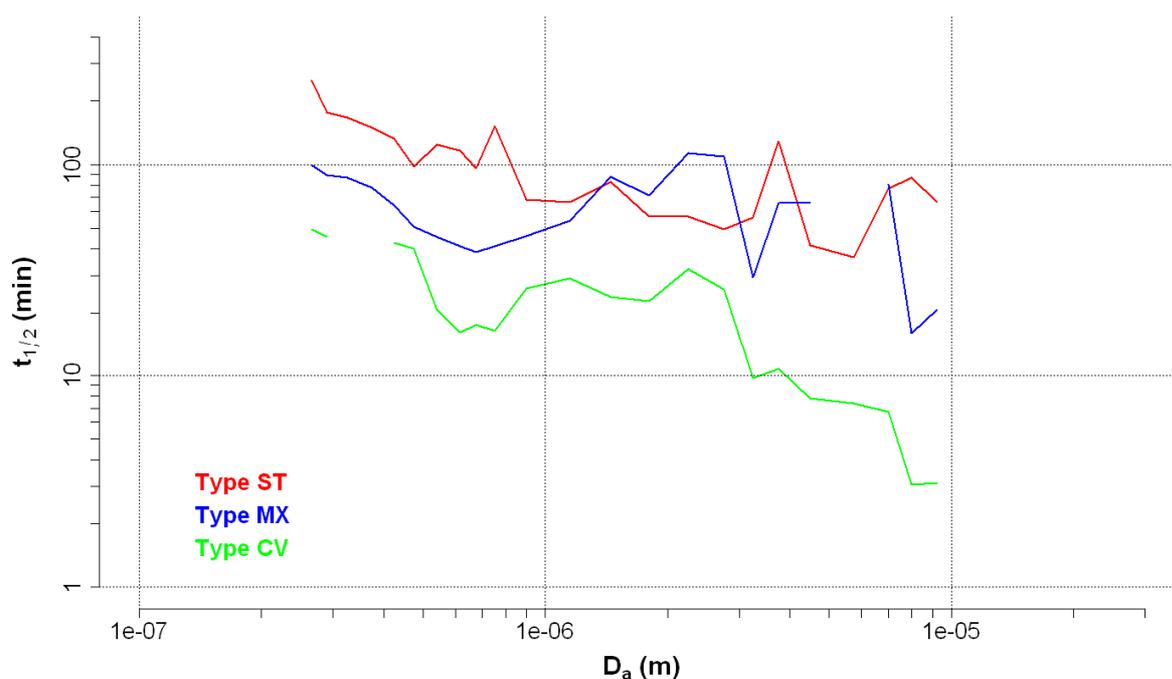


Figure 3-20 : $t_{1/2} = f(D_a)$ selon le type de pluie (site de Gardanne)

Les écarts observés sur les coefficients de lessivage en fonction du type de pluie (cf. section 3.5.2.2) sont là aussi plus explicites lorsque les valeurs de Λ_{macro} sont traduites en demi-vie d'efficacité du lessivage et en période de quasi-disparition. Ainsi, l'intérêt de différencier la cinétique du lessivage des pluies de type CVF des autres types de pluie est clairement mis en évidence. Pour des particules de diamètres supérieurs à 3 μm , la demi-vie d'efficacité de lessivage est inférieure à 10 minutes. Pour cette gamme de diamètre, la période de quasi-disparition est inférieure à 40 minutes, ce qui traduit une cinétique du lessivage très rapide pour ce type de pluie. Concrètement, si le lessivage est le seul processus intervenant et qu'il est constant, des orages tels qu'ils ont lieu régulièrement en région méditerranéenne durant l'été lessivent presque totalement l'atmosphère des grosses » particules en moins d'une heure (période de quasi-disparition $t_{1/10}$). Pour D_a compris entre 0,265 et 3 μm , le lessivage des pluies de type convectif est aussi très efficace, avec des valeurs de $t_{1/10}$ inférieures à 3 heures.

Concernant les pluies de type mixte et stratiforme, leur cinétique en termes de lessivage est similaire pour des particules supérieures à 1,15 μm de diamètre, avec des demi-vies d'efficacité de lessivage fluctuant autour d'une heure. Pour $D_a < 1,15 \mu\text{m}$, la différenciation entre les deux types de pluie est plus marquée, avec des valeurs de $t_{1/2}$ comprises entre 70 minutes et plus de 4 heures pour le type ST et entre environ 40 et 100 minutes pour le type MX.

Tableau 3-6 : Etendue des valeurs de $t_{1/2}$ et $t_{1/10}$ selon le type de pluie (site de Gardanne)

Type de pluie	$t_{1/2}$ (min)		$t_{1/10}$ (h)	
	Min	Max	Min	Max
ST	37	250	2	13,8
MX	16	113	0,9	6,3
CVF	3	50	0,2	2,8

3.5.4. $\Lambda_{\text{macro}} = f(D_a)$ pour les évènements neigeux

Concernant les chutes de neige et les précipitations mêlant neige et pluie, peu d'évènements des deux types ont été enregistrés à Cadarache entre octobre 2010 et février 2013, avec seulement 4 et 3 évènements respectivement. Une fois la méthode de sélection appliquée à ces données, il ne reste plus aucune valeur de Λ_{macro} exploitable pour les deux types de précipitations. Dans le cas de Grenoble, 16 chutes de neige et 24 évènements « hybrides » (mélange de flocons de neige et de gouttes d'eau) ont été enregistré entre décembre 2011 et mars 2013. La figure 3-21 représente le coefficient de lessivage Λ_{macro} en fonction du

diamètre D_a des particules pour les événements neigeux et « hybrides » sélectionnés par la méthode décrite précédemment. Les valeurs moyennes des coefficients Λ_{macro} des deux types de précipitations sont aussi indiquées.

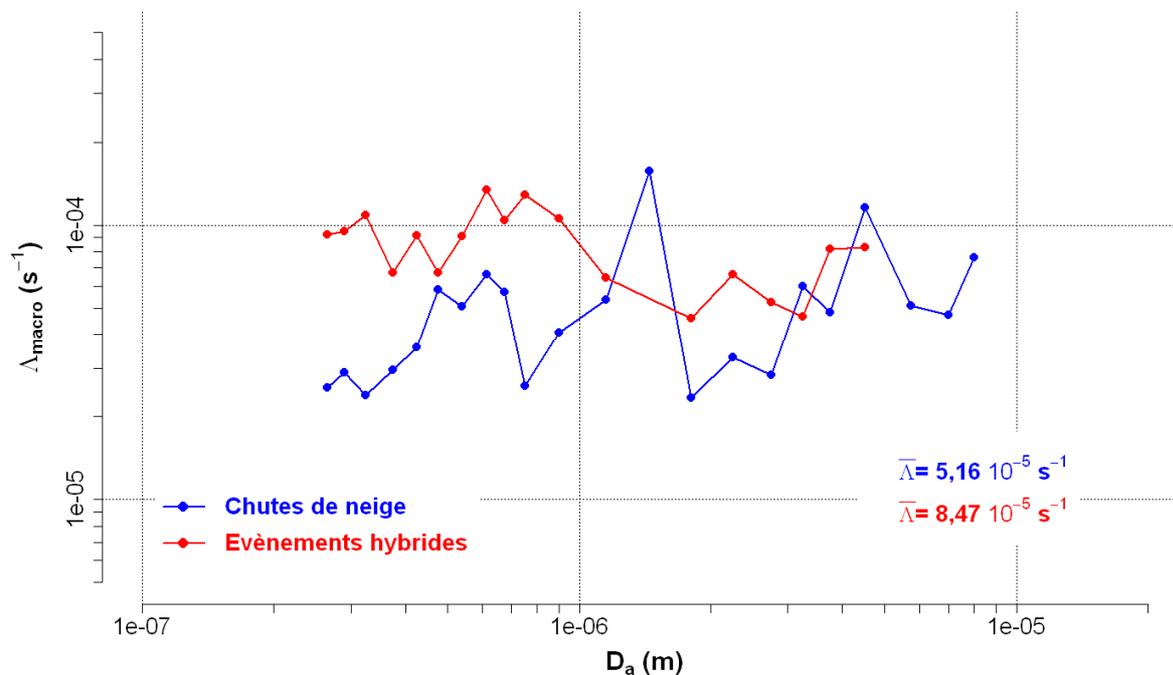


Figure 3-21 : $\Lambda_{\text{macro}} = f(D_a)$ pour les chutes de neige et les événements « hybrides » (site de Grenoble)

Le coefficient de lessivage Λ_{macro} moyenné sur l'ensemble des diamètres D_a pour les événements « hybrides » est supérieur à la valeur moyenne pour les événements neigeux. Cela est cohérent avec de précédentes études du lessivage par la neige en conditions in situ (Paramonov et al., 2011). Cependant, pour chaque type d'événements, les valeurs de Λ_{macro} ne présentent pas de dépendance avec le diamètre des particules d'aérosol. Locatelli et Hobbs (1974) ont mesuré la masse, les dimensions et la vitesse de chute de 22 types de flocons de neige. Ils ont montré que contrairement aux pluies qui sont uniquement formées de gouttes d'eau (considérées dans la plupart des cas comme sphériques), les hydrométéores qui composent les chutes de neige peuvent être de structures très différentes. Cette variabilité des caractéristiques microphysiques des hydrométéores entre les différents événements neigeux ou entre les différents événements « hybrides » peut expliquer qu'aucune relation claire entre le coefficient Λ_{macro} et le diamètre D_a ne puissent être établie pour ces deux types de précipitations. Moyenner les valeurs de Λ disponibles ne peut pas s'appliquer ici pour lisser ces divergences au vu du faible nombre d'événements

retenus par la méthode de sélection décrite précédemment (une dizaine au maximum), et les résultats présentés ici doivent être considérés avec précaution.

3.5.5. Comparaison des résultats

3.5.5.1. Pluie de faible intensité

3.5.5.1.1. Eléments de comparaison

Théorie

La relation théorique entre le coefficient de lessivage Λ_{th} et le diamètre D_a des particules d'aérosol est calculée à partir de l'équation (12). Pour rappel, si l'on considère un spectre de gouttes d'eau monodispersé :

$$\Lambda_{th}(D_a) = \frac{3 E_{tot} I}{2 D_g} \quad (27)$$

L'efficacité de collecte totale E_{tot} donnée par Wang et al. (2010, figure 1) est utilisée. Cette efficacité prend en compte la contribution des effets de collecte mécanique, phorétique et électrique. Le diamètre des gouttes D_g est fixé à 1 mm en tant que diamètre moyen caractéristique des trois types de pluies. Les valeurs de I_{macro} (tableau 3-3) étant de l'ordre de 1 mm h^{-1} , nous prenons cette valeur pour le calcul de Λ_{th} .

Etudes in situ

Parmi les différentes études in situ sur le lessivage déjà menées, nous choisissons de comparer nos résultats avec ceux publiés par Volken et Schumann (1993) et par Laakso et al. (2003). Il s'agit de deux études très similaires à la notre en termes de méthodologie pour le calcul de Λ , d'instrumentation utilisée pour la mesure des concentrations de particules d'aérosol ou de variété des précipitations durant lesquelles les mesures ont été faites. De plus, les pluies étudiées ont en moyenne une intensité de 0,8 et 0,94 mm h^{-1} respectivement. Ces valeurs sont comparables aux intensités pluviométriques moyennes des pluies (tableau 3-3) qui ont été retenues dans notre étude. La conjugaison de ces deux jeux de données nous permet aussi de comparer des coefficients de lessivage sur un spectre granulométrique correspondant aux mesures faites sur le site de Cadarache.

Paramétrisation IRSN

Pour estimer les dépôts par le lessivage, l'IRSN utilise actuellement dans son modèle de dispersion atmosphérique IdX une paramétrisation du coefficient de lessivage de la forme $\Lambda = a \cdot I$ qui est indépendante du diamètre D_a des particules (Saunier et al., 2013). Pour les particules d'aérosol, le coefficient a est une constante fixée à $5.10^{-5} \text{ h mm}^{-1} \text{ s}^{-1}$ et I est l'intensité pluviométrique que nous fixons à 1 mm h^{-1} (intensité moyenne similaire à celle mesurée sur le site de Cadarache).

3.5.5.1.2. Discussion

Les différentes relations $\Lambda = f(D_a)$ sont représentées sur la figure 3-22.

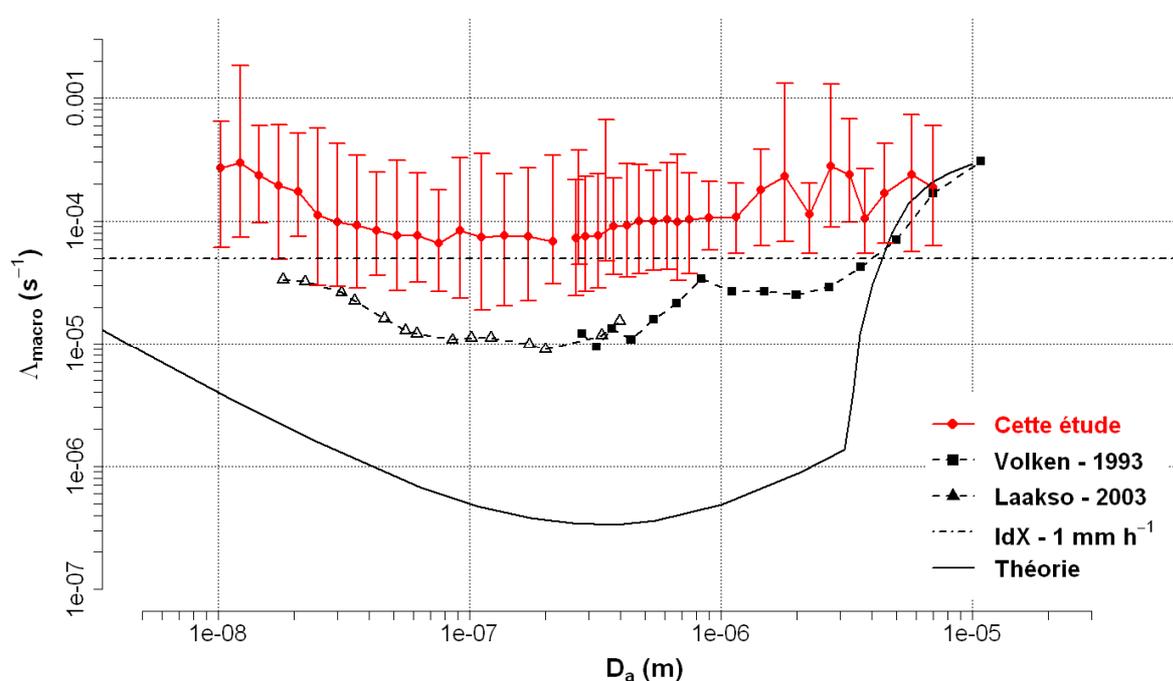


Figure 3-22 : Comparaison des coefficients de lessivage Λ (pluies de faibles intensités)

L'écart entre nos résultats et la théorie est important, avec au maximum une différence de 2 ordres de grandeur. Cet écart devient mineur pour $D_a > 4 \mu\text{m}$, lorsque la collecte des particules par les gouttes de pluie est largement dominée par l'impaction inertielle. Cette divergence entre les résultats issus de mesures dans l'environnement et les résultats déterminés à partir de la théorie est observée dans toutes les études du lessivage en conditions *in situ*. Son amplitude varie de un à deux ordres de grandeur selon les études et la relation théorique employée pour calculer Λ_{th} . La comparaison de la variabilité respective des deux courbes donne des résultats intéressants. Entre 10 et 215 nm, les coefficients Λ_{th}

varie d'un facteur 10, tandis que dans cette gamme de taille, la variabilité des valeurs de Λ_{macro} est d'un facteur 4. Entre 215 nm et 3 μm , la variabilité des deux jeux de données est identique, avec un ratio de 3,6 pour les valeurs de Λ_{th} et de 3,5 pour les valeurs de Λ_{macro} .

Pour la gamme de taille nanométrique, l'écart entre les coefficients de lessivage moyens de cette étude et ceux de Laakso est significatif. Les valeurs varient d'un facteur 4 à 8 selon le diamètre considéré. Pour $D_a > 215$ nm, l'écart avec les valeurs moyennes de Volken est compris entre environ 1 et 6,3 et est d'autant plus faible que le diamètre D_a augmente. En prenant en compte la variabilité de nos valeurs, les écarts observés sont bien plus faibles. Là encore, la variabilité des coefficients Λ entre les données des précédentes études d'une part et les nôtres d'autre part est similaire. Le rapport entre les valeurs maximale et minimale de Λ est de 3,8 pour les données de Laakso (entre 18 et 215 nm) et de 3 pour les données de Volken (valeurs extrapolées entre 215 nm et 3 μm), contre respectivement 4 et 3,5 pour nos données.

Qu'il s'agisse de l'écart entre nos résultats et la théorie d'une part ou les résultats de précédentes études in situ d'autre part, les disparités observées sont comparables quelque soit le diamètre des particules d'aérosol. Concernant les études in situ, la sous-estimation de la composante « puits » ou « sources » par l'advection peut être à l'origine de cet écart relativement constant. Dans les études de Volken et Laakso, ce phénomène est négligé en rejetant les événements durant lesquels des changements rapides de conditions atmosphériques (température, pression, direction et vitesse du vent) sont mesurées. Cette sélection est *a priori* possible car au vu de la situation géographique des sites d'études (Mont Rigi en Suisse pour Volken et la station SMEAR II en Finlande pour Laakso), les auteurs considèrent que l'impact des sources locales d'émissions de particules est négligeable. L'advection n'a donc potentiellement qu'un rôle de « puits » sur les données puisqu'il n'y a pas de matière apportée par le vent. Toutefois, aucune quantification de l'influence de l'advection sur les valeurs de Λ (calcul de Λ_{para}) n'a été faite. Si les sources locales impactent en réalité les concentrations en particules sur ces sites, les valeurs de Λ dans ces études sont potentiellement sous-estimées par rapport aux « vrais » coefficients.

A partir des données dont nous disposons, il est difficile de différencier les effets des sources d'émissions de celui de l'advection. Nous prenons comme hypothèse que les phénomènes « concurrents » sont très variables avec le temps et que cette fluctuation entraîne la non-convergence des coefficients $\Lambda(t)$. Nous gardons donc les données pour lesquelles une convergence claire est établie. Cependant, les conditions de vent peuvent avoir pour conséquence une augmentation significative des coefficients Λ_{macro} (cf. figure 3-12). Il est donc possible que des conditions de vent stationnaires (vitesse et direction constante) puissent se traduire aussi par une convergence des coefficients Λ_{macro} .

Considérer le coefficient de lessivage comme indépendant du diamètre des particules peut entraîner une sous-estimation du dépôt par lessivage non négligeable, avec un rapport entre nos résultats et la paramétrisation IRSN qui varie d'un facteur 1,3 à 4. En particulier, dans le cas d'un accident nucléaire, prendre en compte cette dépendance de Λ en fonction de D_a est importante. La plupart des études indiquées dans le tableau 1-1 ont mesuré des AMAD inférieurs à 1 μm pour les radionucléides artificiels (^{131}I , ^{137}Cs et ^{134}Cs). Dans ce cas, ne pas prendre en compte le diamètre des particules dans la paramétrisation du coefficient de lessivage implémenté dans IdX entraîne une erreur modérée (sous-estimation d'un facteur 1,5 à 2,1) sur les valeurs de Λ pour des pluies de faibles intensités. Cependant, lorsque les particules porteuses de la radioactivité sont directement issues de la centrale, les AMAD peuvent être très différents. Des mesures faites dans l'environnement immédiat du sarcophage du réacteur 4 de la centrale de Tchernobyl 20 ans après l'accident ont déterminé des AMAD de 2,2 μm pour le césium-137 et compris entre 3,5 et 11 μm pour le plutonium-239+240 (Garger et al., 2006). De même, suite à l'accident de Fukushima, des mesures faites à Tsukuba (180 km au Sud-Est de la centrale de Fukushima-Daiichi) ont montré que dans le cas du césium, l'AMAD pouvait être supérieur à 1 μm (Doi et al., 2013). D'autres prélèvements faits à Tsukuba ont aussi montré que des particules d'environ 2 μm issues de la centrale de Fukushima étaient porteuses d'une très forte activité en césium (Adashi et al., 2013). Pour cette gamme de taille, la sous-estimation des valeurs de Λ par le modèle est significativement plus importante, avec un écart variant de 2 (pour 1 μm) à 4 (pour 7 μm).

3.5.5.2. Pluie de forte intensité

Sur la figure 3-22, la comparaison entre les différentes études concerne des événements pluvieux de faible intensité (I de l'ordre de 1 mm h^{-1}). Dans cette étude, les pluies de type convectif sont caractérisées par une intensité moyenne d'environ 12 mm h^{-1} . Puisqu'il y a peu de différences entre les résultats des trois sites pour les pluies de type CVF, ces données sont compilées. Pour comparer ces valeurs de Λ_{macro} dans le cas des pluies CVF, nous choisissons d'utiliser des jeux de données présentant des caractéristiques équivalentes en termes de régime pluviométrique (figure 3-23) :

- Calcul de Λ_{th} avec $I = 12 \text{ mm h}^{-1}$
- Tschiersch et al. (1995, fig. 1.2) pour une pluie de 10 mm h^{-1}
- Chate et Pranesha (2004, fig.5) pour une pluie d'une intensité de presque 20 mm h^{-1}
- Modèle IdX de l'IRSN avec $I = 12 \text{ mm h}^{-1}$

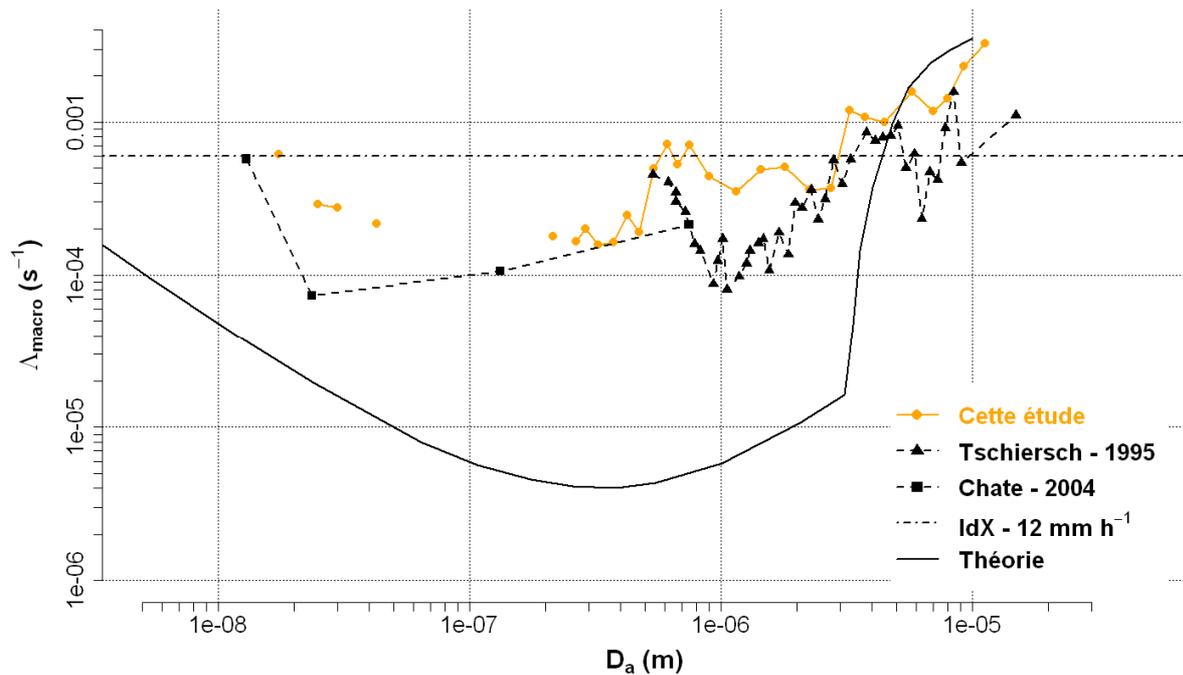


Figure 3-23 : Comparaison des coefficients de lessivage Λ (pluies de fortes intensités)

Dans le cas des pluies de fortes intensités, la différence entre les coefficients Λ_{macro} et les coefficients Λ_{th} reste importante, avec au plus un écart de deux ordres de grandeur d'écart. Cette différence est minimale pour les grosses particules, supérieur à 4 μm de diamètre. Les observations sur la forme des courbes sont identiques que celles faites pour les pluies de faibles intensités.

