



HAL
open science

Quantification des vitesses de dépôt par temps sec et documentation des processus d'émission des aérosols sur couvert naturel: du nanomètre au micron

Geoffrey Pellerin

► To cite this version:

Geoffrey Pellerin. Quantification des vitesses de dépôt par temps sec et documentation des processus d'émission des aérosols sur couvert naturel: du nanomètre au micron. Physique [physics]. Université Paris-Est, 2017. Français. NNT: 2017PESC1086 . tel-01794047

HAL Id: tel-01794047

<https://theses.hal.science/tel-01794047v1>

Submitted on 17 May 2018

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

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



Faire avancer la sûreté nucléaire

Quantification des vitesses de dépôt par temps sec et documentation des processus d'émission des aérosols sur couvert naturel : du nanomètre au micromètre

Geoffrey PELLERIN
Décembre 2017

ISRN/IRSN-2018/208

Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-Octeville

UNIVERSITÉ PARIS-EST

ÉCOLE DOCTORALE
SCIENCE, INGENIERIE ET ENVIRONNEMENT

ÉCOLE DOCTORALE UNIVERSITÉ **— PARIS-EST**
Sciences, Ingénierie et Environnement

Thèse de doctorat

Physique de l'Environnement

Geoffrey PELLERIN

Quantification des vitesses de dépôt par temps sec et documentation des processus
d'émission des aérosols sur couvert naturel : du nanomètre au micromètre

Soutenue le 20 décembre 2017

Jury :

Rapporteurs : M^{me} Barbara D'Anna, Directrice de Recherche, CNRS, LCE, Marseille
M. Alfred Weber, Professeur, Université de Clausthal, Allemagne

Présidente du Jury : M^{me} Laurence Le Coq, Professeur des Universités, IMT Atlantique, GEPEA,
Nantes

Invité : M. Eric Lamaud, Docteur Ingénieur-Chercheur, INRA, Villenave d'Ornon

Directeurs de thèse : M^{me} Evelyne Gehin, Professeur des Universités, Université Paris-Est Créteil,
CERTES, Créteil
M. Denis Maro, Chef de laboratoire, IRSN/ PSE-ENV/SRTE/LRC, Cherbourg-
Octeville

IRSN
INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

CERTES

UNIVERSITÉ **— PARIS-EST**
Pôle de recherche et d'enseignement supérieur

MOTS-CLES

Environnement ; Atmosphère ; Dépôt Sec ; Remise en suspension ; Bactéries ; Nanoparticules

KEY-WORDS

Environment; Atmosphere; Dry Deposition; Resuspension; Bacteria; Nanoparticles

REMERCIEMENTS

Ce travail de thèse s'est déroulé à l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), au sein du Pôle Santé et Environnement (PSE) dirigé par Monsieur Jean-Marc Peres, dans lequel se trouve la direction de l'Environnement piloté successivement par Monsieur Jean-Christophe Gariel puis Monsieur François Besnus, dans le Service de recherche sur les transferts et les effets des radionucléides sur les écosystèmes (SRTE). Dans ce cadre je tiens à remercier Madame Jacqueline Garnier-Laplace, et Monsieur François Paquet chefs successifs de ce service, pour m'avoir accueilli.

Tout d'abord, je tiens à remercier Monsieur Denis Maro, co-directeur de thèse, même si ces quelques mots ne suffiront pas, je tiens à lui exprimer ici toute ma gratitude pour m'avoir fait confiance et m'avoir encadré pendant ces années passées au Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-Octeville (LRC). Tes idées novatrices et ton savoir scientifique dans de nombreux domaines m'ont permis d'avancer et d'obtenir les résultats présentés dans ce manuscrit. Tes qualités humaines m'ont également permis de mener à bien ces travaux de recherche dans une ambiance toujours agréable. Je te souhaite également le meilleur en tant que directeur du LRC.

Je remercie sincèrement Madame Evelyne Gehin, co-directrice de la thèse, pour sa disponibilité et son savoir qui ont permis d'apporter des réponses à mes questions lors de ces trois années.

Je tiens aussi à remercier sincèrement Madame Laurence Le Coq, de m'avoir fait l'honneur de présider le jury lors de la soutenance de thèse. Je remercie également Madame Barbara D'Anna et Monsieur Alfred Weber d'avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse. J'adresse mes remerciements à l'ensemble du jury pour leurs conseils et remarques qui ont amélioré ce document. Je voudrais également adresser mes remerciements à Monsieur Eric Lamaud, pour avoir accepté de faire partie de ce jury de thèse mais également de mon comité de suivi de thèse. Ta grande connaissance en matière de flux atmosphérique m'a été d'une aide précieuse tout au long de cette thèse. Enfin, je tiens à remercier toutes les personnes ayant fait partie de ce comité de suivi de thèse et plus particulièrement Monsieur Denis Boulaud pour les différentes idées qu'il a pu soumettre dont la chambre de sédimentation.

Mes remerciements vont également vers l'équipe de Fourrages Environnement Ruminants Lusignan (FERLUS) au sein de l'INRA de Lusignan (86, Vienne) pour la mise à disposition de la prairie et leur accueil chaleureux. Je remercie plus particulièrement Monsieur Xavier Charrier et Monsieur Christophe de Berranger pour avoir installé le réseau électrique sur la parcelle et géré les calendriers de fauchage et d'amendement de la prairie afin d'avoir des conditions de travail optimales.

Je remercie également toute les personnes de l'Institut qui ont collaboré de près ou de loin à ce travail et plus particulièrement Madame Magali Floriani (IRSN/PSE-ENV/SRTE/LECO) pour ces excellentes images de bactérie au Microscope Electronique à Transmission.

C'est avec beaucoup d'émotions que je remercie mes collègues et amis du Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-Octeville qui font que l'on a envie d'aller travailler avec le sourire.

Je remercie sincèrement Monsieur Dominique Boust de m'avoir accueilli au LRC et de m'avoir donné les moyens de travailler dans les meilleures conditions. Je lui souhaite également une retraite bien méritée. J'adresse mes remerciements les plus sincères à toute l'équipe du LRC qui contribue à la formation et à la réussite des étudiants qu'elle accueille. Je remercie plus particulièrement, Didier Hébert, Olivier Connan, Philippe Laguionie et Luc Solier pour leurs contributions respectives à ce travail, car sans eux rien n'aurait été possible. Les bons moments passés avec vous en mission, les footings matinaux ainsi que les discussions scientifiques enrichissantes resteront d'excellents souvenirs. Je tiens également à remercier Mehdi Morillon pour le développement de différents programmes informatiques que lui seul est capable de faire.

Un grand merci à Marianne, pour son aide concernant les bonnes pratiques administratives à suivre ainsi que sa bonne humeur. Merci également à Claire V., Serge, Bruno, Pascal, Olivier, Marianne et Claire G. pour leur aide technique et surtout pour leur sympathie et pour les échanges toujours intéressants que nous avons pu avoir.

Je remercie chaleureusement mes collègues de bureau Hugo et Pierre-Emmanuel pour les bons moments que nous avons passés ensemble et je ne doute pas de votre succès en tant que doctorant et chercheur. Et je n'oublie pas Théo, Richard et Aurélie avec qui j'ai pu passer de très bons moments au gré de leurs passages au laboratoire.

Une pensée également pour mes amis proches : Alexis, Aurélien, David, Xavier, Florian, Gauthier, Maxime, Sullivan et Thomas qui sont toujours là et depuis le début mais également pour toutes les personnes que j'ai rencontrées sur les terrains de football.

Enfin je souhaite remercier mes proches, mes parents qui m'ont permis d'arriver jusque-là et pour m'avoir toujours poussé dans mes projets. Merci à mon frère et à ma sœur pour m'avoir accompagné durant ces trois ans et je leur souhaite beaucoup de réussite et d'épanouissement dans leur carrière future. Merci à toi Clarisse pour m'avoir soutenu, aidé et supporté pendant ces trois années.

Enfin, une pensée pour tous ceux qui ne sont plus là chaque jour à mes côtés, mais qui seraient sans doute très fiers...

« Il ne faut pas penser à l'objectif à atteindre, il faut seulement penser à avancer. C'est ainsi, à force d'avancer, qu'on atteint ou qu'on dépasse ses objectifs sans même s'en apercevoir. »

Bernard Weber, écrivain français (1961-)

Table des Matières

| | |
|--|-----------|
| TABLE DES ILLUSTRATIONS ET DES TABLEAUX | 5 |
| INTRODUCTION | 14 |
| 1 CHAPITRE 1 : REVUE DES CONNAISSANCES SUR LE DEPOT PAR TEMPS SEC ET L'EMISSION DES AEROSOLS A PARTIR DES COUVERTS NATURELS | 17 |
| 1.1 Généralités sur la turbulence atmosphérique..... | 17 |
| 1.1.1 Turbulence atmosphérique..... | 18 |
| 1.1.2 Couche limite atmosphérique et stabilité atmosphérique | 19 |
| 1.2 Généralité sur la physique des aérosols dans l'atmosphère | 25 |
| 1.2.1 Notions de diamètre des aérosols..... | 25 |
| 1.2.2 Distribution de l'aérosol dans l'atmosphère | 25 |
| 1.2.3 Evolution des aérosols dans l'atmosphère..... | 28 |
| 1.3 Dépôt par temps sec des aérosols..... | 31 |
| 1.3.1 Définition de la vitesse de dépôt par temps sec ou dépôt sec | 32 |
| 1.3.2 Mécanismes de dépôt par temps sec | 32 |
| 1.3.3 Méthodes de mesure du dépôt sec..... | 42 |
| 1.3.4 Modélisation du dépôt par temps sec | 59 |
| 1.4 Emission de particules à partir des couverts naturels..... | 65 |
| 1.4.1 Processus de mise en suspension des particules primaires | 66 |
| 1.4.2 Définition du coefficient de remise en suspension | 70 |
| 1.4.3 Mesures du facteur de remise en suspension dans l'environnement | 71 |
| 1.4.4 Modélisation de la mise en suspension | 73 |
| 1.4.5 Cas particulier des bioaérosols | 74 |
| 1.5 Conclusion | 79 |
| 2 CHAPITRE 2 : DETERMINATION DE LA VITESSE DE TRANSFERT VERTICAL : METHODES ET MOYENS EXPERIMENTAUX | 81 |
| 2.1 Dépôt par temps sec des particules : mesure de la vitesse de transfert vertical | 81 |

| | | |
|------------|---|------------|
| 2.1.1 | Gamme de 1 à 2 nm : méthode du gradient en utilisant la fraction libre des descendants du ²²² Rn | 81 |
| 2.1.2 | Gamme de 2,5 nm à 1,6 µm : méthode par corrélation turbulente en utilisant l'aérosol atmosphérique | 87 |
| 2.1.3 | Particules de 0,6 µm : méthode par traçage du dépôt en utilisant de la fluorescéine | 100 |
| 2.2 | Emission de particules primaire de type bactéries | 103 |
| 2.2.1 | Mesure de la vitesse de transfert vertical par la méthode du gradient avec un impacteur Andersen 1 étage | 103 |
| 2.2.2 | Chambre de sédimentation | 105 |
| 2.3 | Conclusion | 110 |
| 3 | CHAPITRE 3 : UTILISATION DES METHODES LORS DE CAMPAGNES EXPERIMENTALES <i>IN SITU</i> SUR COUVERT PRAIRIAL | 112 |
| 3.1 | Description du site de mesure | 112 |
| 3.2 | DEPECHEMOD 1 | 115 |
| 3.2.1 | Paramètres micrométéorologiques | 115 |
| 3.2.2 | Quantification de la vitesse de dépôt sec : évolution de la vitesse de transfert vertical avec la méthode des corrélations turbulentes en utilisant l'aérosol atmosphérique (6 nm - 1,2 µm) | 118 |
| 3.2.3 | Documentation des processus d'émission des bactéries : évolution de vitesse de transfert vertical en utilisant la méthode du gradient..... | 123 |
| 3.3 | DEPECHEMOD 2 | 125 |
| 3.3.1 | Paramètres micrométéorologiques | 125 |
| 3.3.2 | Quantification de la vitesse de dépôt sec : évolution de la vitesse de transfert vertical avec la méthode des corrélations turbulentes en utilisant l'aérosol atmosphérique (6 nm - 1,2 µm) | 128 |
| 3.3.3 | Documentation des processus d'émission des bactéries : évolution de vitesse de transfert vertical en utilisant la méthode du gradient..... | 133 |
| 3.4 | DEPECHEMOD 3 | 134 |
| 3.4.1 | Paramètres micrométéorologiques | 135 |
| 3.4.2 | Quantification de la vitesse de dépôt sec | 138 |

| | | |
|------------|---|------------|
| 3.4.3 | Documentation des processus d'émission des bactéries : évolution de vitesse de transfert vertical en utilisant la méthode du gradient..... | 144 |
| 3.5 | DEPECHEMOD 4 | 145 |
| 3.5.1 | Paramètres micrométéorologiques | 146 |
| 3.5.2 | Quantification de la vitesse de dépôt sec | 150 |
| 3.5.3 | Documentation des processus d'émission des bactéries : évolution de vitesse de transfert vertical en utilisant la méthode du gradient..... | 157 |
| 3.6 | Conclusion | 158 |
| 4 | CHAPITRE 4 : ANALYSE DES RESULTATS DE L'ENSEMBLE DES CAMPAGNES EXPERIMENTALES | 161 |
| 4.1 | Dépôt et émission de l'aérosol atmosphérique | 161 |
| 4.1.1 | Emission de l'aérosol atmosphérique : méthode par corrélation turbulente (6 nm - 1,2 µm)..... | 161 |
| 4.1.2 | Paramètres micrométéorologiques (<i>H et u*</i>) influençant la vitesse de dépôt sec | 165 |
| 4.1.3 | Paramétrisation du rapport entre la vitesse de dépôt et la vitesse de frottement du vent en fonction de la stabilité atmosphérique | 174 |
| 4.1.4 | Influence de la granulométrie sur les vitesses de dépôt sec | 184 |
| 4.1.5 | Confrontation modèles/mesures | 188 |
| 4.2 | Processus d'émission des bactéries..... | 193 |
| 4.3 | Conclusion | 198 |
| | CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES..... | 200 |
| | BIBLIOGRAPHIE..... | 204 |
| | ANNEXES | 218 |
| | ANNEXE 1 CORRECTION A EFFECTUER SUR LE NOMBRE D'UFC COMPTES SUR LES BOITES DE PETRI APRES UN PRELEVEMENT AVEC UN BIOIMPACTEUR ANDERSEN. | 218 |
| | ANNEXE 2 CONCENTRATIONS (ELPI ET TWIN CNC) | 219 |
| | ANNEXE 3 CONCENTRATIONS EN BIOAEROSOLS AUX DEUX NIVEAUX DE PRELEVEMENTS..... | 231 |

| | | |
|-----------------|---|------------|
| ANNEXE 4 | INFLUENCE DES PARAMETRES MICROMETEOROLOGIQUE SUR LES VITESSES DE DEPOT SEC | 232 |
| ANNEXE 5 | PARAMETRISATION POUR L'ENSEMBLE DES GRANULOMETRIE ET L'ENSEMBLE DES DONNEES OBTENUES LORS DES CAMPAGNES DEPECHEMOD. | 234 |

Table des illustrations et des tableaux

Illustrations

| | |
|---|----|
| Figure 1.1 : Représentation des différentes échelles de vent à 100 m d'altitudes selon Hoven (1957) cité par De Moor (1996). | 19 |
| Figure 1.2: Couches d'air composant la couche de mélange (Stull 1988 cité par Delmas <i>et al.</i> (2005). | 20 |
| Figure 1.3: Trois composantes de vitesses de vent. | 21 |
| Figure 1.4 : Longueur de rugosité en fonction de l'inverse de la Longueur de Monin-Obukhov pour différentes classes de Pasquill (Myrup and Ranzieri (1976) cité par Seinfeld and Pandis (1998)). | 23 |
| Figure 1.5 : Les différents modes de l'aérosol atmosphérique (Colbeck, 2014). | 26 |
| Figure 1.6 : Temps de résidence τ des particules en secondes en fonction de leur diamètre et de l'altitude (Petzold & Kärcher, 2012). | 27 |
| Figure 1.7 : Formation de l'aérosol atmosphérique (Whitby and Sverdrup, 1980 cité dans Renoux and Boulaud (1998). | 28 |
| Figure 1.8 : Taux relatif de croissance et de décroissance en masse d'un aérosol (composé de 66 % de KCl et de 33 % de NaCl, en masse) en fonction de l'humidité relative (%) ; Tang and Munkelwitz (1993) cité par Seinfeld and Pandis (1998). | 30 |
| Figure 1.9 : Evènement de formation de nouvelles particules (Deventer <i>et al.</i> , 2015). | 31 |
| Figure 1.10 : Mécanismes de dépôt sec des particules (Calec, 2013). | 33 |
| Figure 1.11 : Vitesse de sédimentation en fonction de la taille des particules (Randerson, 1984). ... | 34 |
| Figure 1.12 : Illustration du dépôt d'une particule sur un obstacle par diffusion brownienne (Hinds, 1999). | 35 |
| Figure 1.13 : Illustration du dépôt d'une particule sur un obstacle par impaction inertielle (Hinds, 1999). | 37 |
| Figure 1.14 : Illustration du dépôt d'une particule sur un obstacle par interception (Hinds, 1999). | 38 |
| Figure 1.15 : Schéma de principe de la thermophorèse (Hinds, 1999). | 39 |
| Figure 1.16 : Vitesses de dépôt sec et inverses des écarts de températures verre - air pour cinq expérimentations (Maro <i>et al.</i> , 2014). | 40 |
| Figure 1.17 : Schéma de principe de la diffusiophorèse (Hinds, 1999). | 41 |
| Figure 1.18 : Courbe en « V » de la vitesse de dépôt sec en fonction du diamètre des particules pour trois vitesses de vent (Slinn (1982) ; d'après Maro (2012)). | 42 |
| Figure 1.19 : Vitesse de dépôt sec obtenu par méthode eddy correlation par Damay (2010) pour des conditions neutres et stables et un u^* de $0,28 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Les valeurs entre parenthèses représentent les longueurs de rugosité (en cm) pour chaque couvert. | 59 |
| Figure 1.20 : Modèle résistif pour la vitesse de dépôt sec : C_3 , C_2 , C_1 et C_0 concentrations à différentes hauteurs (Seinfeld et Pandis, 1998). | 60 |
| Figure 1.21 : Forces exercées sur une particule en contact avec une surface et soumise à un écoulement d'air. | 67 |
| Figure 1.22 : Vitesses de frottement seuils u^* nécessaires pour la remise en suspension éolienne des particules $2,65 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ sur un sol nu en fonction de leur diamètre D_p (Marticorena & Bergametti, 1995). | 70 |
| Figure 1.23 : Facteur de remise en suspension (K_s) retrouvé dans la littérature en fonction du temps. Les barres d'erreurs représentent l'étendu de ces facteurs (Sehmel, 1980a). | 73 |
| Figure 2.1 : Traitements et moyens utilisés pour obtenir les flux de particules puis les vitesses de dépôt sec de la fraction libre des descendants du ^{222}Rn | 82 |
| Figure 2.2 : Chaîne de filiation partielle du ^{226}Ra naturellement présent dans la lithosphère. | 83 |
| Figure 2.3 : Grille de diffusion (TSI ; Model 376060) utilisée pour le prélèvement de la fraction libre des descendants du ^{222}Rn | 83 |

| | |
|---|-----|
| Figure 2.4 : Photos du dispositif utilisé pour la mesure de l'activité en ^{214}Po sur les grilles de diffusion par spectrométrie alpha. | 85 |
| Figure 2.5 : Exemple d'évolution au cours du temps de l'activité d'une grille de diffusion en descendants du ^{222}Rn (^{214}Bi , ^{214}Po , ^{214}Pb et ^{218}Po), depuis le début de la période de prélèvement (T_s) jusqu'à la fin de la période de comptage (T_c) du ^{214}Po en spectrométrie alpha..... | 87 |
| Figure 2.6 : Traitements et moyens utilisés pour obtenir les flux de particules puis les vitesses de dépôt sec par corrélations turbulentes. | 88 |
| Figure 2.7 : Spectre d'énergie de la turbulence atmosphérique indiquant le domaine de production d'énergie A, le sous domaine inertiel B et le domaine de dissipation C en fonction de la fréquence n ou du nombre d'onde $k = 2\pi n/U$ (Kaimal & Finnigan, 1994). | 89 |
| Figure 2.8 : Spectre d'énergie de la turbulence atmosphérique en $\log(nS(n))$ en fonction de $\log(n)$ (Kaimal <i>et al.</i> , 1982). | 90 |
| Figure 2.9 : Cospectres théoriques de la quantité de mouvement et du flux de chaleur sensible dans la couche de surface en fonction de la fréquence adimensionnée atmosphérique (Kaimal & Finnigan, 1994). | 91 |
| Figure 2.10 : Exemple de correction spectrale dans les hautes et basses fréquences du cospectre du flux vertical d'aérosols | 93 |
| Figure 2.11 : Principe d'un compteur à noyaux à condensation (TSI, Inc, 2014). | 96 |
| Figure 2.12 : Compteur à noyaux de condensation CNC 3788 (TSI)..... | 97 |
| Figure 2.13 : Electrical Low Pressure Impactor (Dekati Inc.)..... | 97 |
| Figure 2.14 : Schéma du principe de fonctionnement de l'ELPI (les diamètres correspondent aux diamètres de coupure de chaque plateau)..... | 98 |
| Figure 2.15 : Schéma du système de mesure de l'anémomètre à ultrasons. | 100 |
| Figure 2.16 : Traitements et moyens utilisés pour obtenir les flux de particules puis les vitesses de dépôt sec dépôt direct de particules de fluorescéine. | 101 |
| Figure 2.17 : Dispositifs utilisés pour la mesure de vitesse de dépôt sec de particules de fluorescéine, A : générateur de fluorescéine ; B : éprouvettes d'herbes synthétique ; C : prélèvements sur filtre. | 102 |
| Figure 2.18 : Principe de la génération de fluorescéine par pulvérisation (d'après Nérissou, 2008). | 102 |
| Figure 2.19 : Mesure de la concentration en fluorescéine par spectrofluorimétrie. | 103 |
| Figure 2.20 : Boîte de Pétri contenant le milieu de culture gélosé placée sur le plateau de l'impacteur Andersen 1 étage. | 104 |
| Figure 2.21 : Impacteur Andersen 1 étage. | 104 |
| Figure 2.22 : Schéma de la chambre de sédimentation pour la mesure de la granulométrie des bactéries. A : entrée des bioaérosols ; B : filtre de nitrate de cellulose ; C : fil chaud ; D : débitmètre. | 105 |
| Figure 2.23 : Chambre de sédimentation déployée sur le terrain pour la mesure de la granulométrie des bactéries. | 106 |
| Figure 2.24 : Taille des particules déposées en fonction de la distance parcourue dans la chambre de sédimentation | 107 |
| Figure 2.25 : Boîte de Pétri après incubation contenant des champignons. | 109 |
| Figure 2.26 : Boîte de Pétri après incubation. | 110 |
| Figure 3.1 : Site expérimentale pour les campagnes DEPECHEMOD. | 112 |
| Figure 3.2 : Dispositif de base utilisée lors des différentes campagnes : A : échafaudage pour les mesures par la méthode du gradient, B et C : mesure par corrélation turbulente ELPI et twin CNC. | 114 |
| Figure 3.3 : Camion laboratoire déployé sur le terrain lors des campagnes DEPECHEMOD. | 114 |
| Figure 3.4 : Direction du vent lors de la campagne expérimentale DEPECHEMOD 1. | 116 |
| Figure 3.5 : Principaux paramètres micrométéorologiques durant la campagne DEPECHEMOD 1. ... | 117 |

| | |
|--|-----|
| Figure 3.6 : Précision sur l'évolution de la stabilité atmosphérique durant la campagne DEPECHEMOD 1. | 118 |
| Figure 3.7 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 1 pour les twin CNC et l'étage 1 de l'ELPI. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 119 |
| Figure 3.8 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 1 pour l'étage 2 et l'étage 3. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 120 |
| Figure 3.9 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 1 pour l'étage 4 et l'étage 5. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 120 |
| Figure 3.10 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 1 pour l'étage 6 et l'étage 7. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 121 |
| Figure 3.11 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 1 pour l'étage 8 et l'étage 9. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 121 |
| Figure 3.12 : Evolution journalière de la vitesse de transfert des bactéries par la méthode du gradient. | 124 |
| Figure 3.13 : Direction du vent lors de la campagne expérimentale DEPECHEMOD 2. | 126 |
| Figure 3.14 : Principaux paramètres micrométéorologiques durant la campagne DEPECHEMOD 2. . | 127 |
| Figure 3.15 : Précision sur l'évolution de la stabilité atmosphérique durant la campagne DEPECHEMOD 2. | 128 |
| Figure 3.16 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 2 pour les twin CNC et l'étage 1 de l'ELPI. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 129 |
| Figure 3.17 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 2 pour l'étage 2 et l'étage 3. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 129 |
| Figure 3.18 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 2 pour l'étage 4 et l'étage 5. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 130 |
| Figure 3.19 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 2 pour l'étage 6 et l'étage 7. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 130 |
| Figure 3.20 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 2 pour l'étage 8 et l'étage 9. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 131 |
| Figure 3.21 : Evolution journalière de la vitesse de transfert des bactéries par la méthode du gradient. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 134 |
| Figure 3.22 : Direction du vent lors de la campagne expérimentale DEPECHEMOD 3. | 136 |
| Figure 3.23 : Principaux paramètres micrométéorologiques durant la campagne DEPECHEMOD 3. . | 137 |
| Figure 3.24 : Précision sur l'évolution de la stabilité atmosphérique durant la campagne DEPECHEMOD 3. | 138 |
| Figure 3.25 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 3 pour les twin CNC et l'étage 1 de l'ELPI. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 139 |
| Figure 3.26 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 3 pour l'étage 2 et l'étage 3. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 139 |

| | |
|---|-----|
| Figure 3.27 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 3 pour l'étage 4 et l'étage 5. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 140 |
| Figure 3.28 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 3 pour l'étage 6 et l'étage 7. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 140 |
| Figure 3.29 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 3 pour l'étage 8 et l'étage 9. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 141 |
| Figure 3.30 : Evolution journalière de la vitesse de dépôt sec de particules de fluorescéine de 0,6 μm . Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 144 |
| Figure 3.31 : Evolution journalière de la vitesse de transfert des bactéries par la méthode du gradient. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 145 |
| Figure 3.32 : Direction du vent lors de la campagne expérimentale DEPECHEMOD 4. | 147 |
| Figure 3.33 : Principaux paramètres micrométéorologiques durant la campagne DEPECHEMOD 3. . | 149 |
| Figure 3.34 : Précision sur l'évolution de la stabilité atmosphérique durant la campagne DEPECHEMOD 4. | 150 |
| Figure 3.35 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 4 pour la fraction libre des descendants du ^{222}Rn (particules de 1,5 nm). Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. ... | 151 |
| Figure 3.36 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 4 pour les twin CNC et l'étage 1 de l'ELPI. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 152 |
| Figure 3.37 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 4 pour l'étage 2 et l'étage 3. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 152 |
| Figure 3.38 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 4 pour l'étage 4 et l'étage 5. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 153 |
| Figure 3.39 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 4 pour l'étage 6 et l'étage 7. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 153 |
| Figure 3.40 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 4 pour l'étage 8 et l'étage 9. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 154 |
| Figure 3.41 : Evolution journalière de la vitesse de dépôt sec de particules de fluorescéine de 0,6 μm . Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 156 |
| Figure 3.42 : Evolution journalière de la vitesse de transfert des bactéries par la méthode du gradient. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions. | 157 |
| Figure 4.1 : Exemples de cospectres correspondant au flux d'émission d'aérosols comparés avec le cospectre du flux de chaleur sensible. A : cospectre retenu après analyse cospectrale. B : cospectre rejeté après analyse cospectrale | 162 |
| Figure 4.2 : Proportion d'événements émissifs en fonction du diamètre géométrique des particules pour l'ensemble des données 4 campagnes expérimentales DEPECHEMOD | 163 |
| Figure 4.3 : Vitesses de frottement seuils u_t^* nécessaires pour la remise en suspension éolienne des particules $2,65 \text{ g.cm}^{-3}$ sur un sol nu en fonction de leur diamètre D_p (Marticorena & Bergametti, 1995) | 164 |

| | |
|--|-----|
| Figure 4.4 : Influence de u^* sur les vitesses de dépôt sec obtenu par la méthode du gradient des descendants du ^{222}Rn | 165 |
| Figure 4.5 : Influence de H sur les vitesses de dépôt sec normalisées par u^* obtenues par la méthode du gradient des descendants du ^{222}Rn | 166 |
| Figure 4.6 : Coefficient de diffusion brownienne en fonction du diamètre des particules..... | 167 |
| Figure 4.7 : Influence de u^* sur les vitesses de dépôt sec obtenues par corrélation turbulente sur l'étage 3 (74 nm) lors de DEPECHEMOD 2 (A) et pour la méthode twin CNC (6 nm) lors de DEPECHEMOD 2 (B). | 170 |
| Figure 4.8 : Influence de H sur les vitesses de dépôt sec normalisées par u^* obtenues par corrélation turbulente sur l'étage 3 (74 nm) lors de DEPECHEMOD 2 (A) et pour la méthode twin CNC (6 nm) lors de DEPECHEMOD 2 (B). | 172 |
| Figure 4.9 : Influence de u^* sur les vitesses de dépôt sec obtenues par dépôt direct de particules de fluorescéine de 0,6 μm | 173 |
| Figure 4.10 : Influence de H sur les vitesses de dépôt sec obtenues par dépôt direct de particules de fluorescéine de 0,6 μm | 173 |
| Figure 4.11 : Données expérimentales pour les particules de 1,5 nm lors de DEPECHEMOD 4. | 176 |
| Figure 4.12 : Données expérimentales et paramétrisation ($k_1= 1,22 \times 10^{-2}$ et $k_2= 2,48 \times 10^{-4}$) pour les particules de 6 nm lors de DEPECHEMOD 2. | 177 |
| Figure 4.13 : Données expérimentales et paramétrisation ($k_1= 4,76 \times 10^{-3}$ et $k_2= 6,74 \times 10^{-4}$) pour les particules de 74 nm lors de DEPECHEMOD 1. | 178 |
| Figure 4.14 : Données expérimentales pour les particules de fluorescéine de 0,6 μm lors de DEPECHEMOD 2..... | 184 |
| Figure 4.15 : Vitesses de dépôt pour des conditions neutres et stables normalisées à la vitesse de frottement du vent en fonction du diamètre des particules obtenues lors des différentes campagnes DEPECHEMOD ; losange : méthode du gradient avec la fraction libre des descendants du ^{222}Rn ; rond : méthode de corrélations turbulentes avec l'aérosol atmosphérique ; triangle : méthode de dépôt direct avec des particules de fluorescéine de 0,6 μm | 185 |
| Figure 4.16 : Vitesses de dépôt pour des conditions instables ($1/L = 0,2 \text{ m}^{-1}$) normalisées à la vitesse de frottement du vent en fonction du diamètre des particules obtenues lors des différentes campagnes DEPECHEMOD..... | 186 |
| Figure 4.17 : Vitesses de dépôt moyennées pour des conditions neutres et stables et instables ($1/L = -0,2 \text{ m}^{-1}$) normalisées à la vitesse de frottement du vent en fonction du diamètre des particules ; losange : méthode du gradient avec la fraction libre des descendants du ^{222}Rn ; rond : méthode de corrélations turbulentes avec l'aérosol atmosphérique ; triangle : méthode de dépôt direct avec des particules de fluorescéine de 0,6 μm | 188 |
| Figure 4.18: Comparaison entre vitesses de dépôt surfacique V_{ds} et vitesse de dépôt brutes V_d . Valeurs moyennées pour les campagnes expérimentales..... | 191 |
| Figure 4.19: Confrontations des modèles analytiques avec les mesures en conditions neutres et stables. | 192 |
| Figure 4.20 : Influence de u^* sur les vitesses de transfert vertical obtenues par la méthode du gradient des bactéries. | 193 |
| Figure 4.21 : Influence de la turbulence thermique H et mécanique u^* sur les vitesses de transfert vertical obtenues par la méthode du gradient des bactéries. | 194 |
| Figure 4.22 : Influence de H sur les vitesses de transfert vertical V_t normalisées par u^* obtenues par la méthode du gradient des bactéries. | 195 |
| Figure 4.23 : Courbe de la vitesse de frottement seuil pour la remise en suspension en fonction de la taille des particules de densité 1 g.cm^{-3} (Marticorena & Bergametti, 1995)..... | 196 |
| Figure 4.24 : Pourcentage en UFC moyen présent sur les différentes boîtes de Pétri et sur le filtre après culture lors des 9 prélèvements, les barres d'erreurs représentent les écarts types. | 197 |

| | |
|---|-----|
| Figure annexe.1: Correction à effectuer sur le nombre d'UFC obtenu après incubation avec un Andersen 1 étage (Andersen, 1958). | 218 |
| Figure annexe.2: Concentration DEPECHEMOD 1, twin CNC et étages 1 et 2. | 219 |
| Figure annexe.3: Concentration DEPECHEMOD 1, étages 3 à 6. | 220 |
| Figure annexe.4: Concentration DEPECHEMOD 1, étages 7 à 9. | 221 |
| Figure annexe.5: Concentration DEPECHEMOD 2, twin CNC et étages 1 et 2. | 222 |
| Figure annexe.6: Concentration DEPECHEMOD 2, twin CNC et étages 3 et 6. | 223 |
| Figure annexe.7: Concentration DEPECHEMOD 2, twin CNC et étages 7 à 9. | 224 |
| Figure annexe.8: Concentration DEPECHEMOD 3, twin CNC et étages 1 et 2. | 225 |
| Figure annexe.9: Concentration DEPECHEMOD 3, étages 3 à 6. | 226 |
| Figure annexe.10: Concentration DEPECHEMOD 3, étages 7 à 9. | 227 |
| Figure annexe.11: Concentration DEPECHEMOD 4, twin CNC et étages 1 et 2. | 228 |
| Figure annexe.12: Concentration DEPECHEMOD 4, étages 3 à 6. | 229 |
| Figure annexe.13: Concentration DEPECHEMOD 4, étages 7 à 9. | 230 |
| Figure annexe.14: Concentration en bactéries lors des différentes campagnes DEPECHEMOD. | 231 |
| Figure annexe.15: Vitesses de dépôt sec obtenues durant l'ensemble des campagnes DEPECHEMOD en fonction de la vitesse de frottement du vent pour la méthode twin CNC et l'étage 1 à 5 de l'ELPI. | 232 |
| Figure annexe.16 : Vitesses de dépôt sec obtenues durant l'ensemble des campagnes DEPECHEMOD en fonction de la vitesse de frottement du vent pour l'étage 6 à 9 de l'ELPI. | 233 |
| Figure annexe.17: Paramétrisation des vitesses de dépôt obtenues lors des campagnes DEPECHEMOD pour la méthode twin CNC et l'étage 1 à 5 de l'ELPI. | 234 |
| Figure annexe.18: Paramétrisation des vitesses de dépôt obtenues lors des campagnes DEPECHEMOD pour l'étage 6 à 9 de l'ELPI. | 235 |

Tableaux

| | |
|---|-----|
| Tableau 1.1 : Valeurs de vitesses de dépôt sec obtenues par accumulation. | 45 |
| Tableau 1.2 : Valeurs de vitesses de dépôt sec obtenues par méthode de traçage <i>in situ</i> | 47 |
| Tableau 1.3 : Valeurs de vitesses de dépôt sec obtenues par méthode de traçage en soufflerie. ... | 48 |
| Tableau 1.4 : Valeurs de vitesses de dépôt sec obtenues par la méthode du gradient. | 52 |
| Tableau 1.5 : Valeurs de vitesses de dépôt sec obtenues par la méthode REA. | 54 |
| Tableau 1.6 : Valeurs de vitesses de dépôt sec obtenues par la méthode des corrélations turbulentes. | 56 |
| Tableau 1.7 : Valeurs de coefficient de remise en suspension d'après DOE Handbook (1994). | 72 |
| Tableau 1.8 : Les différents microorganismes et leurs tailles respectives (Mussard, 2006). | 75 |
| Tableau 2.1 : Paramètre de la modélisation de σ_{wu} * suivant les conditions atmosphérique (Foken <i>et al.</i> , 2004). | 94 |
| Tableau 2.2: Equivalence entre le numéro des étages et le diamètre aérodynamique. | 99 |
| Tableau 2.3 : Distribution granulométrique des bactéries prélevées suivant les différentes boîtes de Pétri. | 108 |
| Tableau 3.1 : Récapitulatif des différentes méthodes utilisées lors des 4 campagnes expérimentales DEPECHEMOD. | 113 |
| Tableau 3.2 : Classe de stabilité pour la campagne DEPECHEMOD 1. | 115 |
| Tableau 3.3 : Hauteur de mesures pour les différentes méthodes utilisées lors de DEPECHEMOD 1. | 115 |
| Tableau 3.4 : Vitesses de dépôt de la campagne DEPECHEMOD 1. | 122 |
| Tableau 3.5 : Vitesses d'émission de la campagne DEPECHEMOD 1. | 123 |
| Tableau 3.6 : Vitesses de transfert vertical de bactéries lors de la campagne DEPECHEMOD 1. | 124 |
| Tableau 3.7 : Classe de stabilité pour la campagne DEPECHEMOD 2. | 125 |

| | |
|---|-----|
| Tableau 3.8 : Hauteur de mesures pour les différentes méthodes utilisées lors de DEPECHEMOD 2. | 125 |
| Tableau 3.9 : Vitesses de dépôt de la campagne DEPECHEMOD 2. | 132 |
| Tableau 3.10 : Vitesses d'émission de la campagne DEPECHEMOD 2. | 133 |
| Tableau 3.11 : Vitesses de transfert vertical de bactéries lors de la campagne DEPECHEMOD 3. | 134 |
| Tableau 3.12 : Classe de stabilité pour la campagne DEPECHEMOD 3. | 135 |
| Tableau 3.13 : Hauteur de mesures pour les différentes méthodes utilisées lors de DEPECHEMOD 3. | 135 |
| Tableau 3.14 : Vitesses de dépôt de la campagne DEPECHEMOD 3. | 142 |
| Tableau 3.15 : Vitesses d'émission de la campagne DEPECHEMOD 3. | 143 |
| Tableau 3.16 : Vitesses de transfert vertical de bactéries lors de la campagne DEPECHEMOD 3. | 145 |
| Tableau 3.17 : Classe de stabilité pour la campagne DEPECHEMOD 4. | 146 |
| Tableau 3.18 : Hauteur de mesures pour les différentes méthodes utilisées lors de DEPECHEMOD. | 146 |
| Tableau 3.19 : Vitesses de dépôt de la campagne DEPECHEMOD 4. | 155 |
| Tableau 3.20 : Vitesses d'émission de la campagne DEPECHEMOD 4. | 156 |
| Tableau 3.21 : Vitesses de transfert vertical de bactéries lors de la campagne DEPECHEMOD 4. | 158 |
| Tableau 4.1 : Ecart relatif sur la vitesse de dépôt sec dus à la correction de Webb lors des 4 campagnes expérimentales DEPECHEMOD. | 168 |
| Tableau 4.2 : Valeurs de paramétrisation pour les conditions neutres et stables retrouvées dans la littérature. | 175 |
| Tableau 4.3 : Résultats de la paramétrisation pour la campagne DEPECHEMOD 1. | 179 |
| Tableau 4.4 : Résultats de la paramétrisation pour la campagne DEPECHEMOD 2. | 180 |
| Tableau 4.5 : Résultats de la paramétrisation pour la campagne DEPECHEMOD 3. | 181 |
| Tableau 4.6 : Résultats de la paramétrisation pour la campagne DEPECHEMOD 4. | 182 |
| Tableau 4.7 : Résultats de la paramétrisation globale pour les 4 campagnes DEPECHEMOD. | 183 |
| Tableau 4.8 : Valeurs d'entrées des modèles de dépôt de Slinn (1982) et de Zhang <i>et al.</i> (2001) <i>et al.</i> (2001). | 189 |