L'accord entre nos résultats et ceux de précédentes études *in situ* est bien meilleur que précédemment. Si on extrapole les coefficients Λ_{macro} entre 10 et 215 nm à partir des quelques valeurs disponibles, nos valeurs sont supérieures à celles de Chate au maximum d'un facteur 4. Pour $D_a > 215$ nm, l'accord entre nos données et celles de Tschiersch est globalement bon (écart maximum d'un facteur 3,6). Les caractéristiques des pluies de type convectif (et de forte intensité en général) peuvent expliquer que l'on retrouve un accord relatif des résultats pour ces pluies et pas pour les pluies de faibles intensités. En effet, les pluies de type CVF sont en moyenne d'une durée courte comparée aux types MX et ST (respectivement 90, 150 et 170 minutes). La variabilité des temps de pluies dans le cas des pluies CVF est aussi plus faible que le cas des pluies de type stratiforme (cv de 1 contre 1,5). Le régime pluviométrique durant les pluies CVF va donc être intense et relativement constant durant peu de temps. Il est donc possible de supposer que l'action du lessivage durant ces pluies va être constante et d'une amplitude suffisante pour atténuer les effets des phénomènes « concurrents » durant toute la durée de l'évènement. Cela peut expliquer pourquoi, malgré les conditions *in situ* très différentes dans lesquelles les études ont été

faites (proximité des sources locales, conditions atmosphériques, type d'aérosols...), la convergence des résultats est bonne pour les pluies de forte intensité en particulier et pas pour les pluies de faible intensité.

Concernant la paramétrisation utilisée par l'IRSN, le modèle IdX surestime le dépôt par lessivage d'un facteur maximum de 4 pour D_a compris entre 10 nm et 3 μm . Au-delà, les coefficients Λ calculés par IdX sont inférieurs à nos résultats d'un facteur maximum de 5. Selon la gamme de taille considérée pour l'AMAD des radionucléides artificiels (cf. tableau 1-1), le modèle surestime les valeurs de Λ d'un facteur maximum d'environ 3 (pour la gamme [0,3 - 0,8] μm) ou sous-estime ces valeurs d'un facteur de 5 (pour des particules de diamètre supérieur à 1 μm).

3.6. Conclusions

Dans cette partie, une méthodologie pour sélectionner les événements pluvieux pour lesquels le lessivage est considéré comme le phénomène dominant la dynamique des particules d'aérosol a été définie. Le coefficient de lessivage Λ_{macro} à partir des mesures faites sur les sites de Cadarache, Gardanne et Grenoble a été calculé sur une large gamme de diamètre de particules d'aérosol et pour des pluies aux caractéristiques distinctes. Les résultats sont homogènes quel que soit le site. En corrigeant l'effet des fluctuations liées au principe de mesure du SMPS, la cohérence des coefficients Λ_{macro} pour des particules d'aérosol de taille nanométrique à supermicronique a été clairement mise en évidence. Même si nos résultats n'ont pas permis d'illustrer une paramétrisation robuste entre le coefficient de lessivage et l'intensité pluviométrique, la classification des pluies établie au chapitre 2 (section 2.3.4.2) se révèle pertinente pour distinguer les potentiels de lessivage des pluies courtes et intenses (pluies convectives) d'une part vis-à-vis de pluies longues et faibles ou caractérisées par des pics d'intensité violents mais brefs (type stratiforme et mixte) d'autre part.

Pour expliciter de manière plus tangible les potentiels de lessivage, les coefficients Λ_{macro} ont été traduits en durées au bout desquelles la moitié ou la quasi-totalité de la concentration initiale en particules d'aérosol est lessivée (demi-vie d'efficacité de lessivage $t_{1/2}$ et période de quasi-disparition $t_{1/10}$). L'utilisation de ces valeurs a clairement mis en évidence l'intérêt de distinguer les potentiels de lessivage en fonction du diamètre des particules ainsi qu'en fonction du type de pluie.

Qu'il s'agisse de pluies de faibles ou de fortes intensités, la comparaison de nos résultats a montré une divergence importante avec les résultats théoriques, avec un désaccord de un à deux ordres de grandeur. Concernant la comparaison avec différentes études *in situ*, l'accord est relativement bon compte tenu de la variabilité des données. Pour des pluies

considérées comme faibles (intensité pluviométrique moyenne de l'ordre de 1 mm h^{-1}), nos valeurs sont supérieures d'un facteur 10 au maximum, tandis que pour les pluies considérées comme fortes (intensité de l'ordre de $10 \text{ à } 20 \text{ mm h}^{-1}$), cet écart est au plus d'un facteur 4.

Selon le type de pluie et la gamme de taille des particules, le désaccord entre nos résultats et les coefficients Λ calculés par le modèle IdX diffère. Pour les pluies de faible intensité, le modèle sous-estime les potentiels de lessivage d'un facteur 2 (pour la gamme $[0,3 - 0,8] \mu\text{m}$) à 4 (pour les particules supérieures à $1 \mu\text{m}$). Dans le cas des pluies intenses, le modèle surestime les coefficients Λ d'un facteur 4 (pour la gamme $[0,3 - 0,8] \mu\text{m}$) et il sous-estime ces coefficients pour les « grosses » particules (plus de $1 \mu\text{m}$ de diamètre). Selon que l'on se place loin de la source de contamination (AMAD porté par le mode accumulation) ou en champ proche (présence potentielle de « grosses » particules chaudes), la paramétrisation utilisée par l'IRSN pour calculer le coefficient de lessivage entraîne une erreur significative.

3.7. Intérêt d'une nouvelle approche du lessivage en conditions *in situ*

Déterminer le potentiel de lessivage des particules d'aérosol atmosphérique en conditions *in situ* par une approche « macroscopique » s'avère être problématique. Les sources d'émissions de particules à proximité des trois sites de mesures en sont la cause principale. La variabilité temporelle et l'hétérogénéité spatiale des émissions de particules génèrent des artefacts qui rendent difficile la sélection des événements pluvieux par l'utilisation de critères de sélection basés sur les conditions météorologiques notamment. Cette variabilité se traduisant par une fluctuation importante des coefficients $\Lambda(t)$, nous prenons donc comme hypothèse que les processus « concurrents » peuvent être considérés comme négligeables pour les cas où les valeurs de $\Lambda(t)$ varient peu par rapport à la valeur de Λ_{macro} . Cette méthode de sélection est cependant soumise à certaines limitations :

- Tout d'abord, la variabilité à l'échelle macroscopique des caractéristiques des pluies est potentiellement très importante, notamment en ce qui concerne l'intensité pluviométrique. Par définition, une approche « macroscopique » du lessivage ne permet pas d'appréhender l'impact de ces fluctuations sur le coefficient de lessivage Λ_{macro} . La méthodologie employée ici ne paraît pas être la meilleure solution pour établir une paramétrisation entre le coefficient de lessivage et l'intensité pluviométrique.
- De plus, la comparaison de ces résultats avec de précédentes études *in situ* fait apparaître des désaccords modérés mais significatifs qui pourraient être attribués à

l'effet de l'advection. Cependant, dans toutes ces études, l'impact des phénomènes « concurrents » durant les pluies n'est pas quantifié réellement. Cet impact est négligé en se basant sur des hypothèses indirectes (critères de sélection ou étude de l'évolution temporelle des coefficients Λ). Sans cette caractérisation précise, il est délicat de certifier quels sont les causes des désaccords entre ces études.

- Enfin, le nombre d'évènements pluvieux retenus après estimation de la convergence des coefficients $\Lambda(t)$ dépend fortement du nombre total de pluies recensées. Si cet échantillon de base est faible, les coefficients de lessivage Λ_{macro} sont moyennés sur peu de valeurs. Cette remarque est particulièrement valable concernant les résultats pour les particules d'aérosol de diamètre supérieur à 1 μm , pour une classification des coefficients Λ_{macro} selon le type de pluie (cas des pluies CVF notamment) ou pour l'étude du lessivage par la neige.

A l'échelle « macroscopique », la balance entre l'effet du lessivage et celui des phénomènes « concurrents » peut être très fluctuante. Il en résulte une succession de phases durant lesquelles soit les phénomènes « concurrents » sont dominants soit le lessivage est le processus prépondérant sur la dynamique des particules d'aérosol par temps humide. Considérer le temps T_{macro} dans le calcul de Λ_{macro} entraîne les limitations décrites précédemment et ne permet pas d'identifier ces phases. Estimer le lessivage sur des périodes de temps de pluie plus courtes et ne plus considérer l'entièreté des évènements peut donc être une solution. La résolution temporelle des instruments utilisés pour mesurer les concentrations de particules d'aérosol et les caractéristiques des précipitations est de l'ordre d'une minute. Utiliser cette propriété des appareils est une piste intéressante pour s'affranchir des restrictions engendrées par l'approche « macroscopique ».

CHAPITRE 4 : CARACTERISATION DU LESSIVAGE PAR UNE APPROCHE « INTRA-EVENEMENTIELLE »

Dans cette section, le lessivage est étudié en décomposant les précipitations en courtes phases pour lesquelles les mesures de concentrations in situ et les calculs théoriques sont comparés.

4.1. Définition de l'approche

Pour pallier les limitations inhérentes à l'approche « macroscopique », on se propose de calculer le coefficient de lessivage sur des périodes de temps plus courtes que la durée totale de l'évènement précipitant (quelques dizaines de minutes à quelques heures). Cela vise en particulier à soustraire les phases pendant lesquelles les phénomènes « concurrents » identifiés dans le chapitre précédent ont une influence. De même, sur des phases brèves, les éventuelles corrélations entre l'intensité des précipitations et le coefficient de lessivage seront plus facilement mises en évidence que sur des périodes où l'intensité fluctue. La granulométrie des particules d'aérosol est mesurée avec une résolution temporelle d'une minute pour les diamètres supérieurs à 0,265 µm et de cinq minutes pour $D_a < 215$ nm. Le disdromètre donne aussi toutes les minutes les informations relatives à l'intensité des précipitations. En se basant sur ces spécifications, une nouvelle approche pour déterminer le potentiel de lessivage est proposée.

Dans le cas de l'approche « macroscopique », les précipitations sont considérées comme des évènements unitaires. Dans cette nouvelle approche qualifiée d'« intra-évènementielle », chaque précipitation est décomposée en une succession de périodes (ou phases) de croissance ou de décroissance des concentrations particulières. Pour chaque évènement, ces phases sont identifiées en dérivant les mesures de granulométrie de l'aérosol durant les précipitations. Chacune des phases de décroissance est ensuite considérée comme un sous-évènement pour lequel un coefficient de lessivage Λ_{intra} est calculé tel que :

$$\Lambda_{intra}(D_a) = \frac{1}{T_{intra}} \ln\left(\frac{c_1(D_a)}{c_2(D_a)}\right) \quad (28)$$

T_{intra} est la durée de la phase considérée ; c_1 et c_2 respectivement les concentrations initiale au temps t_1 (début de la phase) et finale au temps t_2 (fin de la phase).

En ne considérant que les phases de décroissance, l'effet des « sources » est réduit puisqu'il contribue à une augmentation des concentrations particulières. Cependant, les phases de décroissance peuvent aussi bien refléter simultanément l'action du lessivage que celui des

phénomènes « concurrents ». Il faut donc comme dans le cas de l'approche « macroscopique » déterminer une méthode permettant de ne sélectionner que les coefficients Λ_{intra} les moins biaisés par ces phénomènes. A l'échelle de plusieurs heures, quantifier l'influence des « puits » n'est pas possible à partir des données disponibles (cf. section 3.4.3.2). Pour des périodes de quelques dizaines de minutes (période typique des phases de décroissance), cette qualification est encore moins pertinente. La sélection des coefficients Λ_{intra} repose donc sur la comparaison des mesures obtenues *in situ* avec la relation théorique décrivant l'évolution temporelle des concentrations en particules d'aérosol sous l'effet du lessivage. Pour rappel, cette relation s'exprime de la manière suivante :

$$c_{th}(D_a, t) = c_0(D_a) * \exp(-\Lambda * t) \quad (29)$$

A partir de la valeur de Λ_{intra} calculé par l'équation (28), les valeurs des concentrations théoriques c_{th} sont calculées pour chaque phase telles que :

$$c_{th}(D_a, t) = c_1(D_a) * \exp(-\Lambda_{intra} * T_{intra}) \quad (30)$$

Les valeurs expérimentales c_{mes} sont ensuite comparées aux valeurs théoriques c_{th} et seules les phases pour lesquelles cette correspondance est bonne sont sélectionnées. Un indicateur statistique, le biais moyen normalisé (BMN), employé en modélisation (Russel et Dennis, 2000) est utilisé pour évaluer le degré de similitude entre les données expérimentales $c_{mes}(D_a, t)$ et les valeurs calculées $c_{th}(D_a, t)$. Ainsi, pour chaque phase le BMN est calculé tel que :

$$BMN(D_a) = \frac{1}{T_{intra} - 2} * \sum_{t=t_1+1}^{t=t_2-1} \frac{c_{th}(D_a, t) - c_{mes}(D_a, t)}{c_{mes}(D_a, t)} \quad (31)$$

Pour illustrer la méthode de l'approche « intra-événementielle », une pluie enregistrée entre le 4 et le 5 novembre 2011 sur le site de Cadarache est pris comme exemple (figure 4-1).

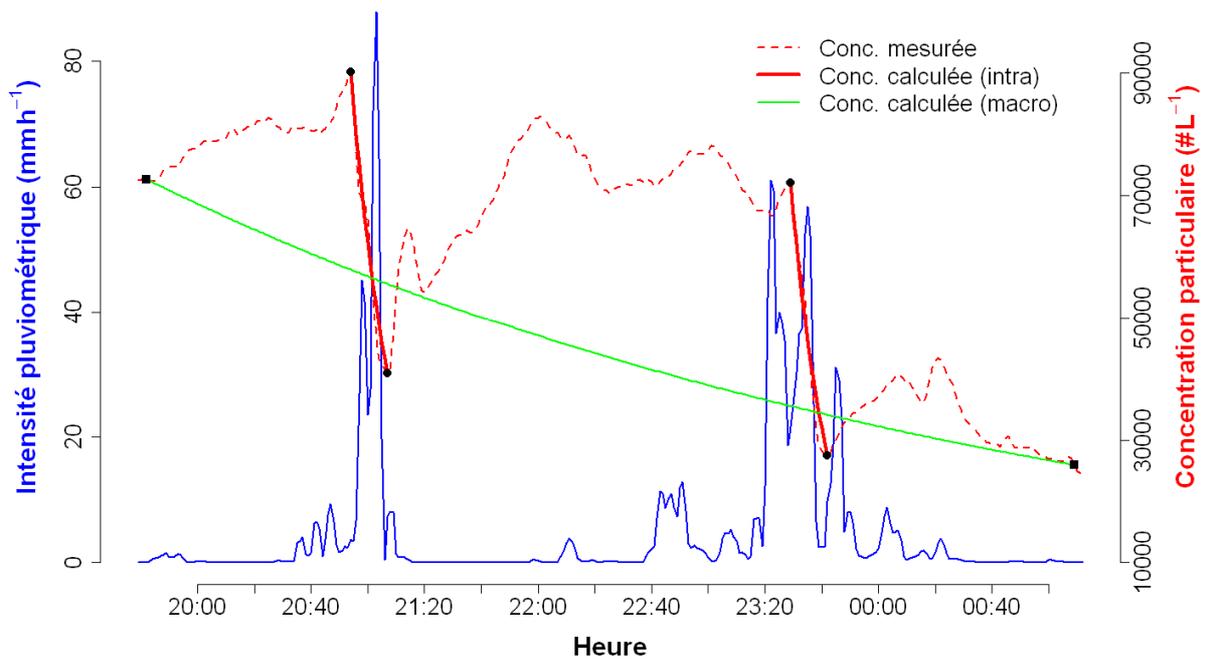


Figure 4-1 : Illustration de la méthodologie de l'approche « intra-événementielle »

La courbe verte représente l'évolution temporelle des concentrations particulières c_{th} calculées à partir du coefficient Λ_{macro} utilisé au chapitre précédent. Malgré une nette diminution de la concentration entre le début et la fin de l'évènement, les mesures *in situ* (courbe tiretée rouge) ne correspondent pas à l'évolution théorique. Une analyse « intra-événementielle » de cette pluie se révèle donc nécessaire. Deux phases dont le début et la fin sont symbolisées par des ronds noirs sont considérées à titre d'exemple. Les coefficients Λ_{intra} sont calculés pour ces deux périodes de décroissance ainsi que les valeurs $c_{th}(t)$ (courbes pleines rouges). Comme l'illustre la figure 4-2, dans ces deux cas, les mesures de concentration particulaire c_{mes} concordent bien avec les valeurs c_{th} calculées, avec un BMN de 3,1% pour la phase 1 et de 3,3% pour la phase 2.

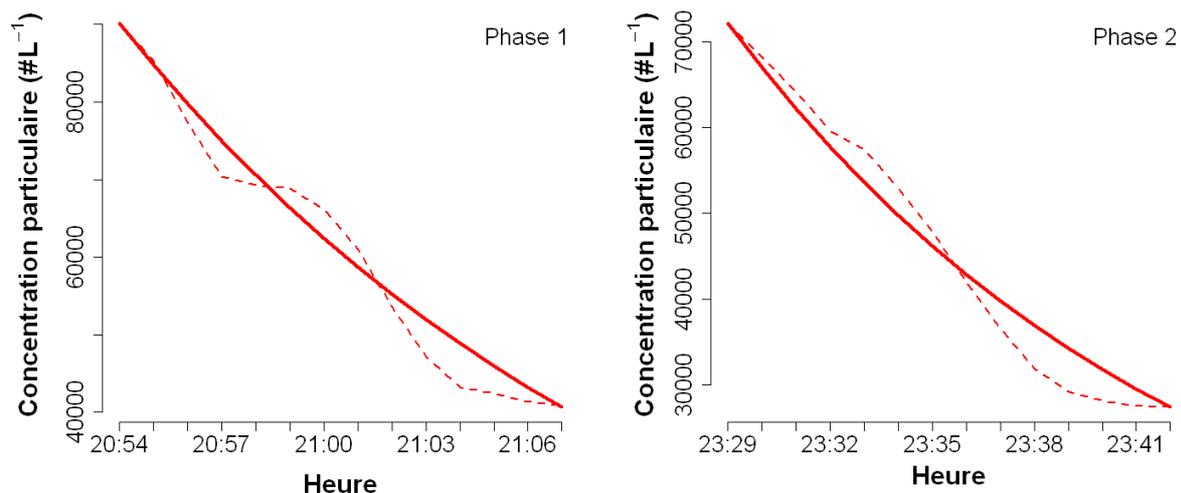


Figure 4-2 : Comparaison des concentrations particulaires entre mesures et calculs pour deux exemples de phases

L'approche « intra-événementielle » présente ainsi trois avantages principaux par rapport à l'approche « macroscopique » :

Tout d'abord, l'étude du lessivage de la neige selon une approche « macroscopique » n'est possible que sur un nombre très restreint d'évènements. Les résultats obtenus (cf. section 3.5.4) sont donc à prendre avec précaution. Cependant la durée totale de chutes de neige enregistrée sur le site de Grenoble est conséquente, avec un total d'environ 152 heures de mesures. Sur cette période de temps, le nombre de sous-événements exploitables pour déterminer les potentiels de lessivage induits par la neige est potentiellement important.

Ensuite, la sélection des coefficients Λ_{intra} se fait par la comparaison des mesures *in situ* c_{mes} avec les valeurs calculées c_{th} . Les critères de sélection sont uniquement basés sur la correspondance entre ces deux jeux de données sans qu'il soit nécessaire de les coupler avec d'autres bases de données (notamment météorologiques).

Enfin, dans le cas de l'approche « macroscopique », la base de données des coefficients de lessivage exploitables dépend fortement du nombre de précipitations recensées. En fractionnant ces précipitations en sous-événements considérés comme des entités à part entière, la méthode employée dans l'approche « intra-événementielle » permet de disposer d'un nombre plus important de données à exploiter. De la même manière que dans le cas de l'approche « macroscopique », la méthodologie employée dans cette approche « intra-événementielle » ne permet pas de quantifier les phénomènes « concurrents ». Pour les phases sélectionnées, la décroissance exponentielle des concentrations peut donc éventuellement être aussi bien l'effet du lessivage que le résultat des effets de l'advection et/ou d'autres phénomènes « concurrents » de type puits ou source. Mais ces phénomènes ne suivent pas *a priori* la même loi mathématique (*a fortiori* pas une loi exponentielle). Ils

découlent plus d'un certain degré de « chaos » lié à la variabilité des sources et des conditions atmosphériques. Toutefois, appuyer les résultats sur un très nombre de coefficients Λ_{intra} permet de minimiser le risque de prendre en compte des périodes où le lessivage n'est pas le processus prédominant.

4.2. Critères de sélection des données

4.2.1. Evènements pluvieux

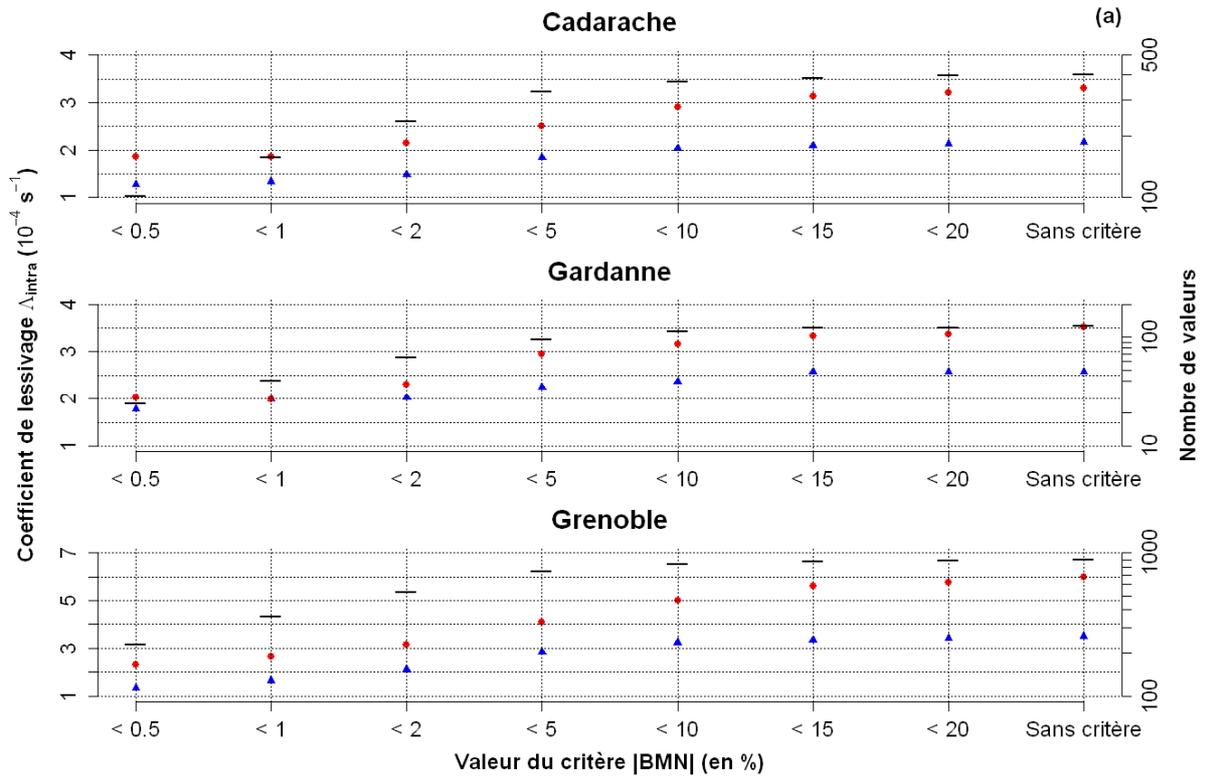
4.2.1.1. *Biais moyen normalisé BMN*

Pour identifier les phases durant lesquelles la correspondance entre les valeurs calculées c_{th} et les mesures c_{mes} obtenues *in situ* est bonne, il est nécessaire de déterminer une valeur limite du BMN pour filtrer les données brutes. Pour choisir cette valeur, une étude de sensibilité de la valeur de Λ_{intra} en fonction de différentes valeurs seuils de BMN est faite.

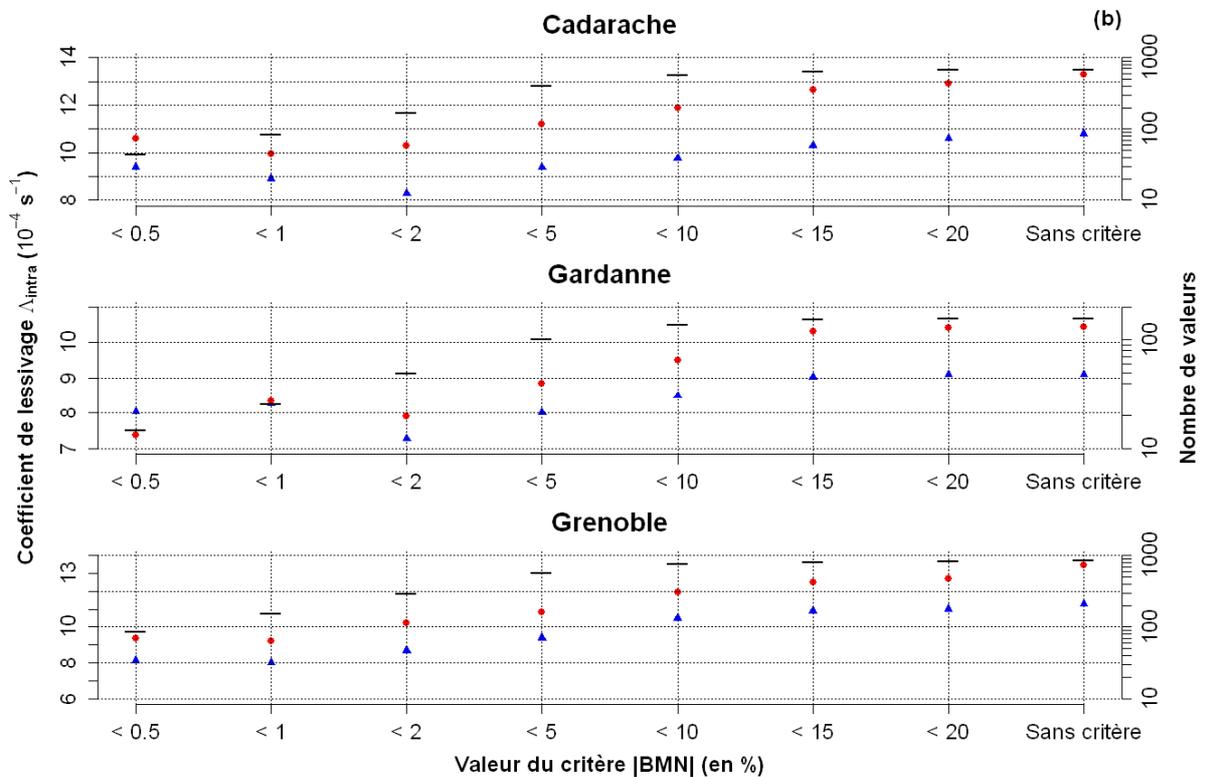
- Mesures OPC

Pour trois diamètres D_a (0,265, 0,9 et 4,5 μm) et pour les trois sites de mesure, la figure 4-3 représente les valeurs médianes (triangle bleu) et moyennes (point rouge) des coefficients de lessivage Λ_{intra} selon la valeur absolue du BMN utilisée pour filtrer les données brutes. La taille de l'échantillon statistique des coefficients Λ_{intra} (trait horizontal noir) qui satisfait chacun des critères est aussi représentée sur les graphiques (ordonnée de droite).

- Pour $D_a = 0,265 \mu\text{m}$



- Pour $D_a = 0,9 \mu\text{m}$



- Pour $D_a = 4,5 \mu\text{m}$

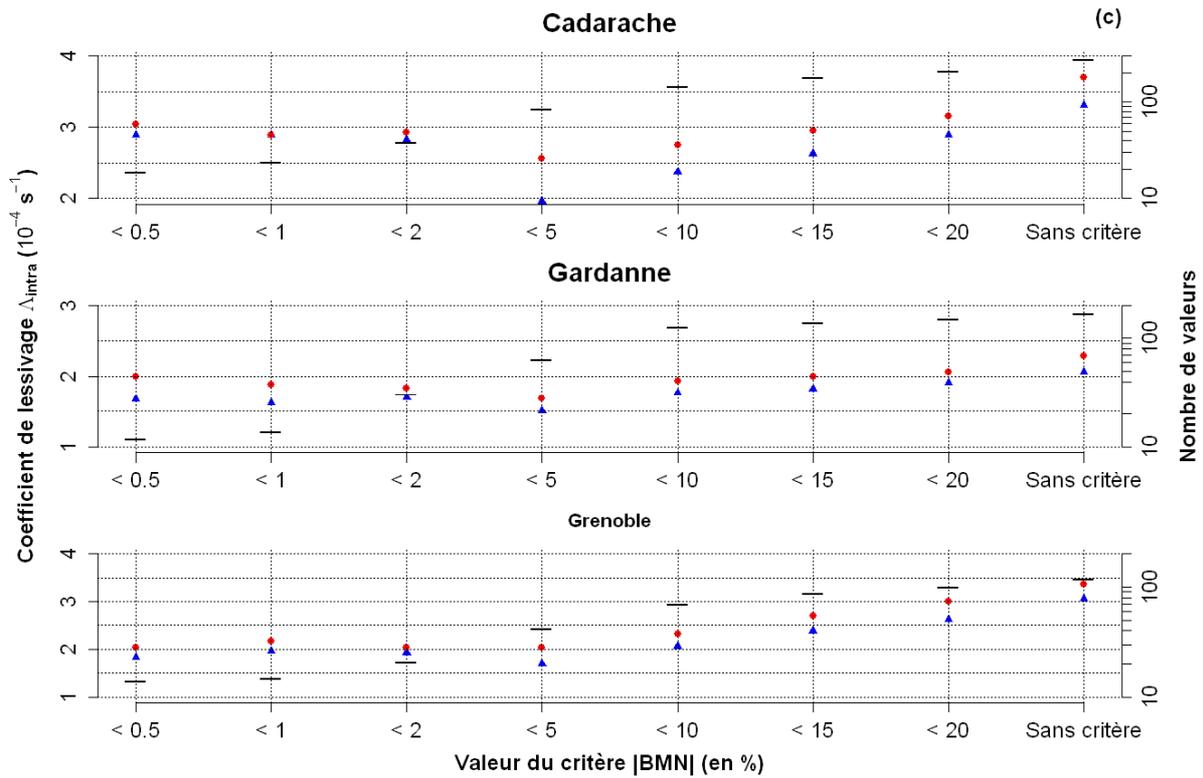


Figure 4-3 : Influence du critère |BMN| sur les valeurs de Λ_{intra} pour les phases de pluie (mesures OPC, trois sites d'étude)

(a) $D_a = 0,265 \mu\text{m}$; (b) $D_a = 0,9 \mu\text{m}$; (c) $D_a = 4,5 \mu\text{m}$

Dans le cas des trois sites, pour $D_a = 0,265 \mu\text{m}$, les valeurs moyennes et médianes de Λ_{intra} augmentent de manière significative entre les critères « < 2% » et « < 10% ». Pour les seuils de |BMN| inférieurs, ces valeurs sont relativement constantes. Pour les seuils supérieurs, les coefficients Λ_{intra} sont équivalents aux valeurs brutes (sans critère de sélection). Ce constat est aussi valable pour $D_a = 0,9 \mu\text{m}$. Pour $D_a = 4,5 \mu\text{m}$, entre les critères « < 0,1 » et « < 0,5 », les valeurs moyennes et médianes diminuent pour les sites de Cadarache et Gardanne et elles sont équivalentes dans le cas de Grenoble. Les coefficients Λ_{intra} moyens et médians augmentent ensuite progressivement entre le critère « < 10 » et les données brutes.

La valeur seuil de 5% pour le |BMN| est un point d'inflexion sur les valeurs de Λ_{intra} récurrent dans le cas des trois sites et pour les trois diamètres retenus. Les données brutes sont donc filtrées en ne gardant que les phases pour lesquelles le biais moyen normalisé absolu est inférieur ou égal à 5%. Cette sélection est en accord avec les recommandations de L'Agence de Protection de l'Environnement des Etats-Unis qui préconise que les valeurs de BMN soient comprises entre $\pm 5\%$ et $\pm 15\%$ pour considérer un bon accord entre observations et calculs (Russell et Dennis, 2000). Ce critère de sélection est aussi un bon compromis entre

une très bonne similitude entre les données expérimentales et les valeurs calculées et un nombre conséquent de phases sélectionnées, même pour les particules les plus grosses (plusieurs dizaines de phases pour $D_a = 4,5 \mu\text{m}$).

- Mesures SMPS

La même analyse de sensibilité est faite sur trois diamètres de la plage de mesure du SMPS sur le site de Cadarache : 10 et 215 nm (correspondant aux limites inférieure et supérieure de la plage de mesure) et 92 nm en tant que diamètre médian. La figure 4-4 représente donc pour ces trois diamètres les valeurs moyennes et médianes (rond rouge et triangle bleu) des coefficients Λ_{intra} selon la valeur seuil du $|\text{BMN}|$, ainsi que la taille de l'échantillon statistique (trait noir).

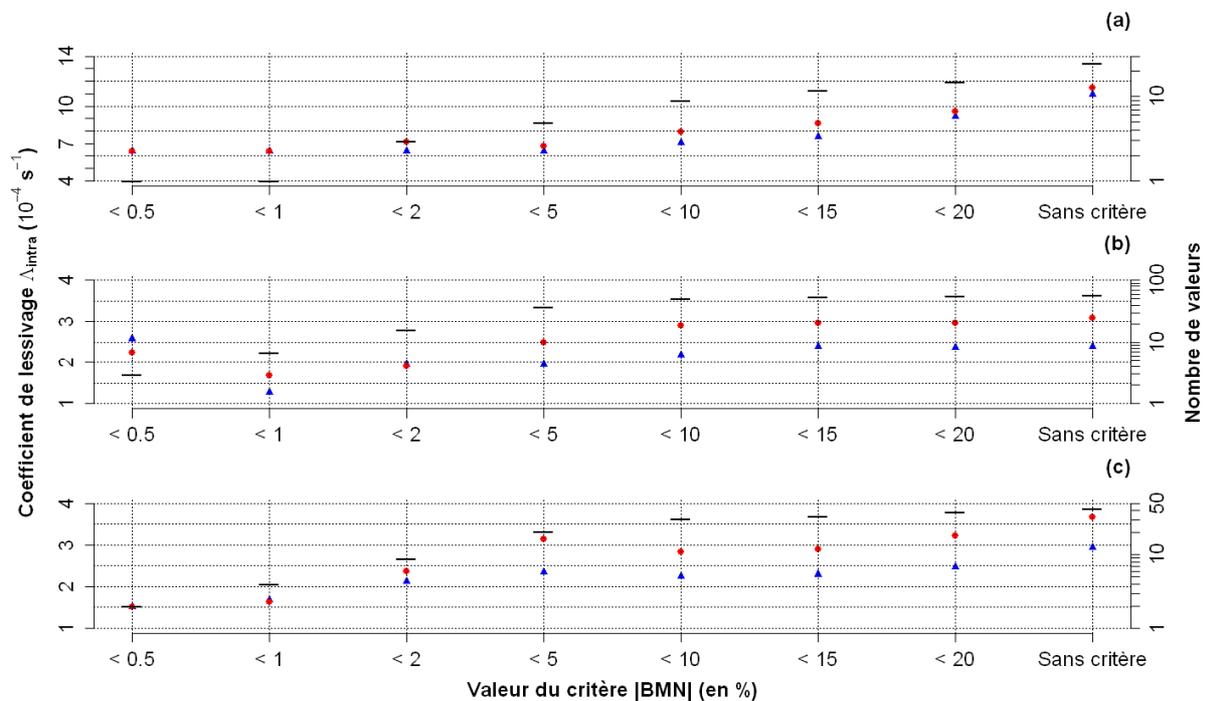


Figure 4-4 : Influence du critère $|\text{BMN}|$ sur les valeurs de Λ_{intra} pour les phases de pluie (mesures SMPS, site de Cadarache)

(a) $D_a = 10 \text{ nm}$; (b) $D_a = 92 \text{ nm}$; (c) $D_a = 215 \text{ nm}$

Pour $D_a = 10 \text{ nm}$, les valeurs moyennes et médianes des coefficients Λ_{intra} entre les critères « < 0,5 » et « < 5 » sont semblables. Elles augmentent ensuite régulièrement jusqu'à atteindre les valeurs sans critère de filtrage. Pour $D_a = 92 \text{ nm}$, les valeurs moyennes et médianes de Λ_{intra} augmentent significativement entre les critères « < 1 » et « < 10 » avant d'atteindre une valeur limite correspondant aux moyennes et médianes des données brutes. Etant donné le peu de données disponibles (3 valeurs), les paramètres statistiques pour le

critère « < 0,5 » ne sont pas considérés. Pour $D_a = 215$ nm, le critère « < 0,5 » est aussi ignoré (2 valeurs exploitables). Entre les critères « < 1 » et « < 20 », les valeurs de Λ_{intra} augmentent régulièrement jusqu'aux valeurs moyennes et médianes des données brutes.

Dans le cas des mesures SMPS, la différence des valeurs moyennes et médianes de Λ_{intra} autour du critère « < 5 » est moins marquée que concernant les mesures OPC. Malgré cela, filtrer les phases à partir du critère « $|BMN| < 5\%$ » est là encore un bon compromis entre des coefficients Λ_{intra} retenus représentatifs et un échantillon de données d'une dizaine de valeurs au minimum.

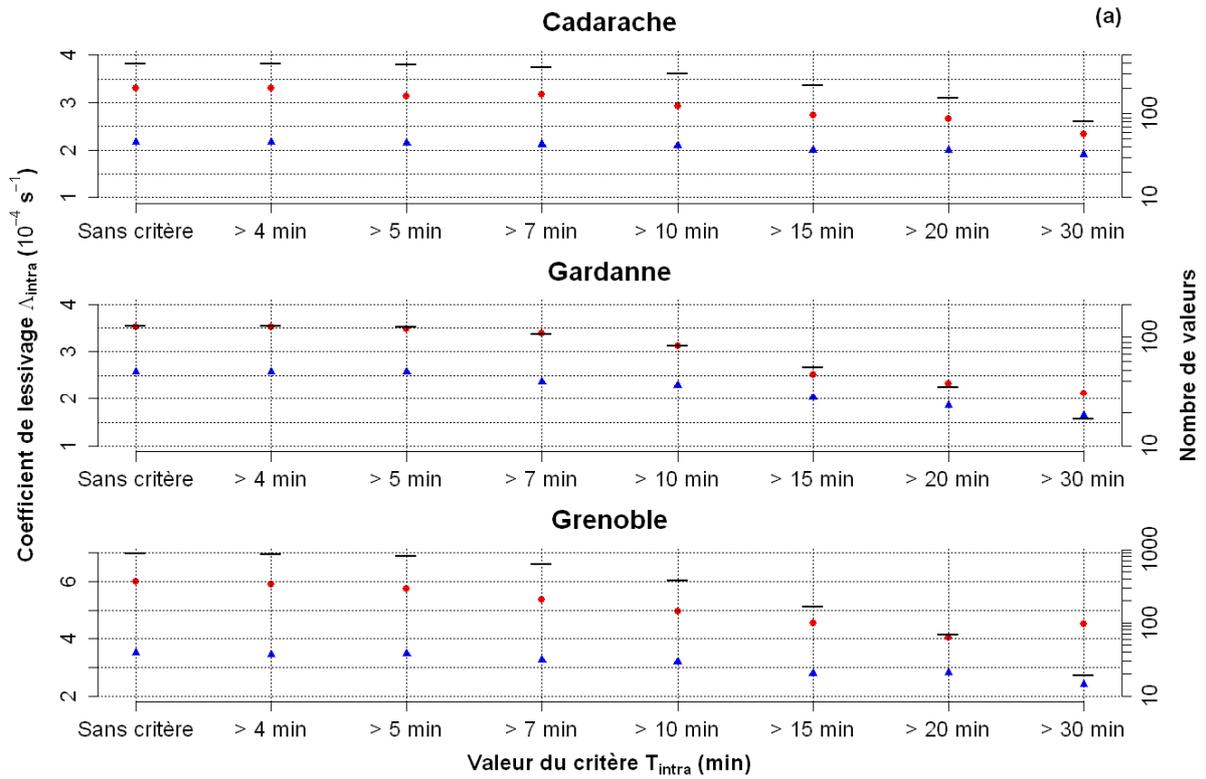
4.2.1.2. Durée de la phase T_{intra}

L'impact de la durée des phases T_{intra} sur les valeurs de Λ_{intra} est aussi à prendre en compte. En effet, pour des phases d'une durée trop courte, le calcul du BMN n'est pas significatif puisque basé sur un nombre de données trop faibles. Pour garantir des résultats représentatifs, une valeur seuil de T_{intra} élevée pourrait être prise. Toutefois, le choix de cette solution éliminerait de fait des données exploitables pour les particules d'aérosol du mode « grossier » ($D_a > 1 \mu\text{m}$), domaine de taille pour lequel les périodes de décroissance recensées sont souvent d'une durée de l'ordre d'une dizaine de minutes. Une trop grande valeur seuil éliminerait aussi les phases de fortes intensités pluviométriques (plusieurs dizaines à centaines de mm h^{-1}) qui sont par nature relativement courtes (typiquement une dizaine de minutes). Pour choisir la valeur seuil appropriée, l'analyse de la variabilité des valeurs Λ_{intra} selon le critère T_{intra} utilisé est effectuée.

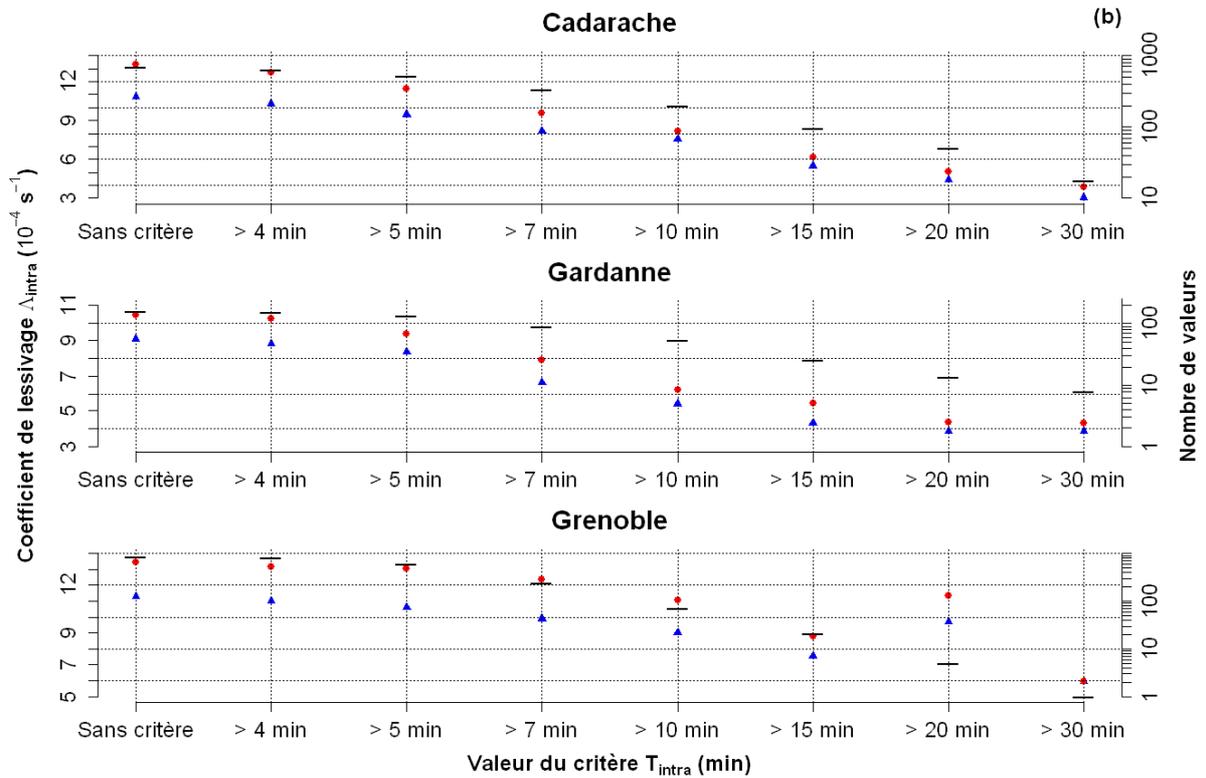
- Mesures OPC

Pour les trois sites de mesure, la figure 4-5 représente les valeurs moyennes (points rouges) et médianes (triangles bleus) des coefficients Λ_{intra} pour les diamètres 0,265, 0,9 et 4,5 μm selon la valeur seuil de T_{intra} utilisée pour filtrer les données brutes. Le nombre de valeurs (trait horizontal noir) est aussi représenté (ordonnée de droite).