LISTE DES SYMBOLES

Lettres latines (# : signifie que l'objet n'a pas de dimension physique)

| | | |
|-----------|--|---|
| C | concentration en particules dans l'air | particules.m ⁻³ |
| C_d | coefficient de trainée effectif | # |
| C_v | coefficient de trainée visqueuse | # |
| C_u | facteur de correction de Cunningham | # |
| C_p | chaleur spécifique de l'air à pression constante | J.K ⁻¹ |
| d | hauteur de déplacement | m |
| $C_{s,0}$ | Concentration surfacique au niveau du sol | Particules.m ⁻² |
| d_p | diamètre de la particule | µm |
| D_b | coefficient de diffusion brownienne | m ² .s ⁻¹ |
| F | flux de dépôt de particules | particules m ⁻² .s ⁻¹ |
| E_b | efficacité de dépôt par diffusion brownienne | # |
| E_{imp} | efficacité de dépôt par impaction inertielle | # |
| E_{int} | efficacité de dépôt par interception | # |
| g | accélération de pesanteur | m.s ⁻² |
| H | flux de chaleur sensible | W.m ⁻² |
| h | hauteur du couvert | m |
| k_b | constante de Boltzmann | N.m K ⁻¹ |
| K_s | coefficient de remise en suspension | m ⁻¹ |
| L | longueur de Monin-Obukhov | m |
| Pe | nombre de Péclet | # |
| R_a | résistance aérodynamique | s.m ⁻¹ |
| Re | nombre de Reynolds | # |
| Re_p | nombre de Reynolds particulaire | # |
| R_s | résistance de surface | s.m ⁻¹ |
| RH | taux d'humidité relative | % |
| Sc | nombre de Schmidt | # |
| Sh | nombre de Sherwood | # |
| St_k | nombre de Stokes | # |
| T | température du gaz porteur | K |
| T_0 | Température de référence | K |
| T^* | température caractéristique | K |
| t | temps | s |
| t_c | temps de convection | s |
| t_s | temps de sédimentation | s |
| u | vitesse du vent selon l'axe x | m.s ⁻¹ |
| u_h | vitesse du vent à la hauteur du couvert | m.s ⁻¹ |
| u^* | vitesse de frottement | m.s ⁻¹ |
| u^*_t | vitesse de frottement seuil pour la remise en suspension | m.s ⁻¹ |
| V_d | vitesse de dépôt sec | m.s ⁻¹ |
| V_{ds} | vitesse de dépôt surfacique | m.s ⁻¹ |
| V_s | vitesse de sédimentation | m.s ⁻¹ |
| V_t | vitesse de transfert vertical | m.s ⁻¹ |
| w | vitesse verticale du vent selon l'axe z | m.s ⁻¹ |
| z | hauteur de mesure (m) | m |
| z_0 | hauteur de rugosité | m |

Lettres grecques

| | | |
|---------------|---|--|
| ε | coefficient de captation moyenne des particules | # |
| κ | constante de Von Karman | # |
| λ | libre parcours moyen du gaz porteur | m |
| η | viscosité cinématique du gaz porteur | $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ |
| ν_a | viscosité apparente ou turbulente | $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$ |
| μ | viscosité dynamique du gaz porteur (air) | $\text{kg}.\text{m}^{-1}.\text{s}^{-1}$; Pa.s |
| ρ_a | masse volumique de l'air | $\text{kg}.\text{m}^{-3}$ |
| ρ_p | masse volumique de la particule | $\text{kg}.\text{m}^{-3}$ |
| τ_0 | contrainte de cisaillement turbulent | $\text{kg}.\text{m}^{-1}.\text{s}^{-2}$; Pa |
| τ_p | temps de relaxation de la particule | s |
| φ | fonction flux-profil | # |
| Ψ | paramètre de Paulson | # |
| σ_w | écart-type standard de la vitesse verticale du vent | $\text{m}.\text{s}^{-1}$ |

INTRODUCTION

Evaluer, comprendre et prévoir l'impact d'un rejet accidentel ou chronique de polluant sous forme d'aérosol dans les écosystèmes représentent un enjeu majeur dans l'optique de la gestion des risques au sein des sociétés. Une fois rejetées, les particules atmosphériques peuvent se déposer selon deux voies. Soit par dépôt humide, les particules sont déposées avec les gouttes lors des précipitations, par captation des particules au sein d'un nuage (ou « rainout ») et par rabattement par les gouttes de pluie sous le nuage (ou « washout », Seinfeld and Pandis (1998)). Soit par dépôt sec, les particules proches de la surface se déposent selon différents mécanismes physiques en l'absence de précipitations. Afin de réduire les incertitudes sur les prédictions des transferts de ces aérosols par les modèles, les mécanismes de dépôt des particules submicroniques (ou particules fines < 2 μm) doivent être quantifiés pour différents environnements. Une fois déposés ces aérosols peuvent être remis en suspension sous l'effet du vent. Un tel phénomène est soupçonné autour de la centrale de Fukushima. En effet, une contamination des sols à certains endroits ne peut être expliquée uniquement par les phénomènes de dépôt (sec et humide). La thèse, intitulée "Quantification des vitesses de dépôt par temps sec et documentation des processus d'émission des aérosols sur couvert naturel : du nanomètre au micron", s'inscrit dans le contexte de la radioprotection de l'Homme et de l'environnement. L'estimation du devenir d'une contamination par les aérosols au sein d'un couvert végétal et de son transfert éventuel vers les espèces est largement conditionnée par la bonne prévision des flux de dépôt et des processus de remise en suspension.

Les flux verticaux par temps sec sont caractérisés par la vitesse de transfert vertical, qui est le rapport entre le flux de particules et la concentration atmosphérique de l'aérosol au voisinage de la surface. Lorsque cette vitesse est positive, c'est une vitesse de dépôt sec (V_d en $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) et inversement, lorsqu'elle est négative, c'est une vitesse d'émission. Cette vitesse de dépôt dépend de nombreux paramètres, à savoir : la topographie du terrain, le substrat, les conditions micrométéorologiques (turbulence), les caractéristiques des aérosols (granulométrie), ou les champs externes (gravité).

Le manque de données de vitesse de dépôt sec des particules submicroniques, suffisamment renseignées principalement en termes de granulométrie et de micrométéorologie, entraîne des incertitudes sur les différents modèles de calcul de vitesse de dépôt existants. Par exemple, pour une même taille d'aérosols, il y a jusqu'à deux ordres de grandeur d'écart entre les modèles de Slinn (1982) et Zhang *et al.* (2001) qui sont couramment utilisés dans les études d'impact des polluants atmosphériques (Petroff *et al.*, 2008). De plus, il n'y a aucune donnée *in situ* pour les particules inférieures à 10 nm, particules qui se forment par nucléation (réaction gaz/particules) et qui concernent certains radionucléides comme l'iode (^{129}I , ^{131}I). Le phénomène de dépôt nécessite une approche *in situ* pour prendre en compte les paramètres turbulents difficilement reproductibles en laboratoire comme le flux de chaleur sensible.

Après leur dépôt, ces radionucléides peuvent être remis en suspension sous l'effet de la contrainte soumise par le vent sur le couvert. Les processus de remise en suspension des aérosols, est caractérisés par la vitesse de transfert vertical ($m.s^{-1}$) mais également par le coefficient de remise en suspension (K_s en m^{-1}) qui est le rapport entre la concentration atmosphérique et la concentration surfacique de particules. La remise en suspension concerne l'ensemble des particules présentes sur le couvert qu'elles soient inertes ou vivantes (champignons, bactéries, levures...). Contrairement aux particules inertes, ces particules vivantes peuvent assimiler et concentrer les radionucléides et sont parfois utilisées lors de la décontamination de terrains pollués. Cependant, il y a très peu de données concernant la remise en suspension des microorganismes et des bactéries en particulier. Des incertitudes rémanentes de 2 à 3 ordres de grandeurs sur les coefficients de remise en suspension existent. De plus, les flux d'émission de bioaérosols, ont été très peu étudiés et seul deux études ont pu être répertoriées (Lighthart & Shaffer, 1994; Lindemann *et al.*, 1982).

Notre travail a consisté à mettre au point, à utiliser et à quantifier la vitesse de dépôt sec des aérosols au-dessus d'un couvert prairial pour une gamme granulométrique allant du nanomètre au micromètre, puis à identifier et quantifier les paramètres influençant le dépôt. Ainsi trois méthodes en fonction des particules ont été utilisées et mise en œuvre lors de quatre campagnes expérimentales. Les méthodes utilisées sont :

- Méthode du gradient pour la fraction libre des descendants du ^{222}Rn (Particules de 1,5 nm) ;
- Méthode des corrélations turbulentes pour l'aérosol atmosphérique :
 - via un couplage de deux Compteurs à Noyaux Condensation (CNC 3786/3788 et CNC 3788 avec une grille de diffusion, TSI Inc.) (particules de 6 nm) ;
 - via un Electrical Low Pressure Impactor (ELPI, Dekati Inc.) (particules de 14 nm à 1 μ m) ;
- Méthode de dépôt direct de particules de fluorescéine (particules de 0,6 μ m).

Concernant l'étude des processus de remise en suspension des bioaérosols de type bactérie, la méthode du gradient sera également utilisée avec l'utilisation de bioimpacteur Andersen 1 étage, suivi d'un comptage des Unités Formant une Colonie (UFC) pour la quantification des concentrations en bioaérosols de type bactérie.

Le Chapitre 1 dresse dans une première partie, une revue des connaissances sur le dépôt sec des aérosols en milieu rural, les concepts théoriques et expérimentaux de base. Des notions de turbulence se focalisant sur la structure de l'atmosphère sont d'abord abordées, suivies de généralités sur la physique des aérosols et sur les différents processus de dépôt. Les principaux modèles opérationnels existants sont ensuite décrits. Puis, une revue des méthodes de mesures de la vitesse de dépôt des aérosols et de leurs résultats a permis de sélectionner la méthode la plus adaptée à notre problématique. Dans une deuxième partie, une revue des connaissances sur la

remise en suspension ainsi que des valeurs de coefficient de remise en suspension a été effectuée. Les principaux modèles opérationnels de remise en suspension ont été étudiés. Pour finir, les techniques de mesure *in situ* de concentration et de flux de bioaérosols de type bactérie ont été abordées.

Le Chapitre 2 traite, dans une première partie, des 3 méthodes de mesure développées dans cette étude pour accéder aux vitesses de dépôt sec des aérosols. Les bases de chaque méthode, ainsi que les appareils de mesures utilisés y sont d'abord abordés. Une deuxième partie a ensuite permis de présenter les méthodes utilisées pour documenter les processus de mise en suspensions des bioaérosols de type bactérie.

Le Chapitre 3 détaille l'application *in situ* des méthodes décrites. Le site expérimental y est tout d'abord décrit ainsi que les données météorologiques et les principaux paramètres micrométéorologiques rencontrés durant les 4 campagnes expérimentales. Dans un deuxième temps l'évolution des vitesses de dépôt sec obtenues avec les différentes techniques de mesure et l'évolution des vitesses de transfert vertical des bioaérosols de type bactéries sont présentées.

Enfin le Chapitre 4 identifie et quantifie les principaux paramètres influençant le dépôt à savoir les paramètres micrométéorologiques, le type de couvert et la taille des particules. La première partie est dédiée à l'origine des flux d'émission observés durant les expérimentations. La seconde partie a permis d'évaluer, à partir des résultats issus des quatre campagnes de mesure présentées au Chapitre III, l'impact de la turbulence sur le dépôt dans un premier temps, qui a permis d'aboutir à une paramétrisation de la vitesse de dépôt divisée par la vitesse de frottement du vent en fonction de l'inverse de la longueur de Monin-Obukhov. Dans un deuxième temps, l'impact de la granulométrie des aérosols a été étudié et a permis d'obtenir deux courbes d'évolution de vitesse de dépôt sec en fonction des particules pour des conditions neutres et stables et pour des conditions instables. Dans une deuxième partie, l'influence des principaux paramètres micrométéorologique sur la mise ou remise en suspension des bioaérosols de type bactérie a été étudiée. Puis une méthode permettant de quantifier la granulométrie des bactéries dans l'atmosphère a été présentée et discutée.

A la fin de ce document, les conclusions générales que cette étude a permis d'obtenir sont exposées. Des perspectives sont ensuite entrevues, tant au niveau des voies d'amélioration des méthodes qu'au niveau des programmes expérimentaux qu'il serait souhaitable de conduire dans l'optique d'un meilleur calage des modèles.

1 CHAPITRE 1 : REVUE DES CONNAISSANCES SUR LE DEPOT PAR TEMPS SEC ET L'EMISSION DES AEROSOLS A PARTIR DES COUVERTS NATURELS

Dans l'atmosphère, les polluants (radioactif, chimique) sont présents sous forme gazeuse et sous forme particulaire (aérosol). Par définition, un aérosol est une suspension de particules solides ou liquides, dans un gaz, pour lesquelles la vitesse de chute est négligeable (Renoux & Boulaud, 1998). Les aérosols atmosphériques sont d'origine naturelle (volcanisme, embrun marins, bioaérosols...) ou issus des activités humaines (industrie, trafic routier, maritime et aérien, chauffage domestique...). Les caractéristiques physiques et chimiques de ces aérosols sont directement liées à leurs sources. Ces aérosols, une fois émis, vont pouvoir se disperser (transfert, diffusion) dans l'atmosphère. Cependant, outre la dispersion atmosphérique proprement dite, un panache d'effluent renfermant des aérosols peut être soumis à des processus tel que le dépôt par temps humide (dépôt humide), le dépôt par temps sec (dépôt sec) et des transformations physico-chimiques. La prédominance du dépôt sec par rapport au dépôt humide est évidemment liée à la météorologie. Le dépôt sec est conditionné par la dynamique de la masse d'air et plus précisément par la turbulence atmosphérique. Il convient alors de caractériser d'une part, les processus météorologiques et d'autre part, les phénomènes physiques liés à la nature des particules. Les particules présentes sur les surfaces vont pouvoir être mis en suspension principalement par des phénomènes éoliens, en lien avec les forces de cohésions de ces particules avec le couvert. Ce phénomène pourrait avoir pour conséquence des transferts des polluants dont les processus sont pour l'instant mal expliqués.

Ce chapitre regroupe les concepts théoriques et expérimentaux de base servant pour ce travail de thèse. Dans un premier temps, des notions de turbulence se focalisant sur la structure de l'atmosphère sont d'abord abordées, suivies de généralités sur la physique des aérosols et sur les différents processus de dépôt sec. Dans un second temps des généralités sur la mise en suspension de particules depuis les surfaces naturelles sont exposées. Un focus est fait sur la mise en suspension des microbes.

1.1 Généralités sur la turbulence atmosphérique

Les aérosols atmosphériques submicroniques peuvent être porteurs de différents polluants (hydrocarbures aromatiques polycycliques, métaux,...) et de radionucléides artificiels (^{137}Cs , $^{129,131}\text{I}$). La mesure des flux de dépôt passe par une analyse de la turbulence atmosphérique dans les basses couches de l'atmosphère, c'est-à-dire dans la troposphère. Il est rappelé dans les paragraphes suivant les notions relatives à la turbulence, à la couche limite, à la couche de surface et la stabilité atmosphérique.

1.1.1 Turbulence atmosphérique

La turbulence est une notion permettant de comprendre les échanges verticaux d'énergie ou de constituants, plus communément appelés flux turbulents. Qu'ils s'agissent d'émission ou de dépôt, les processus d'échange biosphère-atmosphère sont essentiellement contraints par le transport turbulent. La turbulence peut être décrite comme un ensemble de tourbillons de différentes tailles. L'origine de la turbulence est multiple mais généralement liée à des forçages en surface comme le réchauffement radiatif du sol (turbulence thermique), les cisaillements de vent créés par le frottement de l'air sur la surface du sol, par le sillage d'obstacles ou par de forts gradients de vent (turbulence mécanique). Suivant le postulat de Reynolds une variable atmosphérique ou scalaire X peut être décomposée en une valeur moyenne \bar{X} et une fluctuation turbulente X' :

$$X = \bar{X} + X' \quad \text{Équation 1.1}$$

Les 3 composantes du vent (u , v , et w) et d'autres grandeurs scalaires telles que la température (T) ou la concentration d'aérosols (c) peuvent être décrites par l'Équation 1.1. Les outils statistiques tels que la variance et la covariance permettent de quantifier la turbulence.

La variance sert à évaluer l'intensité de la turbulence :

$$Var(X') = \overline{X'^2} \quad \text{Équation 1.2}$$

Le calcul de covariance de deux variables est :

$$CoVar(XY) = \overline{X'Y'} \quad \text{Équation 1.3}$$

Dans la partie consacrée à la caractérisation des échanges dans la couche de surface, les flux turbulents seront calculés en déterminant leurs covariances.

Les principaux phénomènes météorologiques prennent place dans la troposphère. La principale spécificité de cette couche de l'atmosphère est d'avoir une frontière physique, celle de la terre, et être directement influencée par la présence de la surface terrestre. Cette influence va générer des tourbillons donc de la turbulence. La Figure 1.1 montre la représentation spectrale de l'énergie associée aux mouvements horizontaux de l'atmosphère (Hoven, 1957). L'étendue du spectre est considérable puisque la période des tourbillons porteurs d'énergie va de quelques secondes à plusieurs jours. Toutefois, il existe deux pics d'énergie, le premier à environ 1 minute et le second à environ 100 heures. Entre les deux, il y a une relative absence d'énergie des tourbillons ou "trou d'énergie" de l'ordre de l'heure. Ce spectre permet de considérer que les deux domaines correspondent à des processus indépendants : les périodes de 30 minutes pour la turbulence et les

périodes supérieures pour le cycle diurne et les processus météorologiques (Mestayer, 2007). L'échelle de temps des calculs de moyennes des mesures de turbulence sera alors de l'ordre de 30 minutes.

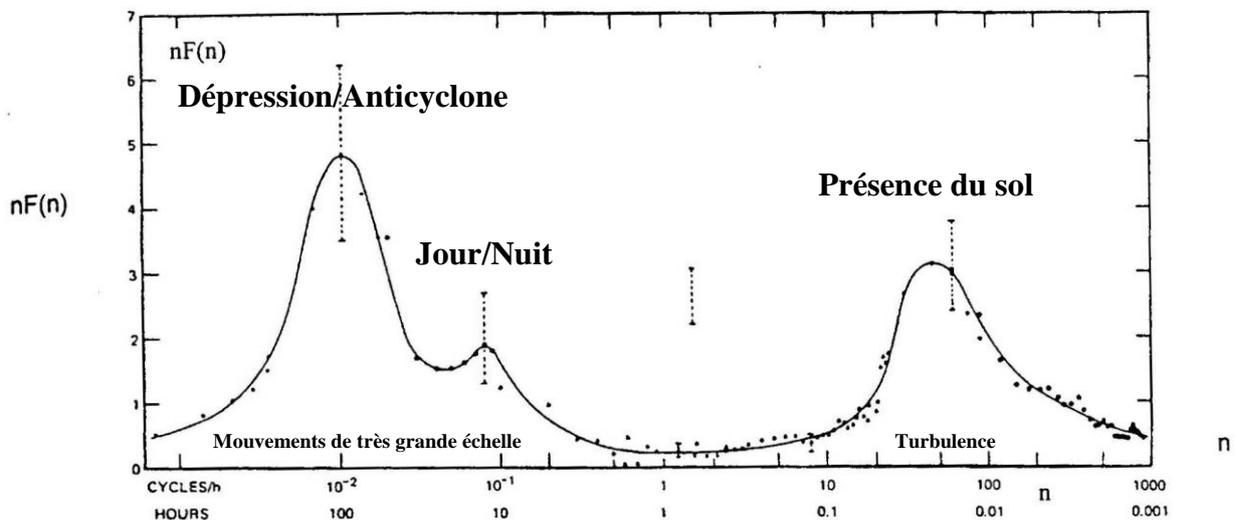


Figure 1.1 : Représentation des différentes échelles de vent à 100 m d'altitudes selon Hoven (1957) cité par De Moor (1996).

1.1.2 Couche limite atmosphérique et stabilité atmosphérique

L'influence de la surface terrestre est surtout perceptible dans la partie inférieure de la troposphère que l'on dénomme "couche limite atmosphérique" (CLA). Au sein de la CLA les échanges surface-atmosphère comprennent les flux de quantité de mouvement, de chaleur et d'humidité ainsi que les flux d'aérosols. Par exemple, sous l'action de la turbulence et des mouvements des masses d'air, les substances émises dans la CLA sont progressivement dispersées verticalement et horizontalement (Chen *et al.*, 2001). La CLA peut varier de quelques centaines de mètres à deux kilomètres de hauteur, en lien avec les cycles journaliers de réchauffement diurne et de refroidissement nocturne de la surface terrestre, et aussi en lien avec la nature de la surface au sol et de la topographie. La Figure 1.2 schématise l'évolution de l'altitude des différentes couches d'air composant la CLA pendant 24 heures, on remarque notamment une couche stable nocturne ainsi que l'altitude de la couche de surface qui sera explicitée par la suite. Le développement de la couche limite atmosphérique dépend de la stabilité atmosphérique. La stabilité atmosphérique est un paramètre qui permet de définir l'état turbulent de l'atmosphère et donc sa capacité de mélange. Trois cas de stabilité sont distingués et définis ci-dessous : le cas instable, le cas neutre et le cas stable (Delmas *et al.*, 2005).

Les conditions instables (ou convectives) sont observées principalement de jour en l'absence de nuages (nébulosité faible) et par vent faible (moins de 2 m.s^{-1}). La surface terrestre est plus chaude que l'air la surplombant et le flux de chaleur associé est ascendant : la couche d'air proche du sol

est entraînée par des mouvements convectifs (turbulence thermique). Le flux de chaleur devient la principale source d'instabilité et les polluants sont mélangés suivant la verticale, sur toute la hauteur de la couche limite.

Lorsque le vent augmente ainsi que la nébulosité, l'atmosphère est en condition neutre de stabilité. La turbulence mécanique générée par le cisaillement entre le sol et le vent augmente alors l'intensité des transferts. En s'opposant à la formation de courants de convection, la turbulence mécanique a également pour effet de favoriser le transport horizontal (advection) des polluants.

Les cas stables se produisent lorsque les effets thermiques, près du sol, conduisent à faire disparaître la turbulence. La turbulence résiduelle devient alors faible et les flux turbulents aussi. Par exemple lors d'un épisode nocturne, le sol est plus frais que l'air, le gradient de température s'inverse, ce qui limite le développement de la turbulence dynamique et les échanges verticaux. Les polluants émis à la surface ont alors tendance à rester près du sol (Affre, 1997).

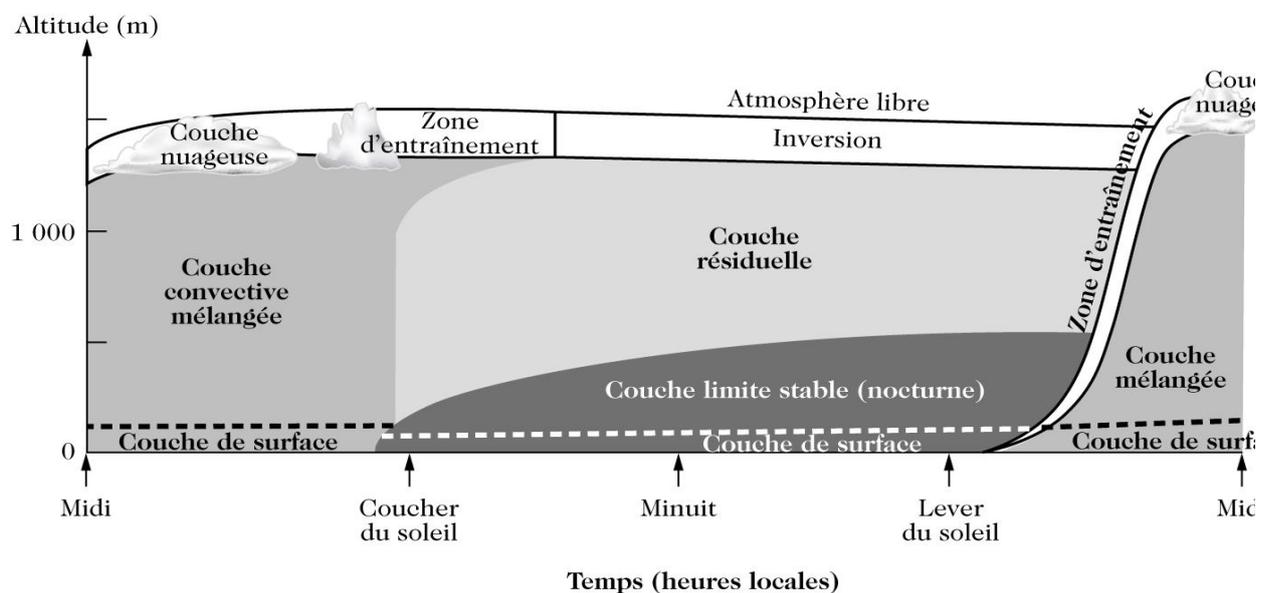


Figure 1.1: Couches d'air composant la couche de mélange (Stull 1988 cité par Delmas *et al.* (2005).

La partie de la couche limite directement en contact avec le sol où vont se disperser les polluants en champ proche de la source est appelée couche de surface et représente environ 10 % de la hauteur de la CLA mélangée (Panovsky, 1984), comme on peut le voir sur la Figure 1.2.

Dans la couche de surface, la turbulence ne dépend pas de chaque élément de rugosité mais d'une rugosité globale. De plus les flux turbulents varient de moins de 10 % (Kotroni & Lagouvardos, 1994) et sont considérés comme conservatifs (indépendants de la hauteur), on parle alors de couche à flux constant. C'est-à-dire qu'il y a indépendance vis-à-vis de l'altitude du flux de quantité de mouvement, du flux de chaleur sensible (plus le flux radiatif d'enthalpie), du flux de vapeur d'eau et de chaleur latente, et enfin du flux de scalaire passif.

Deux sous-couches sont distinguées. La première, la couche de rugosité, est dynamiquement influencée par des échelles de longueurs liées aux rugosités (Raupach, 1994). Elle s'étend du sol à une altitude de 2 à 5 fois la hauteur des rugosités. La seconde couche est la couche inertielle, dans laquelle les flux thermique, de quantité de mouvement ou de masse sont approximativement constants.

Le profil vertical des composantes horizontales de vitesse du vent (Figure 1.3) est un bon indicateur pour déterminer la profondeur de la couche de surface : le gradient de vitesse varie fortement dans cette couche de l'atmosphère alors qu'au-delà il varie peu.

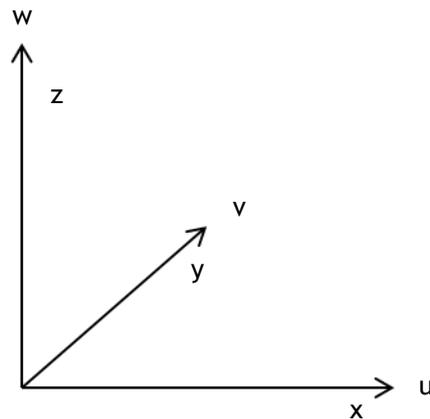


Figure 1.3: Trois composantes de vitesses de vent.

En condition neutre, le profil vertical du vent horizontal suit une loi logarithmique qui dépend de la rugosité de la surface :

$$u(z) = \frac{u^*}{\kappa} \ln\left(\frac{z-d}{z_0}\right) \quad \text{Équation 1.4}$$

Avec $u(z)$ la vitesse horizontale du vent ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$), κ la constante de Van Karman (0,4), z la hauteur de mesure (m), d la hauteur de déplacement (m), z_0 la longueur de rugosité (m) et u^* vitesse de frottement du vent.

La vitesse du vent s'annule théoriquement à l'altitude $z = z_0 + d$. En réalité, à proximité de la surface, le profil de vitesse ne suit plus une loi logarithmique. Dans la couche de surface, les grandeurs caractéristiques de la turbulence sont décrites par la théorie de similitude de (Monin & Obukhov, 1954a). L'hypothèse générale de cette théorie est que la variabilité de structure de la couche de surface peut se traduire par une variation de l'échelle des phénomènes. Les phénomènes sont alors identiques s'ils peuvent être représentés sous forme adimensionnelle. Les paramètres qui caractérisent la couche de surface sont l'altitude z , les flux au sol (conservatifs dans la couche de surface, Stull 1988), le paramètre de flottabilité $\frac{g}{T_0}$ rapport g entre l'accélération de la pesanteur ($\text{m}\cdot\text{s}^{-2}$) et la température de référence T_0 (K), et la masse volumique de l'air (ρ_a). Pour

adimensionner les grandeurs, on définit les échelles de vitesse, de température (ou de scalaire) et de longueur :

- la vitesse de frottement du vent u^* est obtenue grâce à Équation 1.4, connaissant la vitesse du vent à une hauteur donnée et au-dessus d'un couvert dont la rugosité est connue. Cette échelle de vitesse, est directement reliée au flux de quantité de mouvement à la surface et à la contrainte de cisaillement turbulent τ_0 , avec :

$$u^* = \left(\frac{\tau_0}{\rho_a}\right)^{\frac{1}{2}} = \left(\frac{\rho_a \overline{u'w'}}{\rho_a}\right)^{\frac{1}{2}} = \sqrt{-\overline{u'w'}} \quad \text{Équation 1.5}$$

où u' et w' correspondent aux fluctuations turbulentes des composantes horizontales et verticales du vecteur vitesse (Équation 1.1).

- L'échelle de température T^* , caractérisant la production de turbulence par flottabilité, qui est reliée au flux de chaleur sensible à la surface (H) :

$$T^* = -\frac{H}{\rho_a c_p u^*} \text{ avec } H = \rho_a c_p \overline{w'T'} \quad \text{Équation 1.6}$$

avec : c_p : chaleur spécifique de l'air à pression constante ; T' : fluctuation de température (Équation 1.1).

On définit également deux échelles de longueur :

- z , la hauteur de mesure ;
- L , appelée longueur de Monin-Obukhov (m), qui établit une relation entre les processus dynamiques, thermiques et de flottabilité, et est proportionnelle à la hauteur de la couche de surface (Foken & Wichura, 1996). L s'exprime de la façon suivante :

$$L = \frac{u^{*2}}{\kappa \left(\frac{g}{T_0}\right) T^*} = \frac{-u^{*3}}{\kappa \left(\frac{g}{T_0}\right) \overline{w'T'}} \quad \text{Équation 1.7}$$

L est positive pour un flux de chaleur dirigé vers le bas correspondant à une stratification stable, négative pour une atmosphère convective.

Pour $H = 0$ (cas neutre) $L \rightarrow \infty$. $|L|$ représente l'épaisseur de la couche d'influence dynamique près de la surface où les effets de la contrainte de cisaillement sont prépondérants.

Les effets de flottabilité sont dominants pour $z > |L|$: le rapport $\zeta = z/L$ est un paramètre mesurant l'importance relative des forces de flottabilité par rapport aux contraintes de cisaillement dans une couche limite stratifiée (Mestayer, 2007).

La Figure 1.4 représente la relation entre la Longueur de Monin-Obukhov et la longueur de rugosité pour différentes classes de Pasquill (Golder, 1972). Pasquill distingue six classes de stabilité atmosphérique, définies à partir de la mesure de la vitesse du vent à 10 m, de l'ensoleillement le jour et de la nébulosité la nuit, la stabilité agissant à la fois sur la diffusion verticale et la diffusion horizontale. Les six classes s'échelonnent entre les très fortes et les très faibles turbulences atmosphériques : A très instable, B modérément instable, C légèrement instable, D neutre, E stable et F très stable.

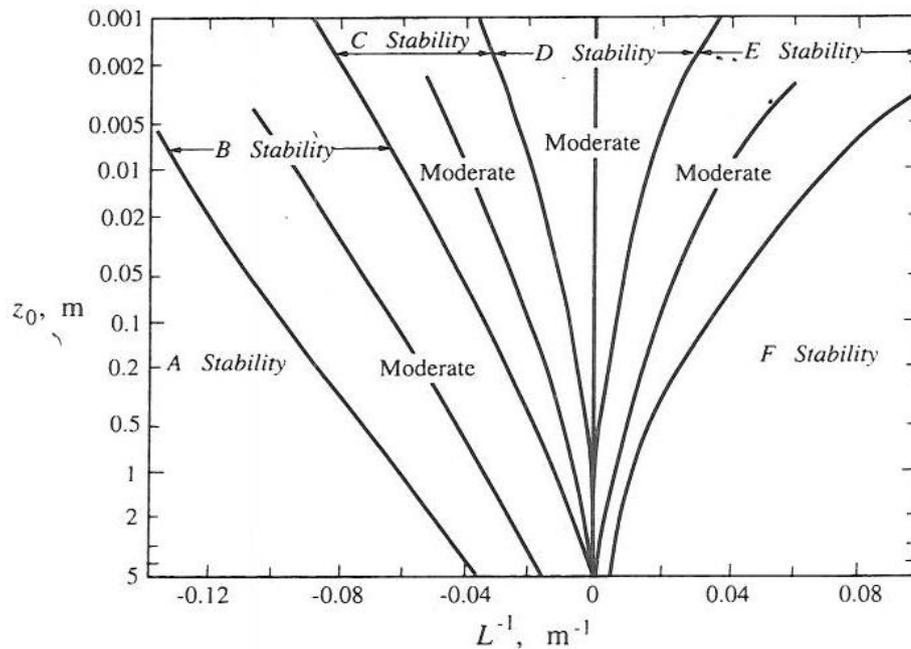


Figure 1.4 : Longueur de rugosité en fonction de l'inverse de la Longueur de Monin-Obukhov pour différentes classes de Pasquill (Myrup and Ranzieri (1976) cité par Seinfeld and Pandis (1998)).

Les paramètres de rugosité z_0 et d caractérisant la surface, dépendent de la taille h des éléments rugueux et de leur arrangement géométrique. Pour la végétation, Shaw and Pereira (1982) ont montré que z_0/h et d/h dépendent de la répartition verticale des surfaces et de l'indice foliaire. Dans la suite de l'étude sera pris arbitrairement $z_0/h = 0,1$ et $d/h = 0,75$ (Raupach (1994); Stanhill (1969) pour des prairies et des couverts agricoles). z_0 dépend de la nature du substrat et permet d'établir plus précisément les bornes de $1/L$ définissant aussi le régime de stabilité atmosphérique (Golder, 1972).

D'autres échelles peuvent être définies lorsque d'autres scalaires (X) sont étudiés, comme dans notre cas l'aérosol :

$$X^* = -\frac{w'X'}{u^*} \quad \text{Équation 1.8}$$

D'après Monin and Obukhov (1954a), les flux adimensionnés sont des fonctions du paramètre ζ (paramètre de stabilité souvent utilisé). Pour $\zeta < 0$ l'atmosphère est instable, lorsque $\zeta > 0$ l'atmosphère est stable. La neutralité est atteinte à $\zeta = 0$. Les flux adimensionnés de la vitesse horizontale du vent, de la température et de tout autre scalaire passif X (n'ayant pas de vitesse de chute propre) s'écrivent de façon générale :

$$\varphi_m(\zeta) = \frac{\kappa(z-d)}{u^*} \frac{\partial U}{\partial z} \quad \text{Équation 1.9}$$

$$\varphi_h(\zeta) = \frac{\kappa(z-d)}{T^*} \frac{\partial T}{\partial z} \quad \text{Équation 1.10}$$

$$\varphi_c(\zeta) = \frac{\kappa(z-d)}{C^*} \frac{\partial C}{\partial z} \quad \text{Équation 1.11}$$

Les fonctions φ sont appelées fonctions flux-profil ; elles sont supposées universelles pour toutes les couches de surface. Elles ont été établies et vérifiées empiriquement à partir d'un grand nombre de mesures réalisées sur des surfaces planes et homogènes ; une revue en est présentée par (Dyer, 1974) reprise par Kaimal and Finnigan (1994).

Pour la suite de l'étude, il est nécessaire de définir les bornes de z/L permettant de distinguer les cas instables, neutres et stables, et cela en fonction de la rugosité du sol caractérisée par z_0 .

Il est important d'introduire les grandeurs nécessaires à la compréhension des mécanismes de dépôts des aérosols submicroniques.

1.2 Généralité sur la physique des aérosols dans l'atmosphère

1.2.1 Notions de diamètre des aérosols

Les aérosols peuvent avoir des formes diverses et variées allant de la forme sphérique à la forme fractale. Les lois de la physique des aérosols sont souvent établies pour des particules supposées sphériques (Bricard, 1977). Pour pouvoir généraliser à des particules non-sphériques, il est commode de définir un diamètre équivalent à une sphère. Ainsi, dans cette étude, seul le diamètre aérodynamique a été utilisé. Celui-ci concerne les particules non poreuses et correspond au diamètre d'une sphère ayant la même vitesse de sédimentation que la particule et une masse volumique égale à 1000 kg.m^{-3} .

1.2.2 Distribution de l'aérosol dans l'atmosphère

Les aérosols généralement rencontrés dans l'environnement sont composés de particules de diamètres différents. Ils sont définis par leur distribution granulométrique, c'est-à-dire une

distribution du nombre de particules (ou de leur surface, de leur volume, de leur masse) en fonction de leur diamètre. Dans l'atmosphère, il est généralement distingué quatre classes ou modes granulométriques : le mode de nucléation, le mode d'accumulation et le mode des grosses particules.

- Le mode "nucléation" correspond aux particules ultrafines avec $d_p < 0,015 \mu\text{m}$. Dans la littérature, ce mode est parfois divisé en deux catégories de particules issues de deux processus distincts (Kulmala *et al.*, 2004) : les particules issues de la nucléation homogène (conversion gaz/particules), parfois appelé mode de particules ultrafines ($d_p < 0,015 \mu\text{m}$), dont le temps de vie est très court (quelques minutes à quelques heures), et les particules de "Aitken" ($0,015 < d_p < 0,1 \mu\text{m}$) produite par condensation et coagulation des particules ultrafines ((Renoux & Boulaud, 1998), Figure 1.5) ;
- le mode "accumulation" est celui des particules fines avec $0,1 \mu\text{m} \leq d_p \leq 2,5 \mu\text{m}$. Ce sont les particules qui résident le plus longtemps dans l'atmosphère (Renoux & Boulaud, 1998) où elles peuvent rester entre une dizaines de jours et plusieurs semaines (Figure 1.6), parcourir l'ensemble du globe et se déposer à plusieurs milliers de kilomètres de leur point d'émission initial. Ces particules peuvent provenir du grossissement de noyaux de condensation ou de coagulation de particules du mode nucléation (Figure 1.7) ;
- le mode des grosses particules est celui des particules grossières avec $2,5 \mu\text{m} < d_p < 100 \mu\text{m}$ (Figure 1.5). Les particules de ce mode sont générées mécaniquement par des mécanismes tels que l'érosion éolienne ou la production d'embruns.

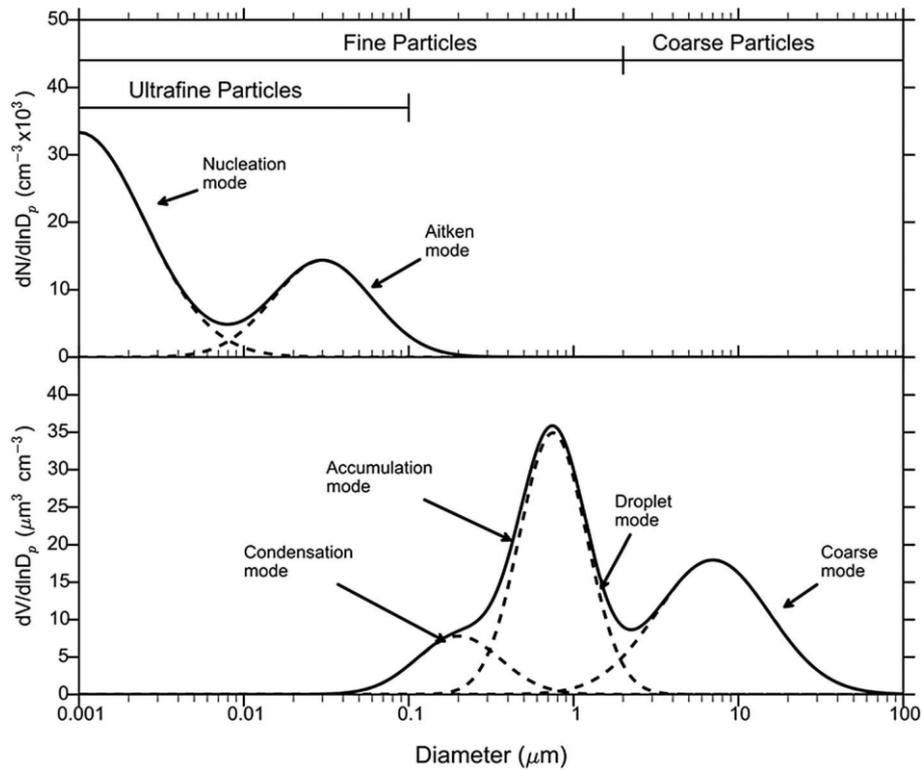


Figure 1.5 : Les différents modes de l'aérosol atmosphérique (Colbeck, 2014).

La durée de vie des particules d'aérosols atmosphériques dépend de leur nature chimique, de leur taille et de leur altitude. Comme on peut le déduire de la Figure 1.6, les particules plus petites sont éliminées efficacement par coagulation et les grosses particules par sédimentation, tandis que les particules de la gamme de taille de mode d'accumulation ne sont éliminées efficacement que par dépôt humide. Il en résulte des temps de résidence dans l'atmosphère différents pour chaque gamme de taille de particules. D'une façon plus générale, la durée de vie moyenne d'une particule est d'environ 1 semaine (Renoux & Boulaud, 1998). Les différents processus de formation et de disparition des particules atmosphériques sont résumés sur la Figure 1.7.

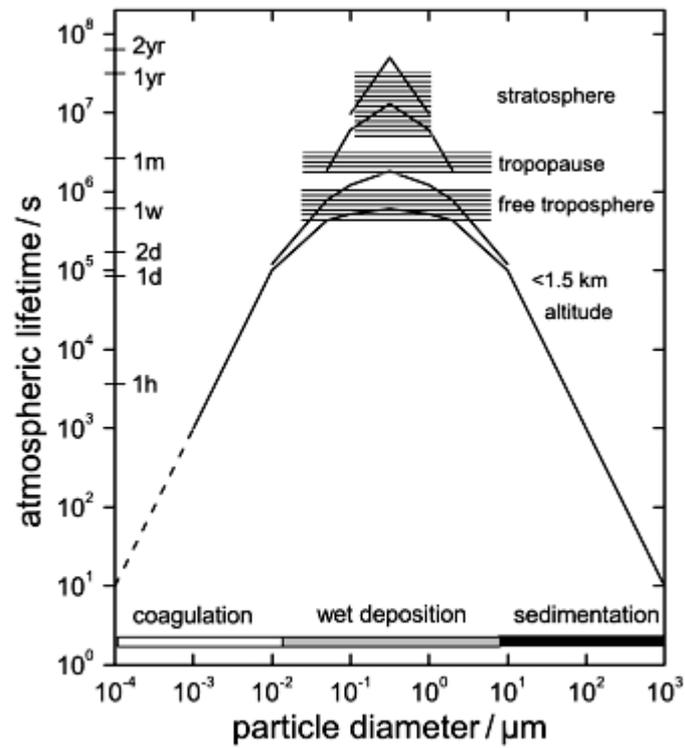


Figure 1.6 : Temps de résidence τ des particules en secondes en fonction de leur diamètre et de l'altitude (Petzold & Kärcher, 2012).

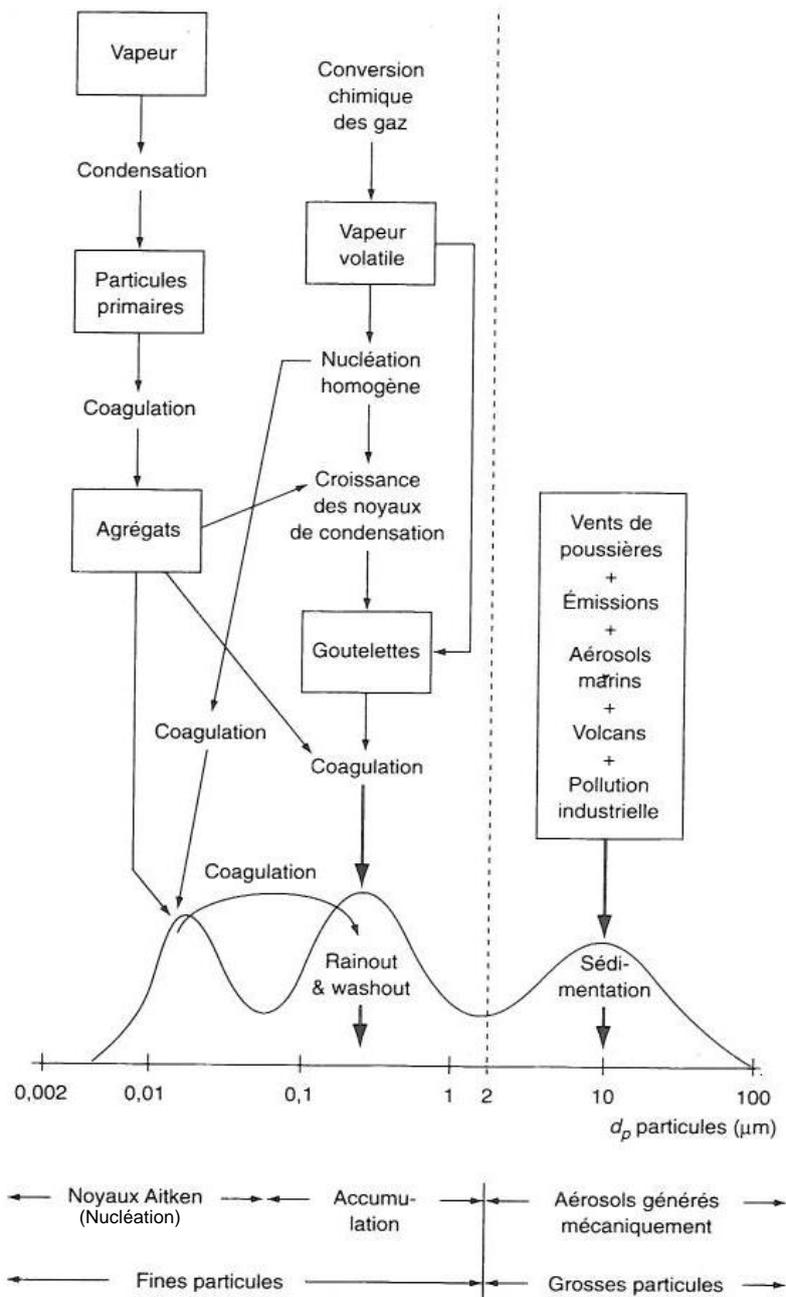


Figure 1.7 : Formation de l'aérosol atmosphérique (Whitby and Sverdrup, 1980 cité dans Renoux and Boulaud (1998)).

1.2.3 Evolution des aérosols dans l'atmosphère

1.2.3.1 *Nucléation*

Le terme de nucléation (homogène) ou conversion gaz/particules signifie qu'il y a formation de petites gouttes de liquide thermodynamiquement stable à partir de gaz. En effet, ce phénomène apparaît lorsqu'un grand nombre de molécules s'entrechoquent sous l'effet de l'agitation thermique.

Si une goutte est trop petite, les forces de cohésion sont insuffisantes pour la maintenir. Ce sont les gouttes au-delà d'une taille critique qui apparaissent.

La nucléation est définie comme la formation d'embryons multi-moléculaires représentant la création d'une nouvelle phase à travers la transformation vapeur phase condensée. La formation des embryons est obtenue par collisions et réarrangements aléatoires d'atomes ou de molécules de gaz. A ce processus est associée une barrière d'énergie libre ΔG qui nécessite d'être surmontée avant d'atteindre un équilibre thermodynamique stable. La nucléation de nouvelles particules dans l'atmosphère à partir de vapeurs est, dans son principe, analogue à d'autre processus de nucléation, comme la congélation de liquide ou encore la cristallisation de solutions sursaturées. Le point commun à ces différents processus de nucléation est qu'il existe une surface autour du noyau critique qui sépare les propriétés de ce noyau de celles de la phase initiale. La formation d'un embryon peut être homogène au sein de la phase gazeuse (nucléation homogène), ou bien hétérogène lorsqu'elle a lieu sur des noyaux préexistants (nanoparticules ou ions). On parle alors également de condensation (Rose, 2014).

1.2.3.2 Condensation

La croissance par condensation est le mécanisme principal responsable de la croissance des noyaux fraîchement formés. La condensation, dans le cas des aérosols, se produit lorsque de la vapeur d'un élément chimique (acide sulfurique, ammoniac, ...) se condense sur une particule. La condensation et l'évaporation sont pilotées par la différence de pression entre la pression de vapeur ambiante et la pression de vapeur à la surface de la particule. La direction résultante du flux de vapeur (condensation ou évaporation) dépend de l'importance de cette différence.

La condensation et l'évaporation de la vapeur d'eau de l'air sur les particules atmosphériques joue aussi un rôle important. La quantité d'eau condensée en surface d'un aérosol est directement proportionnelle à l'humidité relative ambiante. Le diamètre des particules varie en fonction de ce taux d'humidité. Il croît à partir d'un certain taux, appelé point de déliquescence, et diminue avec le taux d'humidité jusqu'à ce que la particule redevienne solide, au point de cristallisation (Seinfeld & Pandis, 1998). Ces processus de déliquescence et de cristallisation suivent une hystérésis (Figure 1.8).

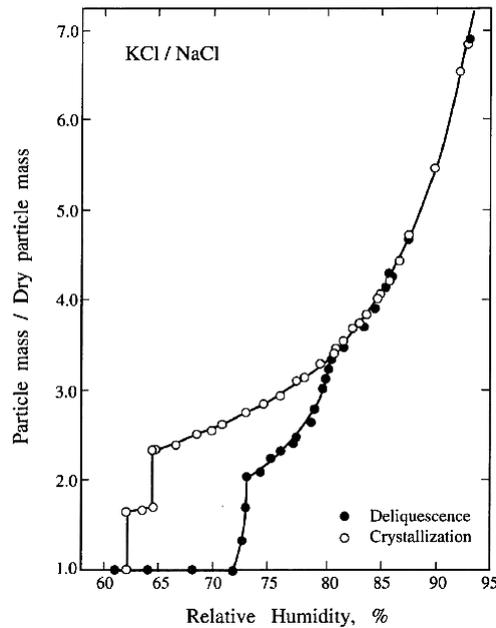


Figure 1.8 : Taux relatif de croissance et de décroissance en masse d'un aérosol (composé de 66 % de KCl et de 33 % de NaCl, en masse) en fonction de l'humidité relative (%); Tang and Munkelwitz (1993) cité par Seinfeld and Pandis (1998).

Selon cette figure, les effets de déliquescence peuvent avoir lieu pour des taux d'humidité régulièrement rencontrés dans l'environnement. Le processus de condensation d'eau sur des particules, alors appelés noyaux de condensation, est à l'origine de la formation des nuages et des brouillards dans l'atmosphère. Il est dépendant de paramètres météorologiques (taux d'humidité, pression, température de la masse d'air) et de paramètres liés à la particule (nature chimique, diamètre).

1.2.3.3 Coagulation

La coagulation peut être le résultat de la gravitation, de la turbulence et du cisaillement, ou bien encore, plus efficacement, du mouvement Brownien. Au cours de ces mouvements les particules interagissent soit par chocs soit par adhésion d'une particule avec d'autres. L'adhésion des particules entre elles conduit à l'augmentation de leurs tailles mais également à la disparition du nombre de particules.

Le nombre de particules qui disparaissent par coagulation pendant un temps donné et dans l'unité de volume est proportionnel au carré du nombre de particules préexistantes (Maro *et al.*, 2004). Ainsi, on observe globalement beaucoup d'événements de formation de nouvelles particules dans les environnements présentant des niveaux de pollution de fond élevés. De plus, il est nécessaire que la concentration en particules soit supérieures à quelques $10^5 \text{ part.cm}^{-3}$ pour pouvoir rencontrer ce phénomène (Renoux & Boulaud, 1998).

1.2.3.4 Episode de formation et de grossissement de particules.

La formation de nouvelles particules a été observée à proximité de sources polluées et dans des régions propres et éloignées (Kulmala *et al.*, 2004). La nucléation peut alors être responsable de l'apparition de formation de nouvelles particules dans des environnements propres où les concentrations en aérosols sont faibles. La caractéristique principale d'un événement de nucléation est l'augmentation de la concentration en nombre de l'aérosol dans l'atmosphère ambiante (Seinfeld & Pandis, 2006) suivi d'une augmentation de la taille des particules par condensation et par coagulation. Un exemple de formation de nouvelles particules est présenté sur la Figure 1.9 avec la forme caractéristique "banana plot".

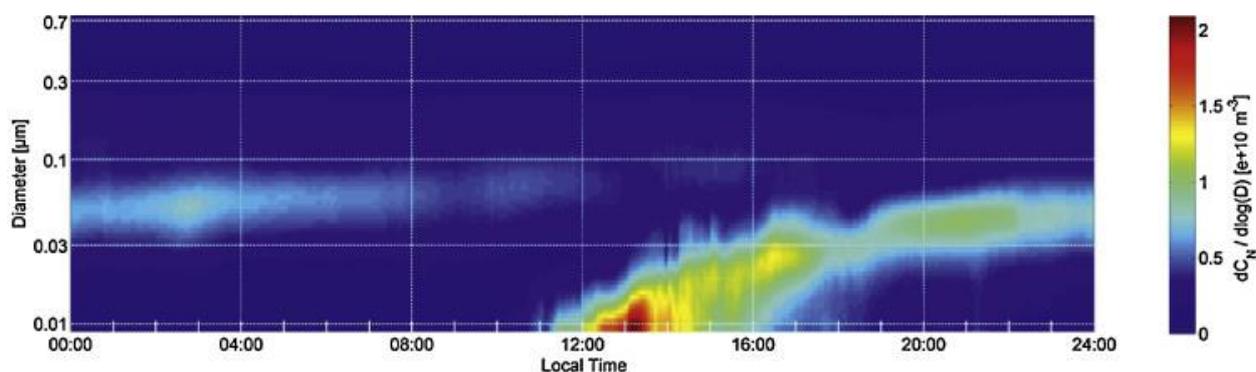


Figure 1.9 : Evènement de formation de nouvelles particules (Deventer *et al.*, 2015).

L'identité des espèces chimiques gazeuses impliquées dans le processus de nucléation reste aujourd'hui incertaine (Nieminen *et al.*, 2009; Seinfeld & Pandis, 2006; Sellegri *et al.*, 2005). Toutefois, certains précurseurs ont été identifiés comme jouant un rôle important. Le précurseur gazeux identifié comme étant le plus commun est l'acide sulfurique (Renoux & Boulaud, 1998), en raison de sa faible pression de vapeur saturante dans les conditions de température atmosphérique rencontrées dans la majeure partie des cas. Mais également d'autres précurseurs, tels que l'ammoniaque, différentes amines, des acides organiques, des oxydes d'iode ou bien encore des ions ont été identifiés comme acteurs de la nucléation dans différents environnements (Rose, 2014). Après avoir défini les mécanismes influençant la distribution granulométrique des aérosols dans l'atmosphère nous allons maintenant étudier les mécanismes de dépôt des aérosols atmosphériques sur les surfaces et plus particulièrement le dépôt sec.

1.3 Dépôt par temps sec des aérosols

Dans l'atmosphère, le transfert de particules aux interfaces peut intervenir par dépôt sec (par temps sec) ou par dépôt humide (en présence de précipitations). Bien que beaucoup moins efficace que le dépôt humide, le dépôt sec devient la seule voie de transfert des particules en l'absence de précipitations. Afin d'estimer l'ensemble des dépôts, le dépôt sec est généralement pris en compte dans les modèles de transport de polluants en utilisant la notion de vitesse de dépôt sec.

1.3.1 Définition de la vitesse de dépôt par temps sec ou dépôt sec

Pour quantifier le dépôt sec aux interfaces (sol, murs, végétation...) des particules contenues dans un panache ou dans l'atmosphère, le transfert des particules est traité avec une vitesse de dépôt. Cette vitesse de dépôt sec, notée V_d ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$), est définie par Chamberlain and Chadwick (1953) (cité par Sehmel (1980b)) comme l'opposé du rapport du flux surfacique de dépôt de particules F (en $\text{particule}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) et de la concentration moyenne en particules dans l'air C (en $\text{particule}\cdot\text{m}^{-3}$) à une hauteur de référence donnée (Équation 1.12).

$$V_d(z) = \frac{-F}{C(z)} \quad \text{Équation 1.12}$$

Pour un aérosol polydispersé comportant i gammes de tailles de particules, la vitesse de dépôt sec doit être calculée selon l'Équation 1.13.

$$V_d = \frac{\sum_i V_{di} C_i}{\sum_i C_i} \quad \text{Équation 1.13}$$

V_{di} est la vitesse de dépôt des particules de la gamme de taille i de concentration C_i .

Dans l'environnement, les conditions de dépôt sec peuvent être très différentes. La vitesse de dépôt est dépendante des caractéristiques de l'aérosol, de la surface de dépôt et des conditions micrométéorologiques (principalement de la turbulence atmosphérique).

Dans la littérature, le dépôt sec, dépendant de plusieurs phénomènes physiques, est à la fois étudié en laboratoire et dans l'environnement. Les milieux confinés (conduites aérauliques, environnements intérieurs) et les environnements naturels sont les milieux les plus étudiés, même s'il persiste beaucoup d'incertitudes, surtout dans la gamme de taille $0,1 - 2 \mu\text{m}$ (Hicks *et al.*, 2016). Le milieu urbain a jusqu'à présent été peu étudié (Fowler *et al.*, 2009). Les principaux mécanismes de dépôt sec aux interfaces naturelles, les différentes méthodes de mesure, les principales données expérimentales de la littérature et les principaux modèles développés sont présentés.

1.3.2 Mécanismes de dépôt par temps sec

Le dépôt sec est la conséquence des interactions entre une surface et les particules qui y sont amenées par différents processus. Il est identifié deux régions au-dessus d'un couvert naturel : la couche de dépôt de hauteur δA et la couche à flux constant de hauteur h . Dans la couche à flux constant, les particules sont principalement transportées par diffusion turbulente et par inertie. La particule est alors transférée dans la couche de dépôt où l'écoulement est principalement gouverné par les mouvements moléculaires (petits tourbillons). Les particules sont ensuite transférées vers la surface suivant les mécanismes de diffusion Brownienne, d'impaction, d'interception, de diffusiophorèse, de thermophorèse et par sédimentation comme indiqué à la Figure 1.10.

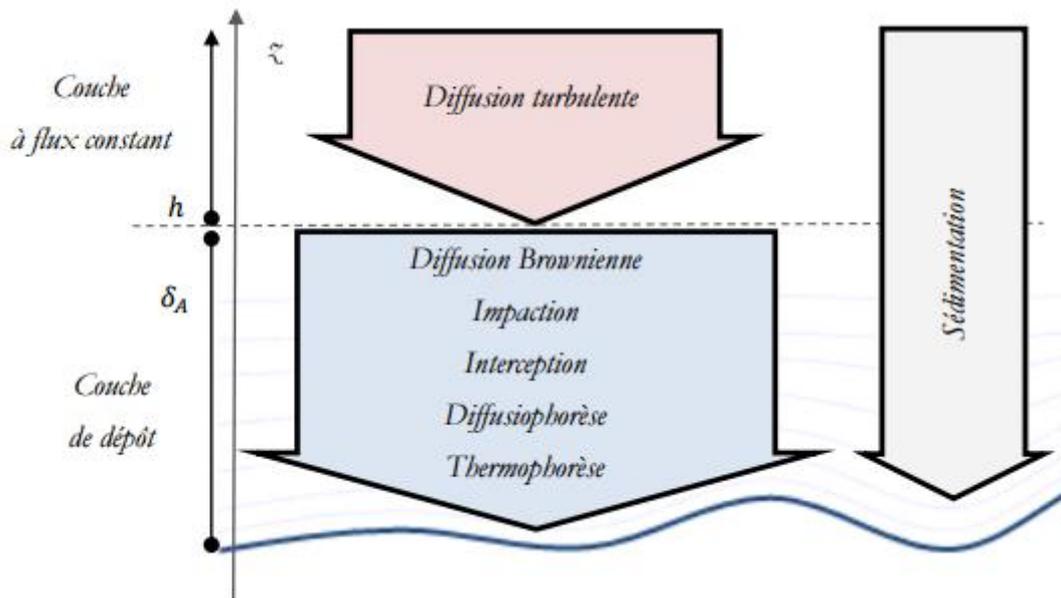


Figure 1.2 : Mécanismes de dépôt sec des particules (Calec, 2013).

1.3.2.1 Sédimentation

C'est le mécanisme de dépôt des particules sur les surfaces horizontales sous l'action de la pesanteur. Après une phase transitoire au cours de laquelle la particule est accélérée, elle atteint une vitesse limite de chute, ou vitesse de sédimentation, lorsque la force de pesanteur est égale et opposée à la force de trainée due à la viscosité du fluide. Typiquement, elle devient importante pour des tailles des particules supérieures à la dizaine de micromètres (Figure 1.11).

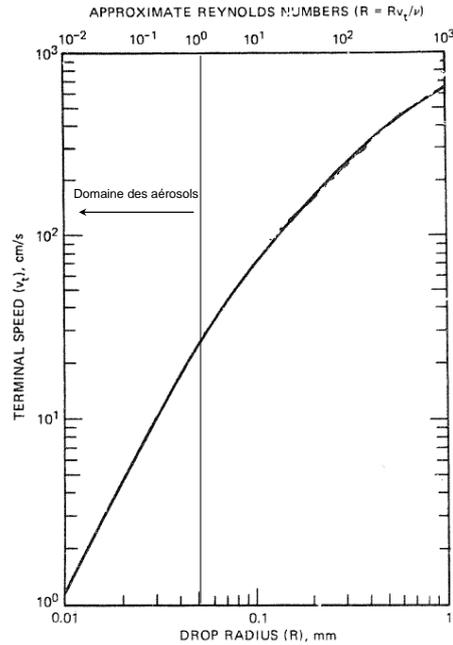


Figure 1.11 : Vitesse de sédimentation en fonction de la taille des particules (Randerson, 1984).

Le bilan de forces permet de déduire la vitesse de sédimentation. La vitesse de sédimentation peut s'écrire dans le cas d'une particule sphérique et non-poreuse et pour un nombre de Reynolds particulaire $Re_p < 0,1$:

$$V_s = \frac{d_p^2 \rho_p g C_u}{18\eta} = g\tau_p \quad \text{Équation 1.14}$$

où g est l'accélération de la pesanteur ($m.s^{-2}$), d_p le diamètre de la particule (m), ρ_p la masse volumique de la particule ($kg.m^{-3}$), τ_p le temps de relaxation de la particule (s) et η la viscosité cinématique du gaz porteur ($m^2.s^{-1}$).

Ce temps est caractéristique de la réponse d'une particule à une sollicitation extérieure. Son expression est donc :

$$\tau_p = \frac{d_p^2 \rho_p C_u}{18\eta} \quad \text{Équation 1.15}$$

C_u est le facteur de Cunningham dont l'une des expressions est (Hidy, 2012) :

$$C_u = 1 + \frac{2\lambda}{d_p} \left(1,257 + 0,400e^{-1,1\frac{d_p}{2\lambda}} \right) \quad \text{Équation 1.1}$$

Avec λ le libre parcours moyen des molécules du gaz.

1.3.2.2 Diffusion brownienne

La diffusion brownienne traduit l'effet des chocs des molécules du gaz porteur à la surface des particules du fait de l'agitation thermique, rendant leurs trajectoires aléatoires. Elle a une influence croissante pour des diamètres de particules décroissants. Typiquement elle s'applique aux particules fines et principalement aux ultrafines. A grande échelle la diffusion brownienne se traduit par une loi de diffusion. Pour des particules, le coefficient de diffusion brownienne D_b ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) s'écrit selon l'Équation 1.17.

$$D_b = \frac{C_u k_b T}{3\pi\mu d_p} \quad \text{Équation 1.17}$$

Avec k_b la constante de Boltzmann ($= 1,38 \times 10^{-23} \text{ N} \cdot \text{m} \cdot \text{K}^{-1}$), d_p diamètre de la particule, T la température du gaz (K), μ la viscosité dynamique du gaz ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$) et C_u le coefficient de Cunningham (sans unité) (Équation 1.16).

Les particules qui entrent en contact avec un obstacle restent fixées sur celui-ci et disparaissent donc de la suspension. Au niveau des obstacles apparaît une discontinuité de concentration, qui devient nulle. Loin des obstacles, la concentration est considérée comme uniforme ; le gradient de concentration ainsi produit crée un phénomène de diffusion (Figure 1.12) qui fait que les particules proches des obstacles y migrent.

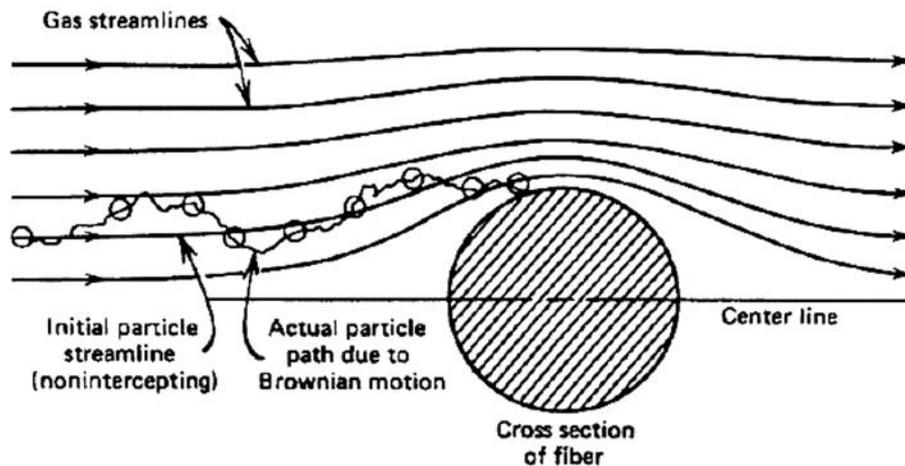


Figure 1.12 : Illustration du dépôt d'une particule sur un obstacle par diffusion brownienne (Hinds, 1999).

Une vitesse de dépôt par diffusion brownienne V_b ($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$) sur l'obstacle est donnée par l'Équation 1.18 (Renoux & Boulaud, 1998).

$$V_b = \frac{Sh D_b}{L} = \frac{Sh C_u k_b T}{L 3\pi\mu d_p} \quad \text{Équation 1.18}$$

Sh est le nombre de Sherwood, dépendant des nombre de Schmidt et de Reynolds, dont une formulation pour un écoulement turbulent est donnée par Friedlander (1977) ; Équation 1.19 ; cité par Renoux and Boulaud (1998).

$$Sh = 0,0118Sc^{\frac{1}{3}}Re^{\frac{7}{8}} \quad \text{Équation 1.19}$$

Le nombre de Schmidt (Sc) et de Reynolds (Re)

$$Re = \frac{uL}{\nu_a} \quad \text{Équation 1.20}$$

$$Sc = \frac{\nu_a}{D_b} \quad \text{Équation 1.21}$$

Avec ν_a la viscosité cinématique de l'air ($m^2.s^{-1}$), u est la vitesse moyenne du gaz porteur ($m.s^{-1}$), L est une longueur caractéristique de l'obstacle (m).

Le dépôt par diffusion brownienne devient important surtout pour les particules très fines, typiquement de diamètres inférieurs à $0,1 \mu m$.

1.3.2.1 Impaction

1.3.2.1.1 Impaction inertielle

Une particule transportée par un écoulement vers un obstacle peut ne pas suivre les changements de directions de l'écoulement autour de l'obstacle et va l'impacter si son inertie est trop grande (Figure 1.3).

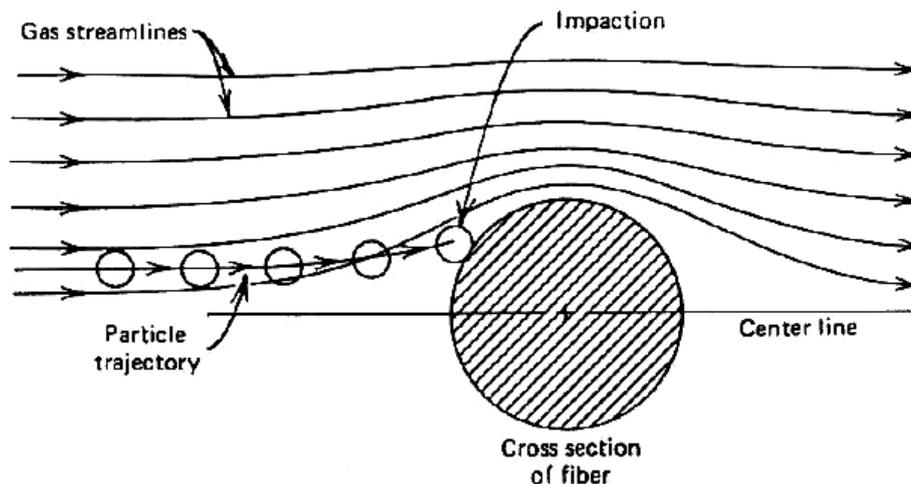


Figure 1.3 : Illustration du dépôt d'une particule sur un obstacle par impaction inertielle (Hinds, 1999).

L'influence de cette inertie croît pour des diamètres de particules, des masses volumiques de particules et des vitesses d'écoulements croissants. Elle se fait généralement sentir pour des

particules dont le diamètre est de l'ordre ou supérieur au micromètre. Le contact entre les aérosols et l'obstacle est supposé suffisant pour contraindre la capture de celui-ci du fait des forces de Van der Waals et de la tension de surface de la goutte dans le cas du dépôt humide (Powers & Burson, 1993).

L'impaction inertielle est décrite en fonction d'une efficacité d'impaction inertielle $E_{imp-iner}$ prise en compte dans le calcul de la vitesse de dépôt par impaction inertielle $V_{imp-iner}$, celle-ci est alors donnée par l'Équation 1.22.

$$V_{imp-iner} = uE_{imp} \quad \text{Équation 1.22}$$

E_{imp} est déterminé de façon empirique, grâce à des mesures expérimentales effectuées en soufflerie, et sera défini dans le paragraphe 1.3.4.

1.3.2.1.2 Impaction turbulente

Dans un environnement turbulent, les particules ont une énergie propre due à leur inertie qui peut les mettre en déséquilibre par rapport aux tourbillons turbulents. Dans ce cas, elles ne suivent plus les tourbillons qui les portent et lorsqu'elles se trouvent près de la paroi elles peuvent traverser la couche visqueuse et rencontrer la surface. Ainsi, la contribution de ce mécanisme au flux de dépôt est paramétrée par une vitesse de dépôt notée $V_{imp-turb}$ qui dépend du temps de relaxation des particules.

Les rares expressions disponibles dans la littérature pour évaluer la vitesse par impaction turbulente sont issues de travaux menés sur paroi plane, sur prairie ou dans des conduites. Ces expressions sont fonctions du paramètre sans dimension τ_p^+ .

$$\tau_p^+ = \frac{\tau_p u^{*2}}{\nu_a} \quad \text{Équation 1.23}$$

Sur prairie et sur canopée, (Petroff & Zhang, 2010) généralisent la vitesse de dépôt sec en fonction d'efficacités de collection et proposent l'expression suivante pour la contribution de l'impaction turbulente :

$$V_{imp-turb} = \begin{cases} V_{imp-turb} = u \, 2,5 \times 10^{-3} \text{CIT} \tau_p^{+2} & \text{Si } \tau_p^{+2} < 20 \\ V_{imp-turb} = u \text{CIT} & \text{Si } \tau_p^{+2} \geq 20 \end{cases} \quad \text{Équation 1.24}$$

Avec CIT une constante qui tient compte des caractéristiques des distributions de longueur et d'orientation des obstacles. Cette constante est donnée égale à 0,14.

1.3.2.1 Interception

Ce processus intervient lorsque les particules ont une faible inertie mécanique ; elles suivent parfaitement les lignes de courant de l'écoulement moyen, passent à proximité d'un obstacle et sont retenues (Figure 1.14).

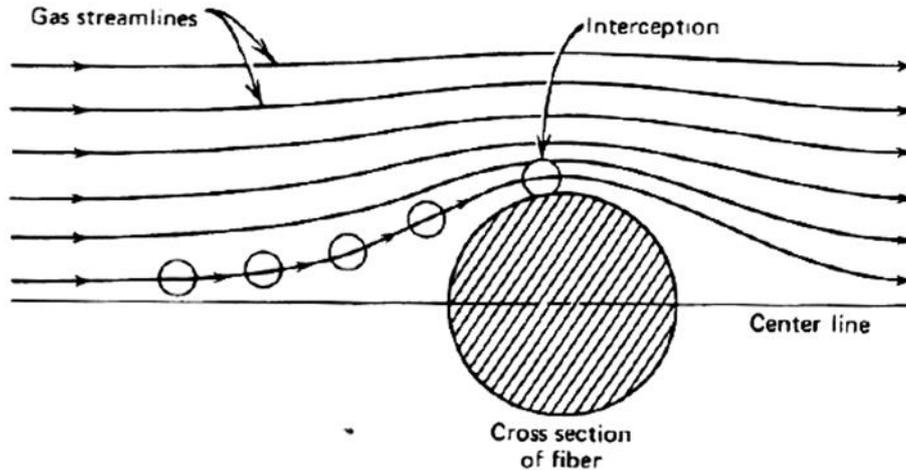


Figure 1.14 : Illustration du dépôt d'une particule sur un obstacle par interception (Hinds, 1999).

La vitesse de dépôt associée à l'interception $v_{interception}$ a été proposée, par Slinn (1982) pour des applications sur les canopées telle que :

$$v_{interception} = \frac{u^*}{\kappa} E_{int} \quad \text{Équation 1.25}$$

La valeur de l'efficacité d'interception E_{int} sera également définie dans le paragraphe 1.3.4.

1.3.2.2 Thermophorèse

La thermophorèse (Figure 1.15) est un mouvement convectif généré par un gradient thermique au cours duquel les particules sont poussées sous l'effet de l'agitation des molécules de la zone chaude vers la zone froide plus calme (Tyndall, 1870). Les chocs des molécules de gaz sur l'aérosol étant asymétriques une force, dite de thermophorèse, s'exerce sur la particule qui est repoussée par le gradient thermique.

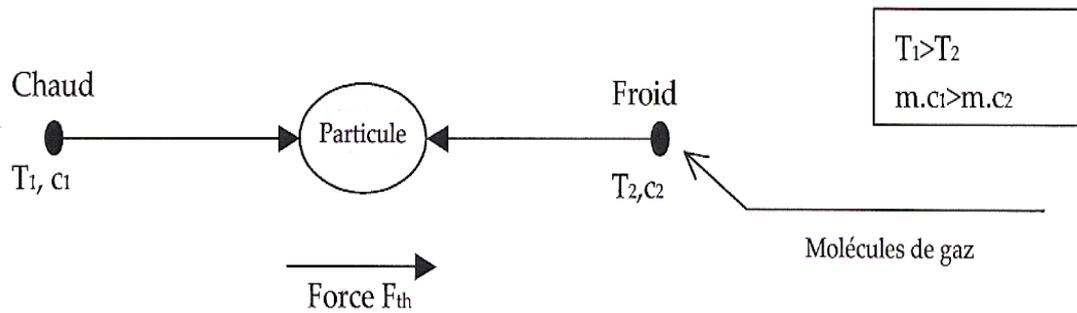


Figure 1.15 : Schéma de principe de la thermophorèse (Hinds, 1999).

avec : T_1 ou T_2 la température du gaz ; c_1 ou c_2 la vitesse d'une molécule de gaz ; m la masse d'une molécule de gaz.

La comparaison des vitesses de sédimentation et de thermophorèse, dans un gradient de température de 100 K.m^{-1} , montre que cette dernière peut être supérieure à la vitesse de sédimentation pour des particules de diamètres inférieurs à $1 \mu\text{m}$ (Hinds, 1999). La thermophorèse est prise en compte dans la modélisation du dépôt dans les conduites et dans les bâtiments. Elle est aussi considérée dans le cas d'études de combustion et d'accidents de réacteurs nucléaires (Zheng, 2002). Ce processus a également un impact certain sur le dépôt en milieu urbain, le gradient de température étant très peu important sur des couverts végétal tel que la prairie. Ainsi, Maro *et al.* (2010) et mettent clairement en évidence une diminution du dépôt par effet de thermophorèse sur des surfaces de verre chauffées par le soleil (Figure 1.16). En effet, la Figure 1.16 montre clairement que pour l'essai n°4 qui possède l'écart de température le plus grand entre le verre et l'air ambiant, la vitesse de dépôt est nettement diminuée.

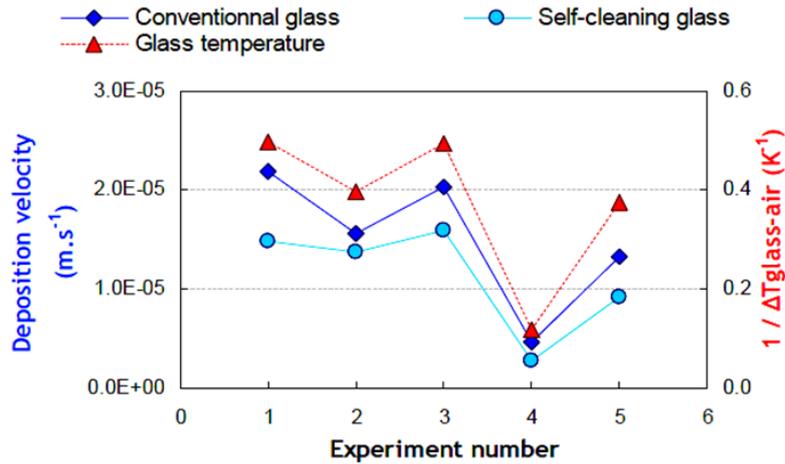


Figure 1.16 : Vitesses de dépôt sec et inverses des écarts de températures verre - air pour cinq expérimentations (Maro *et al.*, 2014).