- Pour $D_a = 0,265 \mu\text{m}$



- Pour $D_a = 0,9 \mu\text{m}$



- Pour $D_a = 4,5 \mu\text{m}$

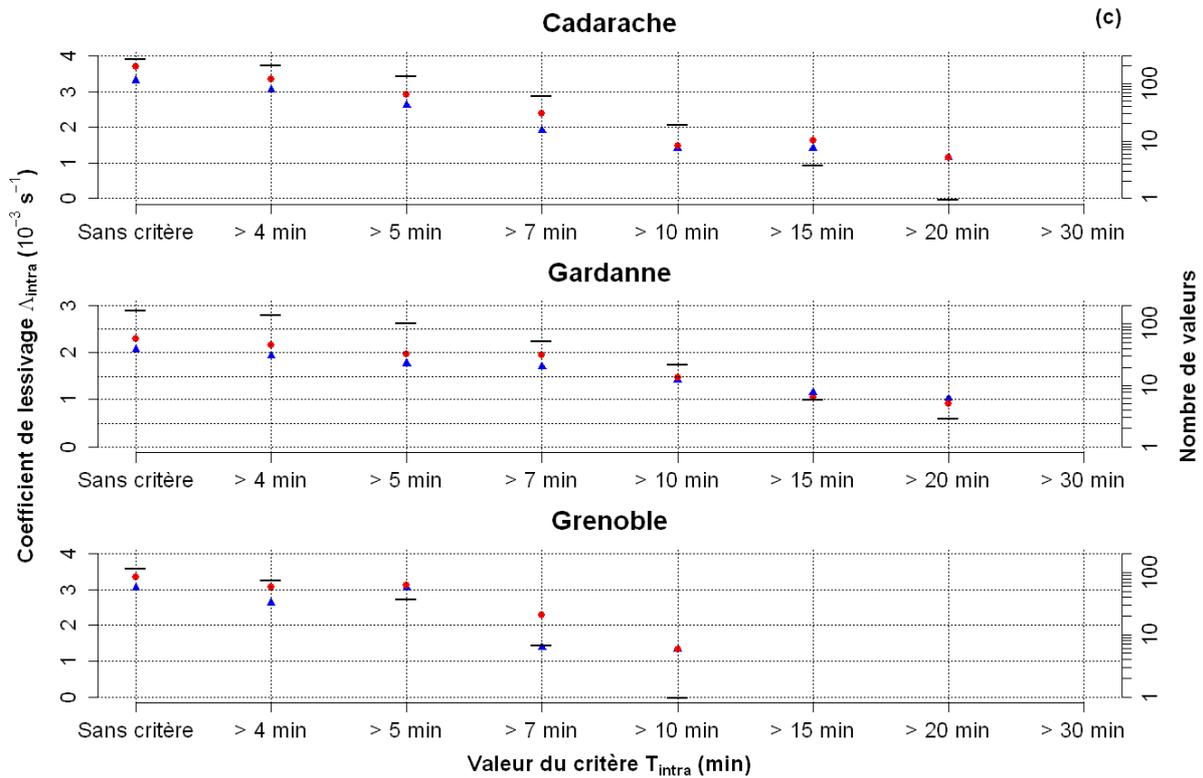


Figure 4-5 : Influence du critère T_{intra} sur les valeurs de Λ_{intra} pour les phases de pluie (mesures OPC, trois sites d'étude)

(a) $D_a = 0,265 \mu\text{m}$; (b) $D_a = 0,9 \mu\text{m}$; (c) $D_a = 4,5 \mu\text{m}$

Pour $D_a = 0,265 \mu\text{m}$ et quel que soit le site, les valeurs moyennes et médianes de Λ_{intra} sont semblables dans le cas où les données ne sont pas filtrées et jusqu'au critère « > 7 ». Pour des valeurs seuils de T_{intra} supérieures, les moyennes diminuent de manière notable, la diminution des valeurs médianes étant marginale. Pour $D_a = 0,9 \mu\text{m}$, les valeurs moyennes et médianes diminuent significativement à mesure que le critère T_{intra} augmente. Cette constatation est aussi valable pour les particules de $4,5 \mu\text{m}$ de diamètre. Cependant, pour des valeurs seuils de T_{intra} supérieures à 10 minutes, le nombre de phases exploitables est faible avec moins de 10 valeurs de Λ_{intra} dans le cas de Cadarache et Grenoble, voire nul dans le cas de Grenoble.

Ici, les valeurs moyennes et médianes des coefficients Λ_{intra} ne divergent pas clairement pour une valeur seuil de T_{intra} identifiée. De plus, prendre une valeur seuil de T_{intra} unique quelle que soit le diamètre des particules d'aérosol ne semble pas judicieux. En effet, le nombre de données exploitables pour les grosses particules diminuent notablement quand la valeur seuil de T_{intra} est supérieure à 10 minutes tandis que ce nombre reste conséquent pour les particules plus fines jusqu'à une valeur seuil de 15 minutes. Pour les particules d'aérosol de

diamètre compris entre 0,265 et 1 μm , la valeur seuil de T_{intra} est prise à 15 minutes, tandis que pour $D_a > 1 \mu\text{m}$ elle est fixée à 7 minutes.

- Mesures SMPS

Dans le cas des mesures SMPS, les valeurs seuils de T_{intra} utilisées pour étudier la variabilité des coefficients Λ_{intra} sont différentes puisque la résolution temporelle du granulomètre SMPS est de cinq minutes. Pour comparer un nombre appréciable de valeurs c_{th} et c_{mes} et avoir une valeur du BMN qui soit pertinente, les valeurs de T_{intra} sont nécessairement plus grandes, une durée de 30 minutes correspondant ici à 6 mesures et non plus à 30. La figure 4-6 représente là encore les valeurs moyennes et médianes des coefficients Λ_{intra} (ronds rouges et triangles bleus) selon la valeur seuil T_{intra} ainsi que la taille de l'échantillon statistique (trait noir) correspondant.

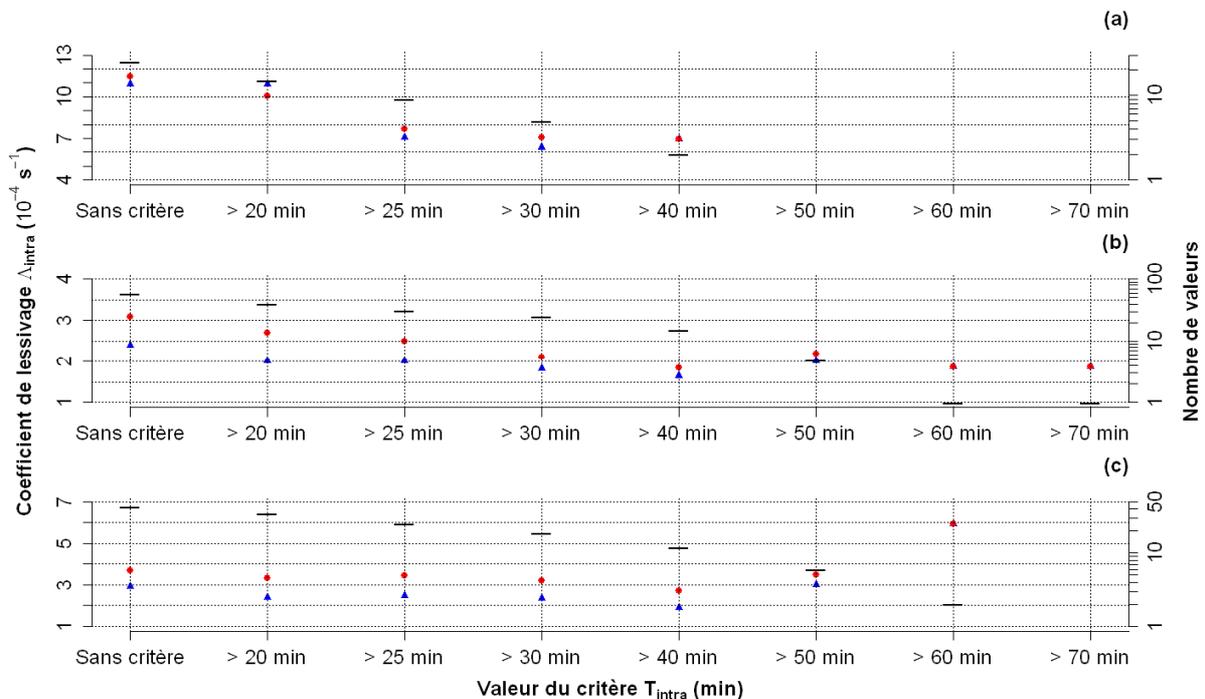


Figure 4-6 : Influence du critère T_{intra} sur les valeurs de Λ_{intra} pour les phases de pluie (mesures SMPS, site de Cadarache)

(a) $D_a = 10 \text{ nm}$; (b) $D_a = 92 \text{ nm}$; (c) $D_a = 215 \text{ nm}$

Comme dans le cas des mesures OPC, quelque soit le diamètre des nanoparticules, il n'y pas de critères pour lequel on puisse observer une nette différence des valeurs moyennes et médianes de Λ_{intra} . Cependant, pour une valeur seuil de T_{intra} supérieure à 40 minutes, le nombre de coefficients exploitables est inférieur à 10 valeurs pour D_a égal à 92 et 215 nm et nul pour les particules de 10 nm.

Afin de disposer d'un échantillon de coefficients suffisant une fois les critères sur T_{intra} et BMN couplés, le choix a été fait de ne garder que les phases de décroissance supérieures à 30 minutes (soit plus de 6 mesures).

4.2.2. Evènements neigeux

La même analyse sur la sensibilité des valeurs de Λ_{intra} à différentes valeurs de |BMN| et T_{intra} comme critères de sélection est effectuée sur les phases de décroissance durant des chutes de neige. Même si seules les données du site de Grenoble sont utilisées, la durée cumulée des chutes de neige enregistrée (plus de 150 heures) est considérée comme suffisante pour extraire un grand nombre de données exploitables pour les particules de diamètre supérieur à 0,265 μm .

4.2.2.1. *Biais moyen normalisé*

La figure 4-7 représente la variabilité induite sur les valeurs moyennes et médianes de Λ_{intra} par différentes valeurs seuils du |BMN| pour les diamètres 0,265, 0,9 et 4,5 μm ainsi que le nombre de valeurs correspondantes.

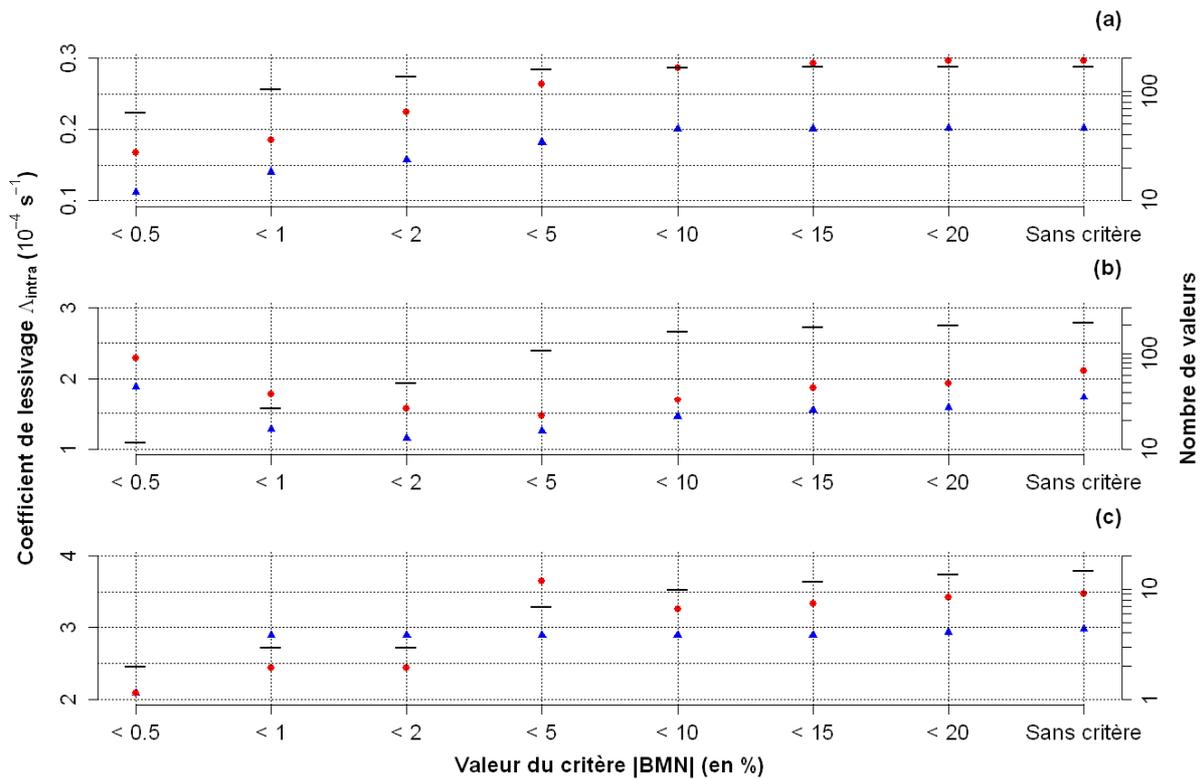


Figure 4-7 : Influence du critère |BMN| sur les valeurs de Λ_{intra} pour les phases de neige (mesures OPC, site de Grenoble)

(a) $D_a = 0,265 \mu\text{m}$; (b) $D_a = 0,9 \mu\text{m}$; (c) $D_a = 4,5 \mu\text{m}$

Les moyennes et médianes de Λ_{intra} ne changent pas significativement à partir d'une valeur particulière du critère |BMN|. Cependant pour $D_a = 4,5 \mu\text{m}$, le nombre de valeurs de Λ_{intra} est faible (moins de cinq valeurs) quand la valeur du critère |BMN| est inférieure à 5%.

Comme dans le cas des événements pluvieux, les phases de décroissance durant des chutes de neige sont considérées uniquement si le biais est inférieur 5%.

4.2.2.2. Durée de la phase

La figure 4-8 représente les valeurs moyennes et médianes de Λ_{intra} selon la valeur du critère T_{intra} utilisée pour filtrer les données brutes et le nombre de valeurs correspondantes.

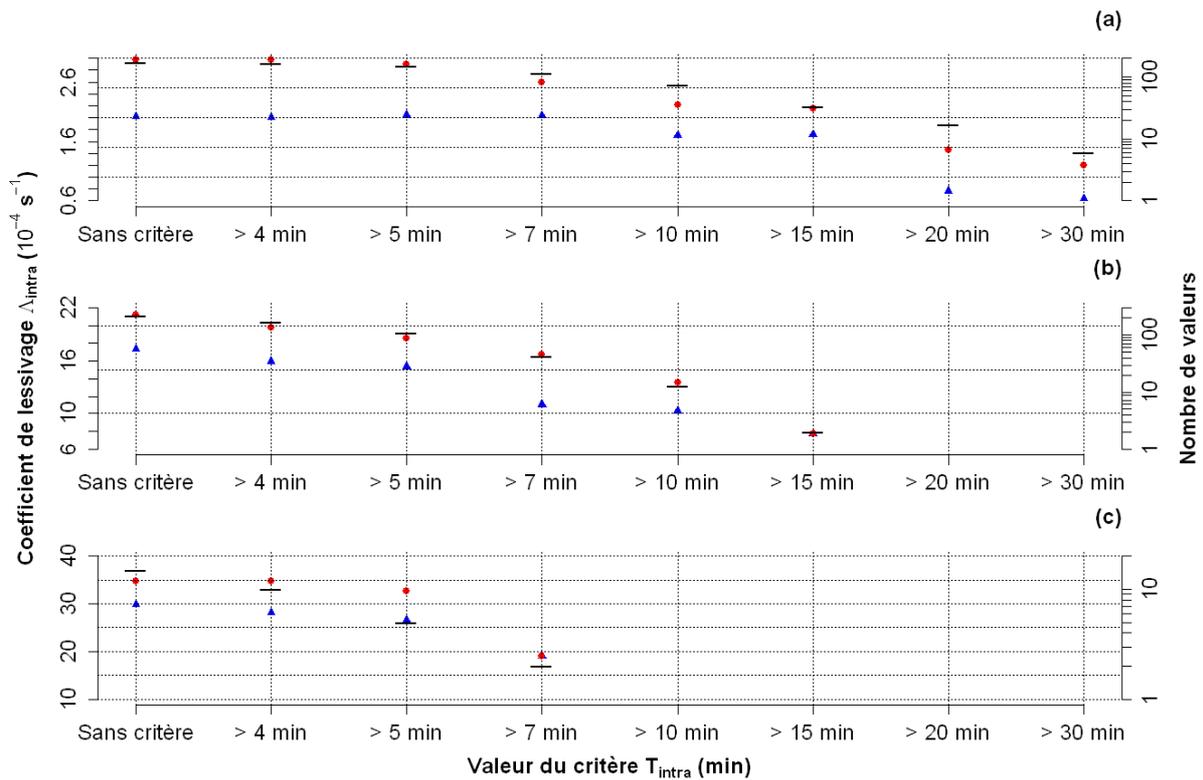


Figure 4-8 : Influence du critère T_{intra} sur les valeurs de Λ_{intra} pour les phases de neige (mesures OPC, site de Grenoble)

(a) $Da = 0,265 \mu\text{m}$; (b) $Da = 0,9 \mu\text{m}$; (c) $Da = 4,5 \mu\text{m}$

Pour les trois diamètres retenus, il n'y a pas de critère particulier pour lequel une divergence claire des valeurs moyennes et médianes de Λ_{intra} est constatée. Pour une valeur seuil de T_{intra} supérieure à 7 minutes, le nombre de données exploitables pour $D_a = 4,5 \mu\text{m}$ est nul. Pour le diamètre $0,9 \mu\text{m}$, ce nombre devient minime (moins de 10 valeurs) pour une valeur seuil de 15 minutes.

Pour les particules d'aérosol de diamètre compris entre $0,265$ et $1 \mu\text{m}$, la valeur seuil de T_{intra} pour les phases de décroissance durant des chutes de neige est fixée à 10 minutes, tandis qu'elle est fixée à 7 minutes pour $D_a > 1 \mu\text{m}$.

En résumé, la sélection des coefficients Λ_{intra} brutes se fait ensuite selon les critères suivants :

- Pluie : $T_{\text{intra}} > 30 \text{ min}$, $D_a \in [10 - 215] \text{ nm}$ $|\text{BMN}| < 5\%$
 $T_{\text{intra}} > 15 \text{ min}$, $D_a \in [0,265 - 1] \mu\text{m}$ $|\text{BMN}| < 5\%$
 $T_{\text{intra}} > 7 \text{ min}$, $D_a > 1 \mu\text{m}$ $|\text{BMN}| < 5\%$
- Neige : $T_{\text{intra}} > 10 \text{ min}$, $D_a \in [0,265 - 1] \mu\text{m}$ $|\text{BMN}| < 5\%$
 $T_{\text{intra}} > 7 \text{ min}$, $D_a > 1 \mu\text{m}$ $|\text{BMN}| < 5\%$

4.3. Résultats et discussions

Comme indiqué dans la partie 4.1, les coefficients de lessivage Λ_{intra} ne sont calculés que sur des phases de décroissance des concentrations en particules. Pour sélectionner ces phases, tous les canaux de mesures accessibles aux granulomètres EDM180 et WRAS665 doivent être examinés. Cela représente une quantité de données à analyser très importante. Dans le cas des trois sites et pour des particules d'aérosol d'un diamètre supérieur à $0,265 \mu\text{m}$, l'ensemble de la base de données représente environ 150.000 mesures pour chaque classe de diamètre D_a mesuré. Pour les particules inférieures à 215 nm de diamètre, la base de données à analyser représente environ 2.500 mesures. Pour réduire le temps passé à extraire les phases de décroissance de ces deux bases de données, le calcul des coefficients Λ_{intra} n'est pas fait pour la totalité des diamètres D_a mesurés par les granulomètres OPC et SMPS mais sur un nombre réduit de diamètres. Entre $0,265$ et $16,25 \mu\text{m}$, sur un total de 26 canaux de mesures, 12 classes de diamètres sont retenues, soit pratiquement un diamètre sur deux. L'intervalle entre les valeurs de D_a varie de quelques dizaines de nanomètres (pour les particules les plus fines) à quelques micromètres (pour les « grosses » particules. Dans le cas du SMPS, l'intervalle entre chacun des 45 canaux de mesure est de l'ordre de quelques nanomètres pour la gamme de diamètre inférieure à quelques dizaines de nanomètres pour la gamme de diamètre supérieure. Entre 10 et 215 nm , les 9 valeurs de D_a conservées ont un intervalle d'au plus 40 nm entre elles. Cette sélection des diamètres permet de réduire significativement la quantité de données à analyser tout en préservant la représentativité des résultats obtenus pour les gammes de mesure des granulomètres OPC et SMPS.

Comme dans le cas de l'approche « macroscopique », pour caractériser les résultats d'un point de vue statistique, les valeurs des moyennes géométriques μ_g , médianes M, les 1^e et 9^e déciles et les coefficients de dispersion CD^{12} sont utilisées.

4.3.1. Evènements pluvieux

4.3.1.1. $\Lambda_{intra} = f(D_a)$ de la gamme nanométrique à supermicronique

La figure 4-9 représente à partir des mesures faites sur le site de Cadarache le coefficient de lessivage Λ_{intra} en fonction du diamètre D_a compris entre 10 nm et 4,5 μm . Bien que le calcul de Λ_{intra} ait été fait pour des diamètres supérieurs à 4,5 μm , ces données ne satisfont pas les critères imposés sur la valeur du biais moyen normalisé et sur la durée de la phase de décroissance. Les résultats issus des données mesurées par le SMPS (rouge sombre) sont différenciés de ceux issus de mesures du granulomètre OPC (rouge clair). Les valeurs de μ_g , M et CD de cette série de résultats sont regroupées dans le tableau 3-2.

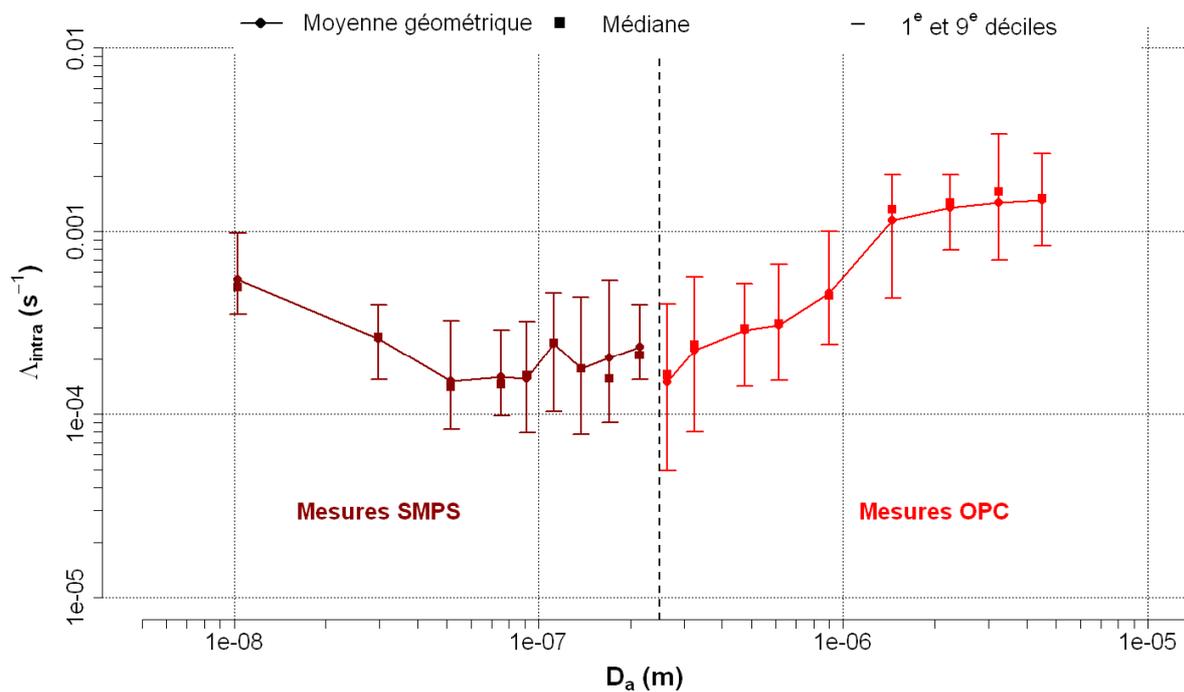


Figure 4-9 : $\Lambda_{intra} = f(D_a)$ de la gamme nanométrique à la gamme supermicronique (site de Cadarache)

¹² Ratio entre la différence des 9^e et 1^e déciles et la moyenne géométrique μ_g

Sur l'ensemble du spectre granulométrique mesuré, les résultats issus des mesures « SMPS » et « OPC » sont cohérents, avec une bonne continuité des valeurs de Λ_{intra} entre les diamètres 215 et 265 nm. Entre 10 nm et 4,5 μm , les valeurs de μ_g sont très peu différentes des valeurs de M. Avec un coefficient CD compris entre 0,9 et 2,4, la dispersion des valeurs de Λ_{intra} est faible. Le minimum du potentiel de lessivage est obtenu pour $D_a = 0,265 \mu\text{m}$. Comme dans le cas de l'approche « macroscopique », la représentativité du diamètre D_a associé à ce potentiel de lessivage minimum est à prendre avec précaution. En effet, entre 50 et 350 nm, le coefficient Λ_{intra} varie peu, avec une valeur μ_g comprise entre $1,49 \cdot 10^{-4}$ et $2,44 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$, soit un ratio de 1,6. Entre 10 et 50 nm, les valeurs de Λ_{intra} sont comprises entre $1,51 \cdot 10^{-4}$ et $5,49 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ soit un ratio de 3,6. Entre 350 nm et 4,500 μm , ce ratio est d'environ 5,1 avec des valeurs minimale et maximale respectivement de $2,88 \cdot 10^{-4}$ et $1,48 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. L'intervalle de diamètre où le potentiel de lessivage est minimal reste cependant cohérent avec la gamme de diamètre associée au « Greenfield gap » (D_a compris entre 0,1 et 1 μm). Entre 0,9 et 1,45 μm , le coefficient Λ_{intra} augmente de manière importante (valeur multipliée par environ 2,5), tandis qu'entre 1,45 et 4,5 μm la valeur de Λ_{intra} est multipliée par environ 1,3. Même si elle n'est pas aussi importante que celle prévu par le modèle de Slinn (figure 1-6), cette augmentation du potentiel de lessivage pour les particules du mode « grossier » ($D_a > 1 \mu\text{m}$) peut être expliquée par la prédominance de la collecte des particules d'aérosol par impaction inertielle vis-à-vis des autres mécanismes de collecte (effets phorétiques, électriques, diffusion Brownienne ou interception).