1.3.2.3 Diffusiophorèse

Dans les configurations où il existe des gradients de concentration d'une espèce quelconque (essentiellement de la vapeur d'eau) entre l'air et la surface, le phénomène de diffusiophorèse peut exister Figure 1.17. Ces gradients génèrent des flux diffusifs vers les régions de plus basses concentrations susceptibles d'emporter avec elles les aérosols. Cette force dépend de la masse molaire de l'espèce qui diffuse, de ses coefficients de diffusion et de ses gradients de concentration (Kulkarni *et al.*, 2011).

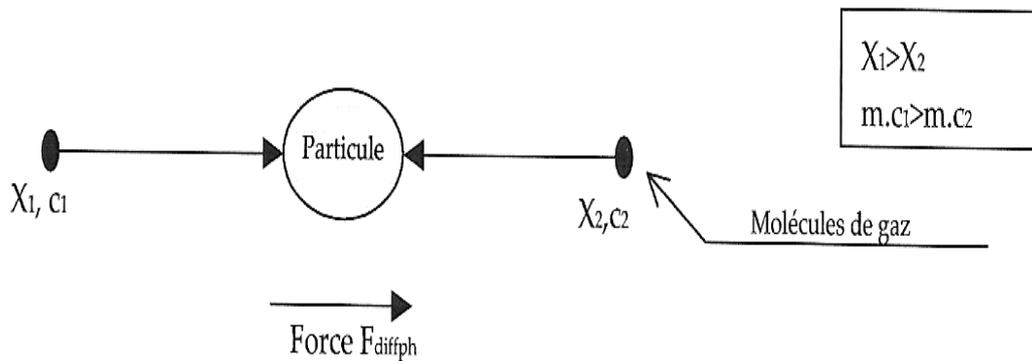


Figure 1.17 : Schéma de principe de la diffusiophorèse (Hinds, 1999).

avec : X_1 ou X_2 la concentration de l'espèce chimique ; c_1 ou c_2 la vitesse d'une molécule de l'espèce chimique ; m la masse d'une molécule de l'espèce chimique.

1.3.2.4 Effets électrostatiques

Les aérosols atmosphériques peuvent acquérir des charges électriques du fait de dépôt d'ions par diffusion brownienne. Ces ions ont diverses origines (naturelles ou anthropiques) et sont la majeure partie du temps produits par le rayonnement solaire (Bricard, 1977). La distribution des aérosols atmosphériques suit une distribution de charges symétrique avec autant de charges positives que négatives, appelée loi d'équilibre de Boltzmann.

Le nombre moyen de charges élémentaires portées par les aérosols est fonction de leur taille à l'équilibre de Boltzmann.

De même, certains substrats typiques du milieu urbain (plastiques) et les gouttes de pluie peuvent être chargés électriquement (Takahashi, 1973).

Divers mécanismes sont à l'origine de cette électrisation des gouttes de pluie comme le chargement convectif (Vonnegut, 1953), la capture sélective d'ions (Wilson & Jacksonian, 1929), l'effet thermoélectrique (Reynolds *et al.*, 1957) et la charge par induction ((Elster & Geitel, 1913).

En résumé de ce paragraphe 1.3.2, la vitesse de dépôt est une résultante de l'ensemble de ces phénomènes physiques de dépôt. Cependant, la diffusion brownienne, l'interception, l'impaction, la sédimentation et la thermophorèse dépendent du diamètre des particules. Elles s'appliquent avec des intensités variables selon le diamètre des particules : la diffusion brownienne est prépondérante pour les particules ultrafines alors que la sédimentation est prépondérante pour les particules grossières. Lorsque les équations qui modélisent les phénomènes de dépôt, sont intégrées aux modèles de dépôt, il en résulte une courbe en « V » caractéristique de la vitesse de dépôt V_d en fonction du diamètre d_p . Cette courbe est classiquement représentée pour les environnements naturels par la Figure 1.18 (ici une paramétrisation du modèle de Slinn (1982), avec trois régions de prédominance pour les différents phénomènes de dépôt).

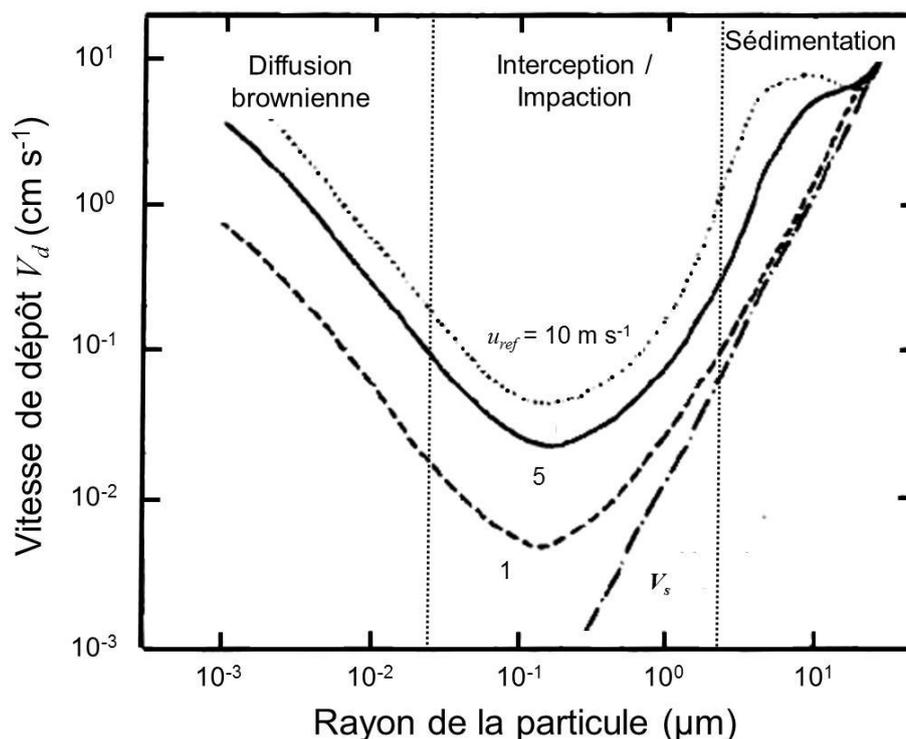


Figure 1.18 : Courbe en « V » de la vitesse de dépôt sec en fonction du diamètre des particules pour trois vitesses de vent (Slinn (1982) ; d'après Maro (2012)).

Sur cette figure, u_{ref} ($m s^{-1}$) est la vitesse du vent, V_s ($m s^{-1}$) est la vitesse de sédimentation et la vitesse de dépôt est donnée en $cm.s^{-1}$. La diffusiophorèse et la thermophorèse sont provoquées réciproquement par un gradient de concentration ou un gradient de température. Cependant, Les effets phorétiques sont généralement faibles, et leur influence sur le dépôt sec dans sur des couverts naturels peut souvent être méconnue (Hicks *et al.*, 2016). Il est important de noter que les pointillés, représentant sur cette Figure 1.18 et t les frontières entre les différents mécanismes de dépôt sec, sont présents ici d'un point de vue pédagogique. En effet, ces frontières ne sont en réalité pas fixes et plusieurs mécanismes peuvent intervenir simultanément.

1.3.3 Méthodes de mesure du dépôt sec

Il existe plusieurs méthodes pour mesurer la vitesse de dépôt (Cetin & Odabasi, 2007; Tasdemir *et al.*, 2004). Elles ont été souvent utilisées pour des études dédiées à la qualité de l'air, ou l'évaluation des retombées radiologiques post-accidentelles. Cependant, le manque de données permettant de caractériser l'aérosol ou les conditions micrométéorologiques prévalant lors du dépôt rendent difficile leur comparaison à d'autres campagnes de mesures et aux résultats des modèles. Le but n'est pas ici de dresser la revue complète et exhaustive des campagnes de mesures, mais bien d'identifier les principales méthodes de mesures. Des revues plus complètes existent dans la littérature (Fowler *et al.*, 2009; Gallagher *et al.*, 1997; McMahon & Denison, 1979; Nemitz, 2015;

Nicholson, 1988a; Petroff *et al.*, 2008; Pryor, Larsen, *et al.*, 2008; Ruijrok *et al.*, 1995; Sehmel, 1980b; Sievering, 1989; Sportisse, 2007; Zhang & Vet, 2006; Zufall & Davidson, 1998).

On distingue entre les différentes mesures de flux de dépôt ; les méthodes directes et les méthodes indirectes. Parmi les méthodes de mesures directes, certaines se basent sur l'accumulation d'aérosols atmosphériques sur des surfaces, et elles seront abordées, suivies des mesures obtenues à l'aide de traceur. Parmi les méthodes indirectes, une attention particulière sera portée aux méthodes micrométéorologiques, qui estiment le flux turbulent vertical de particules au-dessus du couvert végétal.

1.3.3.1 Mesures directes

1.3.3.1.1 Mesures par accumulation

Pour les mesures par accumulation, l'aérosol déposé est une espèce chimique ou radioactive présente dans l'atmosphère et les surfaces captantes sont artificielles ou naturelles. Les collecteurs artificiels couramment utilisés sont les disques de Pétri, les lames de microscopes, les plaques de Téflon ou encore les bacs en polyéthylène (Amano *et al.*, 2012; Vandenberg & Knoerr, 1985). L'utilisation des substrats artificiels facilite l'extraction des composés chimiques pour leur analyse. Ils ne permettent pas l'accès à la dynamique du dépôt car ils nécessitent un long temps d'exposition. De plus, les surfaces naturelles sont orientées différemment, et leur forme et leur rugosité ne correspondent pas forcément à celles des collecteurs artificiels (Davidson *et al.*, 1985). Pour finir, le flux de particules grossières (2-5 μm) peut ne pas être mesuré précisément étant donné que les mécanismes principaux pour ces particules est l'interception et l'impaction (voir paragraphe 1.3.2) et de plus sont modérées par la structure et la texture de la canopée (Zhang & Vet, 2006). Ainsi les mesures utilisant des surfaces de substitution ne représentent pas des flux réels sur des surfaces naturelles. Le recours aux surfaces naturelles semble plus approprié. Dans ce cas, les surfaces sont lavées, et les solutions issues du lavage sont dosées. Cette méthode pose d'autres problèmes car les surfaces végétales ne sont pas passives vis-à-vis des espèces chimiques (Lindberg & Lovett, 1982).

Little and Wiffen (1977) ont estimé le dépôt des aérosols de plomb sur l'herbe jouxtant une autoroute. La gamme granulométrique observée est large, avec une majorité de particules de taille inférieure à 0,3 μm mais aussi une présence significative de particules microniques. La vitesse de dépôt mesurée dans ce cas-là est assez élevée 0,3 $\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$, les auteurs l'expliquent par la turbulence engendrée par la proximité du trafic routier. Waraghai and Gravenhorst (1989) ont mesuré le dépôt de l'aérosol atmosphérique sur des aiguilles d'épicéa vieilles d'un à dix jours et situées en haut du couvert. Le suivi des concentrations s'est effectué sur dix jours. A partir de ces mesures locales, ils en ont déduit le dépôt sur l'ensemble du couvert, en supposant que ni la concentration ni la captation n'évoluaient à l'intérieur du couvert. En pratique les vitesses locales de dépôt (associées à un m^2 d'aiguilles) ont été multipliées par 10, qui correspondent à l'indice de surface foliaire du couvert.

Les composés chimiques les plus étudiés sont les métaux (Connan *et al.*, 2013; Little & Wiffen, 1977; Yi *et al.*, 2006), les espèces ioniques (Chu *et al.*, 2008; Davidson *et al.*, 1985) et les composés aromatiques (Cetin & Odabasi, 2007; Tasdemir *et al.*, 2004). La radioactivité naturelle peut être également utilisée en tant que marqueur de l'aérosol atmosphérique.

Il est également possible de mesurer des aérosols radioactifs naturels, qui serviront de marqueur de l'aérosol atmosphérique. En effet, d'une part, les radionucléides naturels, comme le radon et le thoron, sont émis sous forme gazeuse et se fixent rapidement sur l'aérosol atmosphérique. D'autre part, dans le cas du rejet accidentel de Tchernobyl, les radionucléides comme le césium (134 ou 137), l'iode 131 ou le ruthénium 103, volatils à leur émission, se sont fixés préférentiellement sur l'aérosol atmosphérique et ont été transportés à l'échelle continentale par des particules du domaine d'accumulation (Devell *et al.*, 1986; Jost *et al.*, 1986; Ogorodnikov *et al.*, 1994).

Fowler *et al.* (2002) évoque des inventaires de Pb-210 sur herbes en ville et forêt adjacente réalisés à Birmingham et Rothamsted, en Angleterre. Sur prairie, la vitesse de dépôt est de l'ordre de 0,2 à 0,4 cm.s⁻¹. Des mesures post-accidentelles, ont été faites en se basant sur l'étude des retombées du panache émis lors de l'accident de Tchernobyl (1986) et de Fukushima (2011). Les résultats de dépôts cumulés obtenus ont été confrontés aux mesures de concentrations dans l'air lors du passage du panache, pour obtenir la vitesse de dépôt. En l'absence de pluie, Cambrey *et al.* (1987) ont mesuré sur des prairies des vitesses de dépôt de 0,04 cm.s⁻¹ pour le ¹³⁷Cs, de 0,05 cm.s⁻¹ pour le ¹³⁴Cs et de 0,04 cm.s⁻¹ pour le ¹³²Te. Bunzl *et al.* (1989) mesurent le dépôt total d'isotopes du césium et du ¹⁰⁶Ru dans une forêt d'épicéas et sur une prairie après le passage de Tchernobyl. Le dépôt de césium, comme de ruthénium était de 20 à 25 % plus élevé en forêt que sur l'herbe à proximité. La vitesse de dépôt a été estimée à 0,55 cm.s⁻¹ sur épicéas pour le césium, soit dix fois plus élevée que sur la prairie. Des valeurs analogues ont été trouvées pour le ruthénium. Roed (1987) a effectué des mesures analogues au Danemark et a trouvé des vitesses de dépôt sur forêt d'épicéas (h=7 m) de 0,07 cm.s⁻¹ pour le ¹³⁴Cs, 0,28 cm.s⁻¹ pour le ¹⁰³Ru et 0,53 cm.s⁻¹ pour le ¹⁰⁶Ru. Sur herbes, la vitesse de dépôt du césium 134 ou 137 est assez similaire à celle obtenue sur forêt, soit de 0,04 à 0,07 cm.s⁻¹. Une revue de vitesse de dépôt de différents radionucléides sur herbe ainsi que des diamètres géométriques moyens le plus souvent rencontrés pour différents éléments est donné par Baklanov and Sørensen (2001) cité dans Sportisse (2007). Enfin, à titre d'exemple, des mesures après l'accident de Fukushima ont été effectués sur un site urbain et les radionucléides ont été collectés dans des bacs en propylène (Amano *et al.*, 2012).

L'ensemble de ces mesures figure dans le Tableau 1.1.

Des vitesses de dépôt peuvent être quantifiées pour les composés mesurés et extrapolées aux tailles de particules atmosphériques associées. Cependant, une source d'incertitude réside dans le fait que l'aérosol atmosphérique échantillonné est soumis à des variations de diamètres non maîtrisées, car influencées par les conditions météorologiques (Hicks *et al.*, 2016).

Tableau 1.1 : Valeurs de vitesses de dépôt sec obtenues par accumulation.

| Surface | d_p (en μm) ou RN | V_d (en cm.s^{-1}) | Référence |
|-------------------------------|-------------------------------------|--------------------------------|---------------------------------|
| Herbes | bimodale | 0,3 | Little and Wiffen (1977) |
| Epicéa | 1 à 2 | $1,1 \pm 0,4$ | Waraghai and Gravenhorst (1989) |
| | 2 à 5 | $0,9 \pm 0,5$ | |
| | 5 à 8 | $1,1 \pm 0,4$ | |
| | 8 à 10 | $0,95 \pm 0,7$ | |
| Herbes | ^{132}Te | 0,04 | Cambray <i>et al.</i> (1987) |
| | ^{137}Cs | 0,04 | |
| | ^{134}Cs | 0,05 | |
| Pâturage | ^{210}Pb | 0,3-0,45 | Fowler <i>et al.</i> (2002) |
| Epicéa | ^{134}Cs | 0,07 | Roed (1987) |
| | ^{103}Ru | 0,28 | |
| | ^{106}Ru | 0,53 | |
| Epicéa | $^{137}\text{Cs} / ^{134}\text{Cs}$ | 0,55 | Bunzl <i>et al.</i> (1989) |
| | ^{137}Cs (0.68*) | 0,1 | |
| | ^{134}Cs (0.59*) | 0,12 | |
| | ^{131}I (0.48*) | 0,6* | |
| | ^{132}Te (0,81*) | 0,3 | |
| | ^{133}I (0,6*) | 0,7 | |
| | ^{140}Ba (0,45*) | 0,9 | |
| | ^{103}Ru (0,65*) | 0,5 | |
| Urbain (Bac en polypropylene) | $^{137}\text{Cs} / ^{134}\text{Cs}$ | 0,2-0,3 | Amano <i>et al.</i> (2012) |
| | ^{131}I | 0,1-0,2 | |

* : diamètre en μm des radionucléides les plus souvent rencontrés dans la littérature donné par Baklanov and Sørensen (2001).

1.3.3.1.2 Mesures par traçage

La mesure du dépôt par traçage se base sur l'utilisation d'espèces chimiques ou radioactives normalement absentes du milieu étudié. Ainsi un aérosol chimique ou radioactif est émis et vient se déposer sur un substrat disposé sous le vent. Le traçage peut être mis en œuvre de différentes façons : avec un aérosol généré à partir de la nébulisation d'une solution contenant le traceur ; avec un aérosol solide en solution ou en poudre ; avec un aérosol généré à partir d'une suspension

de particules de suies ; ou encore par fixation d'un traceur sur un aérosol déjà existant. Un marqueur chimique ou radioactif, permet la mesure du dépôt de l'aérosol auquel il est associé. Ces méthodes de mesure ont une limite de détection beaucoup plus basse que celles par accumulation. La quantité d'aérosols introduits dans le milieu est alors beaucoup plus faible. En général la granulométrie de l'aérosol pour de telles méthodes est uni-modale et connue avant les expériences. Des mesures de dépôt sec des aérosols ont été effectuées soit sur site soit en soufflerie.

Concernant les mesures sur site, les premières mesures ont été effectuées dans les années cinquante sur une prairie (Chamberlain & Chadwick, 1953). Ensuite, Gregory *et al.* (1961) ont libéré un panache de spores (*Lycopodium clavatum* ou *Ganoderma applanatum*) à un mètre du sol et ont suivi le dépôt sur de l'herbe artificielle et des plaques de verre collantes. Leurs résultats indiquent une diminution de la vitesse de dépôt lorsque la distance au point de rejet augmente. Chamberlain (1966) mesura le dépôt de spores de *Lycopodium* marqué par ^{131}I sur une prairie. Il ne constata pas de dépendance de la vitesse de dépôt avec la distance au point de rejet. Maro *et al.* (2006) déterminent la vitesse de dépôt sec des aérosols en utilisant des aérosols de fluorescéine monodispersés (0,2 μm et 7,8 μm) comme traceur et de l'herbe naturelle ou synthétique comme substrat. Les vitesses moyennes de dépôt sec mesurées pour les aérosols de diamètre 0,2 μm et 7,8 μm sont respectivement de 0,27 cm.s^{-1} et 2,1 cm.s^{-1} , pour les conditions micrométéorologiques correspondant aux campagnes expérimentales. Une étude plus récente faite par Damay (2010) utilise la même méthode que Maro *et al.* (2006) afin de valider des mesures de vitesse de dépôt sec obtenu avec une autre méthode. Les valeurs de vitesses de dépôt sont quasi-similaires. L'ensemble de ces vitesses de dépôt est présenté dans le Tableau 1.2.

Tableau 1.2 : Valeurs de vitesses de dépôt sec obtenues par méthode de traçage *in situ*.

| Surface | z_0 (cm) | d_p (en μm) | u^* ou u (m.s^{-1}) | V_d (en cm.s^{-1}) | Référence |
|--------------------------------------|------------|---------------------------|------------------------------------|--------------------------------|---------------------------------|
| Herbes | | 16 | $u = 9,2$ | 21 | Chamberlain and Chadwick (1953) |
| | | 16 | $u = 3,2$ | 1,1 | |
| | | 16 | $u = 1,1$ | 0,5 | |
| (Chamberlain, 1966)Herbes naturelles | 1,6-7,5 | 23,6 | $u^* = 0,1-1$ | 0,08 | Chamberlain (1966) |
| Herbes | 12 | 0,2 | $u^* = 0,26$ | 0,27 | Maro <i>et al.</i> (2006) |
| | 1,8 | 7,8 | $u^* = 0,27$ | 2,1 | |
| Herbes naturelles | 2 | 0,3 | $u^* = 0,36$ | 0,22 | Damay (2010) |

Parallèlement, des études plus systématiques ont été menées en soufflerie sur des couverts d'herbes naturelles ou artificielles (Chamberlain, 1966). Ces mesures concernent des spores de *Lycopodium* dont le diamètre de Stokes (voir paragraphe 1.3.4) est mesuré égal à 23,6 μm et d'autres aérosols dont la taille varie entre 0,1 et 20 μm . Ce sont ces mesures qui ont servi à la

validation du modèle de Slinn (1982). D'autres études ont été aussi menées sur d'autres couverts : Clough (1975) sur des mousses, et Chamberlain and Chadwick (1972) sur des jeunes pousses de céréales ou des têtes de céréales matures. Des mesures sur des couverts plus rugueux sont difficilement réalisables en soufflerie, la taille limitée de la soufflerie et le confinement de l'écoulement qui en résulte ne permettant pas d'obtenir une situation aérodynamique représentative de la réalité. Récemment, l'expérience a été tentée sur un couvert d'arbustes d'épicéas placé dans une soufflerie (Ould-Dada *et al.*, 2002). L'écoulement arrive sur le sommet du couvert et des promoteurs de turbulence sont placés en amont afin que la couche limite turbulente puisse se mettre à l'équilibre. Si les caractéristiques aérodynamiques au sein de ce couvert, telles que le vent moyen ou l'intensité de turbulence, sont similaires à celles trouvées sur site, elles sont par contre très différentes au-dessus du couvert. Se pose alors la question de la représentativité des mesures. Les principales mesures effectuées à l'aide de traceurs sur des couverts végétaux sont reportées dans le Tableau 1.3.

Tableau 1.3 : Valeurs de vitesses de dépôt sec obtenues par méthode de traçage en soufflerie.

| Surface h(m) | z_0 (cm) | d_p (en μm) | u^* (cm.s ⁻¹) | V_d (en cm.s ⁻¹) | Référence |
|------------------------------|------------|---------------------------|-----------------------------|--------------------------------|---------------------------------|
| Mousse sèche | 0,37 | 23,6 | 37 | 3,4 ± 0,3 | Clough (1975) |
| | | 23,6 | 87 | 7,3 ± 2 | |
| | | 3 | 37 | 0,75 ± 0,2 | |
| Mousse humide | 0,37 | 23,6 | | 11,1 ± 2 | Clough (1975) |
| Herbes naturelles (0,06) | 0,63 | 23,6 | 18-183 | 2,9-9,2 | Chamberlain (1966) |
| | | 19 | 35-140 | 2,7-3,9 | |
| | | 5 | 35-140 | 0,16-1,2 | |
| | | 2 | 70 | 0,09 | |
| | | 1 | 35-140 | 0,019-0,053 | |
| Herbes courtes (0,08) | 1 | 0,03 | | 0,142 | Little and Wiffen (1977) |
| | | 0,2 | 37 | 0,025 | |
| Herbes artificielles (0,075) | 1 | 23,6 | 28-146 | 4,9-35,7 | Chamberlain (1966) |
| | | 19 | 35-140 | 7,2-34 | |
| | | 5 | 35-140 | 0,14-1,9 | |
| | | 2 | 70 | 0,034 | |
| | | 1 | 35-140 | 0,010-0,034 | |
| Céréales (0,13) | 1,2 | 23,6 | 27-135 | 1,9-7,8 | Chamberlain and Chadwick (1972) |
| | | | | | |
| Epicéa (0,45) | | 0,82 | 45 | 0,5 | Ould-Dada <i>et al.</i> (2002) |

Les mesures dans les chambres et en soufflerie ne représentent généralement pas complètement le processus d'échange turbulent *in situ* de la couche atmosphérique superficielle. La méthode par traçage présente certains avantages, y compris l'absence des hypothèses et des restrictions des méthodes micrométéorologiques ou directes. Mais le problème de cette méthode est de générer un aérosol approprié en quantités suffisantes et dont la dispersion est satisfaisante. Les méthodes directes mesurent le flux d'aérosol au-dessus de la canopée c'est-à-dire dans la couche à flux constant (voir paragraphe 1.1.2).

Les méthodes de mesure directes de vitesses de dépôt sec nécessitent donc de quantifier les paramètres environnementaux (turbulence, paramètres météorologiques...) et de surface (température, paramètres de rugosité...) en parallèle des expérimentations de dépôt.

1.3.3.2 Mesures indirectes

Parmi les méthodes indirectes, nous nous intéresserons plus particulièrement aux méthodes micrométéorologiques, et principalement à celles qui consistent à estimer le flux turbulent de concentration au-dessus du couvert et donc la vitesse de dépôt sec (voir paragraphe 1.3.1).

1.3.3.2.1 Méthode du gradient

La méthode du gradient estime le gradient de concentration et déduit le flux turbulent (Équation 1.26) en appliquant un coefficient de diffusion turbulente D_T par analogie avec la diffusion moléculaire (Panofsky & Dutton, 1984).

$$F = -D_T \frac{dC}{dz} \quad \text{Équation 1.26}$$

Où D_T est le coefficient de diffusion turbulente, C la concentration en particules et z la hauteur de prélèvement.

Le coefficient D_T se calcule de la façon suivante :

$$D_T = \frac{\kappa z u^*}{\varphi_m(\zeta)} \quad \text{Équation 1.27}$$

Avec u^* la vitesse de frottement (m.s^{-1}), z la hauteur de mesure de u^* (m), κ la constante de Van Karman et $\varphi_m(\zeta)$ la fonction flux-profil (Équation 1.9). Les formes généralement acceptés pour cette fonction est

$$\begin{cases} \text{si } \frac{(z-d)}{L} \leq 0 \text{ alors } \varphi_m\left(\frac{z-d}{L}\right) = \left(1 - \frac{15(z-d)}{L}\right)^{\frac{1}{4}} \\ \text{si } \frac{(z-d)}{L} > 0 \text{ alors } \varphi_m\left(\frac{z-d}{L}\right) = 1 + \frac{4,7(z-d)}{L} \end{cases} \quad \text{Équation 1.28}$$

La notation de Reynolds pour les composantes turbulentes, l'hypothèse de similarité de Monin and Obukhov (1954b) et la formulation de stabilité de Businger-Dyer ont mené à l'expression du flux de dépôt sec comme décrit dans Fuentes *et al.* (1996) pour un profil de concentration non linéaire (Équation 1.29). Ce qui est le cas pour l'aérosol atmosphérique qui a un profil de concentration logarithmique dans la couche de surface.

$$F_d = -\frac{\kappa u^* (C_2 - C_1)}{\ln\left(\frac{z_2 - d}{z_1 - d}\right) + \psi_1 - \psi_2} = -\alpha (C_2 - C_1) \quad \text{Équation 1.29}$$

Avec κ est la constant de Von Karman (0,4), u^* est la vitesse de frottement du vent sur le couvert (m.s^{-1}), C_2 est la concentration de l'élément étudié au niveau haut (particules. m^{-3}) et C_1 au niveau bas, d est la hauteur de déplacement (m), et ψ_2 est le paramètre de Paulson (1970) au niveau haut et ψ_1 au niveau bas. Ces paramètres se calculent grâce à l'Équation 1.27.

$$\begin{cases} \text{si } \frac{z-d}{L} \leq 0 & \text{alors } \psi_i = 2 \ln\left(\frac{1+x^2}{2}\right) \\ \text{si } \frac{z-d}{L} > 0 & \text{alors } \psi_i = -4.7 \frac{z-d}{L} \end{cases} \quad \text{avec } x = \left[1 - \frac{16(z-d)}{L}\right]^{\frac{1}{4}} \quad \text{Équation 1.30}$$

où z est la hauteur de mesure des paramètres micrométéorologiques au-dessus du sol (m), d est la hauteur de déplacement (m), et L est la longueur de Monin-Obukov (m).

Cette relation est bien décrite loin des rugosités de la surface, dans la couche inertielle, c'est-à-dire qu'il faut une altitude de cent fois la longueur de rugosité (z_0) (Businger, 1986). Si l'aérosol à mesurer a une taille inférieure à quelques microns, les différences de concentration attendues et qui devront être mesurées sont de l'ordre de quelques pourcents (Garland & Cox, 1982). Cela impose une précision importante des capteurs.

Cette méthode, souvent utilisée pour les couverts de faible hauteur, ne s'applique pas entièrement aux canopées très rugueuses telles que les forêts. En effet, il est difficile de mesurer de très petits gradients sur des surfaces de rugosité élevée (Ratray & Sievering, 2001) et, il existe des différences de footprint suivant la hauteur. En termes très simples, le footprint est la zone «vue» par les instruments de mesures. En d'autres termes, les flux générés dans cette zone sont enregistrés par les instruments de mesures.

Les premières mesures de ce type ont été réalisées sur prairie (Everett *et al.*, 1979) donnant une vitesse moyenne de dépôt de sulfure sur l'herbe de $1,4 \text{ cm.s}^{-1}$ en mesurant la concentration avec deux échantillonneurs automatiques d'aérosols à des hauteurs de 11,5 et 34,5 m. Cette forte valeur est expliquée par les auteurs par des conditions très instationnaires (Everett *et al.*, 1979) et par une erreur systématique à la mesure. En effet, seuls deux capteurs ont été utilisés et sans intercomparaison de leur réponse (Wesely *et al.*, 1988). En utilisant des sondes de Knollenberg à différentes hauteurs, Sievering and Pueschel (1982) a mesuré sur céréales pour des aérosols submicroniques (de 0,15 à 0,3 μm) des vitesses de dépôt comprises entre 1×10^{-3} et $1,2 \text{ cm.s}^{-1}$ avec une moyenne de $0,38 \pm 0,29 \text{ cm.s}^{-1}$, en conditions instables. Des flux positifs correspondant à des vitesses d'émission sont souvent observés. Dans une note ultérieure, Sievering (1982) reprend ces conclusions en invoquant l'existence possible d'un flux de particules émis par végétation. Garland and Cox (1982) estiment des vitesses de dépôt sur prairie de l'ordre de $0,06 \text{ cm.s}^{-1}$. Ces mesures réalisées avec un compteur à noyaux de condensation sont assorties d'incertitudes importantes. Sur le même type de couvert et en mesurant le dépôt de sulfate sur panicules, Nicholson and Davies (1987) mesurent une vitesse moyenne du même ordre ($0,07 \text{ cm.s}^{-1}$) mais assortie d'un écart type de $0,2 \text{ cm.s}^{-1}$, tenant compte à la fois des épisodes stables et instables. Allen *et al.* (1991) et Droppo (1979) ont obtenu des vitesses de dépôt sec, sur des surfaces peu rugueuse, similaires ($0,1 \text{ cm.s}^{-1}$). Cependant Allen *et al.* (1991) ont noté aucune dépendance observée de la vitesse de dépôt sur la stabilité atmosphérique ou la vitesse de frottement dans la gamme des conditions rencontrées.

Quelques campagnes de mesures sur forêt ont été réalisées, bien que la condition sur l'altitude d'échantillonnage ne puisse être remplie (Lorenz & Murphy, 1989; Wyers & Duyzer, 1997). En tenant compte d'un facteur correctif dans le calcul de la vitesse de dépôt, (Lorenz & Murphy, 1989) mesurent le dépôt des aérosols sur une plantation de pins en distinguant dans l'aérosol atmosphérique trois gammes granulométriques. De la même façon, (Wyers & Duyzer, 1997) mesurent des flux de sulfate et nitrate vers un couvert de pins Douglas. En conditions stables, les vitesses de dépôt associées au sulfate d'ammonium sont proches de zéro tandis qu'en conditions instables, elles peuvent s'élever jusqu'à 4 cm.s^{-1} .

Les principales mesures effectuées à l'aide de la méthode du gradient sur des couverts végétaux sont reportées dans le Tableau 1.1.

Tableau 1.1 : Valeurs de vitesses de dépôt sec obtenues par la méthode du gradient.

| Surface h(m) | z_0 (cm) | d_p (en μm) | u^* (m.s^{-1}) | V_d (en cm.s^{-1}) | Référence |
|--|------------|-----------------------------------|-----------------------------|--------------------------------|--------------------------------|
| Herbes hautes | | S part | | $1,2 \pm 0,03$ | Everett <i>et al.</i> (1979) |
| Herbes (0,1-0,2) | 1,5 | 0,05-0,2 | 25×10^{-2} | $0,06 \pm 0,03$ | Garland (1983) |
| Pâturage | <1,5 | 0,05-0,2 | $<40 \times 10^{-2}$ | $0,07 \pm 0,2$ | Nicholson and Davies (1987) |
| Herbes | 1,1 | 3 à 30 | 57×10^{-2} | 0,8-8 | Gallagher <i>et al.</i> (1988) |
| Céréales | 1 à 20 | 0,15-0,3 | $<30 \times 10^{-2}$ | $0,38 \pm 0,29$ | Sievering and Pueschel (1982) |
| Céréales (1) | | 0,8 | $\sim 50 \times 10^{-2}$ | 1 (nuit) 2 (jour) | Sievering (1986) |
| Céréales (0,05) | <1 | 0,06-0,15 0,15-0,4 0,4-0,9 | | 0,16 0,2 0,28 | Pilegaard <i>et al.</i> (1997) |
| Herbes | | S part | 25×10^{-2} | $0,3 \pm 0,02$ | Doran and Droppo (1983) |
| Pins (9 m) | 28 | 0,5-1 | | 0,43 | Lorenz and Murphy (1989) |
| (Lorenz & Murphy, 1989) Pins de douglas (17 m) | 136 | S part N part | | $0,7 \pm 0,3$ $1,2 \pm 0,4$ | Wyers and Duyzer (1997) |
| Herbe (<7 cm) | | S part | | $0,10 \pm 0,3$ | Allen <i>et al.</i> (1991) |
| Végétation aride | | S part (0,1-2) | | 0,10-0,27 | Droppo (1979) |
| Grass | | 0,065-0,15 0,15-0,4 0,4-0,9 | | 0,16 0,2 0,28 | Hummelshøj (1994) |

| | | | |
|--------------------|--------------------------------------|-------------|-------------------------------|
| Agricultural field | NH ₄ ⁺ (0,42) | 0,17 ± 2,30 | (Nemitz <i>et al.</i> , 2001) |
| | NH ₄ ⁺ (0,42) | 0,08 ± 1,98 | |
| | NO ₃ ⁻ (0,68) | 1,01 ± 2,67 | |
| | Cl ⁻ (1,61) | 0,65 ± 3,87 | |
| | SO ₄ ²⁻ (0,34) | 0,49 ± 1,89 | |

Le nombre d'études environnementales utilisant l'échantillonnage en gradient pour déterminer l'échange de particules a diminué ces dernières années. L'évolution des techniques de mesure de particules (McMurry, 2000), l'application moyenne de techniques de flux alternatifs est de plus en plus courante. Maintenant, la majorité des mesures du flux de particules ambiantes sur les surfaces végétalisées effectuées par les micrométéorologues reposent sur l'application de la technique de corrélation turbulente.

1.3.3.2.2 Méthode par Eddy Accumulation

La méthode par Eddy Accumulation estime le flux grâce à la différence de concentration entre l'air en mouvement ascendant et l'air descendant (Wesely & Hicks, 2000) et donc, un échantillonnage séparés des courants ascendants et descendants est nécessaire. Cet échantillonnage est proportionnel à la force du vent ascendant et descendant. Après que les données ont été accumulées au fil du temps, la concentration moyenne de courant ascendant est soustraite de la concentration moyenne descendante. Par conséquent, un flux net à la hauteur d'échantillonnage est obtenu. Le principal défi pour la méthode d'Eddy Accumulation est de s'assurer que l'échantillonnage est effectué proportionnellement à la résistance du courant ascendant et descendant, et que de petits changements de concentrations sont mesurés de manière adéquate (Wesely & Hicks, 2000). Les échantillons sont collectés sur deux filtres ou conteneurs séparés verticalement. Lorsque la vitesse du vent est dirigée vers le haut, seul l'échantillonneur supérieur fonctionne; Lorsque le vent est vers le bas, seul l'échantillonneur inférieur fonctionne. Généralement, un anémomètre à réponse rapide commande une vanne pour déterminer quel échantillonneur est activé et le débit d'échantillonnage est proportionnel à la grandeur de la vitesse verticale (Baldocchi *et al.*, 1988). Le flux est ensuite calculé comme la différence de concentrations entre les deux échantillonneurs.

Comme pour la technique de gradient, des mesures précises de la concentration sont nécessaires, en particulier pour les petites différences de concentration (Businger & Oncley, 1990). La résolution temporelle des mesures limite également la généralisation de ces résultats. Néanmoins, la méthode Eddy Accumulation est une alternative attrayante lorsque les capteurs à réponse rapide ne sont pas disponibles pour les espèces étudiées, ce qui est souvent le cas pour les particules submicroniques. Businger and Oncley (1990) ont proposé la méthode Relax Eddy Accumulation (REA), une méthode par Eddy Accumulation plus facile à utiliser, dans laquelle les échantillons sont collectés à un débit constant pour les fluctuations de la vitesse vertical du vent vers le haut et vers le bas. Cette

méthode est par ailleurs identique la méthode par Eddy Accumulation, en utilisant l'Équation 1.31 et en conservant les limites décrites ci-dessus. La méthode REA a été testée et mise en œuvre pour plusieurs espèces de gaz et dans quelques cas pour des mesures de dépôt de particules (Schery *et al.*, 1998; Wesely & Hicks, 2000). Les vitesses de dépôt obtenues avec cette REA sont présentées dans le Tableau 1.5.

$$F = \beta \sigma_w (\bar{C}^+ - \bar{C}^-) \quad \text{Équation 1.31}$$

Avec β une constante empirique avec une valeur de 0,6 ; σ_w est l'écart-type standard de la vitesse verticale du vent, \bar{C}^+ la concentration moyenne lorsque $w>0$ et \bar{C}^- la concentration moyenne lorsque $w<0$.

Tableau 1.5 : Valeurs de vitesses de dépôt sec obtenues par la méthode REA.

| Surface h(m) | Z_0 (cm) | d_p (en μm) | u^* ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) | V_d (en $\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$) | Référence |
|-----------------|------------|---|--|---|-------------------------------|
| Herbe/désert | 30 | 0,001-0,0027 (Fraction libre des descendants du ^{222}Rn) | | $7,3 \pm 2,5$ | Schery <i>et al.</i> (1998) |
| Scots pine (14) | 100 | 0,05 | 36 | $0,43 \pm 0,06$ | Gaman <i>et al.</i> (2004) |
| | | 0,015 | | 1,49 | |
| | | 0,02 | | 1,18 | |
| | | 0,025 | | 1,23 | |
| | | 0,04 | | 0,94 | |
| Scots pine (13) | 120 | 0,05 | 8-128 | 0,74 | Grönholm <i>et al.</i> (2007) |
| | | 0,06 | | 0,62 | |
| | | 0,07 | | 0,66 | |
| | | 0,08 | | 0,99 | |
| | | 0,1 | | 0,69-0,78 | |
| | | 0,15 | | 0,25 | |

Par exemple, Schery *et al.* (1998) ont estimé les vitesses de dépôt de particules pour les particules ultrafines (≈ 1 nm de diamètre) en utilisant des particules d'aérosol radioactives formées à partir de la nucléation de la phase gazeuse du radon et de ses produits de désintégration. Les vitesses de dépôt sec observées par Grönholm *et al.* (2007) et Gaman *et al.* (2004) sont du même ordre de grandeur pour même taille de particules, respectivement 0,74 et $0,43 \pm 0,06$ $\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$.

1.3.3.2.3 Méthode par corrélation turbulente

Cette méthode utilisée depuis une vingtaine d'années, a récemment été détaillée et mise en œuvre par Damay *et al.* (2009) et Damay (2010), les mesures de vitesses de dépôt sont réalisées dans la couche de surface de la couche limite atmosphérique. En respectant notamment les conditions de stationnarité de la vitesse verticale du vent et de la concentration en aérosol sur la période d'échantillonnage (pas de dérive lente des signaux), donc en supposant l'existence d'une couche à

flux constant, les flux verticaux de particules F (particule $m^{-2} s^{-1}$) peuvent être calculés par covariance de la vitesse verticale instantanée du vent w' ($m.s^{-1}$) et de la concentration instantanée C' (particule. m^{-3}) selon l'Équation 1.32,

$$F = \overline{w'C'} \quad \text{Équation 1.32}$$

La corrélation par corrélation turbulente est considérée comme la méthode de mesure la plus fiable et la plus directe pour déterminer les flux turbulents (Businger, 1986; Wesely & Hicks, 2000). Ainsi, la corrélation turbulente est la méthode couramment utilisée pour généraliser les mesures du flux par mesure directe de vitesse de dépôt sec pour évaluer et améliorer les modèles de dépôt sec. Cette méthode nécessite de grandes surfaces planes et homogènes pour chaque couvert, pour avoir une turbulence bien établie dans la couche de surface et est donc très utilisée en environnements naturels (Damay, 2010; Petroff *et al.*, 2008; Pryor, Gallagher, *et al.*, 2008). De plus, elle requiert un échantillonnage rapide de la vitesse verticale du vent w et de la concentration C en aérosol, c'est-à-dire supérieur à 1 Hz (Businger, 1986), avec un anémomètre ultrasonique et un compteur de particules. Différents détecteurs sont utilisés, des impacteurs en cascades à détection électrique (Damay *et al.*, 2009; Deventer *et al.*, 2015; Pellerin *et al.*, 2017), des compteurs de particules à détection électriques (Lamaud, 1994; Wesely & Hicks, 1977) et optiques (Gallagher *et al.*, 1997; Held & Klemm, 2006; Sievering, 1987). Des détecteurs photométriques (Hicks *et al.*, 1982) ont été utilisés pour la mesure de soufre présent dans l'atmosphère. Les compteurs à détection électrique chargent les aérosols prélevés et mesurent leurs charges lorsqu'ils sont en contact avec une grille ou un plateau relié à un électromètre, le nombre de particules est généralement obtenu en connaissant une loi de charge. Les impacteurs en cascades fonctionnent avec le même type de détection mais permettent d'obtenir les concentrations en particules suivant des tranches granulométriques. Les compteurs à détection optique tels que les compteurs de noyaux à condensation (CNC) condensent un fluide autour des aérosols échantillonnés leur permettant d'être dénombré par un compteur optique (à faisceau laser par exemple). Les procédés optiques sont a priori capables de distinguer différentes classes granulométriques de particules. Il arrive cependant couramment que les signaux liés aux classes les plus grosses soient rejetés à cause d'une incertitude trop grande (Gallagher *et al.*, 1997).

Les mesures par corrélation turbulente concernent surtout les aérosols submicroniques. Les valeurs obtenues avec cette méthode sont plus élevées (jusqu'à un ordre de grandeur) que celles obtenues par les autres méthodes de mesures. Dans le Tableau 1.6, S part indiquent des mesures faites par mesure des Souffre sous forme particulaire tandis que S total signifient sous toutes les formes de soufre. Par convention la taille associée à de telles particules est celle du mode d'accumulation soit 0,2 μm . Les diamètres mesurés s'étendent parfois jusqu'à des différences d'un ordre de grandeur, ne permettant pas d'identifier les différents phénomènes moteur du dépôt liés à la taille (diffusion Brownienne, impaction, interception). Enfin il convient de souligner que la majorité des expériences ont été faites en utilisant des compteurs optiques.

Tableau 1.6 : Valeurs de vitesses de dépôt sec obtenues par la méthode des corrélations turbulentes.

| Surface <i>h</i> (m) | Type de mesure | z_0 (cm) | d_p (μm) | u^* ($\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$) | V_d ($\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$) | Référence |
|-----------------------------|-------------------|------------|-------------------------|---|---|---|
| Herbes (-0,3) | Electrique | 3 | 0,05-0,1 | ~ 14 ~ 9 | ~ 1 ~ 0,2 | <i>Wesely and Hicks (1977),</i> |
| Herbes (-0,3) | Photométrique | - | S part | - | 0,03-0,72 | Hicks (1986) |
| Herbes | Electrique | - | 0,01 à 0,2 | - | 0,18 | <i>Wesely et al. (1982)</i> |
| Agricole | Optique | - | 0,09-2,5 | - | ~ 0,05 | Sievering (1983) |
| sAgricole | Optique | - | 0,1-0,5 S total | - | < 0,05 0,21-0,33 | Neumann and Den Hartog (1985) |
| Herbes épaisses (0,4) | Electrique | 2,4-3,6 | S part | 25 | $0,20 \pm 0,15$ | <i>Wesely et al. (1985)</i> |
| Pâturage | | 2,5 | | 26 | $0,17 \pm 0,03$ | |
| Seigle- Froment (1) | Optique | 4 | 0,2 | 49 59 | $0,37 \pm 0,04$ $1,19 \pm 0,18$ | Sievering (1987) |
| Landes (0,06) | Optique | 1 | 0,1-3 | - | 0,03-1 | <i>Nemitz et al. (2002)</i> |
| Herbes basses (0,14) | Optique | 2,2 | 0,1-0,2 | 18 | 0,087 | Gallagher <i>et al.</i> (2002) |
| Herbes hautes (0,7) | Optique | 6,3 | 0,1-0,2 | 24 | 0,113 | <i>Sutton et al. (2001)</i> |
| Seigle | Optique | | 0,52 | | $0,16 \pm 0,072$ (Stable) $0,3 \pm 0,067$ (Stable) | <i>Vong et al.</i> (2004) |
| Pins (13) | Optique | 120 | 0,01-0,02 | 53-102 | 1,08-3,9 | <i>Buzorius et al. (2000)</i> |

| | | | | | | |
|----------------------|----------------------|------|--|-------|--|---------------------------------------|
| Hêtre (24-25) | Optique | | 0,02 0,06-0,07 | | 0,45 0,15 | Pryor (2006) |
| Pins de Douglas (17) | Optique | 140 | 0,1-0,18 0,18-0,24 0,24-0,3 0,3-0,5 | 15-75 | 0,02-0,42 0,02-1,21 0,02-2,02 0,03-1,66 | Gallagher <i>et al.</i> (1997) |
| Forêt (23) | Impacteur en cascade | | 0,01 | 40-62 | 0,35 | (Deventer <i>et al.</i> , 2015) |
| | | | 0,02 | | 0,3 | |
| | | | 0,04 | | 0,05 | |
| | | | 0,07 | | 0,04 | |
| | | | 0,12 | | 0,13 | |
| | | | 0,2 | | 0,33 | |
| | | | 0,31 | | 0,46 | |
| | | | 0,48 | | 0,87 | |
| | | 0,76 | 0,82 | | | |
| | | 1,23 | 0,29 | | | |
| Maïs (1,20) | Impacteur en cascade | 12 | 0,014 | 10-60 | 0,071 | Damay (2010) |
| | | | 0,033 | | 0,061 | |
| | | | 0,054 | | 0,11 | |
| | | | 0,092 | | 0,071 | |
| | | | 0,171 | | 0,023 | |
| | | | 0,287 | | 0,042 | |
| | | | 0,456 | | 0,03 | |
| | | | 0,742 | | 0,18 | |
| 1,198 | 2,8 | | | | | |
| Herbe (0,1) | Impacteur en cascade | 1 | 0,014 | 10-50 | 0,072 | Damay (2010) |
| | | | 0,033 | | 0,035 | |
| | | | 0,054 | | 0,03 | |
| | | | 0,092 | | 0,064 | |
| | | | 0,171 | | 0,11 | |
| | | | 0,287 | | 0,12 | |
| | | | 0,456 | | 0,28 | |
| | | | 0,742 | | 0,48 | |
| 1,198 | 0,53 | | | | | |

| | | | | | | |
|------------------|-------------------------|-----|-------|-------|-------|-----------------|
| | | | 0,014 | | 0,13 | |
| | | | 0,041 | | 0,092 | |
| | | | 0,074 | | 0,081 | |
| | | | 0,122 | 10-50 | 0,084 | |
| Sol nu (0,01) | Impacteur en cascade | 0,1 | 0,202 | | 0,059 | Damay (2010) |
| | | | 0,316 | | 0,043 | |
| | | | 0,484 | | 0,1 | |
| | | | 0,762 | | 0,22 | |
| | | | 1,23 | | 0,41 | |
| | | | 0,014 | | 0,13 | |
| | | | 0,033 | | 0,15 | |
| | | | 0,054 | | 0,17 | |
| | | | 0,092 | 10-40 | 0,15 | |
| Maïs(1,20) | Impacteur en cascade | 12 | 0,171 | | 0,062 | Damay (2010) |
| | | | 0,287 | | 0,08 | |
| | | | 0,456 | | 0,095 | |
| | | | 0,742 | | 0,098 | |
| | | | 1,198 | | 0,2 | |

Il faut remarquer que ces mesures concernent surtout des aérosols submicroniques. Sur couverts faiblement rugueux, en situation neutre à stable, la vitesse de dépôt est de l'ordre de $0,2 \text{ cm.s}^{-1}$ à $0,4 \text{ cm.s}^{-1}$ (par exemple Wesely and Hicks (1977), Wesely *et al.* (1985), Sievering (1987)), voire moins, soit $0,05$ sur étendue semi-aride (Lamaud, Chapuis, *et al.*, 1994). Sur couverts forestiers, les résultats sont plus dispersés. La vitesse de dépôt évolue avec la vitesse de friction et s'échelonnent de $0,3 \text{ cm.s}^{-1}$ en moyenne sur pins (Lamaud, Brunet, *et al.*, 1994) jusqu'à 1 cm.s^{-1} et plus sur épicéas Gallagher *et al.* (1997). Des mesures de flux de dépôt sec ont été effectuées grâce à des impacteurs basses pressions à détection électrique (ELPI) et ont permis d'obtenir des vitesses de dépôt sec en fonction de la taille des particules. Sur des couverts peu rugueux (Damay, 2010) obtient une courbe en "V" (Figure 1.19) et où l'on peut distinguer les principaux mécanismes de dépôt sec pour les aérosols submicroniques : diffusion brownienne, interception et impaction. Les vitesses de dépôt sont comprises entre $0,1$ et $0,5 \text{ cm.s}^{-1}$ et sont peu différentes suivant les couverts étudiés.

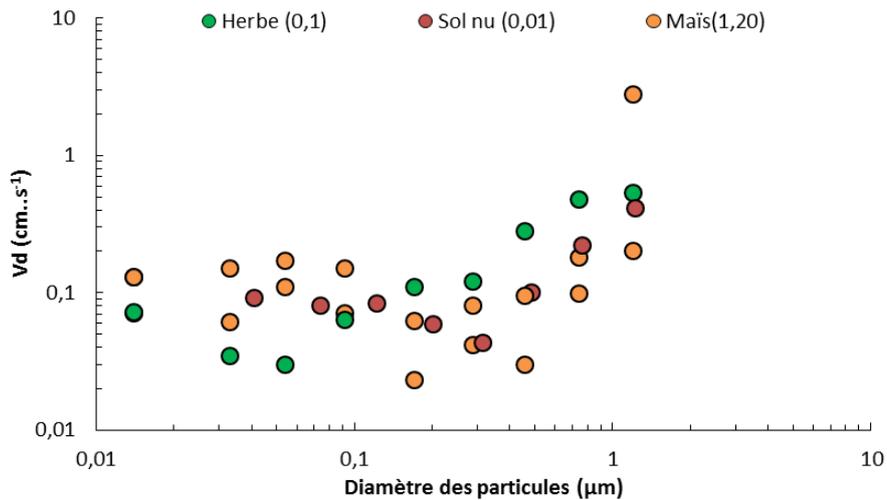


Figure 1.19 : Vitesse de dépôt sec obtenu par méthode eddy correlation par Damay (2010) pour des conditions neutres et stables et un u^* de $0,28 \text{ m.s}^{-1}$. Les valeurs entre parenthèses représentent les longueurs de rugosité (en cm) pour chaque couvert.

Ces différentes méthodes de mesure vont permettre d'acquérir des données de vitesse de dépôt sec afin d'améliorer et de valider les modèles. Il existe de nombreux modèles de dépôt sec sur les couverts végétaux dans la littérature. Les modèles s'appuient généralement sur les mêmes phénomènes physiques. En effet, comme évoqué précédemment (paragraphe 1.3.2), les particules proches d'une surface se déposent alors sous l'action conjuguée des mécanismes physiques évoqués précédemment (diffusion brownienne, impaction, interception et sédimentation).

Ce paragraphe permet aussi de voir qu'aucune donnée de vitesse de dépôts secs corrélés aux paramètres micrométéorologiques n'existe dans la littérature pour les particules inférieures à 10 nm. Ainsi, trois de ces méthodes ont été utilisées lors de cette thèse et seront développées dans le chapitre 2 : à savoir la méthode du gradient, la méthode par corrélation turbulente et la méthode du gradient.

1.3.4 Modélisation du dépôt par temps sec

Pendant de nombreuses décennies, les modèles de dépôt sec ont été basés sur différentes hypothèses concernant les descriptions des processus de surface. Les premiers modèles avaient pour hypothèse commune une capture parfaite une fois qu'une particule entre en contact avec une surface. Plusieurs auteurs ont abordé le problème en tant que théorie de la filtration, dans lequel les aérosols sont balayés à mesure que l'air pénètre à travers un milieu de collecte (Davidson & Friedlander, 1978; Hidy & Heisler, 1978; Slinn, 1977). Tous ces premiers modèles ont été construits sur des travaux en soufflerie comme ceux de Chamberlain (1974) et Wedding *et al.* (1977), entre autres. Ces chercheurs ont reconnu l'importance de considérer des questions telles que la densité de la canopée et ses caractéristiques biologiques. Depuis, de nombreux modèles de dépôt sec sur

les couverts végétaux prennent en compte ces caractéristiques dans la littérature. Certains ne s'attachent qu'à décrire la gamme dite grossière des aérosols (supérieure à 1 μm , Aylor (1982), d'autres s'appliquent à prédire le dépôt de toutes les tailles d'aérosols (Davidson & Friedlander, 1978; Slinn, 1982; Wiman *et al.*, 1985; Zhang *et al.*, 2001). La plupart d'entre eux sont conçus pour être appliqués à un type de couvert particulier. Les deux exceptions sont les modèles analytiques de Slinn (1982) et (Zhang *et al.*, 2001), sensés s'appliquer à tous les couverts et seront donc étudiés ici.

Dans le cas d'un substrat de type rural, cette vitesse de dépôt pour les gaz et les particules est souvent donnée par une formulation dite "résistive" (Figure 1.20) d'où découlent les modèles opérationnels comme ceux de Slinn (1982) et Zhang *et al.* (2001). Cette méthode est fondée sur l'analogie du processus de dépôt sec avec des résistances électriques en série. Chaque étape, chaque couche, est représentée par une résistance au dépôt inverse du coefficient de transfert.

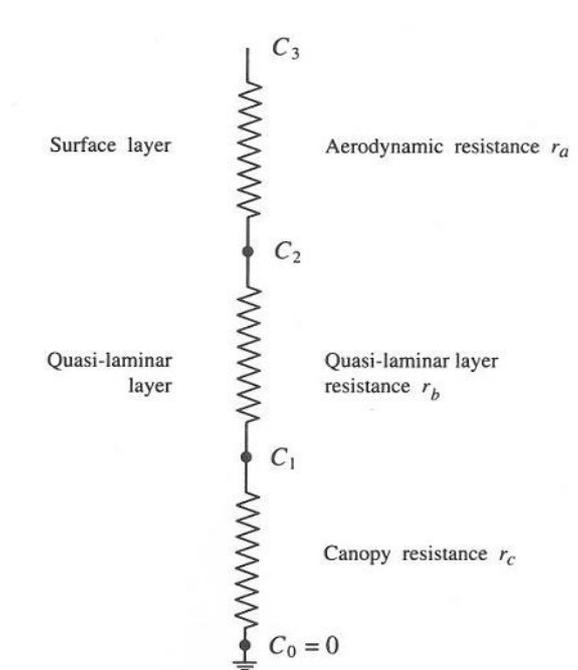


Figure 1.20 : Modèle résistif pour la vitesse de dépôt sec : C_3 , C_2 , C_1 et C_0 concentrations à différentes hauteurs (Seinfeld et Pandis, 1998).

La vitesse de dépôt est exprimée en termes de "résistances".

$$V_d^{-1} = R_a + R_b + R_c \quad \text{Équation 1.33}$$

Chaque couche est représentée par une résistance au dépôt, de dimension inverse à celle du coefficient de transfert qu'est la vitesse de dépôt. Une première résistance dite « aérodynamique » R_a (s m^{-1}) quantifie le transfert turbulent des aérosols, de concentration C_3 , du haut de la couche de surface jusqu'au sommet de la sous-couche laminaire, de concentration C_2 . La résistance de couche

quasi-laminaire R_s permet de calculer le transfert du sommet de la sous-couche laminaire jusqu'à la surface du substrat de concentration C_j . Enfin, la résistance du couvert (ou de surface) R_c permet de prendre en compte la capacité d'absorption d'un gaz par le substrat pour finalement avoir $C_0 = 0$.

$$V_d = \frac{1}{R_a + R_b + R_a R_b V_s} + V_s \quad \text{Équation 1.34}$$

Les modèles de Slinn (1982) et de Zhang et al. (2001) utilisent cette approche et sont développés pour modéliser le dépôt sur plusieurs types de couverts naturels. Cependant la paramétrisation a été simplifiée. Dans ces modèles, la vitesse de dépôt V_d est calculée selon (Équation 1.35).

$$V_d = V_s + \frac{1}{R_a + R_s} \quad \text{Équation 1.35}$$

V_s est la vitesse de sédimentation, R_a la résistance aérodynamique, modélisant le transfert des particules dans la couche limite, et R_s la résistance de la sous-couche visqueuse aussi appelée résistance de surface, liée à la rugosité de la surface et modélisant les processus turbulents de dépôt.

Il faut noter que dans cette formulation, une des deux résistances, si elle devient trop forte, peut être un facteur limitant pour le dépôt. Par exemple, une résistance de surface trop forte limitera le dépôt, même si la résistance aérodynamique est faible.

1.3.4.1 Modèle de Slinn (1982)

Dans le modèle de Slinn (1982), la résistance aérodynamique est calculée de la façon suivante :

$$R_a = \frac{u - u_h}{u^{*2}} \quad \text{Équation 1.36}$$

avec u vitesse du vent (m.s^{-1}) à la hauteur de référence, u_h vitesse du vent (m.s^{-1}) à la hauteur du couvert et u^* vitesse de frottement (m.s^{-1}).

La résistance de surface s'exprime en fonction de la vitesse moyenne au sommet du couvert, U_h et la vitesse de frottement u^* :

$$R_s = \frac{U_h}{u^{*2}} \left(\frac{1 - \varepsilon}{\varepsilon + \sqrt{\varepsilon} \tanh(\alpha \sqrt{\varepsilon})} \right) \quad \text{Équation 1.37}$$

Dans cette expression, α est un coefficient empirique d'atténuation de la vitesse moyenne au sein du couvert et ε est un coefficient de captation moyenne des particules par le couvert. Il est fonction du coefficient de rebond R et des efficacités de dépôt par diffusion brownienne, par interception et par impaction inertielle, respectivement notées E_b , E_{int} et E_{imp} .

$$\varepsilon = R(E_b + E_{imp} + E_{int}) \quad \text{Équation 1.38}$$

L'efficacité de la diffusion brownienne dans le cas du modèle de Slinn est :

$$E_b = \frac{C_v}{C_d} Sc^{-\frac{2}{3}} \quad \text{Équation 1.39}$$

Avec C_d le coefficient de traînée effectif et C_v le coefficient de traînée visqueuse, le rapport est évalué comme étant égal à 1/3 à partir des mesures de dépôt sur herbes (Chamberlain, 1967).

L'efficacité de l'interception est :

$$E_{int} = \frac{C_v}{C_d} \left[f \frac{d_p}{d_p + q} + (1 - f) \frac{d_p}{d_p + L} \right] \quad \text{Équation 1.40}$$

Avec q la dimension caractéristique des rugosités à la surface des éléments foliaires, et f la fraction du dépôt qui concerne les rugosités.

Et enfin l'efficacité de l'impaction est :

$$E_{imp} = \left(\frac{St_k^*}{\alpha + St_k^*} \right)^2 \quad \text{Équation 1.41}$$

Avec St^* un nombre de Stokes bâti sur la vitesse de frottement du vent :

$$St_k^* = \frac{\tau_p u^*}{L} \quad \text{Équation 1.42}$$

Le nombre de Stokes (St_k) est décrit ci-dessous.

$$St_k = \frac{\tau_p u}{L} = \frac{d_p^2 \rho_p C_u u}{18 \mu_a L} \quad \text{Équation 1.43}$$

Ce modèle a été validé sur les expériences de Chamberlain (1967) menées en soufflerie.

1.3.4.2 Modèle de Zhang et al. (2001)

Dans le modèle de Zhang et al. (2001), la résistance aérodynamique est calculée de la façon suivante :

$$R_a = \frac{\ln\left(\frac{z}{z_0}\right) - \psi_H}{\kappa u_*} \quad \text{Équation 1.44}$$

Avec z (m) la hauteur à laquelle la vitesse de dépôt est évaluée, z_0 (m) la hauteur de rugosité, ψ_H (#) la fonction de stabilité pour la chaleur (Paulson, 1970), κ (0,41) la constante de Von Karman et u_* (m s⁻¹) la vitesse de frottement dans la couche limite atmosphérique.

Ce modèle inclut des valeurs empiriques des principaux paramètres intervenant dans les efficacités de dépôt en fonction du type de couvert et de la saison. L'approche suit celle de Slinn mais l'expression de la résistance R_s a été simplifiée :

$$R_s = \frac{1}{\varepsilon_0 u_* R (E_b + E_{imp} + E_{int})} \quad \text{Équation 1.45}$$

où ε_0 est un coefficient empirique.

Les valeurs des paramètres E_b , E_{int} et E_{imp} sont différentes de celles du modèle de Slinn.

L'efficacité de collection par diffusion brownienne E_b est reliée au nombre de Schmidt Sc , exprimant l'aptitude des particules à diffuser à travers un fluide visqueux, par un coefficient γ dépendant du couvert (Équation 1.46).

$$E_b = Sc^{-\gamma} \quad \text{Équation 1.46}$$

L'efficacité de collection par impaction E_{imp} est gouvernée par le nombre de Stokes, nombre caractérisant la capacité d'une particule à suivre ou sortir de sa ligne de courant dans un écoulement (Équation 1.47).

$$E_{imp} = \left(\frac{S_{tk}}{\alpha + S_{tk}} \right)^2 \quad \text{Équation 1.47}$$

α est une variable dépendante du couvert.

L'efficacité de collection par interception E_{int} proposée par Zhang *et al.* (2001) est liée à la taille caractéristique L des obstacles présentés par le couvert grâce à l'Équation 1.48 en négligeant l'efficacité de collection d'éventuelles microrugosités sur ces obstacles.

$$E_{int} = \frac{1}{2} \left(\frac{d_p}{L} \right)^2 \quad \text{Équation 1.48}$$

Ce modèle a été validé à l'aide de mesures plus récentes que le modèle de Slinn (Zhang *et al.*, 2001).

Les limites des modèles résistifs résident dans l'incertitude et la variabilité des données d'entrée du modèle telles que le temps et les paramètres dépendants de l'espèce étudiés. Par conséquent, ces paramètres peuvent donner lieu à des incertitudes importantes dans les résultats de la simulation, et il est très important de connaître l'effet des paramètres d'entrée individuels sur la sortie du modèle. Les modèles non linéaires, comme la plupart des modèles de dépôt, peuvent amplifier les

incertitudes de certains paramètres et atténuer les autres. Par conséquent, dans de nombreux cas, ces modèles peuvent surestimer ou sous-estimer les flux de dépôt sec par le calcul de la vitesse de dépôt sec (Mohan, 2016).

1.3.4.3 **Modèle de dépôt sec semi-empirique Piskunov (2009) via Sehmel and Hodgson (1978)**

Certains auteurs ont récemment progressé sur des modèles à résolution numérique (Piskunov, 2009 ; Hussein *et al.*, 2012). Dans cette section, on s'appuiera sur le modèle semi-empirique pour la vitesse du dépôt sec sur une surface (Kharchenko, 1997; Sehmel, 1980a; Sehmel & Hodgson, 1978; Sehmel, 1973) qui est généralement appelé modèle de Sehmel. La vitesse de dépôt sec de particules de Sehmel et Hodgson est donnée par un modèle de transfert de masse à trois boîtes qui utilise une résistance de transfert de masse pour décrire la vitesse de dépôt allant d'une hauteur avec une concentration en particules de référence vers la surface (Lin *et al.*, 1993). Sehmel et Hodgson ont proposé un modèle empirique basé sur des courbes adaptées aux résultats du dépôt de soufflerie pour une gamme de couvertures de surface du sol. Dans ce modèle le flux de particules, F (particules.m⁻².s⁻¹), à travers la couche limite de concentration est décrit par une forme modifiée de la première loi de diffusion de Fick (Hussein *et al.*, 2012; Zhao & Wu, 2006).

$$F = -(D_T + D_b) \frac{dC}{dy} - iV_s C \quad \text{Équation 1.49}$$

Avec ε_p le coefficient de diffusion turbulente, D_b le coefficient de diffusion brownienne, C la concentration en particules et V_s la vitesse de sédimentation et le coefficient i prendra une valeur en fonction de l'orientation de la surface de dépôt : 0 si la surface est verticale, -1 si elle est orientée vers le bas (plafond) et 1 si elle est orientée vers le haut (plancher).

Les expériences montrent que le flux vertical de particules F près de la surface est proportionnel à sa concentration surfacique $C(z)$. Comme vu précédemment (paragraphe 1.3.1), la vitesse de dépôt sec est typiquement déterminée à partir des concentrations de polluants mesurées et du flux à une certaine hauteur z_{exp} .

En partant du postulat que la vitesse de dépôt sec de particules déduite par les données expérimentales est constante dans la couche de surface, il vient que cette vitesse de dépôt sec $v_d(z)$ s'exprime :

$$v_d(z) = \frac{F}{C_z} = \frac{v_s}{1 - \exp\left(\frac{v_s}{u^*} \text{Int}\right)} \quad \text{Équation 1.50}$$

Avec u^* la vitesse de frottement du vent et Int l'intégrale de trainée (Piskunov, 2009). Cette intégrale de trainée est divisée en deux composantes (Équation 1.51) :

$$Int = \int_z^0 \frac{u^* dz}{\varepsilon_p + D} = Int_{exp} + \int_z^{z_{exp}} \frac{u^* dz}{\varepsilon_p + D} = Int_{exp} + Int_z \quad \text{Équation 1.51}$$

Int_{exp} est déduit des données expérimentales de vitesse de dépôt sec v_{exp} (Équation 1.52)

$$Int_{exp} = \frac{u^*}{v_s} \ln\left(1 - \frac{v_s}{v_{exp}}\right) \quad \text{Équation 1.52}$$

Int_z est prise de de façon analytique pour toutes les catégories de stabilité atmosphérique (Équation 1.53)

$$Int_z = \begin{cases} \frac{-1}{k} \ln \frac{z}{z_{exp}}, |L| = \infty; -\frac{1}{k} \ln \frac{z}{z_{exp}} + 6 \frac{z - z_{exp}}{L}, L > 0 \\ -\frac{1}{k} \ln \frac{\left(\sqrt{1 - \frac{9}{L}z} - 1\right) \left(\sqrt{1 - \frac{9}{L}z_{exp}} + 1\right)}{\left(\sqrt{1 - \frac{9}{L}z} + 1\right) \left(\sqrt{1 - \frac{9}{L}z_{exp}} - 1\right)}, L < 0 \end{cases} \quad \text{Équation 1.53}$$

Avec k la constante de van Karman et L la longueur de Monin-Obhukov.

Sehmel and Hodgson (1978) ont proposé une expression d'interpolation pour la détermination d' Int_{exp} en utilisant les vitesses de dépôt expérimental à une hauteur $z_{exp} = 0,01m$.

$$\begin{aligned} \ln(-Int_{exp}) = & -367,8 + 16,4 \ln \frac{\nu}{D} - 0,73 \ln(100d) \ln(10^4 D) - 0,5 [\ln(100d)]^2 \\ & + 0,13 \ln\left(\frac{0,03}{z_0}\right) + 0,25 \ln\left(\frac{0,2}{u^*}\right) \left[1 - 0,2 \ln\left(\frac{0,03}{z_0}\right)\right] \\ & - 0,03 \ln \tau_+ \ln\left(\frac{0,03}{z_0}\right) - 32,7 \ln(100d) \end{aligned} \quad \text{Équation 1.54}$$

Avec ν la viscosité cinématique de l'air ; d le diamètre de la particule ; z_0 la longueur de rugosité et τ_+ le temps de relaxation adimensionnée.

Ces différents modèles seront confrontés par la suite (chapitre 4) aux valeurs expérimentales obtenues au cours de cette thèse.

1.4 Emission de particules à partir des couverts naturels

La littérature présente plusieurs manières de classier les sources d'aérosols. La première est basée sur l'origine des particules (poussières désertiques, volcans, embruns, biogénique, anthropique...) et la seconde, que nous retiendrons ici, est basée sur le mode de formation des aérosols. Ainsi, cette classification distingue deux types d'aérosols :

- les particules primaires qui sont émises directement dans l'atmosphère sous forme solide ou liquide comme par exemple les aérosols minéraux résultant de l'érosion des sols, les sels de

mer (embruns), les cendres volcaniques, les aérosols d'origine microbienne ou bioaérosols... ;

- les particules secondaires qui sont en revanche directement formées dans l'atmosphère par des processus de conversion de gaz en particules. Cette conversion gaz/particule peut donner lieu à la formation de nouvelles particules ultrafines, par nucléation, ou par condensation à la surface de particules préexistantes mais également ces particules ultrafines peuvent condenser sur les particules du mode accumulation.

Dans le cas d'un rejet accidentel nucléaire, les radionucléides seront portés préférentiellement par les particules primaires puis dans un second ordre par les particules secondaires (Sportisse, 2007). Ces particules primaires peuvent être remises en suspension par des processus principalement éolien (Lamaud, Chapuis, *et al.*, 1994). Les radionucléides peuvent alors se retrouver dans l'atmosphère. Si les particules primaires sont des microorganismes de type bactérie ou champignon, ils peuvent reconcentrer les radionucléides contrairement à une particule inerte. Le processus de remise en suspension des particules primaires ainsi que les travaux déjà effectués dans la littérature sur ce sujet sont présentés ci-après.

1.4.1 Processus de mise en suspension des particules primaires

La remise en suspension des particules résulte de l'importance des forces de réentrainement s'exerçant sur une particule par rapport aux forces d'adhésion à la surface de cette dernière (Figure 1.21).

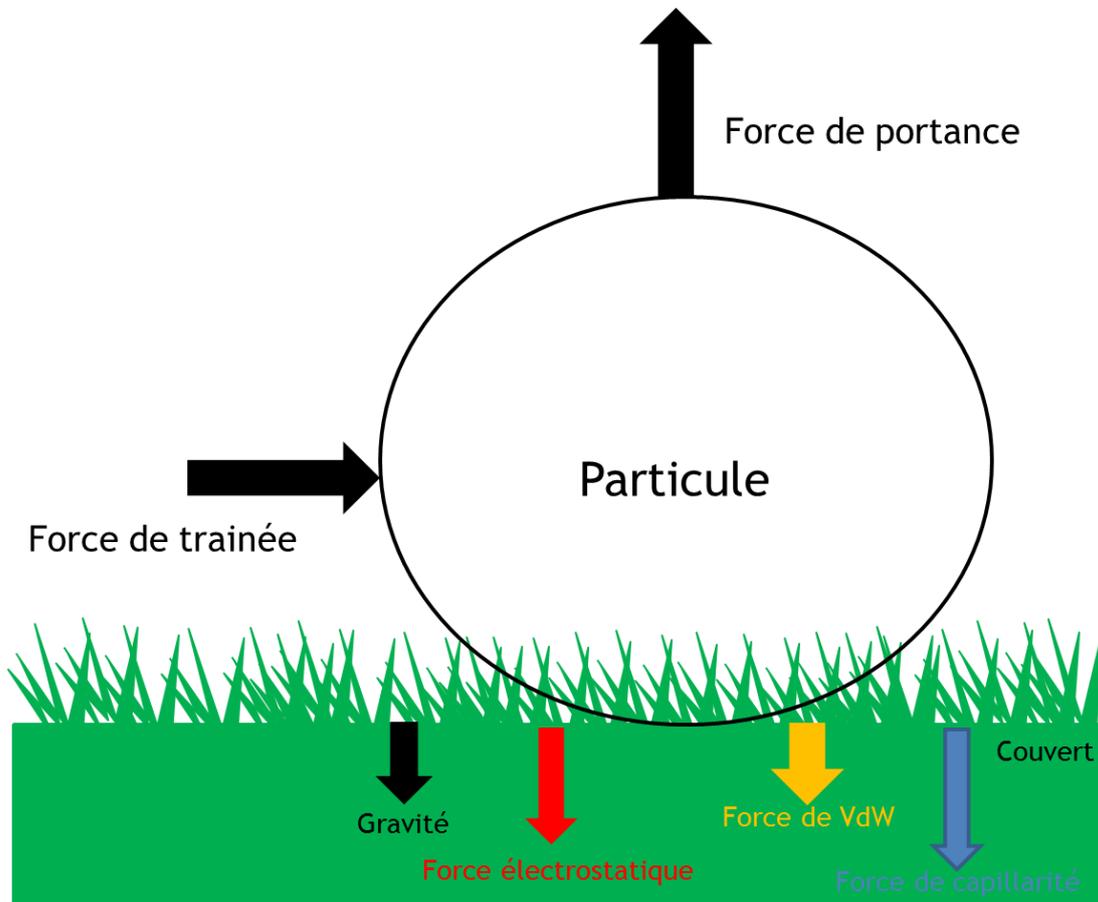


Figure 1.21 : Forces exercées sur une particule en contact avec une surface et soumise à un écoulement d'air.

1.4.1.1 Forces d'adhésion

1.4.1.1.1 Force de gravité

Etant donné la taille des particules étudiées, la force de gravité est généralement la force la moins importante comparée aux autres forces en présence. Cette force F_G est proportionnelle au volume de la particule et dépend donc du cube du diamètre comme le montre son expression (Équation 1.55).

$$F_G = \frac{\pi \rho_p g}{6} d_p^3 \quad \text{Équation 1.55}$$

où g est l'accélération de la pesanteur, ρ_p la masse volumique de la particule et d_p le diamètre de la particule.

1.4.1.1.2 Force de capillarité

En général, l'adhérence d'un aérosol augmente avec l'humidité relative de l'air ambiant, le phénomène ne devenant appréciable que lorsque l'humidité relative est supérieure à 70 % (Renoux

& Boulaud, 1998). Ainsi un ménisque se forme entre la particule et une force de capillarité apparaît. Son intensité dépend alors du taux d'humidité (Équation 1.56).

$$F_G = 2\pi\sigma d_p \quad \text{Équation 1.56}$$

Avec σ la tension superficielle de l'eau (73 mN.m⁻¹ à 20°C).

1.4.1.1.3 Force électrostatique

La force électrostatique exercée sur une particule est composée de quatre forces distinctes que sont la force de Coulomb, la force image, la force diélectrique ainsi que la force dipôle-dipôle (Li & Ahmadi, 1993). On a donc :

$$F_G = qE_{el} - \frac{q^2}{16\pi\epsilon z^2} + \frac{qE_{el}d_p^3}{16z^3} - \frac{3\pi\epsilon E_{el}d_p^3}{128z^2}d_p^6 \quad \text{Équation 1.57}$$

Avec E_{el} le champ électrique en V.m⁻¹, q la charge portée par la particule, ϵ la permittivité de l'espace libre (pour l'air, elle est de 8,86×10⁻¹² F.m⁻¹), z est la distance entre la paroi et la particule, prise égale à 4×10⁻¹⁰ m.

Li and Ahmadi (1993) montrent que les deux derniers termes sont négligeables pour la taille de particule étudiée (inférieure à 100 µm). De plus, Nerisson (2009) rappelle qu'en présence d'un champ électrique externe, la force de coulomb domine, et qu'en son absence, c'est la force image qui domine pour les surfaces conductrices.

1.4.1.1.4 Force de van der Waals

Cette force est due au dipôle permanent ou induit entre une molécule appartenant à la particule et une autre appartenant à la surface. Un dipôle se définit par une répartition de charges électriques telle que le barycentre des charges positives ne coïncide pas avec celui des charges négatives. Cette force peut avoir trois origines :

- la force de Keesom qui est due au dipôle permanent entre les deux molécules. Cette force diminue lorsque les molécules vibrent, comme c'est le cas lorsque la température augmente ;
- la force de Debye qui intervient lorsque seule une des molécules possède un dipôle permanent. Ainsi, ce dipôle va induire un dipôle sur la seconde molécule permettant aux deux molécules de s'attirer l'une vers l'autre ;
- la force de London est la force attractive induite entre deux molécules n'ayant pas de dipôle permanent. En effet, le dipôle instantané d'une des deux molécules va induire un dipôle dans la molécule voisine.

La force de van der Waals, F_{VDW} , est la force prédominante pour les tailles de particules étudiées dans le cas d'un taux d'humidité faible. Cette force est proportionnelle au diamètre de la particule,

comme le montre l'expression de London (expression approchée) valable uniquement pour le cas particule/surface :

$$F_{VDW} = \frac{Ad_p}{12z^2} \quad \text{Équation 1.58}$$

Avec A est la constante d'Hannaker et z est la distance entre la particule et la surface, prise généralement égale à 4×10^{-10} m.