Tableau 4-1 : Etendue des valeurs des paramètres statistiques de la série $\Lambda_{\text{intra}} = f(D_a)$ de la gamme nanométrique à la gamme supermicronique pour les phases de pluie (site de Cadarache)

	D_a (μm)		μ_g		M		CD	
	Min	Max	Min	Max	Min	Max	Min	Max
SMPS	0,010	0,215	$1,51 \cdot 10^{-4}$	$5,49 \cdot 10^{-4}$	$1,41 \cdot 10^{-4}$	$4,98 \cdot 10^{-4}$	0,9	2,2
OPC	0,265	4,5	$1,49 \cdot 10^{-4}$	$1,48 \cdot 10^{-3}$	$1,64 \cdot 10^{-4}$	$1,65 \cdot 10^{-3}$	0,9	2,4

Au sein de l'IRSN, une étude sur le lessivage des particules d'aérosol atmosphérique en conditions *in situ* est également menée au Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-Octeville (LRC). La méthodologie employée dans cette étude est identique à la nôtre : les coefficients de lessivage Λ sont calculés sur de courtes périodes de décroissance des concentrations particulières et les données sont sélectionnées selon leur degré d'ajustement avec une décroissance exponentielle. La figure 4-10 représente les résultats préliminaires de cette étude pour des particules de diamètre compris entre 15 et 500 nm.

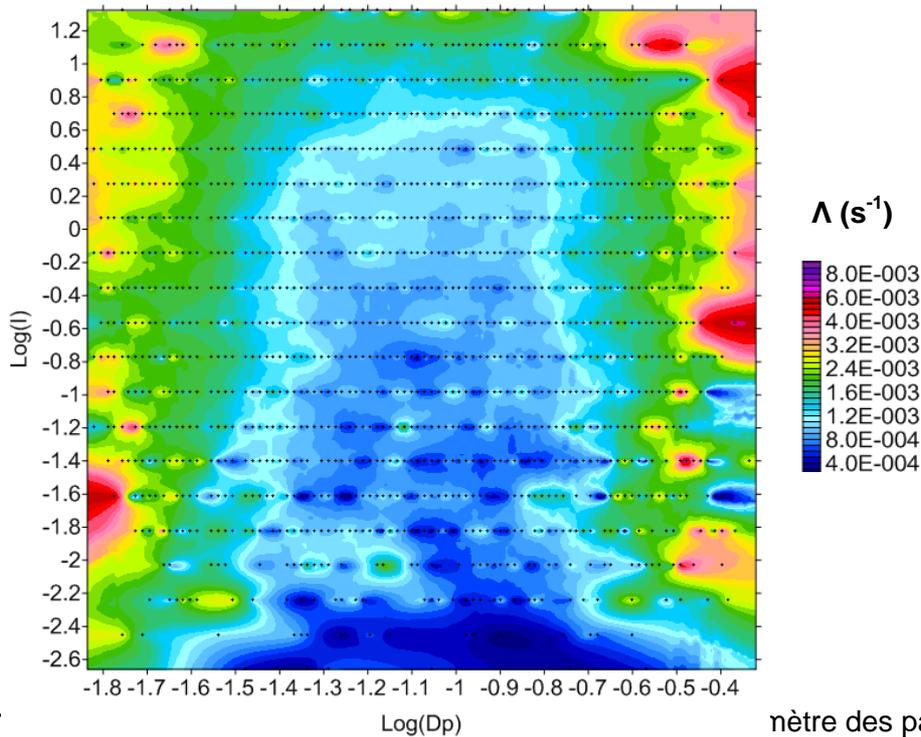


Figure 4-10 : Relation entre le diamètre des particules et l'intensité pluviométrique (Laguionie et al., 2011)

L'intensité pluviométrique varie entre 0,03 et 16 mm h⁻¹. Cette gamme d'intensité pluviométrique est similaire aux conditions dans lesquelles nos propres mesures ont été faites, ce qui rend pertinent la comparaison des résultats. Les résultats présentés dans la figure 4-10 ne correspondent pas à des valeurs de coefficients Λ moyens. Néanmoins pour un diamètre de particule fixé, il est possible d'extrapoler ces valeurs moyennes pour les comparer aux nôtres. Ainsi, les valeurs obtenues par Laguionie et al. (2011) sont supérieures d'environ un ordre de grandeur à nos valeurs. En revanche, le potentiel de lessivage minimal pour un diamètre compris entre 40 et 200 nm concorde avec nos observations. Les pluies enregistrées à Cherbourg sont composées de gouttes d'environ 0,7 mm de diamètre (communication personnelle, Laguionie P.). Cette taille moyenne des gouttes est légèrement plus fine que le diamètre caractéristique des gouttes composant les pluies de la classification établie dans la section 2.3.4.2 (0,8 pour les pluies ST ; 1 pour les pluies MX et 1,2 pour les pluies CVF). Cette différence peut expliquer en partie l'écart entre les deux jeux de données puisque le modèle de Slinn montre que l'efficacité de collecte des particules par les gouttes de pluie est multipliée par 10 lorsque le diamètre des gouttes diminue de 1 à 0,1 mm. Une analyse plus fine des distributions granulométriques des gouttes sur les différents sites devrait permettre de vérifier l'influence de la taille des hydrométéores sur les coefficients de lessivage déterminés sur les différents sites.

4.3.1.2. $\Lambda_{intra} = f(D_a)$ pour les trois sites de mesure

Les coefficients de lessivage Λ_{intra} calculés pour D_a compris entre 0,265 et 7 μm à partir des mesures des trois sites d'étude sont représentés sur la figure 4-11. Les valeurs extrêmes des paramètres statistiques se rapportant à ces trois jeux de données sont agrégées dans le tableau 4-2.

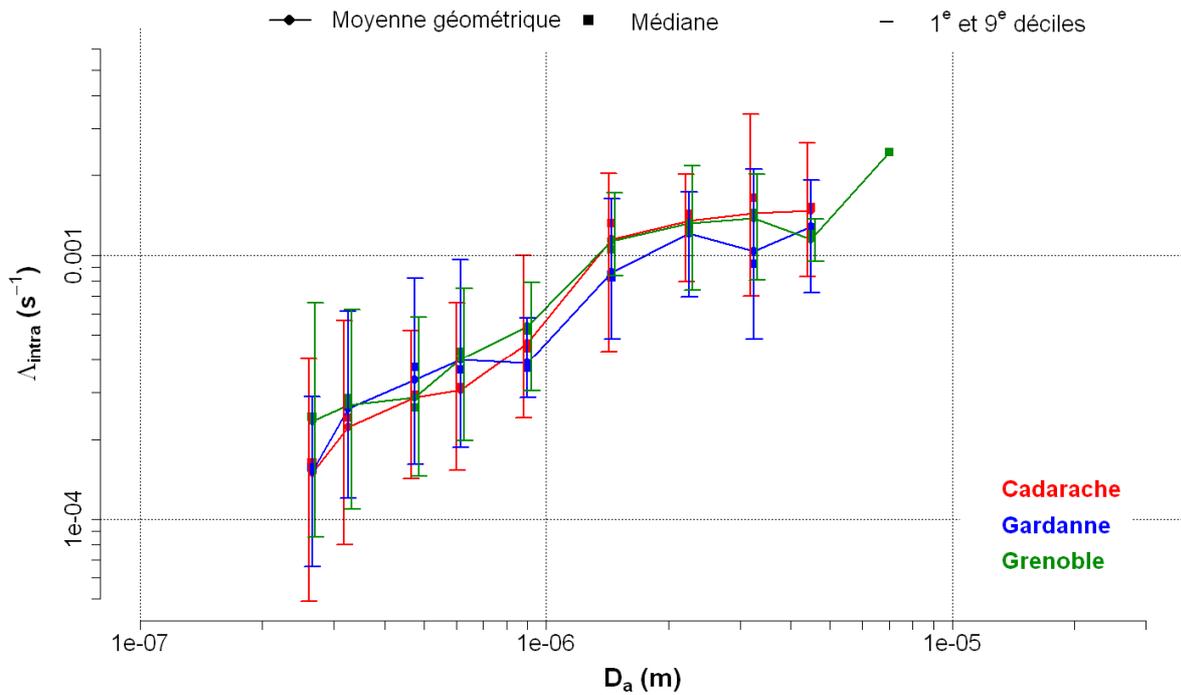


Figure 4-11 : $\Lambda_{intra} = f(D_a)$ selon les sites d'études

Les courbes $\Lambda_{intra} = f(D_a)$ ainsi que les moyennes et médianes sont une nouvelle fois très semblables entre les trois sites. Entre 0,265 et 4,5 μm , aucune distinction liée à l'hétérogénéité des sources d'émissions de particules n'est mise en évidence. Comme dans le cas des résultats présentés dans la partie sur l'approche « macroscopique », ceci confirme que la valeur de μ_g peut être considérée comme suffisante pour caractériser la relation $\Lambda_{intra} = f(D_a)$. La variabilité des valeurs de Λ_{intra} est faible pour l'ensemble des données, avec un coefficient CD compris entre 0,4 et 2,4. Pour chacun des sites, les caractéristiques moyennes (durée T_{intra} et intensité pluviométrique I_{intra}) des phases sélectionnées sont similaires. La faible valeur moyenne de I_{intra} (inférieure à 2 mm h^{-1}) est semblable aux valeurs moyennes de I_{macro} pour les événements retenus dans l'approche « macroscopique » (cf. tableau 3-3).

Tableau 4-2 : Etendue des valeurs des paramètres statistiques des séries $\Lambda_{\text{intra}} = f(D_a)$ et caractéristiques moyennes des phases de pluie (trois sites d'étude)

		Cadarache	Gardanne	Grenoble
D_a (μm)	Min	0,265	0,265	0,265
	Max	4,5	4,5	7
μ_g	Min	$1,49 \cdot 10^{-4}$	$1,52 \cdot 10^{-4}$	$2,35 \cdot 10^{-4}$
	Max	$1,48 \cdot 10^{-3}$	$1,28 \cdot 10^{-3}$	$2,45 \cdot 10^{-3}$
M	Min	$1,64 \cdot 10^{-4}$	$1,57 \cdot 10^{-4}$	$2,44 \cdot 10^{-4}$
	Max	$1,65 \cdot 10^{-3}$	$1,27 \cdot 10^{-3}$	$2,45 \cdot 10^{-3}$
CD	Min	0,9	0,7	0,4
	Max	2,4	1,9	2,4
I_{intra} (mm h^{-1})	μ_g	1,7	1,2	1,3
T_{intra} (min) ¹³	μ_g	24 - 10	23 - 11	20 - 10

4.3.1.3. Demi-vie d'efficacité de lessivage et période de quasi-disparition

Pour analyser les demi-vies d'efficacité de lessivage¹⁴ sur l'intégralité de la gamme de mesure, les relations $t_{1/2} = f(D_a)$ issues des mesures SMPS obtenues sur le site de Cadarache et des mesures OPC réalisées sur les trois sites sont représentées sur la figure 4-12. Les étendues des valeurs de $t_{1/2}$ et $t_{1/10}$ pour chaque jeu de données sont indiquées dans le tableau 4-3.

¹³ Etant donné que le critère de sélection sur T_{intra} diffère selon le diamètre des particules, les valeurs moyennes de T_{intra} sont données pour la gamme de diamètre $[0,265 - 1] \mu\text{m}$ et pour $D_a > 1 \mu\text{m}$.

¹⁴ Temps au bout duquel la moitié de la quantité initiale de particules a été lessivée

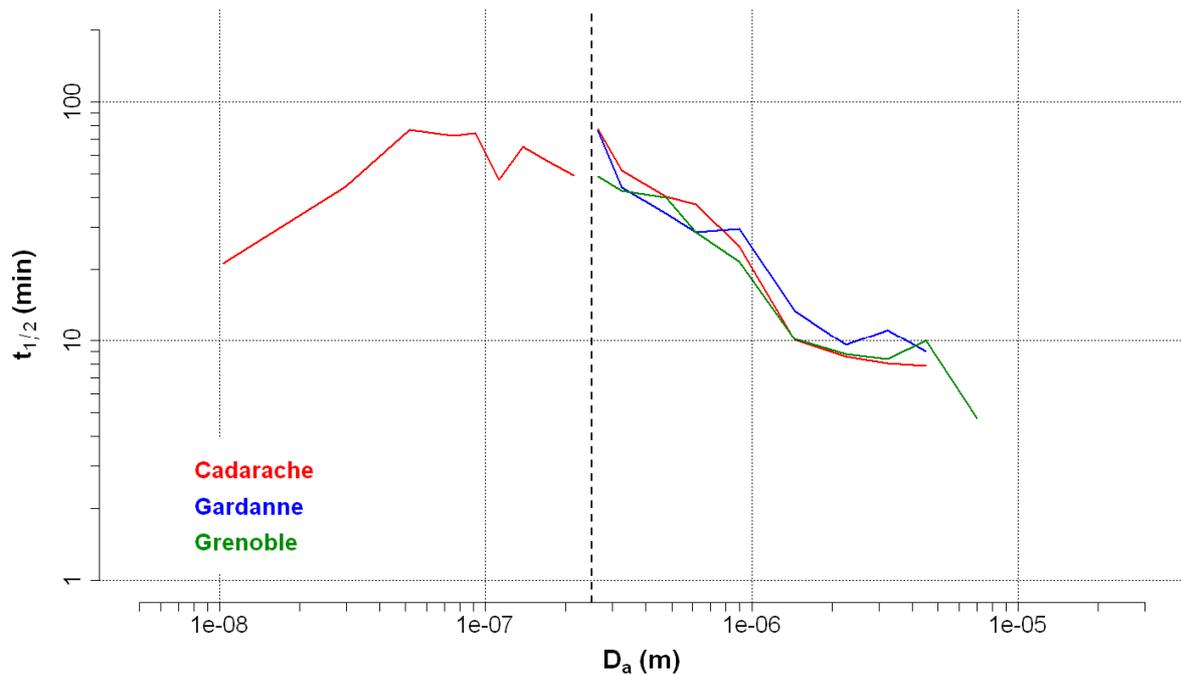


Figure 4-12 : $t_{1/2} = f(D_a)$ de la gamme nanométrique à supermicronique (trois sites d'étude)

Les différences en termes de cinétique de lessivage pour différentes gammes de taille de particules sont clairement mises en évidence. Entre 50 et 350 nm, la demi-vie d'efficacité de lessivage est comprise entre 50 et 80 minutes. Pour $D_a < 50$ nm, la moitié de la quantité initiale de particules est lessivée au bout de 25 à 45 minutes. Pour $D_a > 350$ nm, la cinétique est plus rapide avec des temps $t_{1/2}$ compris entre 40 et 8 minutes. Au maximum, 90% de la quantité initiale d'aérosol atmosphérique est lessivée après environ trois à quatre heures. Pour les particules de plusieurs microns, ce temps de quasi-disparition est de l'ordre d'une heure. Les résultats mettent une nouvelle fois en évidence l'importance de considérer le potentiel de lessivage des pluies comme dépendant du diamètre des particules. En effet, la différence de temps $t_{1/2}$ entre le potentiel minimum (obtenu pour des particules du mode accumulation) et le potentiel maximum (pour des particules du mode grossier) est de l'ordre d'une heure. Concernant la disparition de 90% de la quantité initiale, cette différence de temps est d'environ trois heures.

Tableau 4-3 : Etendue des valeurs de $t_{1/2}$ et $t_{1/10}$ de la gamme nanométrique à supermicronique (trois sites d'étude)

Site	D_a (μm)		$t_{1/2}$ (min)		$t_{1/10}$ (h)	
	Min	Max	Min	Max	Min	Max
Cadarache - SMPS	0,010	0,215	21	76	1,2	4,2
Cadarache - OPC	0,265	4,5	8	77	0,9	4,2
Gardanne	0,265	4,5	9	76	1	4,2
Grenoble	0,265	7	8	49	0,9	2,7

4.3.1.4. Comparaison des résultats obtenus par les différentes approches

Dans le chapitre 3, les coefficients de lessivage Λ_{macro} sont calculés en considérant uniquement les concentrations de particules en début et en fin de pluie. Les résultats obtenus ne prennent donc pas en compte l'impact de la variabilité de l'intensité pluviométrique sur les potentiels de lessivage. L'approche « intra-événementielle » présenté ici permet de pallier ce manque d'informations. Pour confirmer ou infirmer les limitations de l'approche « macroscopique », il peut être intéressant de comparer les résultats obtenus par les deux types d'approches. Dans le cas des deux approches, les trois sites ne se distinguent pas par des résultats spécifiques. Les coefficients de lessivage calculés selon les deux approches à partir des données de Cadarache (de la gamme de taille nanométrique à supermicronique) servent de point de comparaison (figure 4-13). Les résultats obtenus par l'approche « intra-événementielle » sont considérés comme la référence. En effet, le calcul des coefficients Λ_{intra} est basé *a priori* sur une méthode permettant d'atténuer l'effet des phénomènes « concurrents » avec un degré de confiance plus élevé que la méthode employée dans le cas de l'approche « macroscopique ».

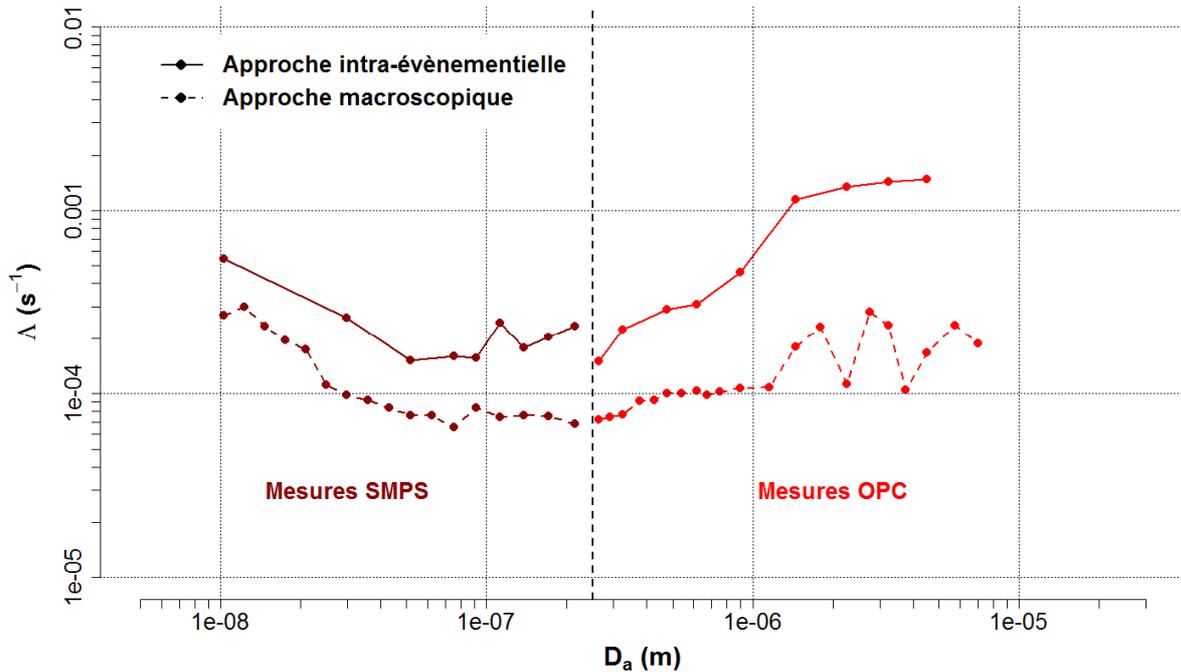


Figure 4-13 : $\Lambda = f(D_a)$ obtenus selon les différentes approches méthodologiques

Selon la gamme de diamètre des particules d'aérosol, l'écart entre les coefficients Λ_{intra} et Λ_{macro} est variable. Pour la gamme de mesures SMPS, le ratio $\Lambda_{\text{intra}}/\Lambda_{\text{macro}}$ est modéré avec une valeur comprise entre 1,9 et 3,4. Pour la gamme de mesures OPC par contre, les écarts entre les coefficients moyens sont plus significatifs, avec un ratio $\Lambda_{\text{intra}}/\Lambda_{\text{macro}}$ compris entre 2,1 et 12. Ce ratio est d'autant plus élevé que le diamètre des particules augmente.

Pour les particules de diamètre inférieur à $1 \mu\text{m}$, calculer le coefficient de lessivage par une approche « macroscopique » ou « intra-évènementielle » implique une différence relativement modérée (ratio moyen inférieur à 3). Pour $D_a > 1 \mu\text{m}$, la différence devient importante (ratio moyen de 7,5). Dans le cas où les coefficients de lessivage ne pourraient être calculés que par une approche « macroscopique » (données de concentrations particulières disponibles à une faible résolution temporelle par exemple), ces résultats peuvent être utilisés pour corriger les résultats obtenus pour les « grosses » particules.

4.3.1.5. Paramétrisation du coefficient de lessivage

4.3.1.5.1. En fonction du diamètre des particules d'aérosol

Pour la modélisation du lessivage, il est important de disposer d'une paramétrisation du coefficient de lessivage en fonction de la taille des particules. Néanmoins, ce type d'information est relativement rare dans la littérature. Dans le cas de notre étude, les

potentiels de lessivage sont calculés à partir de mesures faites sur un même site pour une large gamme de diamètre (cf. section 4.3.1). Au vu de la cohérence des résultats sur l'intégralité de la gamme de taille de particules mesurée sur Cadarache (de la gamme « ultrafine » au mode « grossier ») et de leur faible variabilité, chercher une paramétrisation des données de la forme $\Lambda=f(D_a)$ est tout à fait pertinent.

Pour paramétrer le coefficient de lessivage en fonction du diamètre des particules d'aérosol, Baklanov et Sorensen (2001) propose une paramétrisation de la forme $f_1(D_a)*f_2(l)$ pour D_a compris entre 2,8 et 20 μm , avec f_1 et f_2 deux expressions polynomiales de degrés 3 et 2 respectivement. Laakso et al. (2003) propose quant à eux une formulation pour les particules ultrafines (D_a compris entre 10 et 500 nm) telle que $\Lambda=10^{(f_3(D_a,l))}$, f_3 étant une expression fonction de $\log(D_a)^{-n}$. En ce qui concerne nos résultats, ils peuvent être paramétrés selon la formule :

$$\Lambda = \exp(a_1 * \log(D_a)^3 + a_2 * \log(D_a)^2 + a_3 * \log(D_a) + a_4) \quad (32)$$

Avec : $a_1 = -0,0256$; $a_2 = -1,002$; $a_3 = -12,23$; $a_4 = -52,82$

La figure 4-14 représente cette paramétrisation pour les particules d'aérosol de la gamme ultrafine au mode « grossier » (D_a compris entre 10 nm et 10 μm), ainsi que les résultats du site de Cadarache.