1.4.1.1 Forces de mise en suspension

Pour mettre les particules en mouvement, il faut donc une force qui soit supérieure à somme de ces forces de cohésion. Les processus d'émission de ces aérosols résultent alors d'interactions complexes entre la vitesse du vent et la rugosité du sol (Marticorena & Bergametti, 1995; Marticorena *et al.*, 1997) : une vitesse de frottement seuil qui dépendra du couvert étudié sera nécessaire pour la remise en suspension des particules. Les particules ayant des diamètres compris entre 70 et 500 μm arrivent à quitter le sol, mais retombent directement et se désagrègent, c'est le mouvement de saltation. Ce mouvement est à l'origine de production des particules fines, qui pourront ensuite être remises en suspension par le phénomène d'érosion éolienne.

La Figure 1.22 présente la vitesse de frottement seuil u^* nécessaire à la remise en suspension de particules sur un sol nu en fonction de leur diamètre. Cette vitesse de frottement est minimale (0,25 m.s^{-1}) pour des particules qui ont un diamètre de l'ordre de 80 μm . Au-dessus de 80 μm c'est le poids des particules dont la force de gravité qui a une influence sur l'augmentation vitesse de frottement seuil. Tandis qu'en dessous de 80 μm ce sont les forces de cohésion interparticulaires qui augmentent avec la baisse du diamètre et donc qui font augmenter u^* .

Le domaine qui nous intéresse est celui des particules submicroniques. On voit alors clairement que la vitesse de frottement seuil est élevée (2,5 m.s^{-1}) ce qui induit des vitesses de vent très élevées (de l'ordre de 50 m.s^{-1} à 2 m au-dessus du sol nu).

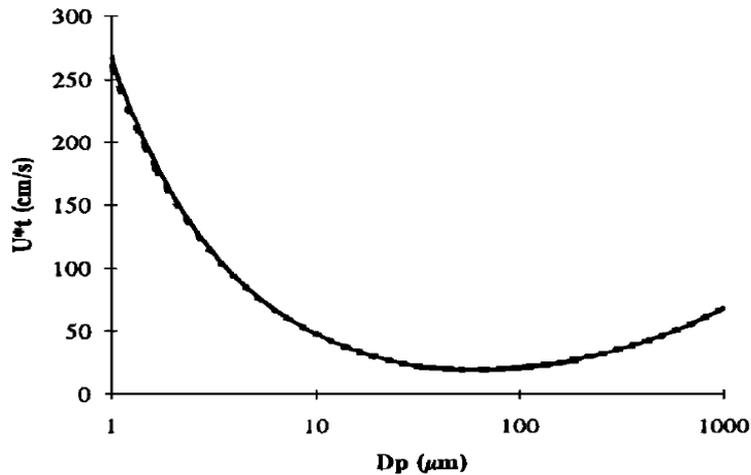


Figure 1.22 : Vitesses de frottement seuils u^* nécessaires pour la remise en suspension éolienne des particules $2,65 \text{ g.cm}^{-3}$ sur un sol nu en fonction de leur diamètre D_p (Marticorena & Bergametti, 1995).

D'autres processus de remise en suspension existent. Par exemple un de ces processus résulte de l'effet à la fois du vent et de la pluie sur le détachement de particules. L'effet de remise en suspension des particules déposées sur le sol par les éclaboussures dues à la pluie et dans des conditions où il n'y avait pas de vent a été étudié en détail (Garger *et al.*, 1998; Heerden, 1967). Le résultat global de ces études est que la contribution de la remise en suspension par les éclaboussures est très faible comparée à la remise en suspension par le vent. Un autre processus peut être l'effet des bourrasques de vent (Giess *et al.*, 1997), cependant très difficile à quantifier *in situ*.

1.4.2 Définition du coefficient de remise en suspension

La mise ou la remise en suspension des sols / sédiments contaminés dans l'atmosphère se caractérise selon deux approches principales. L'approche du facteur de remise en suspension est basée sur le rapport entre la concentration d'air volumétrique et la concentration du sol. L'expression de ce paramètre est:

$$K_s = \frac{C(t)}{C_{s,0}} \quad \text{Équation 1.59}$$

Avec K_s avec le coefficient de remise en suspension (m^{-1}), la concentration C dans l'air de l'élément étudié (particules.m^{-3}) et $C_{s,0}$ la concentration surfacique au niveau du sol (particules.m^{-2}).

L'approche du taux de remise en suspension est basée sur le rapport entre la densité du flux de particules et la contamination du sol :

$$R_s = \frac{F_{part}(t)}{C_{s,0}}$$

Équation 1.60

Avec R_s le taux de remise en suspension (s^{-1}), F_{part} le flux de particules ($particules.m^{-2}.s^{-1}$).

Cette définition implique que le dépôt et la remise en suspension soient déterminés par les mêmes facteurs, ce qui n'est pas forcément le cas. Dans la suite de ce mémoire, seul le coefficient de remise en suspension, beaucoup plus opérationnel que le taux de remise en suspension, sera étudié. En effet, l'approche par facteur de remise en suspension permet d'obtenir directement la concentration dans l'air, alors que le taux de remise en suspension permet d'obtenir un flux de masse ou d'activité, plus pratique à utiliser dans les équations de conservation du transport de polluants dans les modèles mécanistes.

1.4.3 Mesures du facteur de remise en suspension dans l'environnement

La remise en suspension a surtout été étudiée en grande majorité pour les radionucléides à l'issue des accidents nucléaires comme celui de Tchernobyl. Ainsi, des mesures *in situ* pour la contamination par le plutonium et pour le césium provenant de l'accident de Tchernobyl (Sehmel, 1980a) ont été effectuées et sont reportées dans le Tableau 1.7.

Tableau 1.7 : Valeurs de coefficient de remise en suspension d'après DOE Handbook (1994).

| Element | Lieu et couvert étudié | K_s mesuré (m^{-1}) | Référence |
|-----------------------|--|--|--------------------------------|
| ^{137}Cs | Munich, semi-rural | $2,0 \times 10^{-9}$ | Rosner and Winkler (2001) |
| ^{40}K | | $3,2 \times 10^{-9}$ | |
| $^{239,240}\text{Pu}$ | | $1,2 \times 10^{-9}$ | |
| Ra | | $1,0 \times 10^{-9} - 1,2 \times 10^{-9}$ | |
| ^{238}U | | $3,2 \times 10^{-9}$ | |
| ^{137}Cs | Hannovre, urbain | $1,0 \times 10^{-6} - 1,0 \times 10^{-5}$ | Holländer (1994) |
| ^{137}Cs | Denmark urbain | $3,6 \times 10^{-10}$ | Fogh <i>et al.</i> (1999), |
| ^{137}Cs | Kiev, urbain | $1,0 \times 10^{-9}$ | Nair <i>et al.</i> (1997), |
| ^{137}Cs | Chernobyl, urbain | $4,3 \times 10^{-10}$ | Garger <i>et al.</i> (1997) |
| ^{137}Cs | Chernobyl, feu de forêt | $1,6 \times 10^{-10}$ | Kashparov <i>et al.</i> (2000) |
| ^{131}I | Nevada | $1,0 \times 10^{-7} - 1,0 \times 10^{-5}$ | Anspaugh <i>et al.</i> (1970) |
| ^{131}I | Site d'essai nucléaire | $2,0 \times 10^{-6} - 1,0 \times 10^{-5}$ | Stewart (1964) |
| ^{131}I | Site d'essai nucléaire, opérations de nettoyage | $4,0 \times 10^{-6} - 5,0 \times 10^{-5}$ | |
| Pu | Site d'essai de Maralinga | $3,0 \times 10^{-7} - 7,0 \times 10^{-4}$ | |
| ^{238}U | Site d'essai de Maralinga, 8 heures après le dépôt | $1,0 \times 10^{-4}$ | |
| ^{238}U | Site d'essai de Maralinga | $3,0 \times 10^{-4}$ | |
| Pu | Nevada | $3 \times 10^{-10} - 3 \times 10^{-9}$ | Anspaugh <i>et al.</i> (1975), |
| ^{238}Pu | New York | $5,0 \times 10^{-8}$ | Bennett (1975), |
| ^{238}Pu | UK | $5,0 \times 10^{-9}$ | |
| Pu | accident de Palomares , Spain | $1,4 \times 10^{-9} - 7,8 \times 10^{-6}$ | Iranzo <i>et al.</i> (1987) |
| | Palomares, culture espagnole | $1,2 \times 10^{-10} - 8,7 \times 10^{-7}$ | |
| Pu | Champ contaminé, trafic de tracteur | $5,0 \times 10^{-8} - 1,0 \times 10^{-6}$ | Milham <i>et al.</i> (1975) |
| | Champ contaminé, fertilisation | $7,9 \times 10^{-10}$ | |
| | Champ contaminé, labour | $5,0 \times 10^{-6}$ | |
| | Champ contaminé, plantation | $1,8 \times 10^{-8} - 7,9 \times 10^{-6}$ | |
| | Champ contaminé, trafic | $1,8 \times 10^{-5}$ | |
| Pu | Nevada, champ contaminé (rural) | $7,0 \times 10^{-6}$ | Langham (1971) |
| Pu | Nevada, trafic | $7,0 \times 10^{-5}$ | |
| Pu | Kentucky | $1,0 \times 10^{-9} - 1,0 \times 10^{-5}$ | Sehmel (1973) |
| Pu | Traitement de déchet contaminé | $5,6 \times 10^{-8}$ | Myers <i>et al.</i> (1975) |

Sehmel (1980a) et Nicholson (1988b) ont étudié la remise en suspension des particules submicroniques à travers différents état de l'art. Comme on peut le voir sur la Figure 1.23, dans les premiers jours et les premiers mois qui suivent un accident, les valeurs du facteur de remise en suspension (K_s) disponibles dans la littérature se situent généralement entre $10^{-5} m^{-1}$ dans les zones résidentielles, sur un site en cours de nettoyage et sur un site aride et $10^{-6} m^{-1}$ sur un site rural (Tableau 1.7). Le facteur de remise en suspension diminue à $1 \times 10^{-8} m^{-1}$ ou $1 \times 10^{-9} m^{-1}$ après 3 à 4 ans du fait de l'assimilation des radionucléides par le sol. On constate également que dans les climats

humides ou semi-humides, la remise en suspension est généralement plus importante dans les conditions urbaines que dans les zones rurales. Cependant, ce n'est peut-être pas le cas dans les environnements désertiques ou semi-désertiques. On remarque également que les facteurs de remise en suspension ont des incertitudes allant jusqu'à trois ordres de grandeurs.

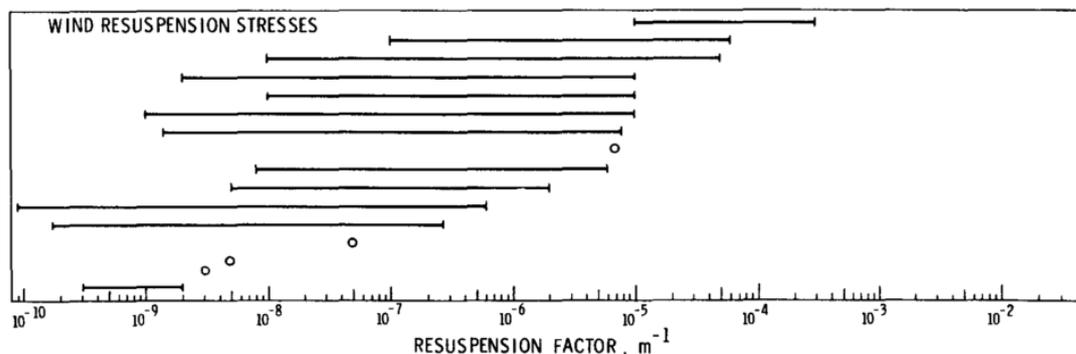


Figure 1.23 : Facteur de remise en suspension (K_s) retrouvé dans la littérature en fonction du temps. Les barres d'erreurs représentent l'étendu de ces facteurs (Sehmel, 1980a).

1.4.4 Modélisation de la mise en suspension

Le développement d'un modèle de remise en suspension n'est pas une tâche facile en raison du nombre de processus plus ou moins important. Dans l'ensemble, cela entraîne une dépendance vis-à-vis du matériau (taille, forme et adhérence des particules), le type de surface (rugosité, humidité), le temps écoulé depuis le dépôt et l'intensité des actions mécaniques (traitement des sols). Comme pour les mesures, les modèles de remise en suspension peuvent être distingués selon le contexte environnemental. Par exemple, il est recommandé que les modèles testés sur les données recueillies après l'accident de Tchernobyl soient utilisés dans le contexte de rejets accidentels dans l'air. Pour les conditions rurales, le modèle suggéré par Garland (1983) :

$$K_s(t) = 1,2 \times 10^{-6} t^{-1} \quad \text{Équation 1.61}$$

Où t est le temps en jours après dépôt. Dans ce modèle et les modèles suivants décrits dans cette section, les formulations modèles ne sont pas indépendantes de l'unité dans laquelle le temps est exprimé. Garland *et al.* (1992) a indiqué que cette formule s'appliquait aux dépôts de plus d'un jour.

Pour les milieux urbains, le modèle de Linsley (1978) a fourni les meilleurs résultats dans les exercices d'intercomparaison (Barnett *et al.*, 2009) :

$$K_s(t) = 10^{-6} \exp(-0,01t) + 10^{-9} \text{ avec } t \text{ en jours} \quad \text{Équation 1.62}$$

Cette expression produit un facteur de remise en suspension qui se situe dans la gamme de ceux estimés dans les expériences *in situ*. Cependant, il tend à surestimer les concentrations à court terme et à sous-estimer les valeurs à long terme. En outre, la diminution exponentielle avec le temps est difficile à justifier car elle est rarement mesurée dans les expériences. Pour les conditions arides et désertiques, il est recommandé d'utiliser le modèle décrit par Langham (1971). Ce modèle donne des valeurs intermédiaires entre celles observées pour les milieux urbains et ruraux à long terme. La forme du modèle est :

$$K_s(t) = 10^{-6} \exp(-0,15\sqrt{t}) + 10^{-9} \text{ avec } t \text{ en jours} \quad \text{Équation 1.63}$$

Les valeurs et les modèles sélectionnés ici sont adaptés pour l'évaluation des impacts radiologiques de la remise en suspension des radionucléides déposés dans le milieu naturel suite à des rejets accidentels dans l'air. Cependant, la variabilité des facteurs de remise en suspension mesurés (Figure 1.23) est très élevée et l'exactitude des prédictions de ces modèles est assez faible.

1.4.5 Cas particulier des bioaérosols

Les microorganismes affectent la solubilité et la stabilité des radionucléides dans les environnements contaminés. L'implication directe des microorganismes dans la biotransformation des radionucléides est d'un intérêt considérable du fait de leurs applications potentielles dans la bioremédiation des sites contaminés, dans le prétraitement des déchets radioactifs et dans des processus essentiels à la performance des dépôts de déchets nucléaires (Poinssot & Geckeis, 2012). Ainsi ces microorganismes seraient capables d'assimiler la majorité des radionucléides tels que le ^{137}Cs , ^{131}I et le ^3H (rejetés en majorité lors d'un accident nucléaires). Une fois les radionucléides assimilés, les microorganismes pourrait s'aérosoliser suivant différents mécanismes et ainsi disperser la contamination. Ainsi, après l'accident certaines hypothèses de cas de remise en suspension de ^{137}Cs sont la remise en suspension des microorganismes. Le prochain paragraphe décrit les caractéristiques des bioaérosols (Kajino *et al.*, 2016).

1.4.5.1 *Caractéristiques des bioaérosols*

Les bioaérosols sont des particules aéroportées d'origine microbienne, animale ou végétale (Douwes *et al.*, 2003) et présentent aussi bien en milieu extérieur qu'intérieur. Ils sont présents dans l'air sous plusieurs formes physiques, mais parmi les microorganismes présents dans l'atmosphère, les bactéries et les champignons sont les plus représentés. Ils peuvent être :

- individualisés (spores, cellules bactériennes,...) ;
- regroupés sous forme d'agrégats composés de plusieurs éléments individualisés ou avec d'autres matériels biologiques ;
- issus de produits (mycotoxines, endotoxines,...) ou de fragments d'éléments individualisés ;

- se présenter sous forme de particules d'origine biologique associées à des particules non biologiques (Duquenne & Greff-Mirguet, 2005).

Parmi les particules de diamètre supérieur à 0,2 µm en air intérieur, 5-50 % sont d'origine biogénique (Jaenicke, 2005). La taille moyenne des bactéries (eucaryote) est de l'ordre du micromètre tandis que les champignons (procaryotes) ont des tailles plus importantes : de l'ordre de la dizaine de micron (Tableau 1.8).

Tableau 1.8 : Les différents microorganismes et leurs tailles respectives (Mussard, 2006).

| Microorganismes | Taille approximative |
|--------------------------------------|-------------------------|
| Virus | 0,01-0,25 µm |
| Bactéries | 0,1-10 µm |
| Mycètes (champignons et moisissures) | 2 - 100 µm |
| Protozoaires | 2-1000 µm |
| Algues | 1 µm - plusieurs mètres |

1.4.5.1.1 Bactéries

Les bactéries sont des organismes procaryotes unicellulaires. Les spores bactériennes (endospore) présentent une grande capacité de résistance à la chaleur (Forthomme, 2012), la dessiccation et aux composés chimiques et parviennent parfois à survivre pendant des centaines d'années. Dans ce cas, les spores bactériennes sont incapables de se diviser, ont un contenu en eau très faible et disposent de niveaux de charge énergétique potentielle très faible. Lorsque le milieu sera à nouveau favorable la cellule commencera à se diviser de nouveau et reprendre une activité normale. La cultivabilité définit la capacité d'une bactérie à se diviser sur un milieu de culture, jusqu'à former une colonie de taille visible. Cette définition est vague, " les conditions optimales " et " le milieu de culture " étant des paramètres variables suivant les souches. La comparaison des concentrations en organismes cultivables provenant d'études distinctes est alors hasardeuse. De plus, il existe un état particulier des bactéries, très répandu, et que l'on nomme état " Viable non cultivable " (VBNC). Cet état peut être induit par un changement brusque d'un milieu favorable à un environnement appauvri en nutriments, en eau,... imposant des conditions de stress aux bactéries. La viabilité d'une cellule bactérienne correspond à la propriété de se multiplier quand les conditions sont adéquates (Roszak & Colwell, 1987). Ce n'est d'ailleurs qu'au début des années 1980, lorsque l'existence des cellules viables mais non cultivables a été mise en évidence, que l'utilisation de la méthode par culture a montré ses limites. Ces cellules qui ont la capacité de se diviser et de former des colonies sont temporairement bloquées mais pour le moins vivantes.

Seule une faible quantité de cellules bactériennes est cultivable par l'utilisation de milieux de culture adéquate. Tringe *et al.* (2008) supposent qu'environ 0,08% des bactéries totales en air extérieur, sont cultivables. Les autres bactéries sont soit dans un état VBNC, soit mortes. Selon (Wilson & Lindow, 1992), 75% des bactéries viables se développant sur des feuilles de végétaux avec une faible présence de nutriments, ne sont plus viables et cultivables après 3 jours passés dans cet environnement. De plus, des études ont montré que des cellules étaient encore capables de se diviser à la suite d'un stress nutritionnel mais sans augmentation de la biomasse et en formant des petites cellules ovoïdes (Novitsky and Morita (1977) dans Roszak and Colwell (1987)). Il s'agit d'une division réductive pour laquelle la taille des cellules est considérablement réduite après quelques divisions. Des rapports de volumes variant de 15 à 300 ont déjà été décrits. Bien que le nombre de cellules puisse augmenter, l'incapacité à former des colonies visibles demeure. Les colonies pourront néanmoins reprendre une taille dite " normale " (habituellement observée en laboratoire) si elles sont à nouveau disposées sur un milieu nutritif qui leur convient.

1.4.5.1.2 Champignons

Les champignons ou mycètes utilisent la matière biologique morte (Forthomme, 2012) comme source nutritive pour assurer leur reproduction. Tout comme les bactéries, les mycètes jouent un rôle primordial comme agent de décomposition. Parmi les champignons, une distinction est faite entre les levures et les moisissures dont la plupart des espèces font partie des ascomycètes (embranchement des champignons). Les levures sont des organismes unicellulaires se divisant soit par bourgeonnement (de façon asexuée) soit par la formation de spores (de façon sexuée). Les moisissures présentent quant à elles des filaments fins, longs et ramifiés que l'on appelle " hyphe ", qui s'entrelacent et forment une masse nommée mycélium. Ce sont des organismes pluricellulaires se reproduisant majoritairement par la dissémination dans l'air des spores produites et, dans une moindre mesure, par des fragments d'hyphes viables. Tout comme les bactéries, les champignons peuvent concentrer la radioactivité (Martens, 1976).

1.4.5.2 *Transfert des bioaérosols dans l'atmosphère*

Les bioaérosols se dispersent de la même façon que les aérosols de même taille (Mohr, 2007). Ceux dont la taille est inférieure à 5 µm possèdent des temps de vol de quelques minutes voir quelques heures tandis que les particules plus grossières (>10 µm) sédimentent plus rapidement pour se déposer sur des surfaces.

Les couverts végétaux sont une source de micro-organismes pouvant être aussi bien "bénéfiques" que "néfastes" pour la santé humaine et l'environnement : agents phytopathogènes (bactéries, virus, champignons), bactéries responsables d'intoxications alimentaires, micro-organismes jouant potentiellement certains rôles dans les processus atmosphériques (formation de nuages notamment). Leur dissémination s'effectue, pour une large proportion, par voie aérienne. Une partie de leur cycle de vie se déroule ainsi dans l'atmosphère, où ils se présentent sous forme d'aérosols. Malgré la présence quasi ubiquiste de ces bioaérosols et leur importance en termes

d'impact sanitaire ou environnemental, les mécanismes présidant à leur remise en suspension sont peu connus et donc pas quantifiés.

La microbiologie des aérosols (Morris *et al.*, 2011) émerge actuellement comme nouvelle discipline et se trouve au croisement de différents champs disciplinaires : microbiologie, modélisation, épidémiologie, physique des aérosols... Jusqu'à présent, la grande majorité des études a reposé sur des études en environnement intérieur ou sur des évaluations expérimentales du contenu microbien d'échantillons d'atmosphère, qui ont pu être reliés empiriquement à divers facteurs : site, saison, heure de la journée, altitude et caractéristiques physico-chimiques de la masse d'air. En revanche, un nombre très faible d'études s'est attaché à quantifier les flux d'émission de ces microorganismes par les surfaces végétales, et l'a fait dans une gamme de conditions météorologiques très restreinte (Lindemann (Lighthart & Shaffer, 1994; Lindemann *et al.*, 1982). En effet, seul l'impact de la chaleur et des radiations solaires sur les concentrations en bioaérosols (Lighthart & Shaffer, 1994) a été montré.

Une meilleure connaissance des bioaérosols, de leurs cycles et de leur rôle dans l'environnement, passe évidemment par l'évaluation des quantités émises par les surfaces végétales, des conditions favorisant cette émission, et des quantités qui se déposent au sol. Cette évaluation est notamment indispensable si l'on désire modéliser les cycles de dispersion microbiens. Pour recentrer l'étude lors de cette thèse il a été choisi d'étudier uniquement les bactéries qui ont une taille de l'ordre du μm tandis que les champignons ont des tailles de quelques μm .

1.4.5.3 Méthode de prélèvement et de quantification de la concentration dans l'atmosphère

L'échantillonnage des microorganismes de l'air s'effectue de la même façon que pour des particules inertes, soit principalement par aspiration. L'efficacité des échantillonneurs dépend pour l'essentiel du débit d'aspiration, du mécanisme de collecte ainsi que de la conservation de la cultivabilité des microorganismes afin de permettre une quantification par méthodes de culture (Griffiths & DeCosemo, 1994; Grinshpun *et al.*, 1994; Kulkarni *et al.*, 2011).

1.4.5.3.1 Méthode de prélèvement

Après aspiration, les microorganismes peuvent être capturés selon les trois techniques suivantes (Duquenne & Greff-Mirguet, 2005) :

- Prélèvement par impingement (impaction sur un milieu liquide) ;
- Prélèvement par filtration ;
- Prélèvement par impaction (impaction sur milieu gélosé).

1.4.5.3.1.1 Prélèvement par impingement ou impaction sur milieu liquide

La méthode de prélèvement consiste à créer un contact entre le flux d'air et un liquide de collecte. Ce dernier est généralement soit de l'eau soit une solution physiologique à laquelle peuvent être ajoutés des agents de protection contre les chocs osmotiques et des tensioactifs contre la dessiccation. La méthode par impingement permet de rallonger considérablement les temps d'échantillonnage de plusieurs heures avec l'utilisation d'huile comme milieu de prélèvement (Eduard, 2006). L'échantillon peut ensuite être dilué et est compatible avec un grand nombre de méthodes d'analyse (culture sur milieu gélosé, microscopie, biologie moléculaire...), ce que l'échantillonnage par impaction sur milieu solide ne permet pas (Duquenne & Greff-Mirguet, 2005). Concernant l'échantillonnage des microorganismes par cette technique, les impingers sont principalement utilisés pour échantillonner des bactéries. Les spores fongiques sont souvent hydrophobes et peuvent présenter des efficacités de capture moins bonnes (Eduard *et al.*, 2012) en étant plus facilement réentraînés par le flux d'air de sortie car elles restent à la surface du liquide (Muilenberg, 1989).

1.4.5.3.1.2 Prélèvement par filtration

La méthode de prélèvement est couramment utilisée pour la collecte d'aérosols microbiens en raison de sa facilité et de sa rapidité de mise en œuvre. Cette méthode consiste à séparer les particules de l'air en les faisant passer à travers un média filtrant. Une pompe en aval contrôle le débit d'air tandis qu'un filtre adapté aux analyses souhaitées est placé au travers du flux d'air. Une tête de prélèvement peut également être ajoutée pour sélectionner une gamme de taille de particules à prélever (comme une tête PM10 qui sélectionne les tailles de particules inférieures à 10 µm). La collecte des particules sur le filtre se fait par impaction ou par interception à la surface ou dans le réseau poreux du milieu filtrant. Les filtres sont soit de types capillaires (type membrane en polycarbonate) ou de types médias fibreux (type filtres en fibres de verre) (Duquenne & Greff-Mirguet, 2005). Un des principaux inconvénients de l'échantillonnage par filtration est la dessiccation des cellules microbiennes, aussi cette technique est généralement utilisée pour échantillonner la poussière dans l'air (Crook & Burton, 2010). La perte de viabilité dépend principalement des espèces microbiennes échantillonnées, du temps d'échantillonnage et du taux d'humidité relative (Wang *et al.*, 2001). Les spores bactériennes et fongiques présentent un taux de survie plus important que les bactéries végétatives (Jensen *et al.*, 1992; Palmgren *et al.*, 1986; Wang *et al.*, 2001).

1.4.5.3.1.3 Prélèvement par impaction sur milieu gélosé

La méthode de prélèvement consiste à faire passer l'air aspiré à travers une série d'orifices (grille) et les particules viennent s'impacter sur une surface cible (support de collecte) placée sur le trajet du flux d'air. Souvent, la surface de prélèvement est un milieu gélosé dans le cas de la collecte des aérosols microbiens. Plus une particule portée par un écoulement est grosse et plus les forces d'inertie agissant sur elles sont importantes. Les impacteurs se basent sur ce principe pour collecter

des particules en fonction de leur diamètre aérodynamique. Ils sont souvent à plusieurs étages pour séparer les différentes tailles. Plusieurs géométries sont mises en jeu pour collecter les particules : impacteurs à orifices circulaires, à fentes, centrifuges... Les temps d'échantillonnage par impaction doivent être courts (de l'ordre de l'heure) pour éviter la formation d'un trop grand nombre de colonies après culture, ce qui rendrait le comptage difficile. Parmi les différents impacteurs commerciaux, l'impacteur Andersen est souvent considéré comme élément de référence (Forthomme, 2012). Il a été choisi d'utiliser uniquement la méthode par impaction sur milieu gélosé qui est la méthode qui correspond le plus à nos attentes à savoir :

- Un temps de prélèvement ne dépassant pas 30 min ;
- Un volume d'air prélevé assez important pour pouvoir quantifier correctement les concentrations des bioaérosols ;
- Une méthode de prélèvement adaptable à des campagnes de terrains.

Cette méthode sera développée lors du chapitre 2.

1.5 Conclusion

Cette partie a permis d'introduire les notions de base en physique de l'atmosphère et de l'aérosol qui permettent de décrire les phénomènes et de dégager les paramètres sensibles. La compréhension du fonctionnement de la couche limite atmosphérique et surtout de la couche de surface (couche à flux constant) est essentielle pour comprendre les échanges atmosphériques près du sol.

Les notions sur le diamètre de particules et les phénomènes régissant le dépôt des particules submicroniques (diffusion brownienne, interception, impaction, sédimentation) ont été introduites étant donné leur influence sur le phénomène de dépôt sec. La revue des résultats expérimentaux montre des conditions de mesures variées, tant au niveau de la nature de la surface, que de l'aérosol considéré ou des conditions aérodynamiques de l'écoulement. Il en résulte une forte dispersion des vitesses de dépôt mesurées, y compris pour une même méthode de mesure. De plus aucune mesure de vitesses de dépôt sec en fonction des paramètres micrométéorologique n'existe pour les particules inférieures à 10 nm. Ces particules pourraient avoir un impact non négligeable en champ proche lors d'un rejet accidentel ou chronique d'une installation nucléaire et donc un impact non négligeable sur l'environnement et les populations. De plus, les modèles existants sont essentiellement basés sur des mesures expérimentales en soufflerie. L'apport de plus de mesures *in situ* permettrait de prendre en compte les différents phénomènes peu ou mal interprétés (coagulation, condensation...) pouvant avoir lieu dans l'environnement. Un des objectifs de la thèse est de réaliser des mesures de la vitesse de dépôt *in situ* en fonction des conditions de stabilité atmosphérique, de la nature des aérosols (gamme de tailles précises) sur un couvert prairial avec un focus pour des particules inférieures à 10 nm. La revue des modèles met en évidence des écarts entre les différentes vitesses de dépôt calculées allant jusqu'à plusieurs ordres de grandeur. Ces

écarts sont dus à la diversité des expressions de la captation des aérosols par la végétation. De plus ces expressions sont rarement validées par des résultats expérimentaux, ou plus généralement pour des conditions expérimentales différentes.

Les notions sur la remise en suspension des particules ont été également introduites. Ces notions ont permis de montrer le manque de connaissance concernant le coefficient de remise en suspension des radionucléides à l'issue d'accident nucléaire comme Tchernobyl. De plus la remise en suspension des bioaérosols est très peu étudiée mais pourrait avoir un impact non négligeable sur la concentration des radionucléides dans l'atmosphère, au regard de la potentialité des concentrations des radionucléides sur le sol et les surfaces végétales. L'un des objectifs de cette thèse est donc d'étudier ce processus de remise en suspension des bioaérosols de type bactéries.

2 CHAPITRE 2 : DETERMINATION DE LA VITESSE DE TRANSFERT VERTICAL : METHODES ET MOYENS EXPERIMENTAUX

Ce chapitre est consacré aux différentes méthodes de prélèvements et de mesures que nous avons utilisées pour accéder aux vitesses de dépôt sec des aérosols et à la remise en suspension des bactéries. Il est composé de deux parties ; la première traite des méthodes et du matériel utilisés pour la mesure de vitesses de dépôt par temps sec en fonction de la taille des particules : la seconde partie détermine les flux de bioaérosols afin de documenter leur processus de remise en suspension.

2.1 Dépôt par temps sec des particules : mesure de la vitesse de transfert vertical

2.1.1 Gamme de 1 à 2 nm : méthode du gradient en utilisant la fraction libre des descendants du ^{222}Rn

Comme on a pu le voir dans le chapitre 1, il existe un manque de données sur les flux verticaux de particules de taille nanométrique en fonction des conditions environnementales, à la fois pour implémenter les modèles de dépôt sec. Les flux et le dépôt sec de particules atmosphériques de taille nanométrique ne sont pas faciles à mesurer à l'aide de techniques classiques (corrélations turbulente, méthode par accumulation) (Dabberdt *et al.*, 1993). Aujourd'hui, quelques tentatives de mesure de vitesse de dépôt de particules nanométriques ont été effectuées grâce à la méthode du gradient (Schery & Whittlestone, 1995) et à la méthode REA (Schery *et al.*, 1998). Dans l'atmosphère, les descendants du ^{222}Rn sont présents sous forme d'une fraction libre et d'une fraction attachée aux particules atmosphériques déjà en place (Porstendörfer, 1994). La fraction libre des descendants du ^{222}Rn sera largement étudiée dans le paragraphe suivant afin d'obtenir des vitesses de dépôt sec par la méthode du gradient. La Figure 2.1 résume les différents traitements et moyens utilisés pour obtenir les vitesses de dépôt sec de la fraction libre des descendants du ^{222}Rn par la méthode du gradient. Les différents aspects du calcul des vitesses de dépôt sec par cette méthode sont détaillés par la suite.

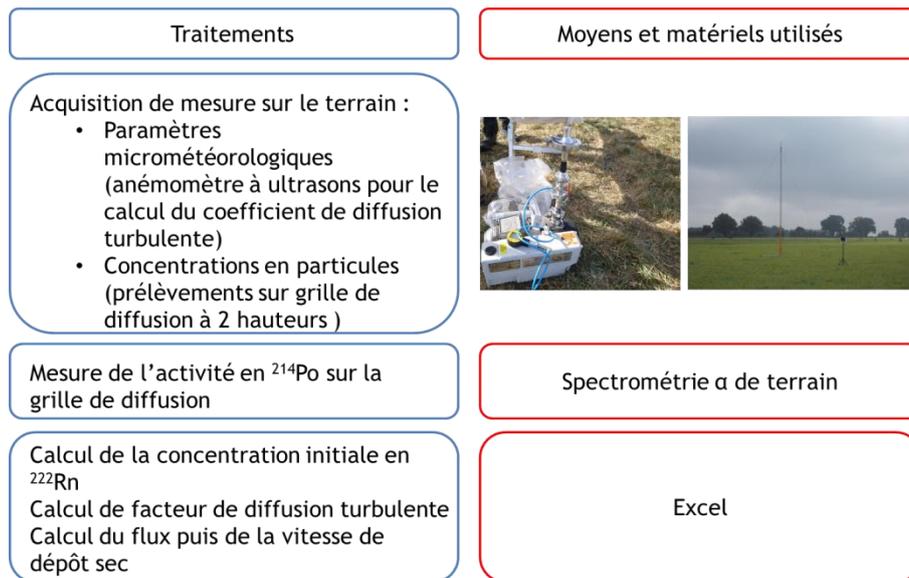


Figure 2.1 : Traitements et moyens utilisés pour obtenir les flux de particules puis les vitesses de dépôt sec de la fraction libre des descendants du ^{222}Rn .

2.1.1.1 Méthode du gradient

La méthode du gradient (voir paragraphe 1.3.3.2.1) repose sur la théorie du gradient de diffusion (Fuentes *et al.*, 1996; Meredith *et al.*, 2014) (Équation 1.26). La méthode du gradient considère que les gradients de concentration des gaz ou des particules sont le résultat d'une diffusion turbulente au sein de la masse d'air. Dans notre cas elle consiste à mesurer les activités des particules de ^{214}Po à deux hauteurs différentes.

2.1.1.2 Fraction libre des descendants du ^{222}Rn

Après la désintégration radioactive du ^{222}Rn (réaction gaz/particules), les radionucléides qui en résultent (Figure 2.2) réagissent très rapidement (<1s) avec les gaz en trace et les composants de l'air, formant ainsi des clusters. Ces clusters sont alors appelés la fraction libre ou non attachée des descendants du radon. Cette fraction libre est composée essentiellement de ^{218}Po et de ^{214}Pb . Il s'agit d'un aérosol nanométrique. Les dimensions du ^{218}Po non attaché sont estimées entre 0,8 nm et 1,4 nm tandis la fraction ultrafine du ^{214}Po semble être constituée de deux composantes nanométriques de 1,4 nm et de 3 nm (Porstendörfer, 1994). Outre la formation de clusters, ces radionucléides s'attachent aux particules d'aérosol existantes dans l'atmosphère en 1 à 100 s, formant ainsi la partie liée des descendants du radon (Porstendörfer, 1994). Dans l'atmosphère, les descendants du ^{222}Rn ont un diamètre aérodynamique médian en activité (AMAD) généralement compris entre 0,3 et 0,6 μm (Becker *et al.*, 1984; Bondiotti *et al.*, 1987; Porstendörfer *et al.*, 1990).

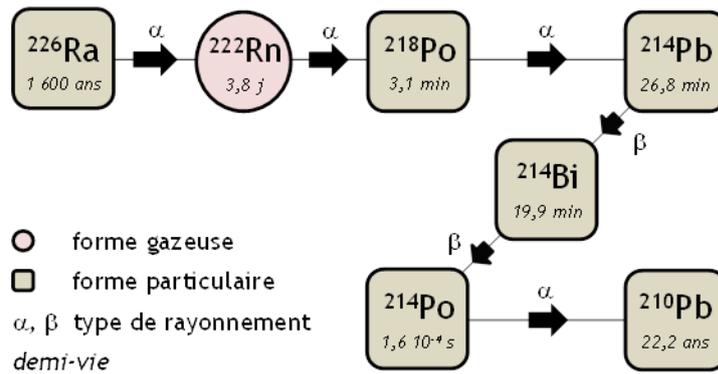


Figure 2.2 : Chaîne de filiation partielle du ^{226}Ra naturellement présent dans la lithosphère.

L'enjeu de l'échantillonnage est donc de piéger uniquement la fraction libre de ces descendants du radon.

2.1.1.3 Mesure de la fraction libre des descendants du ^{222}Rn

Une grille de diffusion (Figure 2.3) est un instrument utilisé pour séparer les particules ultrafines ($d \leq 0,1 \mu\text{m}$) suivant leur taille. Il se compose généralement d'une série de fibres circulaires ou rectangulaires. La pénétration des particules à travers la grille dépend de leur diffusivité et, par conséquent, de leur taille. Le champ d'écoulement et le dépôt diffusif dans les fibres sont bien compris à la fois à partir d'études théoriques et expérimentales (Soderholm, 1979).



Figure 2.3 : Grille de diffusion (TSI ; Model 376060) utilisée pour le prélèvement de la fraction libre des descendants du ^{222}Rn .

A l'instar de Schery *et al.* (1998), il a été utilisé une grille de diffusion (TSI ; Model 376060) de 4 cm à un débit de $200 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ permettant d'échantillonner les particules ayant un diamètre inférieur à $1,3 \text{ nm}$ basé sur la théorie qui suppose l'adhérence complète des particules aux fibres de la grille de

diffusion (Cheng & Yeh, 1980). L'efficacité de collection est généralement une fonction du nombre de Peclet Pe défini par l'Équation 2.1 (Renoux & Boulaud, 1998).

$$Pe = \frac{uL}{D_b} \quad \text{Équation 2.1}$$

u est la vitesse moyenne du gaz porteur ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$), L est une longueur caractéristique de l'obstacle (m) et D_b est le coefficient de diffusion brownienne.

Ce diamètre de 1,3 nm est donné pour une efficacité de pénétration (Équation 2.2) de 50% :

$$p = \exp\left(-4.52 nPe^{-\frac{2}{3}}\right) \quad \text{Équation 2.2}$$

Avec p la pénétration des particules (sans dimension), n le nombre de grille de diffusion et Pe le nombre de Peclet (sans dimension).

Une fois piégée, l'activité de la fraction libre sur la grille de diffusion doit être mesurée. Le prélèvement de la fraction libre dure 30 min pour être en accord avec des conditions constantes de turbulence atmosphérique (Paragraphe 1.1.2). Étant donné les différentes demi-vies relativement courtes (par rapport à un prélèvement de 30 min) des premiers émetteurs alpha, descendants du ^{222}Rn (Figure 2.2), le choix de mesurer le ^{214}Po semble le plus approprié. En effet :

- le ^{214}Po , descendant du ^{222}Rn , est présent partout dans l'environnement en concentration suffisante pour être détecté en spectrométrie alpha avec des temps de comptage courts (quelques dizaines de minutes pour des volumes prélevés compris entre 0,5 et 1 m^3) ;
- les demi-vies du ^{218}Po , ^{214}Pb et ^{214}Bi , descendants du ^{222}Rn et parents du ^{214}Po , sont suffisantes pour réaliser des prélèvements intégrés sur 30 minutes. En effet, si on additionne les périodes de ces différents radionucléides, on dépasse aisément 30 min et donc la décroissance de l'élément mesuré (^{214}Po) n'aura pas débuté.

L'activité des grilles de diffusion en ^{214}Po a été mesurée à l'aide de 2 détecteurs Canberra A-1200-32-AM associés à des chambres de mesure alpha Canberra 7401 et reliés à un module d'acquisition Ortec 920E 16 voies (Figure 2.4). Le pic d'énergie de 7 687 keV a été utilisé pour le calcul des activités de ^{214}Po . Les spectres d'énergie ont été analysés par le logiciel Interwinner 6.0. Le temps de comptage (T_c) de chaque échantillon a été compris entre 40 minutes et 1 heure pour obtenir l'erreur analytique raisonnablement la plus faible (10 % en moyenne). Dans ces conditions, la limite de détection des activités des échantillons a été de 0,5 Bq. A ce stade du protocole, le nombre de désintégrations du ^{214}Po au cours de la période de comptage n'a volontairement pas été corrigé de la perte d'activité du filtre par décroissance radioactive depuis le début de la période de prélèvement. Le calcul d'activité initiale en ^{222}Rn présente sur la grille de diffusion est ensuite recalculé grâce au modèle de Jenkins (2002).



Figure 2.4 : Photos du dispositif utilisé pour la mesure de l'activité en ^{214}Po sur les grilles de diffusion par spectrométrie alpha.

L'activité du ^{214}Po dans l'atmosphère est ensuite obtenue à partir de l'activité mesuré d'une grille de diffusion grâce aux équations décrites dans Jenkins (2002).

2.1.1.4 Principe du modèle de Jenkins (2002)

Lorsque l'on souhaite calculer l'activité dans l'atmosphère des descendants du ^{222}Rn , et en particulier celle du ^{214}Po , à partir de l'activité d'une grille de diffusion en ^{214}Po , les périodes de prélèvement (T_s), de délai (T_d) entre la fin du prélèvement et le début du comptage (T_c) doivent être considérées (Figure 2.5). Au cours de chacune de ces trois périodes, un terme de décroissance, un terme de production (à l'exception du ^{214}Po) et un terme d'apport (au cours de la seule période de prélèvement) doivent être pris en compte dans les équations pour modéliser l'activité des descendants du ^{222}Rn (^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , et ^{214}Po) sur la grille de diffusion. Le nombre de désintégrations de ^{214}Po mesurées sur une grille de diffusion au cours de T_c est représentatif de l'historique des activités de la grille de diffusion en ^{218}Po , ^{214}Pb , et ^{214}Bi depuis le début de la période de prélèvement jusqu'à la fin de la période de comptage. De cet historique sont déduites les activités de ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi et ^{214}Po dans l'atmosphère (sachant que celles de ^{214}Bi et de ^{214}Po sont identiques) sous les hypothèses suivantes :

- H1 : les activités dans l'atmosphère des produits de décroissance du ^{222}Rn sont constantes pendant la période de prélèvement ;
- H2 : l'efficacité de filtration est identique pour tous les radionucléides ;

- H3 : le ^{214}Po est en équilibre séculaire avec le ^{214}Bi sur la grille de diffusion;
- H4 : les radionucléides collectés sur une grille de diffusion, ainsi que leurs produits de décroissance, restent sur la grille de diffusion au cours de T_s , T_d et T_c .

$$C_k = \frac{\lambda_k}{1 - \exp\left(-\frac{\lambda_k}{T_s}\right)} \left[\frac{A_k(T_s)}{Q_s E_f} - C_i \lambda_j \lambda_k \delta - C_j \lambda_k \varepsilon \right] \text{ où } i = ^{218}\text{Po}, j = ^{214}\text{Pb} \text{ et } k = ^{214}\text{Po}$$

$$\text{avec } \begin{cases} \delta = \frac{1 - \exp(-\lambda_i T_s)}{\lambda_i (\lambda_j - \lambda_i) (\lambda_k - \lambda_i)} + \frac{1 - \exp(-\lambda_j T_s)}{\lambda_j (\lambda_i - \lambda_j) (\lambda_k - \lambda_j)} + \frac{1 - \exp(-\lambda_k T_s)}{\lambda_k (\lambda_i - \lambda_k) (\lambda_j - \lambda_k)} \\ \varepsilon = \frac{1 - \exp(-\lambda_j T_s)}{\lambda_j (\lambda_k - \lambda_j)} + \frac{1 - \exp(-\lambda_k T_s)}{\lambda_k (\lambda_j - \lambda_k)} \end{cases} \quad \text{Équation 2.3}$$

Avec C_k l'activité du ^{214}Po dans l'atmosphère (Bq.m^{-3}), T_s la période de prélèvement (s), $A_k(T_s)$ l'activité de la grille de diffusion en ^{214}Po à la fin de la période de prélèvement (Bq), Q_s est le débit de pompage ($\text{m}^3.\text{s}^{-1}$), E_f est l'efficacité de la grille de diffusion, $\lambda_{i,j,k}$ sont les constantes de désintégration des radionucléides i , j et k (s^{-1}), et $C_{i,j}$ sont les activités des radionucléides i et j (Bq.m^{-3}) calculées à partir des équations définies dans Jenkins (2002).

$$A_k(T_s) = \frac{A_k(T_s + T_d) - A_i(T_s) \lambda_j \lambda_k f_{ik} - A_j(T_s) \lambda_k f_{jk}}{f_{kk}} \quad \text{Équation 2.4}$$

où $A_k(T_s + T_d)$ est l'activité de la grille de diffusion en ^{214}Po au début de la période de comptage (Bq), $A_{i,j}(T_s)$ sont les activités de la grille de diffusion en radionucléides i et j à la fin de la période de prélèvement (Bq), et $f_{ik,jk,kk}$ sont des facteurs appelés "temps d'échantillonnage effectif". $A_{i,j}(T_s)$ et $f_{ik,jk,kk}$ sont calculés à partir des équations définies dans Jenkins (2002).

$$A_k(T_s + T_d) = \frac{N_k - A_i(T_s + T_d) \lambda_j \lambda_k g_{ik} - A_j(T_s + T_d) \lambda_k g_{jk}}{g_{kk}} \quad \text{Équation 2.5}$$

où N_k est le nombre de désintégrations du ^{214}Po mesurées au cours de la période de comptage, $A_{i,j}(T_s + T_d)$ sont les activités de la grille de diffusion en radionucléides i et j au début de la période de comptage (Bq), et $g_{ik,jk,kk}$ sont des facteurs appelés "temps de comptage effectif". $A_{i,j}(T_s + T_d)$ et $g_{ik,jk,kk}$ sont calculés à partir des équations définies dans Jenkins (2002).

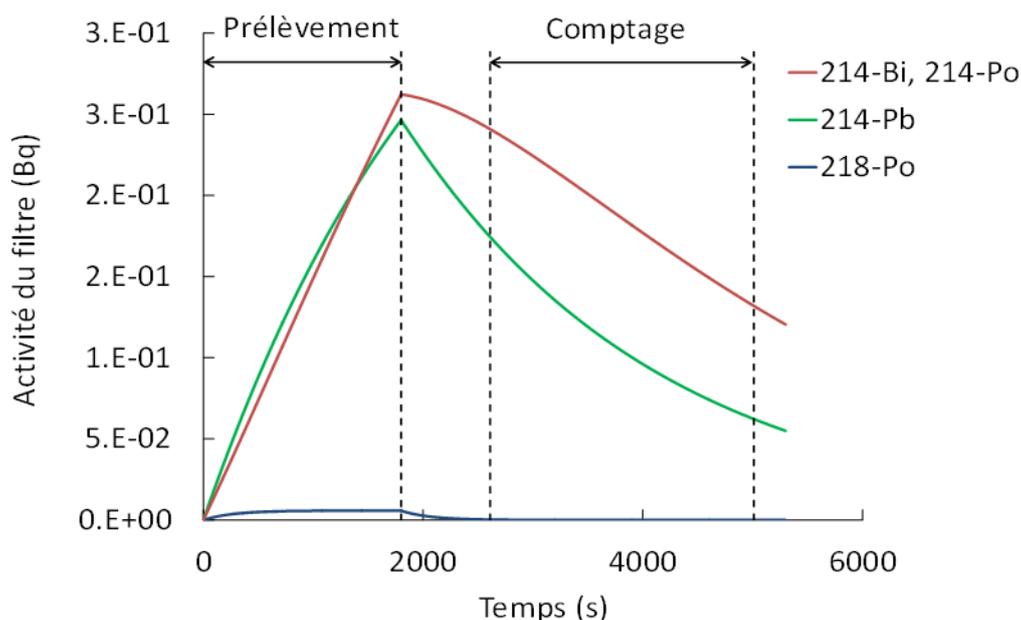


Figure 2.5 : Exemple d'évolution au cours du temps de l'activité d'une grille de diffusion en descendants du ^{222}Rn (^{214}Bi , ^{214}Po , ^{214}Pb et ^{218}Po), depuis le début de la période de prélèvement (T_s) jusqu'à la fin de la période de comptage (T_c) du ^{214}Po en spectrométrie alpha

2.1.2 Gamme de 2,5 nm à 1,6 μm : méthode par corrélation turbulente en utilisant l'aérosol atmosphérique

La méthode des corrélations turbulentes (parfois aussi appelée méthode des covariances) est une technique micrométéorologique employée depuis une trentaine d'années pour la mesure des flux dans la couche de surface (Dyer, 1974). Initialement utilisée pour déterminer les transferts de chaleur et de quantité de mouvement, son domaine d'application s'est étendu ensuite à la mesure des flux de gaz (Lenschow *et al.*, 1981) et de particules (Hicks *et al.*, 1982; Lamaud, Chapuis, *et al.*, 1994; Wesely *et al.*, 1983). La Figure 2.6 résume les différents traitements et moyens utilisés pour obtenir les vitesses de dépôt sec par corrélations turbulentes. Les différents aspects du traitement seront détaillés par la suite.

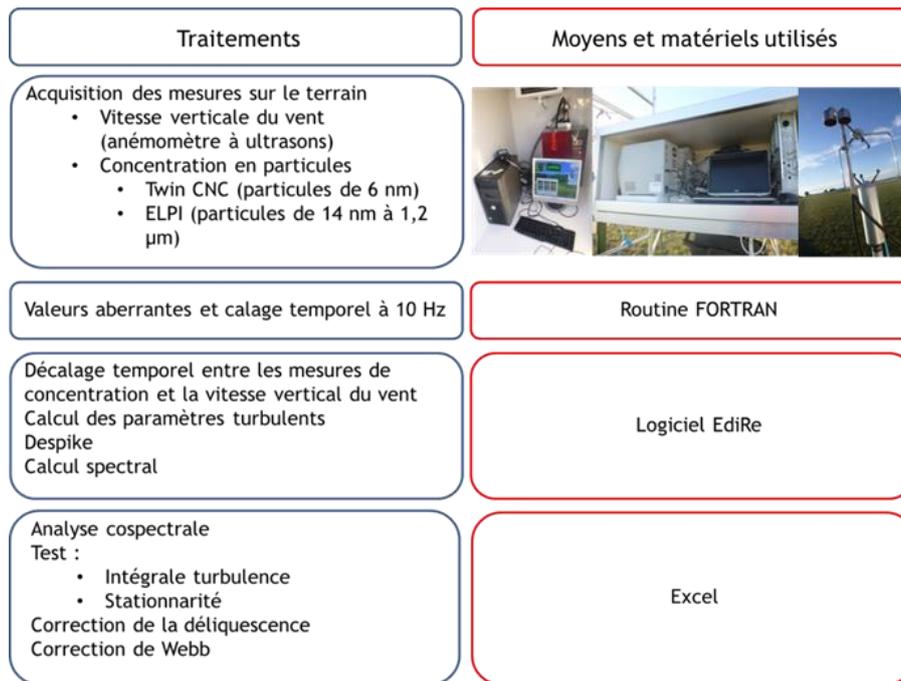


Figure 2.6 : Traitements et moyens utilisés pour obtenir les flux de particules puis les vitesses de dépôt sec par corrélations turbulentes.

2.1.2.1 Principe de la méthode par corrélation turbulente et analyse cospectrale

En situation stationnaire et si il y a l'homogénéité horizontale (répartition homogène des flux sur la zone étudiée), le flux vertical des particules peut être déterminé par une analyse de covariance entre la vitesse verticale du vent w et la concentration des particules (méthode de corrélation turbulente).

La méthode consiste à calculer les covariances entre les fluctuations de la vitesse verticale du vent (w') et les fluctuations d'une grandeur turbulente quelconque X' . Par exemple X' correspond à U' pour le flux horizontal de quantité de mouvement, à T' pour le flux de chaleur sensible H et C' pour le flux vertical d'un scalaire comme des gaz ou des particules.

Si w et X sont des valeurs instantanées de la vitesse verticale du vent et du paramètre turbulent considéré, et \bar{X} et \bar{w} les valeurs moyennes de ces variables sur un intervalle de temps t , les fluctuations turbulentes w' et X' sont données par la décomposition de Reynolds :

$$w = w' + \bar{w} \text{ et } X = X' + \bar{X} \quad \text{Équation 2.6}$$

De plus le flux vertical F est donné par :

$$F = \overline{wX} = \bar{w} \cdot \bar{X} + w'X' \quad \text{Équation 2.7}$$

Avec la condition que $\bar{w} = 0$, on a :

$$F = \overline{w'X'} = \frac{1}{t} \int_0^t w'X' dt \quad \text{Équation 2.8}$$

Dans la couche de surface, le spectre d'un paramètre turbulent représente l'énergie $S(n)$ associée aux fluctuations de cette variable en fonction de la fréquence n de ces fluctuations. Dans cette couche, le spectre d'énergie d'une variable turbulente se décompose en trois parties (Figure 2.7) : le domaine de production de l'énergie (A) (faibles et moyennes fréquences) ; le sous-domaine inertiel (B), qui correspond à un transfert d'énergie vers les hautes fréquences ; le domaine dissipatif où l'agitation turbulente se dissipe en agitation moléculaire (C).

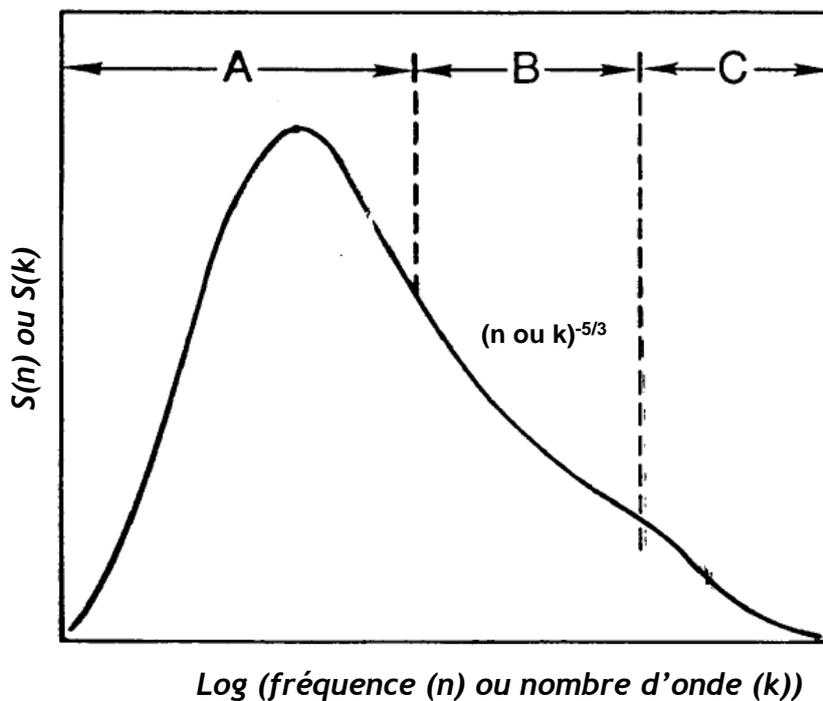


Figure 2.7 : Spectre d'énergie de la turbulence atmosphérique indiquant le domaine de production d'énergie A, le sous domaine inertiel B et le domaine de dissipation C en fonction de la fréquence n ou du nombre d'onde $k = 2\pi n/U$ (Kaimal & Finnigan, 1994).

Le sous-domaine inertiel du spectre se caractérise par une décroissance de l'énergie en fonction de la fréquence suivant une loi en $n^{-5/3}$, ce qui se traduit en représentation logarithmique par une pente de coefficient $-5/3$ (Kaimal & Finnigan, 1994; Kolmogorov, 1942). La représentation du spectre d'énergie couramment utilisée est de la forme $\log(nS(n))$ en fonction de $\log(n)$ Figure 2.8, le domaine inertiel étant alors représenté par une droite de pente $-2/3$. En effet, cette représentation

a l'avantage de faire apparaître plus nettement la limite inférieure de la zone inertielle puisqu'elle correspond alors au maximum de la courbe.

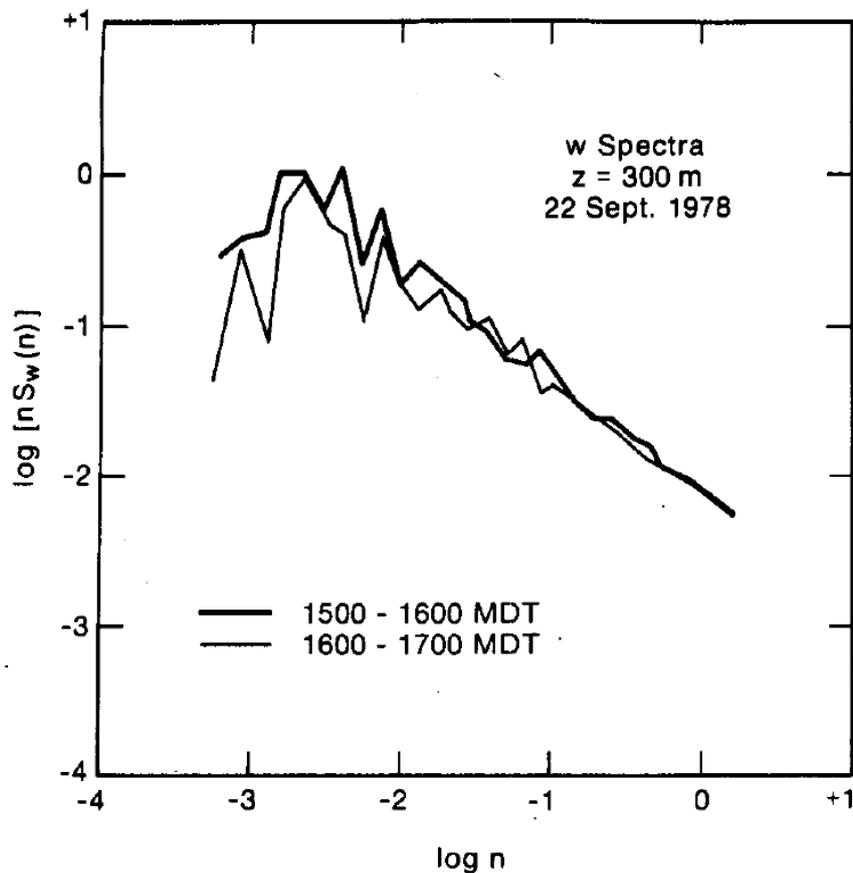


Figure 2.8 : Spectre d'énergie de la turbulence atmosphérique en $\log(nS_w(n))$ en fonction de $\log(n)$ (Kaimal *et al.*, 1982).

Obukhov (1946) a montré que, par suite, les scalaires transportés comme la température ou les concentrations passives ont également un spectre en $-5/3$ dans ce domaine de fréquence. Les spectres normés par la variance prennent une forme universelle lorsqu'ils sont tracés en fonction de la fréquence adimensionnée f (Kaimal & Finnigan, 1994) :

$$f = \frac{n(z - d)}{\bar{u}} \quad \text{Équation 2.9}$$

Avec n la fréquence naturelle, z la hauteur de mesure, d la hauteur de déplacement et \bar{u} la vitesse verticale moyenne du vent.

Cette normalisation est utilisée dans le but de comparer l'allure des spectres de différents paramètres turbulents. Il en est de même pour les cospectres, ou spectre de la covariance entre deux composantes du vecteur vitesse ou entre une composante du vecteur vitesse et un scalaire. La

Figure 2.9 montre les courbes théoriques des cospectres des flux de quantité de mouvement ($\overline{u'w'}$) et du flux de chaleur sensible ($\overline{w'T'}$) dans la couche de surface décrits par Kaimal and Finnigan (1994).

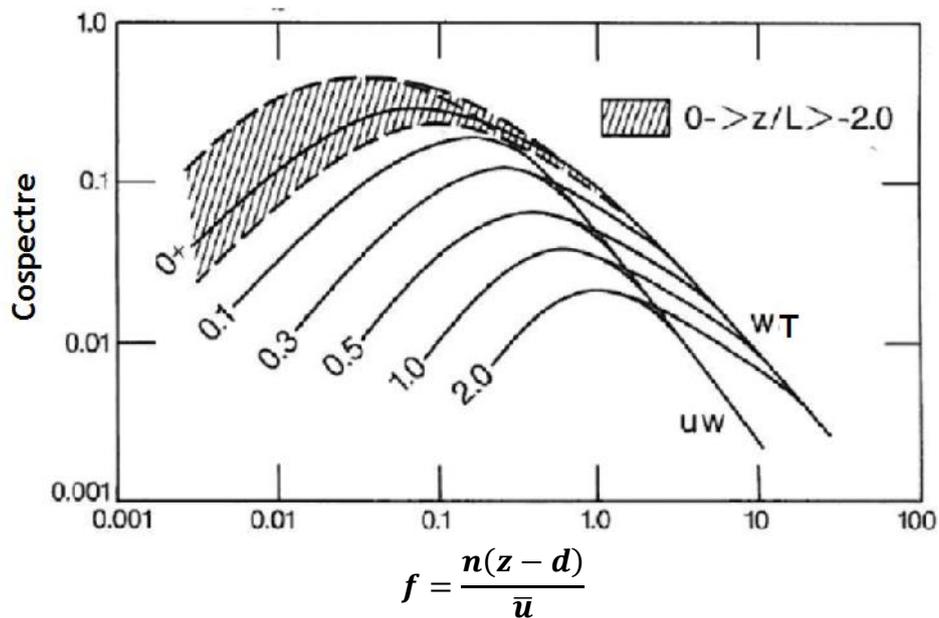


Figure 2.9 : Cospectres théoriques de la quantité de mouvement et du flux de chaleur sensible dans la couche de surface en fonction de la fréquence adimensionnée atmosphérique (Kaimal & Finnigan, 1994).

On remarque que le cospectre du flux de chaleur présente une zone mal définie en conditions instables (en hachuré sur la Figure 2.9) et qu'il se décale vers les hautes fréquences adimensionnées quand les conditions deviennent de plus en plus stables.

2.1.2.2 Traitement des données

Comme dans tous processus de traitement de données, il est nécessaire d'en établir la qualité. Elle garantit que les résultats n'ont pas de biais ou d'erreur. Cependant il n'existe pas de protocoles à proprement parlé dans la littérature et les différents tests et corrections sont étudiés indépendamment. Des tests de qualité et des corrections, pour la méthode de corrélation turbulente, qui ont été utilisés lors de cette thèse, sont développés dans le paragraphe suivant.

2.1.2.2.1 Analyse spectrale

Cette technique requiert un échantillonnage rapide de l'aérosol, c'est-à-dire supérieur à une fréquence de 10 Hz (Businger, 1986) pour être compatible avec l'échelle de la turbulence atmosphérique. Cependant, peu de systèmes mesurant la concentration dans les particules submicroniques dans l'environnement peuvent effectuer des échantillonnages à une fréquence aussi

élevée, ce qui engendre une sous-estimation du flux. Pour évaluer cette sous-estimation du flux de particules, une méthode de correction originale a été développée en fonction des similitudes entre le cospectre du flux de particules d'aérosol $\overline{w'C'}$ et la cospectre du flux de chaleur sensible ($H = \rho C_p \overline{w'T'}$) noté $\overline{w'T'}$ normalisé par le flux et pondéré par la fréquence naturelle dans la couche de surface (Damay *et al.*, 2009; Lamaud, Chapuis, *et al.*, 1994).

Ainsi une analyse spectrale des cospectres du flux de chaleur de sensible et du cospectre du flux de particules en utilisant la méthode Fast-Fourier-Transformation (FFT) est utilisée. Le logiciel EdiRe, développé par l'université d'Edinburgh (Clement, 1999), est utilisé pour calculer les spectres et les cospectres ainsi que tous les paramètres turbulents sur des périodes de 30 minutes. Un protocole unique n'existe pas pour le contrôle de la qualité des mesures covariance turbulente.

En effet après FFT, une analyse cospectrale de la vitesse verticale du vent et de la concentration des particules est appliquée, le flux peut être exprimé comme suit (Kaimal & Finnigan, 1994) :

$$\overline{w'X'} = \int_{n_0}^{n_f} Co_{w'C'}(n) dn \quad \text{Équation 2.10}$$

Où n_0 est la fréquence la plus basse qui peut être mesurée sur un échantillon au cours du temps t . Dans cet exemple, le temps passé à traiter les échantillons est d'une demi-heure, n_0 est donc d'environ 10^{-3} Hz. n_f correspond au seuil de réponse spectrale des dispositifs de mesure. En fait, cette méthode permet la reconstruction du cospectre du flux de particules d'aérosol par le cospectre du flux de chaleur sensible pour éliminer la perte spectrale à haute fréquence. De plus, cette méthode corrige également les oscillations de basse fréquence parfois observées (Figure 2.10). Ainsi le cospectre du flux de particules non perturbée est conservé entre les fréquences f_1 et f_2 .

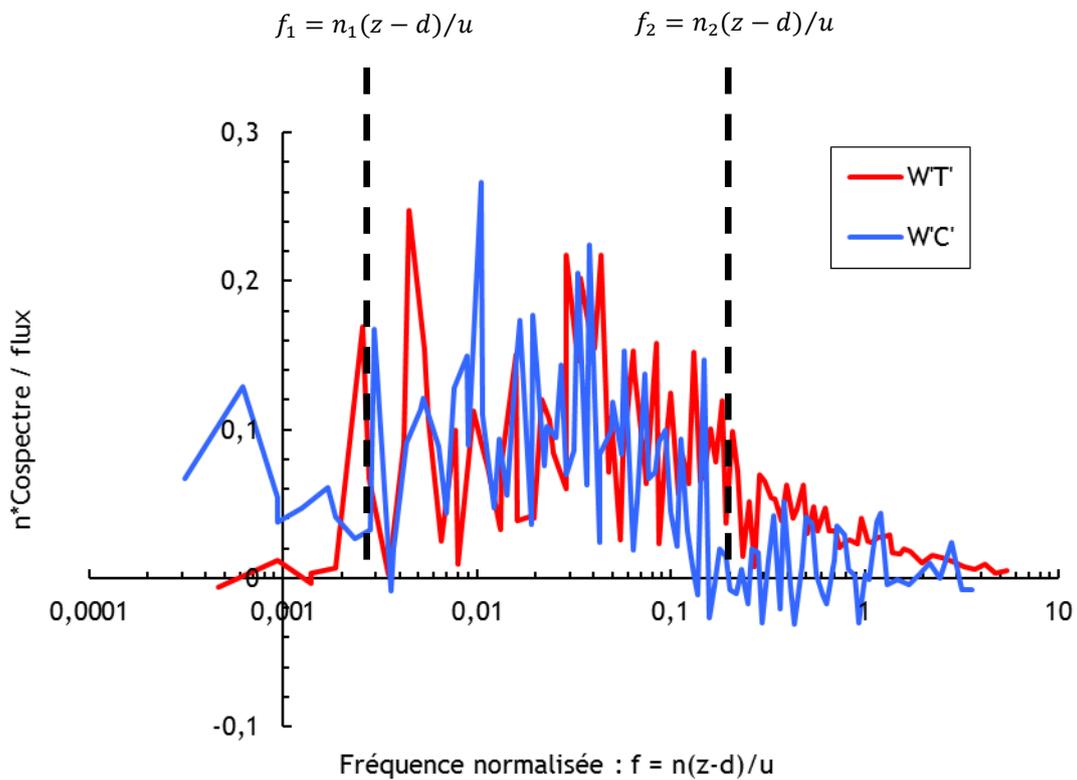


Figure 2.10 : Exemple de correction spectrale dans les hautes et basses fréquences du cospectre du flux vertical d'aérosols

La correction appliquée est calculée à partir du flux de chaleur sensible qui n'est pas perturbé en haute et basse fréquences, soit :

$$correction = \frac{\int_{n_1}^{n_0} Co_{w'T'} dn}{F_{wT}} + \frac{\int_{n_f}^{n_2} Co_{w'T'} dn}{F_{wT}} \quad \text{Équation 2.11}$$

Et finalement le flux vertical de particules corrigé est :

$$F_{corrigé} = \int_{n_1}^{n_2} Co_{w'c'}(n) dn + \frac{1}{1 - correction} \quad \text{Équation 2.12}$$

Dans la majorité des cas les corrections spectrales en basses fréquences sont au maximum de 30 % et les corrections spectrales en hautes fréquences au maximum de 20 % ce qui permet de garder un cospectre non perturbé de 50 % du cospectre total.

Cette méthode a été utilisée pour l'analyse au cours de cette thèse de plus de 19000 spectres.

2.1.2.2.2 Correction du bruit dues à l'électronique des appareils

Les pics de concentrations et de vitesse verticale du vent, se caractérisent généralement par des fluctuations de grande amplitude de courte durée pouvant résulter d'un bruit souvent dû à l'électronique des appareils utilisés (Brock, 1986). Le contrôle de la qualité devrait inclure

l'identification et le retrait des pointes. Par exemple, les pics, lors de la corrélation de la température et de la vitesse verticale, peuvent créer artificiellement du flux sur le flux de chaleur calculé sensible. Lorsque le nombre de pics devient grand, toute la période de données devrait être considérée comme suspecte et rejetée. L'effet de la collecte d'eau sur les transducteurs de certains anémomètres à ultrasons apparaît souvent comme des pics. Ainsi les fluctuations dont la hauteur est supérieure à 3 fois la déviation standard, et dont la largeur est supérieure à quatre points, est remplacée par l'interpolation linéaire entre le point précédent et le point suivant (Vickers & Mahrt, 1997).

2.1.2.2.3 Intégrale turbulente

Pour vérifier si les mesures des flux, à un point de mesure éloigné du sol, sont représentatives des échanges dans l'ensemble de la surface, l'écart type de la vitesse verticale du vent, normée à la vitesse de frottement, est comparée avec un modèle empirique dépendant de la stratification ((Foken & Wichura, 1996) par l'intermédiaire de la vitesse de frottement du vent et de la longueur de Monin-Obukhov.

$$\frac{\sigma_w}{u^*} = C_1 \left(\frac{z}{L}\right)^{C_2} \quad \text{Équation 2.13}$$

Les constantes c_1 et c_2 sont donnés dans le Tableau 2.1.

Tableau 2.1 : Paramètre de la modélisation de $\frac{\sigma_w}{u^*}$ suivant les conditions atmosphérique (Foken *et al.*, 2004).

| Paramètre | z/L | C_1 | C_2 |
|------------------------|------------------------|-------|-------|
| $\frac{\sigma_w}{u^*}$ | $1 > z/L > 0,032$ | 2 | 1/8 |
| | $0,032 > z/L > -0,032$ | 1,3 | 0 |
| | $-0,032 > z/L > -1$ | 2 | 1/8 |

Si la différence entre les mesures et le modèle est supérieure à 30 %, les données sont rejetées. Ce modèle empirique est basé sur la similarité entre le flux et la variance (Flux-variance similar). Il s'agit d'une déclinaison de l'équation générale de l'énergie cinétique turbulente permettant d'exprimer dans la couche de surface les écarts types normalisés suivant les cas de stabilités atmosphérique. Les mesures pour établir ces lois empiriques sont faites à partir de mesures des fluctuations par des anémomètres disposés à différents hauteurs dans la couche de surfaces et au-dessus d'un terrain horizontalement homogène (Pal Arya, 2001).

2.1.2.2.4 Stationnarité

Classiquement, la méthode de mesure par corrélation turbulente requiert que les séries soient stationnaires sur la durée de l'échantillonnage (30 minutes). Foken and Wichura (1996) montrent que ce critère est satisfait lorsque la différence entre le calcul du flux sur 30 minutes et la moyenne de six calculs de flux sur des segments de 5 minutes est inférieure à 30 %.

$$St = \frac{\sum \overline{C_{5 \text{ min}}}}{C_{30 \text{ min}}} \quad \text{Équation 2.14}$$

Avec St la stationnarité, $\overline{C_{5 \text{ min}}}$ la concentration moyenne en particules pendant un segment de 5 min et $C_{30 \text{ min}}$ la concentration moyenne les 30 min de prélèvement.

2.1.2.2.5 Correction de Webb

Les flux de particules turbulentes, mesurés par la méthode des corrélations turbulentes utilisées ici, sont soumis à l'influence des fluctuations de la densité de l'air liées aux fluctuations de la température et de la concentration de vapeur d'eau. Par conséquent, il est nécessaire d'appliquer la correction proposée par Webb *et al.* (1980) :

$$\frac{\Delta F}{F} = -\mu \frac{1}{V_d \rho_a} \overline{w' \rho_v'} + (1 + \mu \sigma) \left(\frac{-1}{V_d} \right) \left(\frac{w' T'}{T} \right) \quad \text{Équation 2.15}$$

Avec $\mu = \frac{M_a}{M_v}$ est le rapport entre les masses molaires de l'air sec et de la vapeur d'eau, ρ_a la densité de l'air sec, $\overline{w' \rho_v'}$ le flux de vapeur d'eau, et $\sigma = \frac{\overline{\rho_v}}{\rho_a}$.

Rannik *et al.* (1997) ont montré que pour les mesures utilisant des analyseurs à voie fermée, les fluctuations de température sont négligeables. Et donc l'Équation 2.15 devient :

$$\frac{\Delta F}{F} = -\mu \frac{1}{V_d \rho_a} \overline{w' \rho_v'} \quad \text{Équation 2.16}$$

2.1.2.3 Mesure de la concentration en particules

La méthode corrélation turbulente avec correction spectrale demande donc de faire des mesures de concentration en particules et de la vitesse verticale du vent.

2.1.2.3.1 Gamme de 2,5 nm – 14 nm : méthode twin CNC

La méthode twin CNC consiste en un couplage de deux compteurs à noyaux de condensation. Un compteur à noyaux de condensation à flux continu (CNC) permet de mesurer des particules de taille inférieure ou égale à 0,1 μm souvent dénommées "noyaux de condensation nuageuse ou noyaux "d'Aitken" qui ne peuvent pas directement être détectées par absorption ou diffusion de lumière. On utilise la capacité de ces particules à grossir par condensation d'une vapeur sur leur surface pour

ensuite les détecter par une méthode optique. Le grossissement est de l'ordre de quelques microns. Le schéma principe d'un compteur à noyaux de condensation est présenté sur la Figure 2.11.

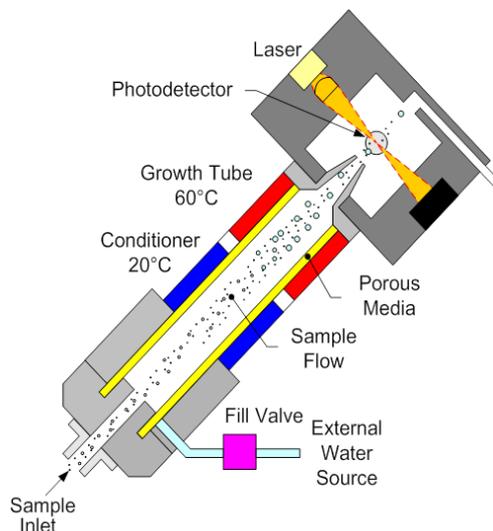


Figure 2.11 : Principe d'un compteur à noyaux à condensation (TSI, Inc, 2014).

La méthode twin CNC (Held & Klemm, 2006) a été utilisée lors des 4 campagnes de 2015 à 2016, pour mesurer les flux par EC d'ultrafines particules : de 2,5 à 14 nm. Pour la première campagne, un couplage d'un CNC 3786, de temps de réponse inférieur à 2 s (TSI, Inc, 2005), avec un CNC 3788, dont le temps de réponse est inférieur à 100 ms, (TSI, Inc, 2012) a été utilisé. A partir de la seconde campagne, un couplage de deux CNC 3788 (Figure 2.12) a été utilisé. La taille de particule minimale détectable du compteur est généralement définie comme le plus petit diamètre de particules détectées avec une efficacité de 50 %. Ce diamètre pour le CNC 3788 est de 2,5 nm.



Figure 2.12 : Compteur à noyaux de condensation CNC 3788 (TSI)

Afin d'obtenir une concentration pour une gamme granulométrique de 2,5 à 14 nm, une grille de diffusion (TSI ; Model 376060 ; paragraphe 2.1.1.3) est placée à l'entrée d'un compteur 3788,

fonctionnant avec un débit de 1,5 L.min⁻¹, et permet d'échantillonner les particules au-dessus de 14 nm (voir paragraphe 2.1.1.3; Cheng and Yeh 1980). La gamme de concentration voulue sera donc obtenue ensuite en faisant la différence de mesures de concentration des deux CNC.

2.1.2.3.2 Gamme de 14 nm – 1.23 µm : granulomètre ELPI

Pour la gamme granulométrique entre 14 nm et 1,23 µm nous avons utilisé un impacteur à basse pression à détection électrique de type ELPI (Electrical Low Pressure Impactor, Dekati Inc.) (Figure 2.13) couplé à un anémomètre ultrasonique (Voir paragraphe 2.1.2.4), pour la mesure du flux vertical de l'aérosol atmosphériques en fonction de sa taille suivi d'une correction spectrale a été développée par Damay *et al.* (2009) et Damay (2010) et mise en œuvre durant les quatre campagnes expérimentales (voir chapitre 3).



Figure 2.13 : Electrical Low Pressure Impactor (Dekati Inc.).

Dans un premier temps les aérosols sont chargés par effet couronne réalisé par un chargeur (+5kV) suivi d'un piège à ions servant à exclure du flux les ions positifs en excès. Le diamètre aérodynamique des particules est obtenu par classification inertielle au moyen d'une rampe d'impacteurs montés en cascade (Figure 2.14) et fonctionnant à basse pression. La concentration est calculée à partir de la mesure de la charge électrique portée par les particules déposées sur chaque plateau d'impaction. L'efficacité de la loi de charge est fournie par le constructeur et est définie en fonction du diamètre des particules (Moisio, 1999). Signalons que la loi de charges dépend du débit d'aspiration de l'appareil, ce dernier est étalonné par le fabricant pour chaque appareil.