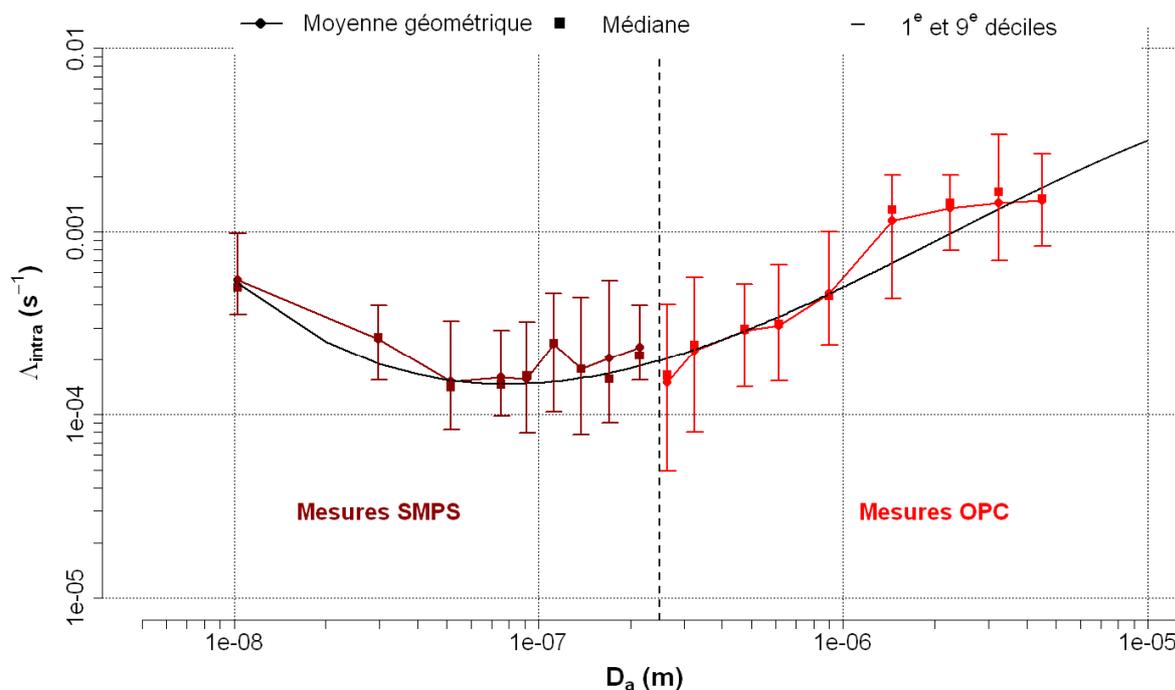


Figure 4-14 : Paramétrisation du coefficient Λ_{intra} selon le diamètre D_a des particules entre 10 nm et 10 μm

Le coefficient de détermination R^2 ajusté de cette paramétrisation est de 0,919. Les résidus du modèle sont relativement faibles avec une erreur-type¹⁵ E_t de $1,59 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$. La paramétrisation proposée peut donc être considérée comme robuste pour les particules de la gamme de diamètre 10 nm à 10 μm . la valeur minimale associée à cette paramétrisation est obtenue pour $D_a \approx 80 \text{ nm}$. Bien que plus faible que celle prédite par la théorie, elle reste cohérente la valeur du « Greenfield gap » (potentiel de lessivage minimal pour des particules de 100 nm à 1 μm de diamètre).

Les paramétrisations de Baklanov et Sorensen (2001) et de Laakso et al. (2003) (calculées pour une intensité pluviométrique de 1 mm h^{-1}), ainsi que l'expression théorique du coefficient de lessivage en fonction du diamètre des particules d'aérosol (cf. section 0) sont comparées avec la paramétrisation déduite de nos résultats (figure 4-15).

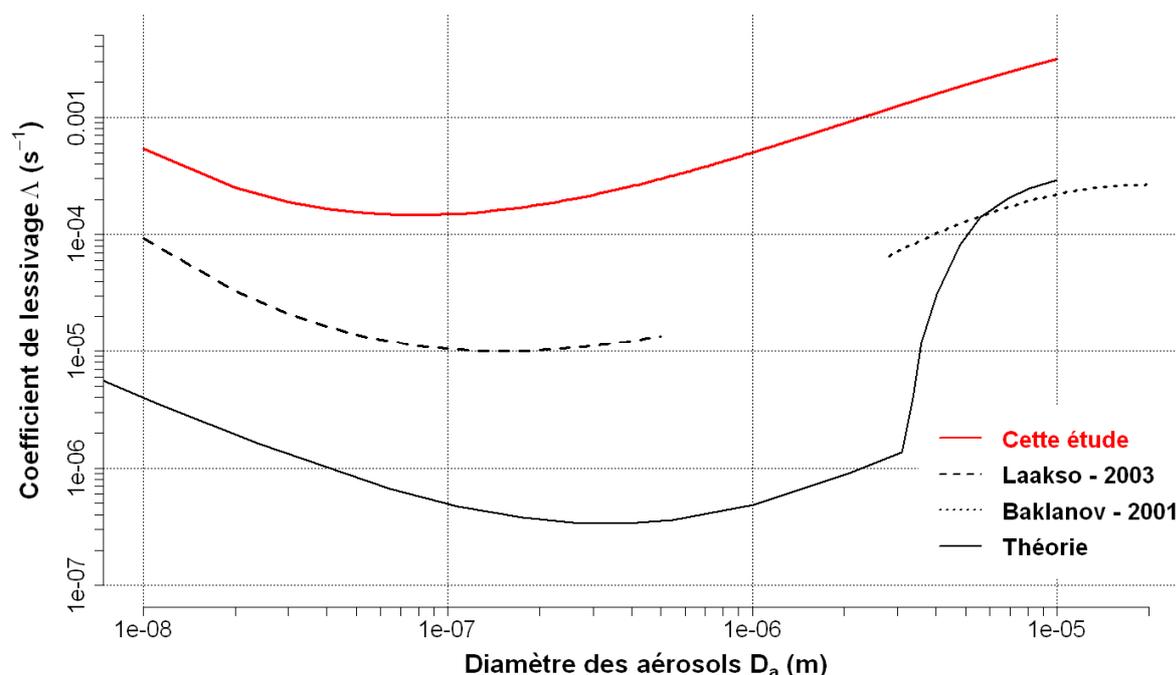


Figure 4-15 : Comparaison des paramétrisations de la forme $\Lambda = f(D_a)$

La paramétrisation présentée dans cette étude donne des coefficients de lessivage supérieurs à ceux des autres paramétrisations expérimentales proposées dans la littérature quel que soit le diamètre D_a des particules d'aérosol, avec un écart d'un ordre de grandeur environ. L'écart avec la théorie est d'environ deux ordres de grandeur pour $D_a < 3 \mu\text{m}$. Pour

¹⁵ Racine de l'erreur quadratique moyenne

des diamètres supérieurs, cet écart se réduit à un ordre de grandeur. Différentes raisons peuvent expliquer cette différence notable entre la théorie et nos résultats. Tout d'abord, l'efficacité de collecte E_{tot} donnée par Wang (2010) est calculée à partir de valeurs constantes pour les caractéristiques microphysiques des gouttes d'eau (température de surface, charge électrique) et les conditions atmosphériques (RH, température de l'air). Toutefois, ces valeurs peuvent être différentes et variables en conditions *in situ* (notamment l'humidité relative ou la charge des gouttes d'eau) entraînant une efficacité de collecte E_{tot} significativement plus importante. De plus, les travaux de Quérel (2012) ont mis en évidence un mécanisme de collecte, la recirculation arrière, qui n'est pas pris en compte dans l'expression de E_{tot} utilisée dans la plupart des études. Les mesures faites par Quérel (2012) ont montré que l'efficacité de collecte E_{tot} prenant en compte ce mécanisme est supérieure d'un à deux ordres de grandeur à l'efficacité de collecte totale par les effets mécaniques (diffusion Brownienne, interception et impaction). Cependant, cette différence majeure ne concerne que les particules d'aérosol de diamètre inférieur à $0,5 \mu\text{m}$ et des gouttes d'un diamètre de 2 mm (à l'heure actuelle, pas de mesures pour d'autres tailles).

4.3.1.5.2. En fonction de l'intensité pluviométrique

Les résultats donnés dans la section 4.3.1.5.1 sont moyennés sur l'ensemble des coefficients Λ_{intra} disponibles après l'application des critères de sélection sur les valeurs de $|BMN|$ et T_{intra} . La paramétrisation de Λ_{intra} en fonction du diamètre D_a présentée précédemment ne prend donc pas en compte la variabilité des potentiels de lessivage selon l'intensité pluviométrique I . Or, une telle paramétrisation présente aussi un intérêt certain en termes de modélisation opérationnelle notamment parce que ce paramètre peut être obtenu facilement et de façon quasi instantanée.

Ainsi, à partir des données du site de Cadarache, la variabilité du coefficient Λ_{intra} en fonction de l'intensité pluviométrique I_{intra} est étudiée pour différentes gammes de tailles de particules : entre $0,265$ et $0,5 \mu\text{m}$ (noté ici $PM_{0,5-0,3}$), entre $0,5$ et $1 \mu\text{m}$ ($PM_{1-0,5}$), entre 1 et $2,5 \mu\text{m}$ ($PM_{2,5-1}$), entre $2,5$ et $5 \mu\text{m}$ ($PM_{5-2,5}$) et entre 5 et $10 \mu\text{m}$ (PM_{10-5}) (figure 4-16). Pour la gamme de mesures du SMPS, les gammes de tailles de particules sont les suivantes : entre 5 et 30 nm , 30 et 80 , 80 et 150 et entre 150 et 350 nm . Pour chaque gamme de taille, les coefficients Λ_{intra} sont moyennés selon les gammes d'intensités pluviométriques suivantes : $I_{intra} < 1 \text{ mm h}^{-1}$, entre 1 et 5 , entre 5 et 10 , et $I_{intra} > 10 \text{ mm h}^{-1}$. Concernant les mesures SMPS, le nombre de coefficients Λ_{intra} pour chaque gamme d'intensité pluviométrique est trop faible pour que les résultats puissent être considérés comme représentatifs. Pour chaque gamme de PM, les données sont ajustées par une loi de la forme $\Lambda = a \cdot I^b$. Cet ajustement en loi puissance est le plus utilisé dans la littérature pour paramétrer le coefficient

de lessivage en fonction de l'intensité pluviométrique (cf. section 1.4.3.3). Le tableau 4-4 regroupe les coefficients a et b des paramétrisations déterminées à partir de nos données et les indicateurs statistiques (coefficient de détermination ajusté et erreur-type E_t) de ces ajustements.

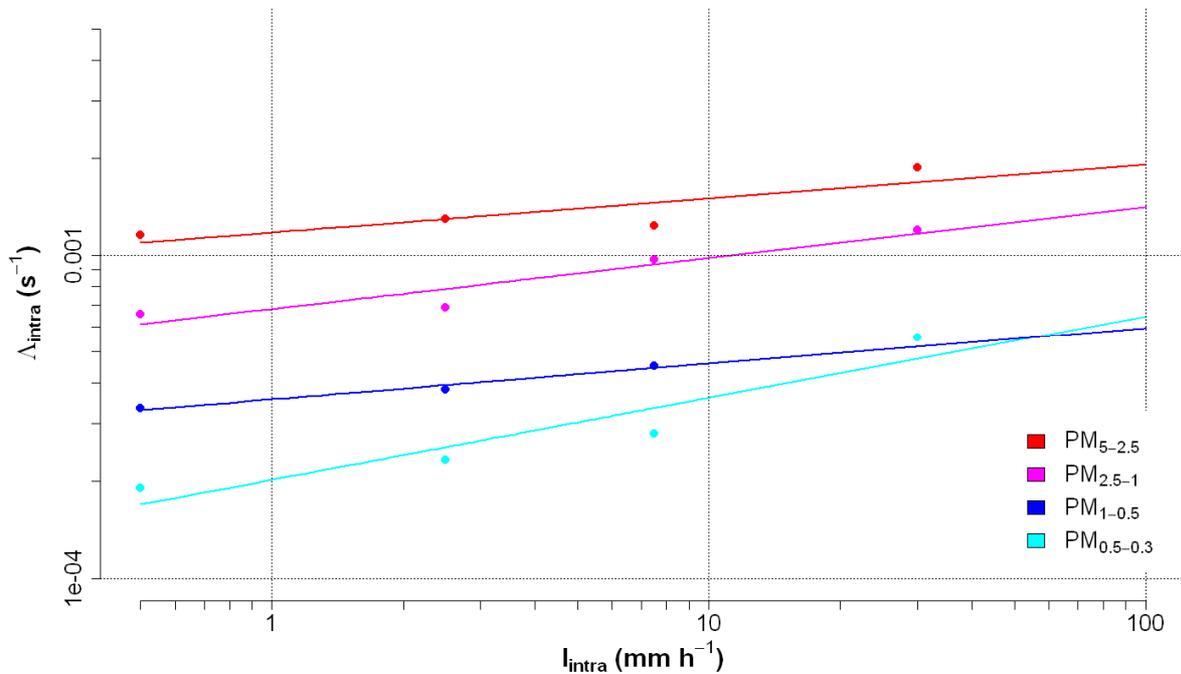


Figure 4-16 : Coefficient de lessivage Λ_{intra} en fonction de l'intensité pluviométrique I_{intra} pour différentes gammes de tailles de particules (site de Cadarache)

L'ajustement en loi puissance du coefficient de lessivage Λ_{intra} en fonction de l'intensité pluviométrique convient bien à nos données, avec une erreur-type faible et un coefficient R^2 ajusté élevé pour l'ensemble des gammes de PM. Entre 0,5 et 100 mm h⁻¹, l'augmentation du coefficient Λ_{intra} est cohérente avec les précédents résultats, avec un potentiel de lessivage minimum pour les particules d'aérosol du mode accumulation (PM_{0,5-0,3}) et un potentiel de lessivage maximum pour les particules du mode grossier (PM_{5-2,5}). Pour une gamme d'intensité fixée, la hiérarchisation des potentiels de lessivage avec l'augmentation de la taille des particules est conservée (hormis pour la gamme PM_{1-0,5} pour laquelle il n'y a pas de données pour des intensités pluviométriques supérieures à 10 mm h⁻¹). Pour la gamme PM_{0,5-0,3}, le coefficient Λ_{intra} varie de $1,91 \cdot 10^{-4}$ à $5,56 \cdot 10^{-4}$ s⁻¹, soit un rapport d'environ 3. Ce rapport de variation est identique à celui trouvé par Laakso pour des particules dont le diamètre est compris entre 200 et 500 nm et pour des gammes d'intensités pluviométriques similaires (Laakso et al., 2003 ; figure 5). Toutefois, Volken et Schumann (1993) ou Chate et

Pranessa (2004) ne trouvent pas de dépendance entre le coefficient de lessivage et l'intensité pluviométrique.

Tableau 4-4 : Coefficients a et b pour les paramétrisations $\Lambda_{intra} = f(I_{intra})$ et indicateurs de qualités des ajustements

	Coefficient a (*10 ⁻⁴)	Coefficient b	R ² ajusté	E _t (*10 ⁻⁵)
PM _{0,5-0,3}	2,02	0,25	0,81	5,26
PM _{1-0,5}	3,57	0,11	0,94	3,04
PM _{2,5-1}	6,82	0,16	0,85	5,60
PM _{5-2,5}	11,8	0,10	0,56	25,3

Les paramétrisations obtenues dans cette étude sont comparées aux formulations en loi puissance utilisées dans le modèle IdX de l'IRSN, par Baklanov et al. (2001) ($D_a < 2,8 \mu\text{m}$) et par Laguionie et al. (2013) (D_a compris entre 0,58 et 1,2 μm) (figure 4-17).

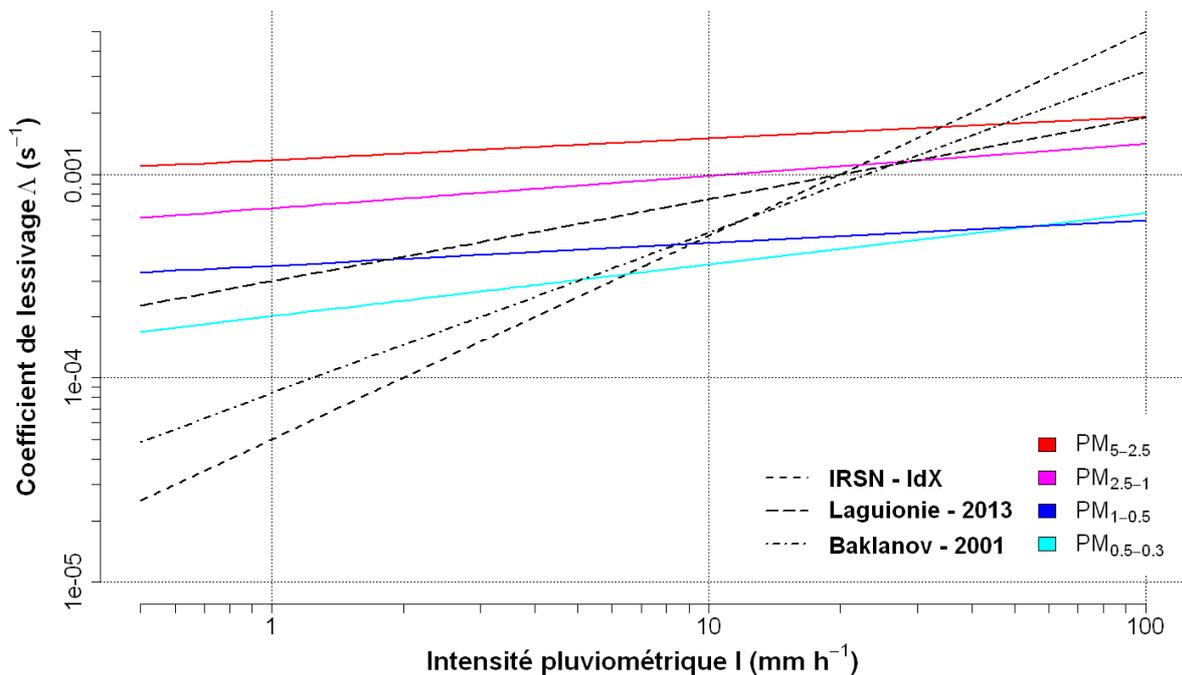


Figure 4-17 : Comparaison des paramétrisations de la forme $\Lambda = f(I)$

Les coefficients de lessivage donnés par le modèle IdX sont cohérents avec la paramétrisation utilisée par Baklanov (2001). Toutefois les valeurs de Λ donnés par le modèle IdX sont significativement différentes de nos résultats. Pour $I = 0,5 \text{ mm h}^{-1}$, l'écart

d'un facteur 6,8 pour la gamme $PM_{0,5-0,3}$ est modéré alors que pour les particules du mode « grossier » (gamme $PM_{5-2,5}$), cet écart peut atteindre un facteur 40. Pour une intensité pluviométrique extrême de 100 mm h^{-1} , la tendance s'inverse et le modèle IdX surestime modérément les valeurs de Λ d'un facteur 2,7 (par rapport aux valeurs de la gamme $PM_{5-2,5}$) à 7,8 (par rapport aux valeurs de la gamme $PM_{0,5-0,3}$). La paramétrisation proposée par Laguionie et al. (2013) est quant à elle systématiquement supérieure à nos résultats pour la gamme $PM_{0,5-0,3}$, mais l'écart reste faible même pour de très fortes intensités pluviométriques (écart d'un facteur 3 pour une intensité de 100 mm h^{-1}).

4.3.2. Evènements neigeux

4.3.2.1. $\Lambda_{intra} = f(D_a)$ et demi-vie d'efficacité de lessivage

Compte tenu de la méthodologie employée pour sélectionner les évènements, le lessivage des chutes de neige n'a pas pu être étudié selon l'approche « macroscopique ». Par la méthodologie décrite dans la section 4.1, l'échantillon de coefficients Λ_{intra} après l'application des critères de sélection sur les valeurs de T_{intra} et $|BMN|$ est conséquent (quelques dizaines de valeurs pour $D_a < 0,9 \mu\text{m}$). Son analyse statistique est alors pertinente (figure 4-18 et tableau 4-5). Les temps de demi-vie d'efficacité de lessivage et les périodes de quasi-disparition sont aussi indiqués pour ce type de précipitation.

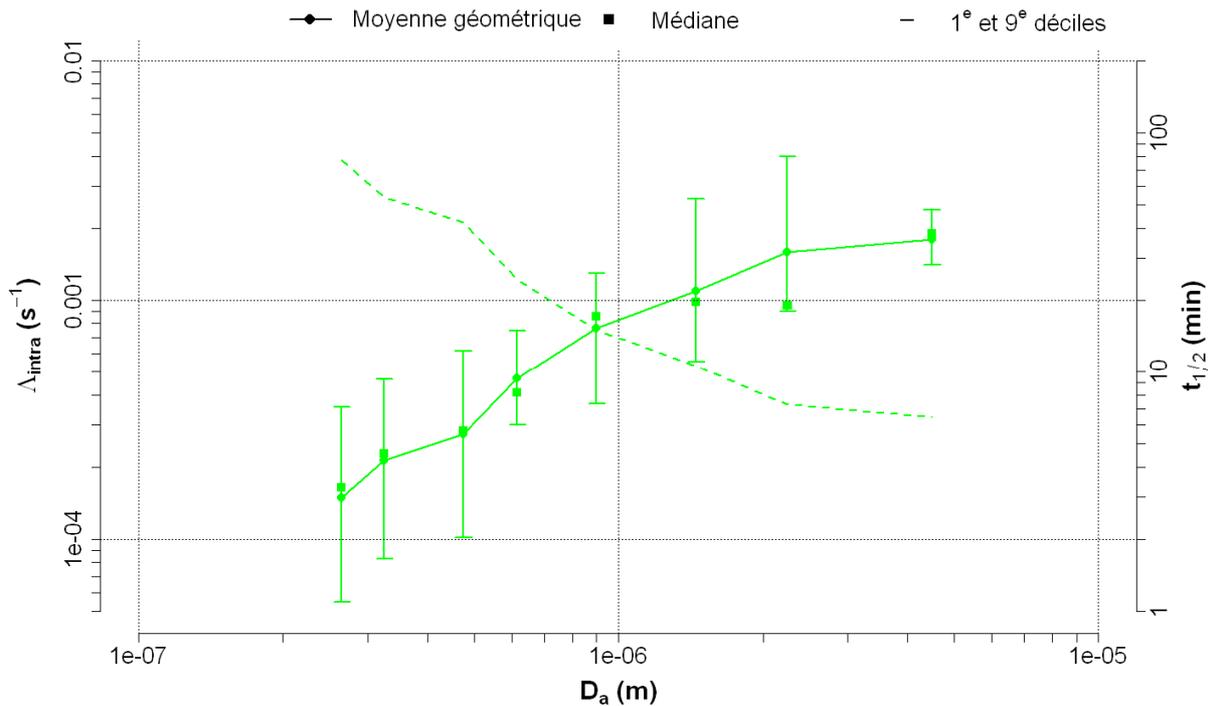


Figure 4-18 : Λ_{intra} (trait plein) et $t_{1/2}$ (trait tireté) en fonction du diamètre D_a pour les chutes de neige (site de Grenoble)

Dans le cas des chutes de neige, la variation du coefficient Λ_{intra} entre 0,265 et 4,5 μm est de plus d'un ordre de grandeur, entre environ $2 \cdot 10^{-4}$ et $2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. La variabilité autour des valeurs moyennes est faible quel que soit le diamètre, avec un coefficient CD de 2 au maximum. Au vu de la faible dispersion des coefficients Λ_{intra} sur la gamme des particules mesurées, les résultats obtenus peuvent être considérés comme représentatif du lessivage de l'aérosol atmosphérique par des chutes de neige. L'augmentation des valeurs de Λ_{intra} est surtout importante entre 0,265 et 2,25 μm de diamètre, avec Λ_{intra} compris entre $1,5 \cdot 10^{-4}$ et $1,6 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. Entre 2,25 et 4,5 μm , le coefficient Λ_{intra} augmente peu (de $1,6 \cdot 10^{-3}$ à $1,8 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$). Ce plafonnement pour des particules de diamètre supérieur à 4,5 μm est cohérent avec le modèle de Slinn et la prédominance de la collecte par impaction. Sans information sur les particules d'aérosol de taille plus importante, il n'a pas été possible de confirmer cette tendance pour les particules du mode « grossier ».

La cinétique du lessivage de l'aérosol atmosphérique par la neige est de l'ordre d'une heure au maximum pour la demi-vie d'efficacité de lessivage et d'environ quatre heures pour la période de quasi-disparition.

Tableau 4-5 : Etendue des paramètres statistiques de la série $\Lambda_{\text{intra}} = f(D_a)$ et des valeurs de $t_{1/2}$ et $t_{1/10}$ pour les chutes de neige (site de Grenoble)

	D_a (μm)	μg	M	CD	$t_{1/2}$ (min)	$t_{1/10}$ (h)
Min	0,265	$1,49 \cdot 10^{-4}$	$1,64 \cdot 10^{-4}$	0,5	6	0,7
Max	4,5	$1,79 \cdot 10^{-3}$	$1,90 \cdot 10^{-3}$	2	77	4,2

Peu d'études du lessivage de l'aérosol atmosphérique par des chutes de neige ont été faites. La plupart des études ont été réalisées en laboratoire et concernent des mesures d'efficacité de collecte de particules par différents types de flocons de neige. Néanmoins, nos résultats peuvent être comparés avec ceux obtenus par Kyrö et al. (2009) (figure 4-19). Les résultats de Paramonov et al. (2011) étant sensiblement identiques à ceux de Kyrö, ils ne sont pas représentés sur cette figure.

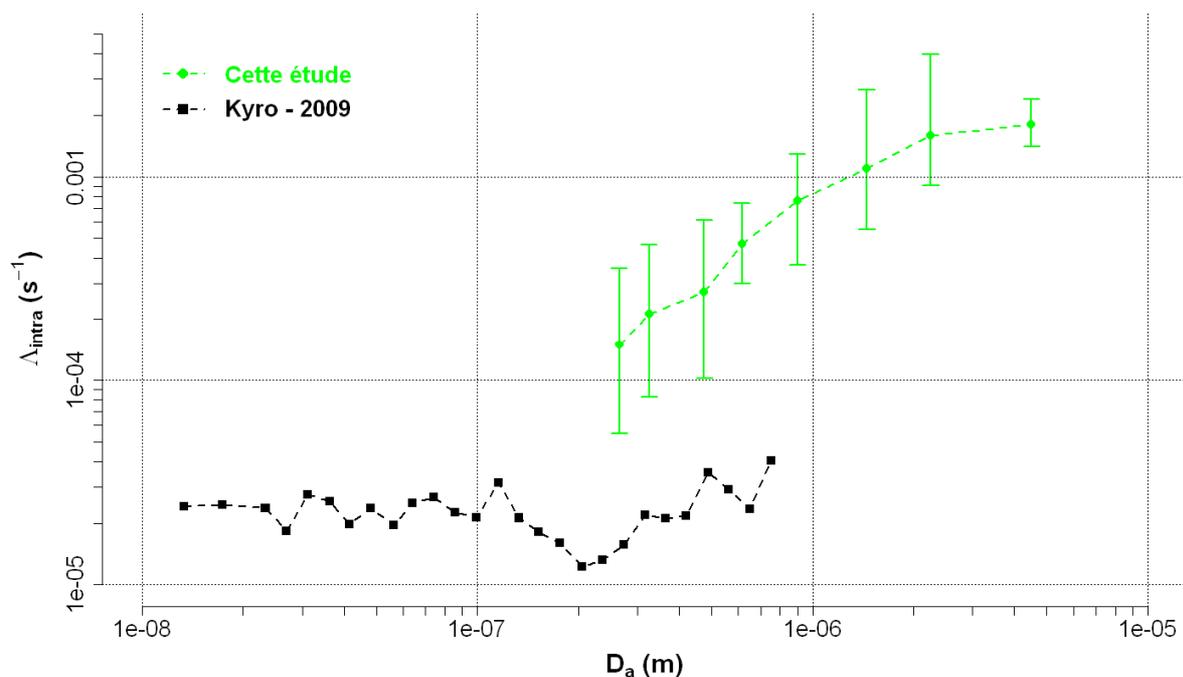


Figure 4-19 : Comparaison des coefficients de lessivage Λ (chutes de neige)

La gamme de taille de particules étudiée dans l'étude de Kyrö (10 nm et 1 μm) est différente de la nôtre (0,265 à 4,5 μm). Néanmoins, entre environ 0,3 et 1 μm , une comparaison des résultats est possible. Sur cette gamme de taille, les coefficients Λ_{intra} moyens que nous obtenons sont supérieurs d'environ un ordre de grandeur. Cet écart reste relativement constant pour la gamme de diamètre commun. Il est légèrement supérieur lorsque l'on compare nos résultats à ceux de Paramonov (2011) aux nôtres. Le potentiel de lessivage

minimal est observé par Kyrö à $D_a \approx 200$ nm. Dans l'étude de Paramonov, ce minimum est observé pour $D_a \approx 100$ nm. Cela est cohérent avec le fait que nous n'observons pas de minimum dans nos données (D_a minimum de $0,265 \mu\text{m}$). Concernant d'autres études menées en conditions *in situ*, Graedel et Franey (1975) ont obtenu des coefficients de lessivage compris entre $4,82 \cdot 10^{-4}$ et $6,35 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ pour des particules d'un diamètre compris entre $0,29$ et $1,48 \mu\text{m}$. Ces valeurs correspondent à une demi-vie d'efficacité du lessivage d'environ 40 minutes, soit une période similaire aux résultats présentés dans le tableau 4-5. Cependant, leurs mesures ne font pas apparaître de dépendance de Λ avec le diamètre D_a des particules d'aérosol.

Même en tenant compte de la variabilité de nos résultats, l'écart entre nos valeurs et les coefficients de lessivage obtenus dans de précédentes études *in situ* est significatif. Les conditions atmosphériques durant les mesures peuvent expliquer les désaccords constatés. En effet, Paramonov et al. (2011) ont mis en évidence l'augmentation du coefficient de lessivage avec l'humidité relative de l'air. Entre 80% et plus de 95%, la valeur de Λ est multipliée par un facteur d'environ 4. Dans le cas de notre étude, nous ne disposons pas des données météorologiques nécessaires pour étudier l'influence de l'humidité relative de l'air sur les résultats présentés. De plus, le type de flocons a potentiellement un impact important sur le lessivage durant des chutes de neige. Locatelli et Hobbs (1974) ont mesuré la masse, les dimensions et la vitesse de chute de 22 types d'hydrométéores solides. Ils ont montré que contrairement aux pluies qui sont uniquement formées de gouttes d'eau (considérées dans la plupart des cas comme sphériques), les hydrométéores qui composent les chutes de neige peuvent être de structures très différentes. En conséquence, l'efficacité de collecte E_{tot} est très variable selon le type de flocons, notamment en ce qui concerne les mécanismes phorétiques comme suggéré dans Santachiara et al. (2013).

4.3.2.2. Comparaison des résultats pour différents types de précipitation

Etant donné que sur le site de Grenoble les potentiels de lessivage ont été déterminés pour les pluies et pour les chutes de neige, les coefficients Λ_{intra} obtenus pour les deux types de précipitations peuvent être comparés (figure 4-20).

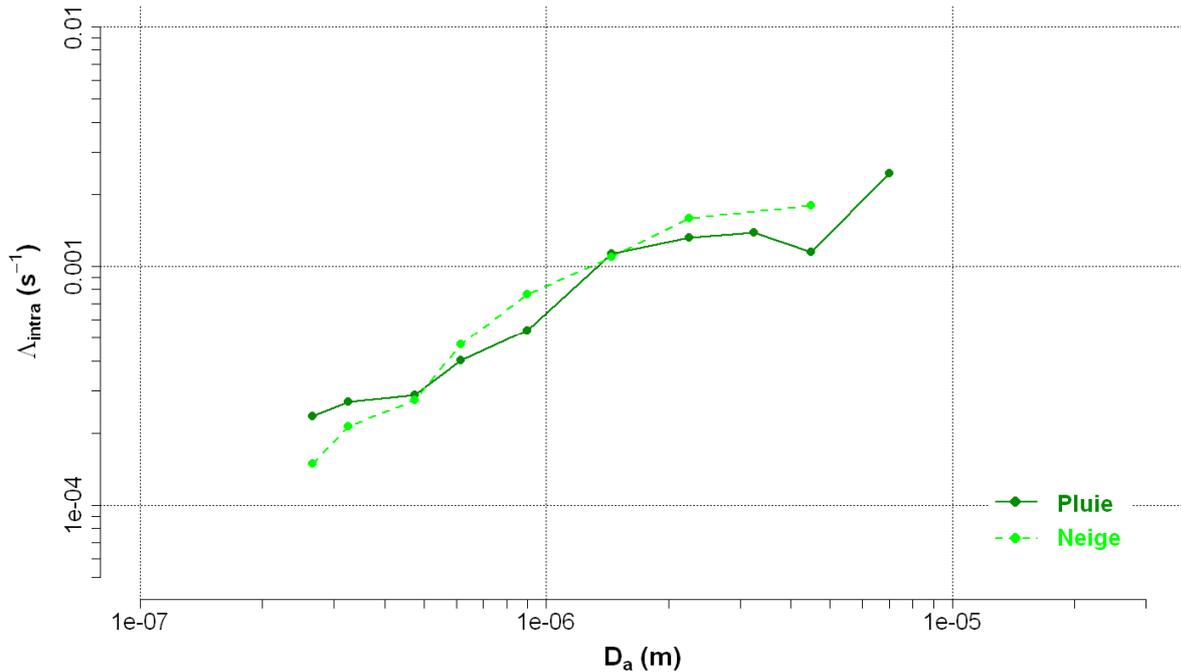


Figure 4-20 : Comparaison des coefficients Λ_{intra} pour les pluies et les chutes de neige (site de Grenoble)

Qu'ils s'agissent des événements pluvieux ou des chutes de neige, les coefficients de lessivage Λ_{intra} ne sont pas significativement différents entre 0,265 et 4,5 μm . Cette constatation est surprenante puisque les précédentes études sur le lessivage des événements neigeux ont fait apparaître un potentiel de lessivage de 30 à 50 fois plus important par rapport au lessivage par la pluie pour des précipitations équivalente en termes de volume d'eau récolté (Graedel et Franey, 1975). Kyrö et al. (2009) ont obtenus des potentiels de lessivage légèrement supérieurs dans le cas des chutes de neige par rapport aux résultats obtenus par Laakso et al. (2003) sur le même site pour des événements pluvieux. Cependant, dans la plupart des cas étudiés, l'intensité des chutes de neige est très faibles (inférieures à 0,3 mm h^{-1}) alors que dans le cas des pluies, l'intensité pluviométrique est généralement d'un ordre de grandeur supérieur. Ils font donc aussi l'hypothèse que la neige est plus efficace que la pluie en termes de lessivage. Dans le cas de notre étude, l'intensité pluviométrique moyenne correspondant aux résultats du site de Grenoble pour les événements pluvieux est de 1,3 mm h^{-1} (tableau 4-2). Bien que cette intensité pluviométrique moyenne soit relativement faible, les coefficients Λ_{intra} moyennés pour l'ensemble des pluies (figure 4-11) portent aussi la contribution d'événements plus violents avec une intensité pluviométrique maximale pour certaines phases de l'ordre de quelques dizaines de mm h^{-1} . Dans le cas des chutes de neige, l'intensité moyenne calculée par le disdromètre est d'environ 0,6 mm h^{-1} , avec des valeurs maximales systématiquement inférieures à 5 mm h^{-1} .

A partir de ces résultats, nous pouvons émettre nous aussi l'hypothèse que le lessivage de la neige est bien plus efficace que le lessivage de la pluie. En l'absence de mesure de densité de la neige, il n'est cependant pas possible de déterminer un ratio d'efficacité de lessivage entre évènements neigeux et pluvieux pour des précipitations correspondant à un même volume d'eau précipitée.

4.4. Conclusions

Dans cette partie, une méthodologie a été développée pour calculer les coefficients de lessivage sur des périodes plus courtes que la durée de l'évènement pluvieux, et pendant lesquelles l'intensité de précipitation est moins variable que sur la durée totale. Il ne s'agit plus de considérer chaque évènement comme une entité à part entière, mais de le décomposer en sous-évènements durant lesquels la concentration en aérosol diminue. Pour chacune de ces phases, les mesures des concentrations particulières sont comparées à la décroissance exponentielle que prévoit la théorie du lessivage. La sélection des coefficients de lessivage Λ_{intra} se fait ensuite selon le degré de similitude entre les mesures *in situ* et l'évolution temporelle théorique des concentrations. Cette approche « intra-évènementielle » permet d'augmenter le nombre cas de manière significative pour des valeurs diverses de l'intensité de précipitation. En associant les données théoriques et expérimentales sur un très grand nombre de phases de courtes durées, l'impact des processus « concurrents » est aussi limité.

Les coefficients de lessivage Λ_{intra} ont été calculés pour des particules d'aérosol d'un diamètre compris entre 10 nm et 4,5 μm . Les résultats montrent une très bonne cohérence sur l'ensemble de la gamme de taille ultrafine à supermicronique. Les coefficients de lessivage Λ_{intra} varient d'environ $2 \cdot 10^{-4}$ à $2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, avec un potentiel de lessivage minimum entre 50 et 350 nm. La comparaison des résultats obtenus sur les différents sites montre une nouvelle fois des valeurs de Λ très proches.

La variabilité des coefficients Λ_{intra} autour de la valeur moyenne étant relativement faible (en particulier en comparaison des résultats obtenus par l'approche « macroscopique »), une paramétrisation du coefficient de lessivage en fonction du diamètre des particules est proposée pour des diamètres de particules compris entre 10 nm et 10 μm . Cette paramétrisation est supérieure d'un ordre de grandeur à celles déjà proposées dans la littérature et de deux ordres de grandeur supérieure à la théorie.

De même, une paramétrisation en loi puissance du coefficient de lessivage en fonction de l'intensité pluviométrique est présentée. Elle se révèle être en bon accord avec une étude sur le lessivage en conditions *in situ* actuellement menée à Cherbourg dont les méthodes d'analyse des données sont similaires à celles définies dans notre étude. En revanche, la

paramétrisation implémentée dans les modèles numériques de l'IRSN sous-estime notablement le lessivage de l'aérosol par des pluies de faibles intensités. Cet écart varie d'un ordre de grandeur pour les particules de diamètre inférieur à 1 μm à plus de deux ordres de grandeur pour les particules de plusieurs μm . Pour les pluies très intenses, le modèle surestime modérément les valeurs de Λ , avec moins d'un ordre de grandeur d'écart quelque soit le diamètre des particules.

Le lessivage lors d'évènements neigeux a aussi pu être étudié à partir des mesures faites sur le site de Grenoble. Les coefficients de lessivage calculés pour des particules d'aérosol de diamètre compris entre 0,265 et 4,5 μm varient entre environ $2 \cdot 10^{-4}$ et $2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, ce qui correspond aux potentiels de lessivage déterminés pour les évènements pluvieux. Toutefois, l'intensité des chutes de neige est en moyenne deux fois inférieure à l'intensité des pluies durant les phases sélectionnées. Le lessivage par les évènements neigeux est donc considéré comme supérieur au lessivage par les pluies pour des précipitations équivalentes en termes de volume d'eau tombée.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

En conditions normales (hors rejet accidentel), les concentrations des radionucléides particuliers artificiels sont à des niveaux traces dans l'atmosphère. Le dépôt humide (effets combinés du lavage dans le nuage et du lessivage sous le nuage) de ces radioéléments ne peut donc pas être étudié directement à partir de prélèvements individuels ou événementiels. En cas de rejets radiologiques, tant que le panache contaminé se trouve sous la base des nuages, le lessivage des radionucléides particuliers est le seul processus de dépôt humide actif. Il est donc primordial d'estimer les conséquences sur la biosphère de ce processus très efficace sur de courtes échelles de temps. Pour atteindre ce but, cette étude a donc porté sur la phase porteuse de la radioactivité : l'aérosol. L'étude bibliographique a permis d'identifier de nombreuses études relatives au lessivage de l'aérosol par les précipitations. Toutefois la plupart d'entre elles sont d'ordre théorique ou ont été menées en laboratoire. Très peu d'études expérimentales *in situ* ont été faites en mesurant l'impact des précipitations naturelles sur les concentrations de particules d'aérosol atmosphérique.

Cette thèse avait donc pour objectif d'améliorer la connaissance sur le lessivage de l'aérosol par les précipitations par une approche expérimentale en conditions *in situ*. Durant plusieurs mois, trois sites de mesures aux environnements différents en termes de climatologie et d'empoussièrément ambiant ont été instrumentés pour disposer d'une palette de situations précipitation/empoussièrément la plus variée possible. Les concentrations particulières et les caractéristiques des précipitations ont été mesurées à une résolution temporelle élevée (une mesure par minute) respectivement par un granulomètre (compteur électrique et/ou optique) et un disdromètre laser. L'utilisation de ce couplage instrumental original sur ces différents sites a permis de déterminer les potentiels de lessivage pour une large gamme de diamètre de particules (du mode « ultrafin » au mode « grossier ») et en prenant compte la variabilité naturelle des caractéristiques des précipitations (type d'hydrométéore et intensités pluviométriques spécifiques notamment).

Dans un premier temps, les coefficients de lessivage Λ (paramètre décrivant la cinétique du processus) ont été calculés par une approche « macroscopique », *i.e.* en évaluant le potentiel de lessivage de chaque événement considéré dans son intégralité. Une méthodologie a été développée pour minimiser l'influence des processus « concurrents », en particulier l'impact des sources d'aérosol anthropique à proximité. Néanmoins, il n'a pas été possible de caractériser l'impact de la variabilité des caractéristiques des précipitations (notamment l'intensité pluviométrique) sur les potentiels de lessivage. Pour pallier cette limitation, une seconde approche, qualifiée d'« intra-événementielle », a été développée.

Cette approche consiste à se limiter à de courtes périodes de précipitations et à comparer l'évolution temporelle des mesures *in situ* avec la théorie du lessivage pour éliminer les biais liés aux processus « concurrents ». Pour les échelles de temps considérées (quelques dizaines de minutes au plus), l'influence de la variabilité de l'intensité pluviométrique sur les coefficients de lessivage a pu ainsi être étudiée en détails, ainsi que le lessivage lors d'évènements neigeux.

Pour modéliser de manière fidèle le lessivage de l'aérosol atmosphérique, les résultats présentés dans cette étude concordent sur la nécessité de considérer conjointement la taille des particules et les caractéristiques des précipitations (intensité pluviométrique et phase des hydrométéores).

En effet, lorsque l'on s'intéresse à la dépendance du coefficient de lessivage Λ avec le diamètre des particules, la variation est d'un ordre de grandeur (entre $2 \cdot 10^{-4}$ et $2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$) entre le potentiel de lessivage minimal (autour de 100 nm de diamètre) et le potentiel de lessivage maximal (pour des particules de quelques μm). Le potentiel de lessivage minimal obtenu dans cette étude est cohérent avec la théorie (« Greenfield gap » entre 0,1 et 1 μm). Entre 10 nm et 10 μm , une paramétrisation robuste du coefficient de lessivage en fonction du diamètre des particules est proposée. La comparaison de cette paramétrisation avec le modèle utilisé actuellement par l'IRSN a montré des divergences importantes, en particulier pour les particules du mode « grossier ». De même, le type de précipitation et l'intensité pluviométrique doivent être considérés. En effet, même si elle n'a pas pu être quantifiée, la prédominance du lessivage par la neige par rapport au lessivage par la pluie a été illustrée. De plus, pour une classification des pluies établie dans cette étude et basée sur le profil des hyétoigrammes, les différences en termes de cinétique du lessivage pour chacune des classes sont clairement apparues. Des pluies intenses (intensité moyenne de l'ordre de 10 ainsi lessiver la moitié de la quantité initiale de particules en moins d'une heure quelque soit le diamètre des particules, tandis qu'il faudra plusieurs dizaines de minutes à plusieurs heures pour des pluies d'une intensité moyenne faible (moins de 1 mm h^{-1}). Différentes paramétrisations du coefficient de lessivage en fonction de l'intensité pluviométrique ont été formulées selon la gamme de diamètre des particules d'aérosol. Ces paramétrisations montrent des divergences relativement importantes selon la gamme de diamètre des particules avec celle implémentée actuellement dans le modèle IdX actuellement utilisé à l'IRSN en cas d'accident nucléaire. Cet écart est généralement proche d'un ordre de grandeur et correspond à une sous-estimation par le modèle mais il peut atteindre un facteur 40 pour les particules du mode « grossier » et des intensités pluviométriques faibles (inférieure à 1 mm h^{-1}). En cas de rejet accidentel des radionucléides, des particules chaudes (« hot particles ») supermicroniques seraient susceptibles d'être trouvées (jusqu'à

plus d'une centaine de kilomètres de distance de l'installation). Dans ces conditions il conviendrait de réajuster le paramétrage du modèle.

Certaines questions restent encore à approfondir pour affiner les résultats de cette étude. Aucune différence liée à l'hétérogénéité des sources locales de particules sur les différents sites n'a été mise en évidence pour les modes « accumulation » et « grossier ». Pour confirmer ou infirmer une éventuelle dépendance du coefficient de lessivage avec le type d'aérosol, une caractérisation physico-chimique des particules sur chacun des sites est nécessaire. Le lessivage par la neige des particules « ultrafines » n'a pas non plus été étudié durant cette thèse. L'instrumentation d'un site montagneux avec le granulomètre WRAS pourrait permettre de combler ce manque. La dépendance du coefficient de lessivage selon la distribution en taille des hydrométéores (flocons de neige ou gouttes d'eau) mériterait aussi d'être approfondie dans de futures études, la base de données déjà acquises pouvant servir de base de travail. Enfin, les larges divergences constatées entre nos résultats (et la plupart des études *in situ* existantes) et les données théoriques sont aussi difficiles à expliquer à l'heure actuelle. Tout d'abord parce qu'en conditions *in situ*, il est compliqué de mesurer directement les efficacités de collecte des hydrométéores pour comparer ces valeurs aux efficacités de collecte théoriques. Ensuite, certains mécanismes de collecte considérés dans les modèles sont encore mal connus (notamment les effets électrostatiques) ou non pris en compte (recirculation arrière). Des études actuellement menées à l'IRSN (PSN-RES) tentent de pallier ces lacunes.

Les travaux expérimentaux sur le lessivage de l'aérosol, qu'ils soient en conditions *in situ* ou en laboratoire, doivent donc continuer à être conduits de front pour améliorer la compréhension et la modélisation des différents mécanismes impliqués.

REFERENCES

- Adachi, K., Kajino, M., Zaizen, Y. & Igarashi, Y., 2013. Emission of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident. *Scientific reports* 3, 2554.
- Andronache, C., 2003. Estimated variability of below-cloud aerosol removal by rainfall for observed aerosol size distributions. *Atmospheric Chemistry and Physics* 3, 131–143.
- Atlas, D., Srivastava, R.C., Sekhon, R.S., 1973. Doppler radar characteristics of precipitation at vertical incidence. *Review of Geophysics*. 11, 1–35.
- Atlas, D., Ulbrich, C.W., 1977. Path- and Area-Integrated Rainfall Measurement by Microwave Attenuation in the 1–3 cm Band. *Journal of Applied Meteorology* 16, 1322–1331.
- Baron, P.A., Willeke, K., 2005. *Aerosol Measurement: Principles, Techniques, And Applications*, John Wiley & Sons Inc (2nd Revised ed.).
- Baklanov, A., Sørensen, J.H., 2001. Parameterisation of radionuclide deposition in atmospheric long-range transport modelling. *Physics and Chemistry of the Earth, Part B: Hydrology, Oceans and Atmosphere* 26, 787–799.
- Battaglia, A., Rustemeier, E., Tokay, A., Blahak, U., Simmer, C., 2010. PARSIVEL snow observations: A critical assessment. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 27, 333–344.
- Beard, K.V., Pruppacher, H.R., 1969. A Determination of the Terminal Velocity and Drag of Small Water Drops by Means of a Wind Tunnel. *Journal of the Atmospheric Sciences* 26, 1066–1072.
- Bell, M.L., Davis, D.L., Fletcher, T., 2004. A retrospective assessment of mortality from the London smog episode of 1952: the role of influenza and pollution. *Environmental Health Perspectives* 112, 6–8.
- Bentley W. A., 1904. Studies of raindrops and raindrop phenomena. *Monthly Weather Review* 32, 450–456.
- Best, A.C., 1950. The size distribution of raindrops. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 76, 16–36.
- Bolsunovsky, A., Dementyev, D., 2011. Evidence of the radioactive fallout in the center of Asia (Russia) following the Fukushima nuclear accident. *Journal of Environmental Radioactivity* 102, 1062–1064.

- Bouvier, C., Ayabaca, E., Perrin, J.-L., Cruz, F., Fourcade, B., Rosario, S., Carrera, L., 1999. Variabilités temporelle et spatiale des averses en milieu andin : exemple de la ville de Quito (Equateur). *Revue de géographie Alpine* 87, 51–65.
- Calec, N., 2013. Dépôt sec des aérosols submicroniques sur une surface liquide en mouvement. Université Aix-Marseille.
- Cerro, C., Codina, B., Bech, J., Lorente, J., 1997. Modeling Raindrop Size Distribution and Z (R) Relations in the Western Mediterranean Area. *Journal of Applied Meteorology* 36, 1470–1479.
- Chate, D.M., Kamra, A.K., 1997. Collection efficiencies of large water drops collecting aerosol particles of various densities. *Atmospheric Environment* 31, 1631–1635.
- Chate, D.M., Pranesha, T.S., 2004. Field studies of scavenging of aerosols by rain events. *Journal of Aerosol Science* 35, 695–706.
- Chate, D.M., 2005. Study of scavenging of submicron-sized aerosol particles by thunderstorm rain events. *Atmospheric Environment* 39, 6608–6619.
- Chate, D.M., 2011. Below-thunderstorm rain scavenging of urban aerosols in the health hazardous modes. *Natural Hazards* 56, 81–91.
- Davenport, H.M., Peters, L.K., 1978. Field studies of atmospheric particulate concentration changes during precipitation. *Atmospheric Environment* 12, 997–1008.
- Depuydt G., Masson O., De Vismes A., Orjollet D., Renaud P., Paulat P., 2013. Wet deposition of radionuclides in France following the Fukushima accident. *Journal of Environmental Radioactivity*, in revision.
- Doi, T., Masumoto K., Toyoda, A., Tanaka, A., Shibata, Y., Hirose, K., 2013. Anthropogenic radionuclides in the atmosphere observed at Tsukuba: characteristics of the radionuclides derived from Fukushima. *Journal of Environmental Radioactivity* 122, 55–62.
- Dorrian, M.-D., 1997. Particle size distributions of radioactive aerosols in the environment. *Radiation Protection Dosimetry* 69, 117–132.
- Duhanyan, N., Roustan, Y., 2011. Below-cloud scavenging by rain of atmospheric gases and particulates. *Atmospheric Environment* 45, 7201–7217.
- D'Almeida, G. A., P. Koepke et E. P. Shettle: Atmospheric aerosols - global climatology and radiative characteristics. A. Deepak Publishing, Hampton, Virginia, 561 pp, 1991.
- Feingold, G., Levin, Z., 1986. The lognormal fit to raindrop spectra from frontal convective clouds in Israel. *Journal of Climate & Applied Meteorology* 25, 1346–1363.

- Flossmann A. I., 1987, A theoretical investigation of the removal of atmospheric trace constituents by means of a dynamic model. Meteorological Institute, Johannes Gutenberg University, Mainz.
- Frank, G., Tschiersch, J., 1992. Parametrisation of below cloud scavenging at low precipitation intensities by using a fluorescent tracer method. *Journal of Aerosol Science* 23, 885–888.
- Garcia Nieto, P., Garcia, B.A., Diaz, J.M.F., Brana, M.A.R., 1994. Parametric study of selective removal of atmospheric aerosol by below-cloud scavenging. *Atmospheric Environment* 28, 2335–2342.
- Garger, E.K., Kashpur, V.A., Li, W.B., Tschiersch, J., 2006. Radioactive aerosols released from the Chernobyl Shelter into the immediate environment. *Radiation and Environmental Biophysics* 45, 105–114.
- Graedel, T.E., Franey, J.P., 1975. Field measurements of submicron aerosol washout by snow. *Geophysical Research Letters* 2, 325–328.
- Greenfield, S.M., 1957. Rain scavenging of radioactive particulate matter from the atmosphere. *Journal of Meteorology* 14, 115–125.
- Grover, S.N., Pruppacher, H.R., Hamielec, A.E., 1977. A Numerical Determination of the Efficiency with Which Spherical Aerosol Particles Collide with Spherical Water Drops Due to Inertial Impaction and Phoretic and Electrical Forces. *Journal of the Atmospheric Sciences* 34, 1655–1663.
- Gunn, R., Kinzer, G.D., 1949. The terminal velocity of fall for water droplets in stagnant air. *Journal of Meteorology* 6, 243–248.
- Henzing, J.S., Olivie, D.J.L., Van Velthoven, P.F.J., 2006. A parameterization of size resolved below cloud scavenging of aerosols by rain. *Atmospheric Chemistry and Physics* 6, 3363–3375.
- Hirose, K., Takatani, S., Aoyama, M., 1993. Wet deposition of radionuclides derived from the Chernobyl accident. *Journal of Atmospheric Chemistry* 17, 61–71.
- IRSN, 2007. Tchernobyl, 17 ans après. Rapport IRSN. 106 p.
- Jaenicke, 1993. Tropospheric aerosol. Dans Hobbs P. V. (1993). *Aerosol Cloud Climate Interactions*. Academic Press.
- Jiang, H., Sano, M., Sekine, M., 1997. Weibull raindrop-size distribution and its application to rain attenuation. *IEE Proceedings: Microwaves, Antennas and Propagation* 144, 197–200.

- Joss, J., Thams, J.C., Waldvogel, A., 1967. The variation of raindrop size distributions at locarno. Proceedings Conference on Cloud Physics, 369-373.
- Jylhä, K., 1991. Empirical scavenging coefficients from radioactive substances released from Chernobyl. Atmospheric Environment - Part A General Topics 25 A, 263–270.
- Kaneyasu, N., Ohashi, H., Suzuki, F., Okuda, T., Ikemori, F., 2012. Sulfate Aerosol as a Potential Transport Medium of Radiocesium from the Fukushima Nuclear Accident. Environmental Science and Technology 46, 5720–5726.
- Kerker, M., Hampl, V., 1974. Scavenging of Aerosol Particles by a Falling Water Drop and Calculation of Washout Coefficients. Journal of the Atmospheric Sciences 31, 1368–1376.
- Kessler, E., 1969. On the Distribution and Continuity of Water Substance in Atmospheric Circulations. American Meteorological Society.
- Kyrö, E.-M., Grönholm, T., Vuollekoski, H., Virkkula, A., Kulmala, M., Laakso, L., 2009. Snow scavenging of ultrafine particles: Field measurements and parameterization. Boreal Environment Research 14, 527–538.
- Laakso, L., Grönholm, T., Rannik, U., Kosmale, M., Fiedler, V., Vehkamäki, H., Kulmala, M., 2003. Ultrafine particle scavenging coefficients calculated from 6 years field measurements. Atmospheric Environment 37, 3605–3613.
- Laguionie, P., Maro, D., Letellier, B., Le Cavalier, S., 2011. Rain scavenging of below-cloud aerosols particles : field measurements using disdrometer and SMPS. European Aerosol Conference. Manchester.
- Laguionie, P., Maro, D., Roupsard, P., Percot, S., Solier, L., Ruban, V., Rozet, M., Hébert, D., Connan, O., 2013. New method to quantify the contributions of rainout, washout and dry deposition to the total deposition flux of atmospheric aerosol on urban surfaces. European Aerosol Conference. Prague.
- Locatelli, J.D., Hobbs, P.V., 1974. Fall speeds and masses of solid precipitation particles. Journal of Geophysical Research 79, P. 2185.
- Löffler-Mang, M., Joss, J., 2000. An optical disdrometer for measuring size and velocity of hydrometeors. Journal of Atmospheric and Oceanic Technology 17, 130–139.
- Marshall, J.S., Palmer, W.M.K., 1948. The distribution of raindrops with size. Journal of Meteorology 5, 165–166.
- Marchand, D., 2008. Etude du rabattement des produits de fission sous forme d'aérosol par une pulvérisation de gouttelettes d'eau générée par un système d'aspersion de REP. Thèse de doctorat. Institut National des Sciences Appliquées de Rouen.

- Masson, O., Baeza, A., Bieringer, J., Brudecki, K., Bucci, S., et al., 2011. Tracking of airborne radionuclides from the damaged Fukushima Dai-Ichi nuclear reactors by European Networks. *Environmental Science and Technology* 45, 7670–7677.
- Masson, O., Ringer, W., Mala, H., Rulik, P., Dlugosz-Lisiecka, M., Eleftheriadis, K., Leisenberg, O., De Vismes-Ott, A., Gensdarmes, F., 2013. Size distributions of airborne radionuclides from the Fukushima nuclear accident at several places in Europe. *Environmental Science and Technology*. DOI: 10.1021/es401973c
- Mattsson, S., Vesanen, R., 1988. Patterns of Chernobyl fallout in relation to local weather conditions. *Environment International* 14, 177–180.
- Mircea, M., Stefan, S., 1998. A theoretical study of the microphysical parameterization of the scavenging coefficient as a function of precipitation type and rate. *Atmospheric Environment* 32, 2931–2938.
- Mircea, M., Stefan, S., Fuzzi, S., 2000. Precipitation scavenging coefficient: Influence of measured aerosol and raindrop size distributions. *Atmospheric Environment* 34, 5169–5174.
- Nicholson, K.W., Branson, J.R., Giess, P., 1991. Field measurements of the below-cloud scavenging of particulate material. *Atmospheric Environment - Part A General Topics* 25 A, 771–777.
- OCDE, 2002. Chernobyl, Assessment of radiological and health impacts. 2002 Update of Chernobyl : Ten years on. OCDE publications. 157 p.
- Ooe, H., Seki, R., Ikeda, N., 1988. Particle-size distribution of fission products in airborne dust collected at Tsukuba from April to June 1986. *Journal of Environmental Radioactivity* 6, 219–223.
- Paramonov, M., Grönholm, T., Virkkula, A., 2011. Below-cloud scavenging of aerosol particles by snow at an urban site in Finland. *Boreal Environment Research* 16, 304–320.
- Piga, D., 2010. Processus engagés dans la rémanence au niveau du compartiment atmosphérique des radionucléides artificiels antérieurement déposés. Thèse de doctorat. Université du Sud Toulon Var.
- Pranisha, T.S., Kamra, A.K., 1997. Scavenging of aerosol particles by large water drops 2. The effect of electrical forces. *Journal of Geophysical Research D : Atmospheres* 102, 23937–23946.
- Pruppacher, H.R., Klett, J.D., 1996. *Microphysics of Clouds and Precipitation*. Kluwer Academic Publishers (revised and enlarged ed.).

- Quérel A., 2012. Lessivage de l'atmosphère par la pluie : Approche microphysique. Thèse de doctorat. Université Blaise Pascal.
- Radke, L.F., Hobbs, P.V., Eltgroth, M.W., 1980. Scavenging of aerosol particles by precipitation. *Journal of Applied Meteorology* 19, 715–722.
- Raes, F., Dingenen, R.V., Vignati, E., Wilson, J., Putaud, J.-P., Seinfeld, J.H., Adams, P., 2000. Formation and cycling of aerosols in the global troposphere. *Atmospheric Environment* 34, 4215–4240.
- Renaud, P., Pourcelot, L., Métivier, J.-M., Morello, M., 2003. Mapping of ¹³⁷Cs deposition over eastern France 16 years after the Chernobyl accident. *Science of the Total Environment* 309, 257–264.
- Renaud, P., Champion, D., Brenot, J., 2007. Les retombées radioactives de l'accident de Tchernobyl sur le territoire français: Conséquences environnementales et exposition des personnes. Tec & Doc Lavoisier. 190 p.
- Renoux, A., Boulaud, D., 1998. Les aérosols: Physique et métrologie. Tec & Doc Lavoisier.
- Robertson, C.E., 1965. An Easy-to-Use Raindrop Sensor. *Journal of Applied Meteorology* 4, 642–644.
- Roupsard, P., 2013. Etude phénoménologique du dépôt sec d'aérosols en milieu urbain : influence des propriétés des surfaces, de la turbulence et des conditions météorologiques. Thèse de doctorat. Institut National des Sciences Appliquées de Rouen.
- Resnick, P.R., 2006. A short history of Nafion®. *L'Actualité chimique* 144–147.
- Russell, A., Dennis, R., 2000. NARSTO critical review of photochemical models and modeling. *Atmospheric Environment* 34, 2283–2324.
- Santachiara, G., Prodi, F., Belosi, F., 2013. Atmospheric aerosol scavenging processes and the role of thermo- and diffusio-phoretic forces. *Atmospheric Research* 128, 46–56.
- Saunier, O., Mathieu, A., Didier, D., Tombette, M., Quélo, D., Winiarek, V., Bocquet, M. An inverse modeling method to assess the source term of the Fukushima nuclear power plant accident using gamma dose rate observations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 15567-15614..
- Schumann, T., 1989. Precipitation scavenging of aerosol particles: a winter time field study. Thèse de doctorat. Swiss Federal Institute of Technology.
- Scott, B.C., 1982. Theoretical estimates of the scavenging coefficient for soluble aerosol particles as a function of precipitation type, rate and altitude. *Atmospheric Environment*, 16, 1753-1762.

- Seinfeld, J.H., Pandis, S.N., 2006. Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change. John Wiley & Sons (2nd ed.).
- Sekine, M., Lind, G., 1982. Rain attenuation of centimetre, millimeter and submillimeter radio waves. Conference Proceedings - European Microwave Conference. pp. 584–589.
- Slinn, W.G.N., 1977. Some approximations for the wet and dry removal of particles and gases from the atmosphere. *Water, Air, and Soil Pollution* 7.
- Slinn, W.G.N., 1983. Precipitation scavenging - chap 11, in: *Atmospheric Sciences and Power Production*. US Department of Energy.
- Smith, P.L., 2003. Raindrop Size Distributions: Exponential or Gamma—Does the Difference Matter? *Journal of Applied Meteorology* 42, 1031–1034.
- Sparmacher, H., Fulber, K., Bonka, H., 1993. Below-cloud scavenging of aerosol particles: Particle-bound radionuclides-experimental. *Atmospheric Environment - Part A General Topics* 27 A, 605–618.
- Spielvogel, J., Hartstock, S., Grimm, H., 2009. New methods and standards for fine dust. *Journal of Physics : Conference Series* 170, 012024.
- Sportisse, B., 2007. A review of parameterizations for modelling dry deposition and scavenging of radionuclides. *Atmospheric Environment* 41, 2683–2698.
- Sportisse, B., 2008. *Pollution Atmosphérique: Des Processus à la Modélisation*. Springer. 350 p.
- Staehelin, J., Waldvogel, A., Collett Jr., J.L., Dixon, R., Heimgartner, R., Henrich, W., Hsu, C., Li, L., Mosimann, L., Oberholzer, B., Prevot, A.S.H., Schmid, W., Schumann, T., Steiner, M., Volken, M., Zinder, B., 1993. Scientific goals and experiments of the project “Winter precipitation at Mount Rigi”: An overview. *Water, Air, and Soil Pollution* 68, 1–14.
- Tschiersch J., Trautner F., Farnk G., 1995. Deposition of atmospheric aerosol by rain and fog. Rapport “Radiation protection” #EUR 16604 EN, pp. 3-11.
- Tripathi, S.N., Harrison, R.G., 2001. Scavenging of electrified radioactive aerosol. *Atmospheric Environment* 35, 5817–5821.
- Ulbrich, C.W., 1983. Natural Variations in the Analytical Form of the Raindrop Size Distribution. *Journal of Climate and Applied Meteorology* 22, 1764–1775.
- Vohl, O., Mitra, S.K., Diehl, K., Huber, G., Wurzler, S.C., Kratz, K.-L., Pruppacher, H.R., 2001. A wind tunnel study of turbulence effects on the scavenging of aerosol particles by water drops. *Journal of the Atmospheric Sciences* 58, 3064–3072.

- Volken, M., Schumann, T., 1993. A critical review of below-cloud aerosol scavenging results on Mt. Rigi. *Water, Air, and Soil Pollution* 68, 15–28.
- Waldvogel, A., 1974. The N_0 Jump of Raindrop Spectra. *Journal of the Atmospheric Sciences* 31, 1067–1078.
- Wang, X., Zhang, L., Moran, M.D., 2010. Uncertainty assessment of current size-resolved parameterizations for below-cloud particle scavenging by rain. *Atmospheric Chemistry and Physics* 10, 5685–5705.
- Wesely, M.L., Hicks, B.B., 2000. A review of the current status of knowledge on dry deposition. *Atmospheric Environment* 34, 2261–2282.
- Wetherbee, G.A., Gay, D.A., Debey, T.M., Lehmann, C.M.B., Nilles, M.A., 2012. Wet deposition of fission-product isotopes to North America from the Fukushima Dai-ichi incident, march 2011. *Environmental Science and Technology* 46, 2574–2582.
- Whitby, K.T., 1973. On the multimodal nature of atmospheric aerosol distributions. VIII International Conference on Nucleation. Leningrad.

Résumé

En cas de rejets de polluants ou de radionucléides dans l'atmosphère, l'estimation du lessivage des particules d'aérosol atmosphérique par les précipitations est une donnée essentielle pour évaluer la contamination de la biosphère. De nombreuses études se sont déjà intéressées à ce processus de dépôt humide, mais la plupart d'entre elles sont d'ordre théoriques ou ont été menées en laboratoire. Cette étude a donc pour objectif d'améliorer la connaissance du potentiel de lessivage des particules d'aérosol par les précipitations par une approche expérimentale en conditions *in situ*. Durant plusieurs mois, trois sites aux environnements distincts en termes de climatologie et d'empoussièrement ambiant ont été instrumentés pour disposer d'une palette de situations précipitations/empoussièrement la plus variée possible. Un disdromètre laser et un granulomètre (compteur électrique et/ou optique) ont mesurés respectivement les caractéristiques des précipitations et les concentrations de particules à une résolution temporelle élevée et sur une large gamme de diamètre. L'utilisation de ce couplage instrumental original a permis de déterminer les potentiels de lessivage pour des particules de la gamme nanométrique à supermicronique et pour différents types de précipitations (chutes de neige et pluies avec des hyétogrammes spécifiques). Dans un premier temps, le coefficient de lessivage Λ (paramètre décrivant la cinétique du processus) a été calculé en considérant l'effet global d'une précipitation. Cette approche « macroscopique » est limitée par l'influence de processus « concurrents », tels que l'advection ou les sources d'émissions de particules à proximité des sites de mesures. Pour minimiser l'impact de ces processus sur nos résultats, une seconde méthodologie basée sur la résolution temporelle élevée de l'instrumentation utilisée a été définie. Par cette approche « intra-événementielle », les coefficients de lessivage Λ sont calculés sur de courtes périodes de temps, permettant ainsi d'étudier l'influence de la variabilité du diamètre des particules et des caractéristiques des précipitations sur ces coefficients. Les résultats obtenus par les deux types d'approches ont mis en évidence la nécessité de prendre en compte le diamètre des particules et les caractéristiques des précipitations pour modéliser fidèlement le lessivage des particules d'aérosol atmosphérique. En comparant les résultats des deux types de précipitations, la prédominance du lessivage par des chutes de neige par rapport au lessivage par la pluie a été illustrée. L'importance du diamètre des particules lessivées a été démontrée. Entre le mode « ultrafin » et le mode « grossiers », la variation du coefficient de lessivage est d'un ordre de grandeur (entre environ 2.10^{-3} et 2.10^{-4} s^{-1}). Le potentiel de lessivage minimum est obtenu pour des particules d'environ 100 nm, ce qui est cohérent avec la théorie du « Greenfield gap » (entre 0,1 et 1 μm). Pour les besoins de la modélisation, une paramétrisation robuste entre le coefficient de lessivage Λ et le diamètre des particules d'aérosol (de 10 nm à 10 μm) a été établie. Différentes relations entre le coefficient Λ et l'intensité pluviométrique sont proposées aussi pour différentes gammes de diamètre de particules et comparées notamment aux valeurs implémentées actuellement dans le modèle IdX utilisé à l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire.

Mots-clefs : lessivage, aérosol atmosphérique, précipitations, conditions *in situ*, disdromètre, granulomètre.

Abstract

In case of release of pollutant or radionuclides into the atmosphere, estimate of below-cloud scavenging of aerosol particles by precipitation (or washout) is an essential data to evaluate contamination of the biosphere. Many studies have already shown an interest to this wet deposition process, but most of them are theoretical or have been conducted in laboratories conditions. This study *in situ* conditions aims to improve knowledge of below-cloud scavenging of aerosol particles by precipitation. For several months, three sites with separate environments in terms of climate and ambient dust have been instrumented to have such a varied palette of precipitation/dust conditions as possible. A laser disdrometer and a granulomètre (electrical and/or optical counter) measure respectively precipitations characteristics and particles concentrations with a high temporal resolution (one minute). The use of this original instrumental coupling has allowed determining washout potentials for the nanometric size range of particles aerosol to the supermicronique size range and for different types of precipitation (snowfalls and rainfalls with specifics hyetograms). Initially, below-cloud scavenging coefficients Λ (parameter describing kinetic of this process) were calculated considering the global effect of a precipitation. This "macroscopic" approach is limited by the influence of "concurrent" processes, as advection or local emissions of aerosol particles close to the measurements sites. To minimise effect of these processes on our results, a second methodology based on the high temporal resolution of the instrumentation used was defined. With this "intra-event" approach, washout coefficients are calculated on short time scales, allowing study of impact of the variability of aerosol size and precipitations characteristics on these coefficients. Results obtained with the two approaches highlighted the need of considering particles diameter and characteristics of precipitation to model accurately below-cloud scavenging of aerosol particles. Comparing results for both type of precipitation, predomination of below-cloud scavenging by snowfalls compared with below-cloud scavenging by rainfalls was shown. The importance of the scavenged aerosol diameter was demonstrated. From the "ultrafine" size range to coarse mode of particles, below-cloud scavenging coefficient varies by an order of magnitude (from 2.10^{-3} to 2.10^{-4} s^{-1}). Minimum potential is obtained for particles of about 100 nm, which is consistent with theory of "Greenfield gap" (from 0.1 to 1 μm). For modeling needs, a robust parametrization between washout coefficient Λ and aerosol particles diameter (from 10 nm to 10 μm) has been established. Also some relationships between coefficient Λ and rainfall intensity are proposed for different particles size range and compared in particular with values implemented in model IdX currently used at the French Institute of Radioprotection and Nuclear Safety.

Keywords : below-cloud scavenging, atmospheric aerosol particles, precipitation, *in situ* conditions, disdrometer, granulometer