Le granulomètre ELPI permet de mesurer la concentration particulaire pour 12 classes de taille. Le résultat obtenu est la distribution granulométrique de l'aérosol atmosphérique en fonction du diamètre aérodynamique (Voir paragraphe pour la définition du diamètre aérodynamique). Le spectre couvert s'étend de 7 nm à 10 µm (en configuration "electrical filter stage").

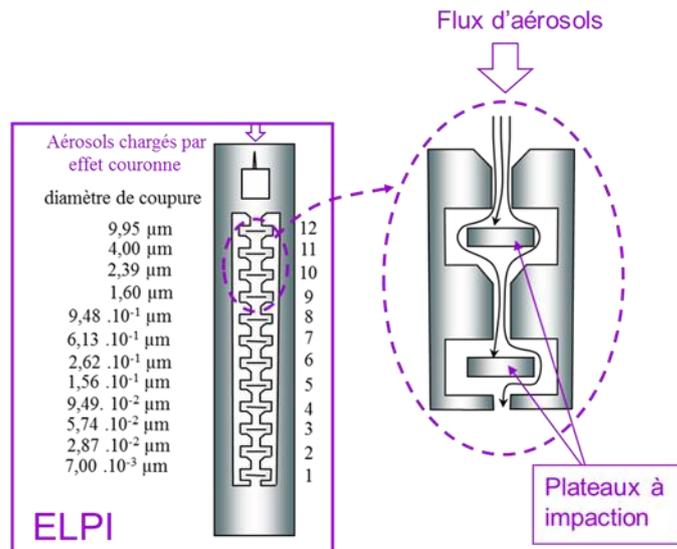


Figure 2.14 : Schéma du principe de fonctionnement de l'ELPI (les diamètres correspondent aux diamètres de coupure de chaque plateau).

La correspondance entre les étages et le diamètre de coupure des particules est donnée Tableau 2.2.

Tableau 2.2: Equivalence entre le numéro des étages et le diamètre aérodynamique.

| Etage | Diamètre aérodynamique, moyenne géométrique (μm) |
|-------|---|
| 1 | 0,014 |
| 2 | 0,041 |
| 3 | 0,074 |
| 4 | 0,122 |
| 5 | 0,202 |
| 6 | 0,316 |
| 7 | 0,484 |
| 8 | 0,762 |
| 9 | 1,230 |
| 10 | 1,960 |
| 11 | 3,090 |
| 12 | 6,310 |

La meilleure configuration pour les mesures par corrélation turbulente dans l'environnement est un réglage de sensibilité de l'ELPI de 100000 fA (Damay 2010). Dans cette configuration le temps de réponse de l'ELPI est de 1,6 secondes. Au niveau des concentrations, les limites de détection pour les trois derniers étages, sont rarement atteintes et ces trois étages ne seront donc pas pris en compte ici.

2.1.2.4 *Mesure de la vitesse verticale du vent*

L'anémomètre ultrasonique (Young 81000, Inc.) emploie des sondes acoustiques à la fois émettrices et réceptrices pour mesurer les temps de trajets (t_1 et t_2) entre deux sondes espacées d'une longueur L (Figure 2.15). Les temps de trajets peuvent s'exprimer de la façon suivante :

$$t_1 = \frac{L}{c+v} \text{ et } t_2 = \frac{L}{c-v} \quad \text{Équation 2.17}$$

Connaissant t_1 et t_2 , on en déduit v , une composante de la vitesse du vent (voir chapitre 1.1.1) et la vitesse de propagation du son dans l'air C par :

$$C = \frac{L}{2} \left(\frac{1}{t_1} + \frac{1}{t_2} \right) \text{ et } v = \frac{L}{2} \left(\frac{1}{t_1} - \frac{1}{t_2} \right) \quad \text{Équation 2.18}$$

Le signal se propage à la vitesse du son, la durée du trajet dépend du sens de la propagation par rapport au sens du vent. La vitesse est donc une vitesse moyenne obtenue sur le volume contenu entre les sondes acoustiques lorsqu'un cycle complet a été effectué (transmission et réception dans les six directions). Les trois paires de sondes acoustiques permettent ainsi de mesurer les trois composantes du vent. La distance entre les sondes est comprise entre 10 et 20 cm pour la plupart des anémomètres ultrasoniques et la vitesse du son dans l'air est environ égale à 300 m.s^{-1} , la mesure peut donc être considérée comme étant instantanée et peut ainsi être répétée à hautes fréquences.

De plus la vitesse du son dépend de la densité de l'air, qui est principalement influencée par la température. A partir du calcul de la vitesse du son dans l'air, l'anémomètre peut délivrer à haute fréquence une température proche de la température de l'air.

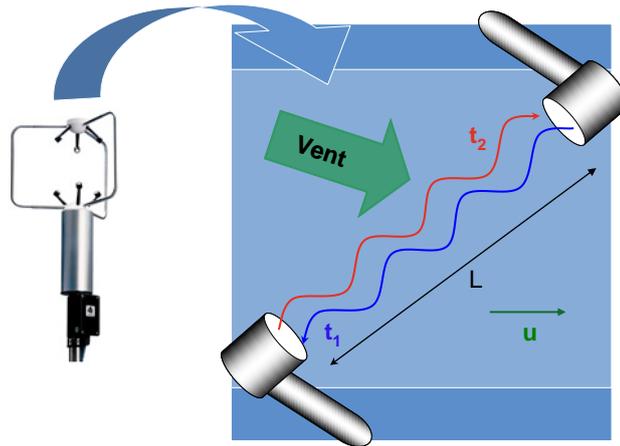


Figure 2.15 : Schéma du système de mesure de l'anémomètre à ultrasons.

2.1.3 Particules de 0,6 μm : méthode par traçage du dépôt en utilisant de la fluorescéine

La technique mise au point au LRC permet de déterminer les vitesses de dépôt sec des aérosols, à partir de fluorescéine (uranine sodée). Les différentes étapes de traitement et les moyens utilisés pour cette méthode sont regroupés dans la Figure 2.16. Le paragraphe permettra de détailler ces différentes étapes de traitement.

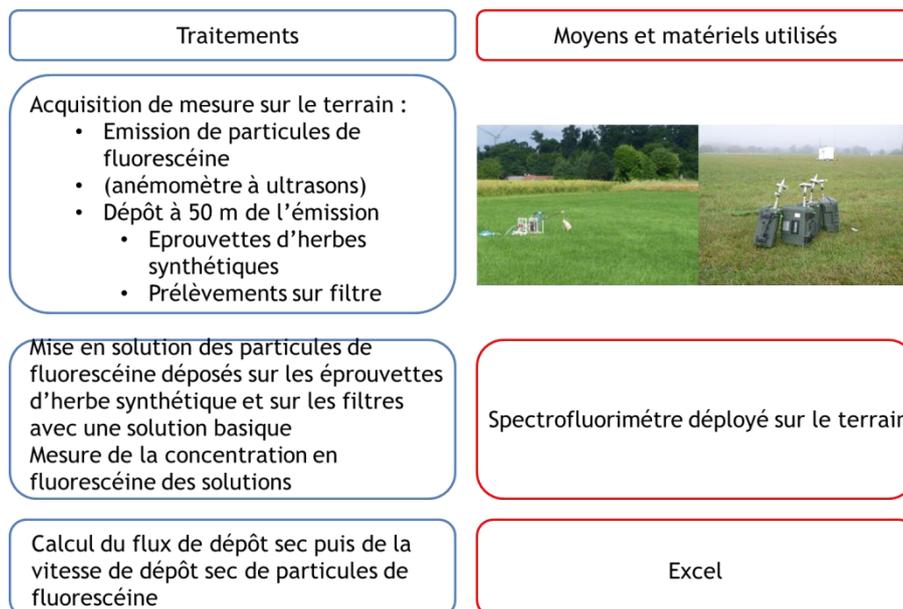


Figure 2.16 : Traitements et moyens utilisés pour obtenir les flux de particules puis les vitesses de dépôt sec dépôt direct de particules de fluorescéine.

La fluorescéine est émise sous forme d'aérosols secs faiblement polydispersés vers des éprouvettes d'herbe synthétique de $4 \times 10^{-2} \text{ m}^2$ (20 cm x 20 cm) ainsi que des prélèvements sur filtre qui sont disposés dans le panache de particules de fluorescéine (Figure 2.17) à environ 50 m de l'émission.

L'herbe synthétique présente l'avantage d'avoir des caractéristiques géométriques facilement reproductibles et un bruit de fond fluorescent plus bas que l'herbe naturelle.

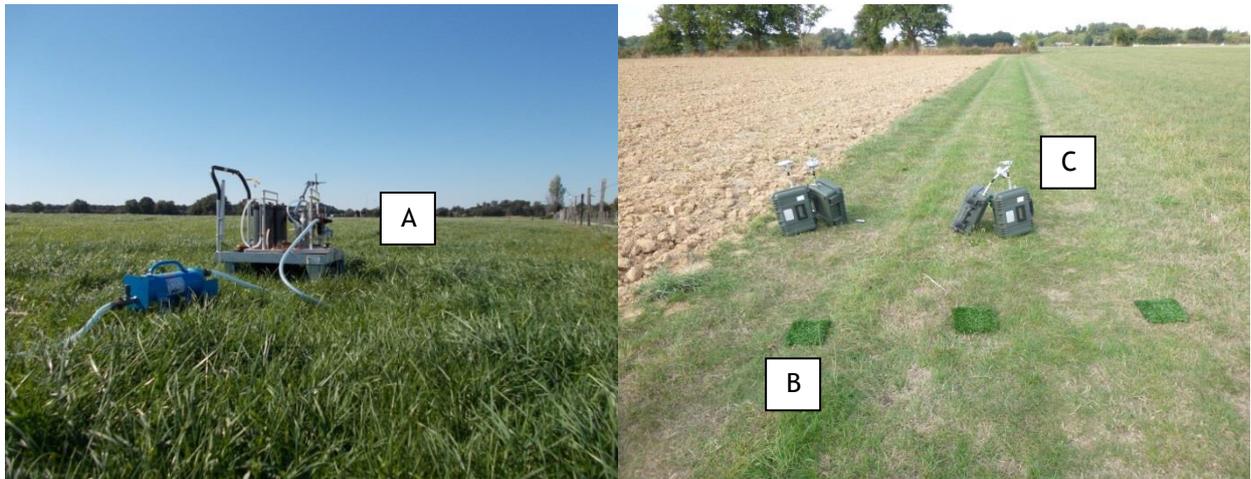


Figure 2.17 : Dispositifs utilisés pour la mesure de vitesse de dépôt sec de particules de fluorescéine, A : générateur de fluorescéine ; B : éprouvettes d'herbes synthétique ; C : prélèvements sur filtre.

Les aérosols sont émis par un générateur de fluorescéine à fonctionnement pneumatique (GTCN THE 28, SETRA) émettant des aérosols de diamètre aérodynamique médian en masse de $0,6 \mu\text{m}$ faiblement polydispersés (écart type géométrique : 1,3), dont le schéma de principe est présenté Figure 2.18.

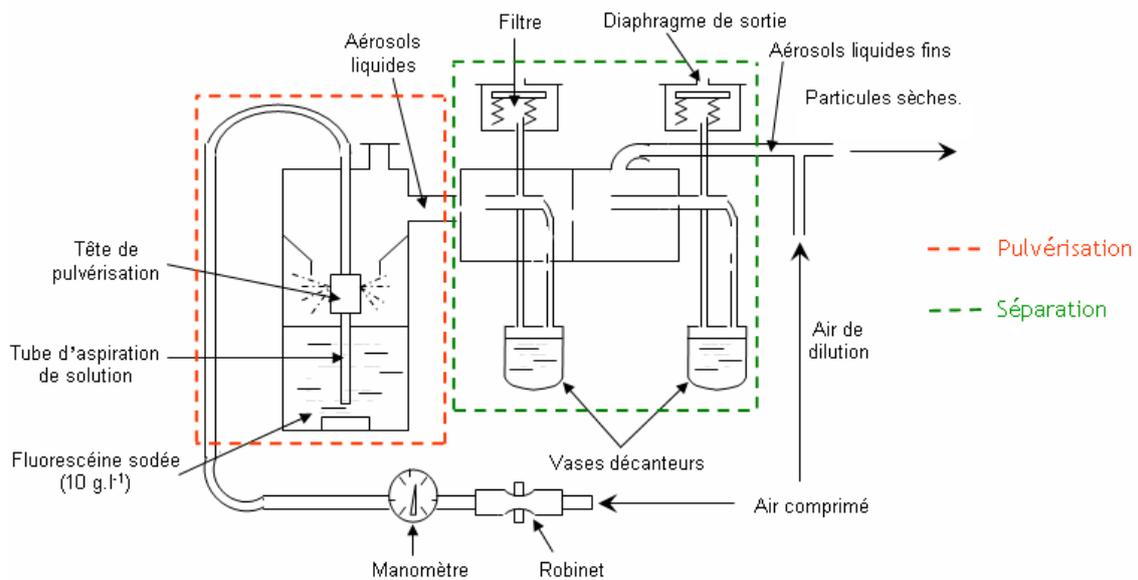


Figure 2.18 : Principe de la génération de fluorescéine par pulvérisation (d'après Nérissou, 2008).

Les fractions de fluorescéine déposée sur l'herbe et sur les filtres sont mesurées par spectrophotomètre UV (Horiba Fluormax). La longueur d'onde d'excitation est fixée à 490 nm, et la mesure de l'émission est effectuée à 512 nm. Les filtres sont coupés en morceaux, immergés dans une solution d'ammoniacque à pH = 9, et agités mécaniquement durant 20 minutes. Ce pH permet une meilleure stabilité de la mesure de la fluorescence. Les solutions de lavage sont filtrées à 0,45 µm avant de procéder à la mesure par spectrophotométrie (Figure 2.19).



Figure 2.19 : Mesure de la concentration en fluorescéine par spectrofluorimétrie.

La vitesse de dépôt ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) est alors calculée en faisant le rapport entre le flux de dépôt sec sur le substrat ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) et la concentration atmosphérique au niveau des filtres ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$).

2.2 Emission de particules primaire de type bactéries

2.2.1 Mesure de la vitesse de transfert vertical par la méthode du gradient avec un impacteur Andersen 1 étage

Les flux de bactéries sont déterminés par la méthode du gradient, détaillée dans le paragraphe 1.3.3.2.1. Les prochains paragraphes vont détailler la méthode employée pour obtenir la concentration en bactéries dans l'atmosphère. Très peu de mesures de flux de bioaérosols par cette méthode ont été effectuées. Lighthart and Shaffer (1994) ont utilisé des impacteurs Andersen pour mesurer les flux de bactéries par la méthode du gradient. Il a donc été choisi d'utiliser la méthode du gradient, avec cet impacteur, rapide et simple à mettre en place sur des campagnes de terrains.

Les impacteurs utilisent l'inertie d'une particule pour les collecter. L'échantillon d'air est passé à travers un ensemble de buses qui canalise un jet d'air chargé de particules vers une boîte de Pétri contenant un milieu de culture gélosé (Figure 2.20), qui est perpendiculaire à la sortie de la buse.

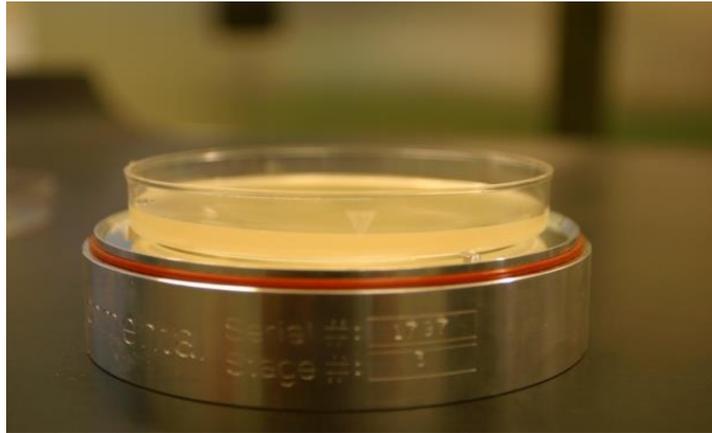


Figure 2.20 : Boîte de Pétri contenant le milieu de culture gélosé placée sur le plateau de l'impacteur Andersen 1 étage.

L'impacteur Andersen 1 étage (Figure 2.21) a un diamètre de coupure de $0,65 \mu\text{m}$ avec un débit de fonctionnement de $28,3 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ et un volume de gélose de 41 mL, (Andersen, 1958; Robine, 1999).



Figure 2.21 : Impacteur Andersen 1 étage.

Il y a cependant une correction à effectuer car plusieurs bioaérosols peuvent passer par le même orifice du plateau et venir s'impacter au même endroit sur la gélose et ne formeront dans ce cas qu'une seule colonie. Ainsi Andersen (1958) a évalué ce phénomène et a regroupé les corrections effectuées dans un tableau (voir annexe 1). Les corrections de tous les résultats présents dans ce rapport ont été effectuées avec ces données. Une fois impactées, les bactéries doivent être dénombrées. La méthode de quantification sur milieu de culture présente l'avantage de pouvoir sélectionner des espèces microbiennes selon le milieu de culture sur lequel l'échantillon est analysé. C'est également un moyen d'analyse peu coûteux.

2.2.2 Chambre de sédimentation

Afin de vérifier la taille des bactéries dans l'atmosphère, une méthode a été développée en suivant les travaux de Boulaud *et al.* (1983) et mise en œuvre durant DEPECHEMOD 4. L'impaction peut conduire à la décomposition des agrégats (Sehmel, 1980a). Cette méthode est basée sur l'étude de la sédimentation et permet donc, au contraire d'un impacteur, un échantillonnage doux. Dès lors, si les bactéries sont présentes sous formes d'agrégats dans l'atmosphère ou fixées sur des fragments de végétaux ou encore sur de grosses particules supermicroniques, ces derniers ne seront pas déstructurés. En effet, pour cette taille de particules (196 - 6 μm), en présence d'un écoulement laminaire, sans forces électriques, sans gradient de température et sans condensation, le dépôt est principalement piloté par la sédimentation. La vitesse de sédimentation est très bien documentée et va donc permettre de relier une vitesse de sédimentation à une taille de particules. Le principe de la chambre de sédimentation est présenté sur la Figure 2.22.

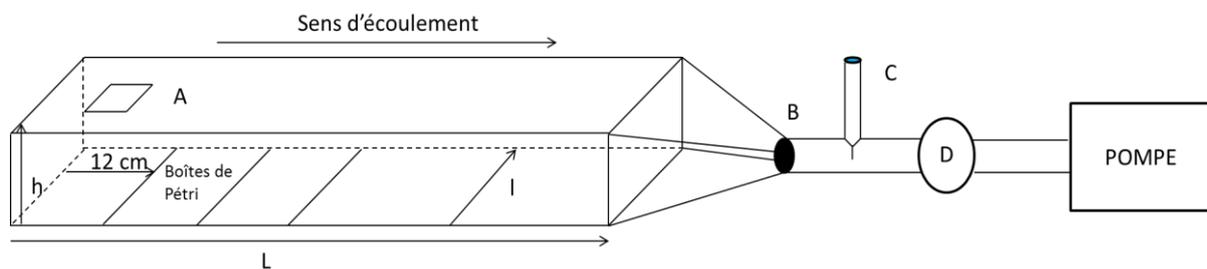


Figure 2.22 : Schéma de la chambre de sédimentation pour la mesure de la granulométrie des bactéries. A : entrée des bioaérosols ; B : filtre de nitrate de cellulose ; C : fil chaud ; D : débitmètre.

On impose donc à l'intérieur de la chambre de sédimentation un écoulement laminaire afin de s'affranchir de tout effet de diffusion ou d'impaction turbulente. L'écoulement laminaire est unidirectionnel et imposé à $2 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$. Cette vitesse est mesurée grâce à un fil chaud et reliée à un débit mesuré par un débitmètre. Pour obtenir un spectre granulométrique permettant d'obtenir une discrétisation des tailles qui nous intéressent ici, la chambre a une longueur L de 120 cm, une hauteur h de 5 cm et une largeur l de 12 cm. Afin de quantifier la présence ou non de bioaérosols sous forme de bactérie pour une taille donnée, 12 boîtes de Pétri carrée (12 cm \times 12 cm) contenant du milieu gélosé avec de l'antifongique (voir paragraphe 2.2.3) sont disposées dans la chambre de sédimentation (Figure 2.23).

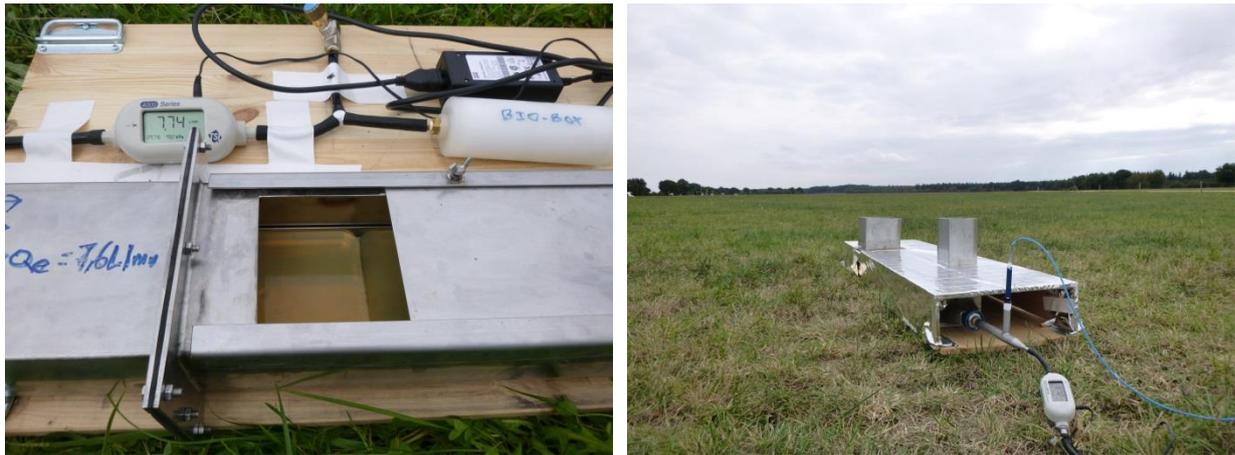


Figure 2.23 : Chambre de sédimentation déployée sur le terrain pour la mesure de la granulométrie des bactéries.

Un filtre de nitrate de cellulose permettant la culture des microorganismes est placé à la fin de la chambre de sédimentation afin de quantifier les plus petits bioaérosols. Le chargement et le déchargement des boîtes de Pétri ainsi que le filtre sont effectués sous un Poste de Sécurité Microbiologique (PSM) afin de s'affranchir de toute contamination. Enfin une couverture d'isolant thermique est placée sur la chambre de sédimentation pour s'affranchir de tous les phénomènes de convection pouvant perturber la sédimentation.

On introduit les temps caractéristiques de convection à travers la chambre (t_c) et de sédimentation dans la chambre (t_s) :

$$t_c = \frac{L}{u} \text{ et } t_s = \frac{h}{v_s} \quad \text{Équation 2.19}$$

Avec u la vitesse d'écoulement (ici $2 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$) et v_s la vitesse de sédimentation (définie au chapitre 1).

Pour que l'efficacité théorique de dépôt soit de 100 %, il faut que t_c et t_s soient égaux et donc il vient que pour une efficacité de 100 % :

$$\frac{L}{u} = \frac{h}{v_s} \quad \text{Équation 2.20}$$

L'Équation 2.20 permet donc d'obtenir une vitesse de sédimentation (v_s) correspondant à la distance parcourue par les particules à travers la chambre de sédimentation (Figure 2.24). Cette vitesse de sédimentation est donc ensuite reliée à un diamètre (paragraphe 1.3.2.1).

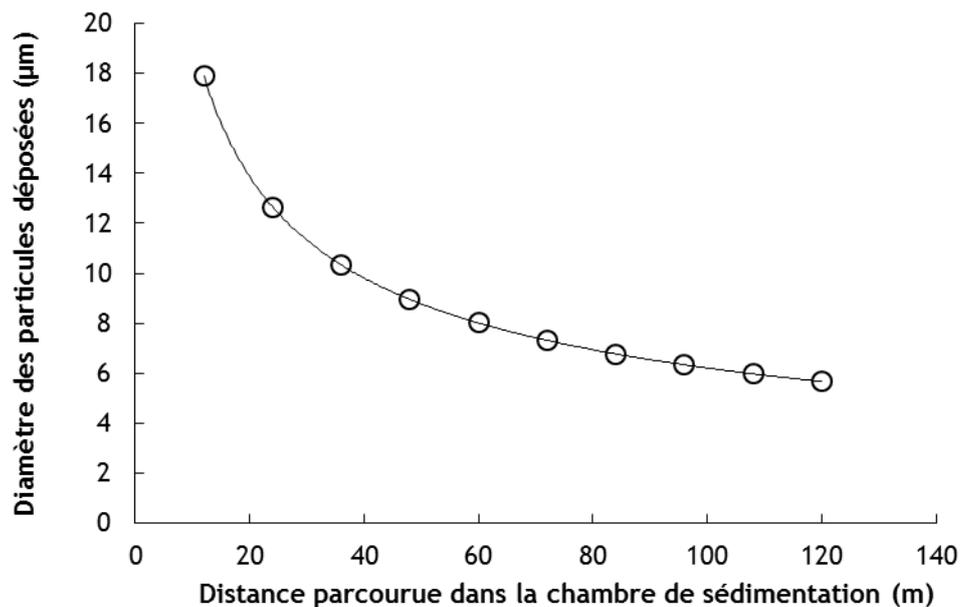


Figure 2.24 : Taille des particules déposées en fonction de la distance parcourue dans la chambre de sédimentation

Ainsi une gamme granulométrique peut être obtenue pour chaque boîte de Pétri. Elles sont reportées dans le Tableau 2.3.

Tableau 2.3 : Distribution granulométrique des bactéries prélevées suivant les différentes boîtes de Pétri.

| Numéro de boîte de Pétri (longueur dans la chambre) | Gamme granulométrique des aérosols prélevés |
|---|---|
| 1 (0-12 cm) | ∞ -18 µm |
| 2 (12-24 cm) | 18-13 µm |
| 3 (24-36 cm) | 13-10 µm |
| 4 (36-48 cm) | 10-9 µm |
| 5 (48-60 cm) | 9-8 µm |
| 6 (60-72 cm) | 8-7 µm |
| 7 (72-84 cm) | 7,3-6,8 µm |
| 8 (84-96 cm) | 6,8-6,4 µm |
| 9 (96-108 cm) | 6,4-6 µm |
| 10 (108-120 cm) | 6-5,7 µm |
| Filtre | <5,7 µm |

2.2.3 Milieu de culture et température d'incubation

Le milieu choisi est le milieu Luria Bertani (LB) utilisé par Lighthart and Shaffer (1994) et qui permet d'échantillonner la totalité des bactéries sans spéciation, ce qui est en adéquation avec le but de cette thèse. Le milieu est préparé en mettant en solution dans de l'eau distillée :

- 15 g d'agar-agar ;
- 20 g de LB broth.

La solution est ensuite stérilisée par autoclavage à 121 °C pendant 20 min.

Cependant, certains champignons et levures peuvent se développer sur ce milieu de culture (Figure 2.25) et sont reconnaissables par leur aspect filamenteux. Ainsi, l'ajout du fongicide Amphotéricin B empêche le développement de la majorité champignons sur le milieu de culture (Venegas *et al.*, 2003). Pour cela 1 mL de solution à 2,5 mg/mL stérilisée par filtration d'Amphotéricin B est ajouté à 1 L de milieu de culture LB préalablement autoclavée.

Une fois le prélèvement effectué, la première étape qui mène à la quantification des bactéries est l'incubation. Cela consiste à mettre dans une enceinte thermostatée les boîtes de Pétri contenant les microbes impactés sur le milieu gélosé adéquat afin que les bactéries se développent plus rapidement et d'effectuer ensuite un comptage des Unités Formant Colonie (UFC). Une colonie microbienne est un groupe de microorganismes vivant à la surface ou à l'intérieur d'un milieu de culture solide, généralement cultivée à partir d'une cellule unique. Pour la température d'incubation pour les bactéries, les articles donnent souvent des températures comprises entre 25 et 30 °C (Eller & Cassinelli, 1994; Lighthart & Shaffer, 1994). Le temps d'incubation est intimement lié à la vitesse de croissance des colonies, ainsi, afin de limiter le temps d'incubation pour rendre plus pratique les manipulations de terrains, la température de 30°C est choisie.

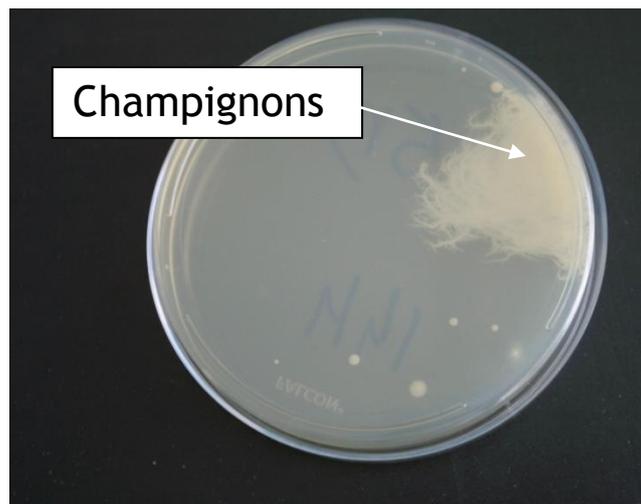


Figure 2.25 : Boîte de Pétri après incubation contenant des champignons.

2.2.4 Comptage des UFC

La quantification des microorganismes sur un milieu de culture sur boîte de Pétri est aujourd'hui la méthode la plus largement utilisée pour l'étude des microorganismes (paragraphe 1.4.5.1). De plus, cette méthode est facile à mettre en place et donc très adaptable sur des campagnes de terrain. Elle consiste, dans notre cas, à dénombrer après un certain temps d'incubation à une température fixée, les cellules vivantes ayant la capacité de se développer pour former des colonies (Figure 2.26). Ce nombre de colonies compté est ensuite ramené au volume d'air prélevé et le résultat est donc exprimé en Unité Formant Colonie (UFC) par unité de volume ou de masse d'air prélevée.

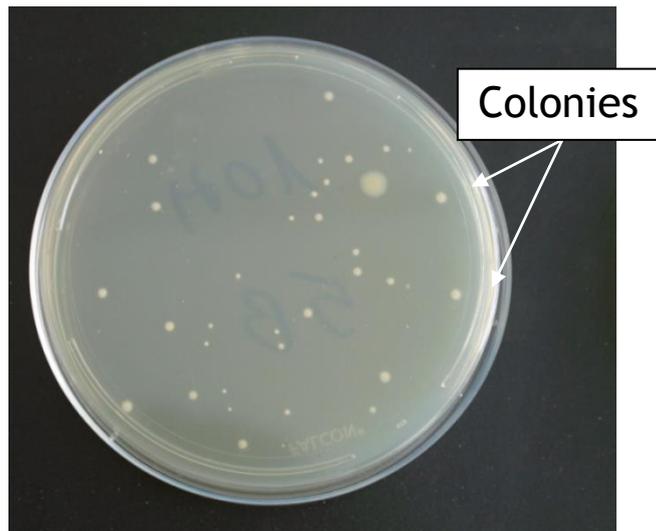


Figure 2.26 : Boîte de Pétri après incubation.

2.2.5 Incertitudes sur le comptage des UFC

La distribution de Poisson est la loi de probabilité décrivant les petites populations, ce qui est le cas pour les colonies microbiennes. Les microorganismes impactés sur les boîtes de Pétri sont répartis de façon aléatoire sur le milieu gélosé. De plus, les colonies n'exercent aucun effet les unes par rapport aux autres et donc conservent leur position initiale d'impaction. La distribution de Poisson permet alors d'estimer les incertitudes lors d'un comptage des UFC sur boîte de Pétri contenant un milieu gélosé (Niemelä, 2002).

L'incertitude sur le volume prélevé étant négligeable, l'incertitude sur la concentration C ($\text{UFC} \cdot \text{m}^{-3}$) sera donc exprimée :

$$C \pm \sqrt{C}$$

Équation 2.1

2.3 Conclusion

Dans ce chapitre, dans le souci d'implémenter les modèles de dépôt sec et d'obtenir une courbe de vitesses de dépôt sec en fonction de la taille des particules (pour la gamme granulométrique 1,5 nm

- 1,2 μm) nous avons décrit les différentes méthodes utilisées pour déterminer des vitesses de dépôt sec. La méthode du gradient a été utilisée pour quantifier la vitesse de dépôt sec de la fraction libre du ^{222}Rn . Ces particules très fines et très réactives (de l'ordre du nanomètre) sont issues de la conversion gaz-particules. Des mesures de dépôt par la méthode des corrélations turbulentes ont également été effectuées. Ainsi des vitesses de dépôt sec de particules $2,5 \text{ nm} < d_p < 14 \text{ nm}$ ont été déterminées grâce à des mesures de concentration en utilisant le couplage de deux CNC (3788 et 3786 TSI). Mais également pour les particules de 14 nm à 1,2 μm en utilisant un ELPI (DEKATI Inc.). La description de la méthode et du traitement des données a permis de lister l'ensemble des corrections et des tests de qualités nécessaires à la méthode ainsi que la façon dont ils ont été appliqués.

Enfin, afin de valider les mesures de dépôt sec faites par corrélation turbulente dans le mode accumulation (parfois peu nombreuse, voir paragraphe 1.2.2), une méthode par traçage du dépôt a été mise en œuvre, en utilisant des particules de fluorescéine faiblement polydispersées de 0,6 μm .

Concernant le processus d'émission des bioaérosols, la méthode du gradient a également été utilisée. Cependant les concentrations en bioaérosols ont été quantifiées grâce à des bioimpacteurs Andersen et un dénombrement des unités formant colonie a été effectué. Un flux de bioaérosols en sera déduit et des vitesses de transfert vertical (termes regroupant à la fois vitesse de dépôt et vitesse d'émission) seront déterminées. Ces observations permettront peut-être d'améliorer la compréhension des phénomènes de remise en suspension de radionucléides autour de Fukushima jusqu'à maintenant non expliqués.

Le prochain chapitre permettra de décrire le dispositif lors de quatre campagnes expérimentales ainsi que de décrire le site expérimental et de présenter les données brutes obtenues avec ces différentes méthodes.

3 CHAPITRE 3 : UTILISATION DES METHODES LORS DE CAMPAGNES EXPERIMENTALES *IN SITU* SUR COUVERT PRAIRIAL

Ce chapitre détaille l'application *in situ* des méthodes décrites du Chapitre 2. Il s'organise en quatre parties retraçant les quatre campagnes réalisées entre avril 2015 et septembre 2016. Il s'agit d'un inventaire des données permettant l'analyse la plus complète possible, c'est-à-dire : les données météorologiques, les données inhérentes à la concentration d'aérosols atmosphériques ainsi que les évolutions des vitesses de transfert vertical (regroupant à la fois les vitesses de dépôt et d'émission) mais également l'évolution en concentration de bioaérosols de type bactérie ainsi que l'évolution des vitesses de transfert vertical. Les mesures ont été réalisées en avril 2015 (DEPECHEMOD 1), septembre 2015 (DEPECHEMOD 2), juin 2016 (DEPECHEMOD 3) et septembre 2016 (DEPECHEMOD 4).

3.1 Description du site de mesure

Lors de ces 4 campagnes expérimentales, un dispositif expérimental a été déployé au centre d'une prairie (46°25.02'N, 0°7.08'E) du site de l'INRA de Lusignan (France). La prairie était localisée sur un terrain plat et constituée d'un mélange d'herbes *Dactylis glomerata* et de *Lolium perenne* (Figure 3.1).



Figure 3.1 : Site expérimentale pour les campagnes DEPECHEMOD.

La rugosité autour de ce site est identique dans un rayon de 500 m car c'est une prairie homogène. Cependant, pour les directions de vent entre $[0^\circ ; 20^\circ]$ et $[330^\circ ; 360^\circ]$ la présence de bâtiment peut engendrer une modification de la turbulence atmosphérique et donc de la vitesse de dépôt sec. Ainsi, toutes les données où le vent venait de cette direction n'ont pas été prises en compte dans cette étude.

Le Tableau 3.1 est un récapitulatif des différentes méthodes, présentées dans le chapitre 2, utilisées ou non lors des différentes campagnes expérimentales.

Tableau 3.1 : Récapitulatif des différentes méthodes utilisées lors des 4 campagnes expérimentales DEPECHEMOD.

| Détermination de la vitesse de dépôt sec | | | | | Documentation des processus d'émission et granulométrie des bactéries | |
|--|----------------------|---|-----------------------------------|-----------------------|---|--------------------------|
| | Particules de 1,5 nm | Particules de 2,5 nm à 14 nm : Twin CNC | Particules de 7 nm à 10 µm : ELPI | Particules de 0,6 µm | Gradient | Chambre de sédimentation |
| | Gradient | Corrélation turbulente | Corrélation turbulente | Dépôt de fluorescéine | | |
| DEPECHEMOD 1 | | x | x | | x | |
| DEPECHEMOD 2 | | x | x | | x | |
| DEPECHEMOD 3 | | x | x | x | x | |
| DEPECHEMOD 4 | x | x | x | x | x | x |

Les mesures sur le terrain imposent de mettre les différents appareils dans un abri climatisé à 17 °C pour éviter toute surchauffe. Le dispositif déployé sur le terrain est présenté sur la Figure 3.2. De plus, pour éviter tous biais le dispositif est orienté préférentiellement dans le sens du vent c'est-à-dire de façon à ce qu'aucun matériel (échafaudage, enceinte frigorifique) ne vienne perturber les anémomètres à ultrasons.

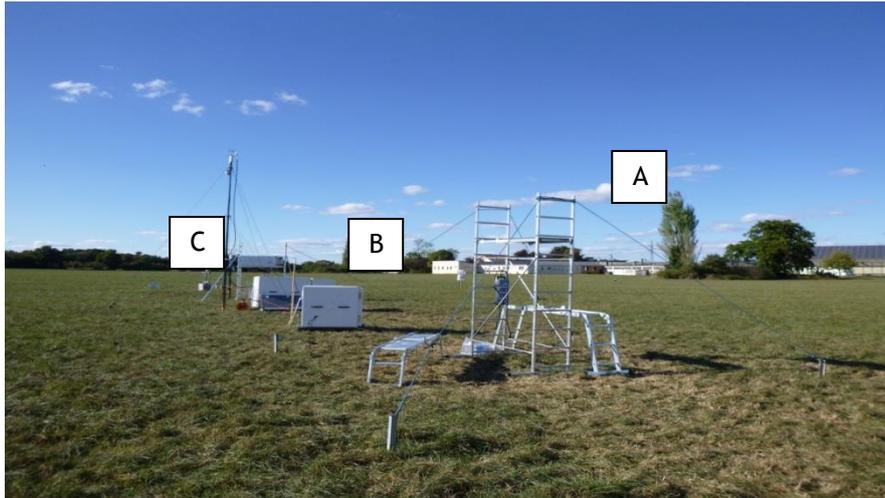


Figure 3.2 : Dispositif de base utilisée lors des différentes campagnes : A : échafaudage pour les mesures par la méthode du gradient, B et C : mesure par corrélation turbulente ELPI et twin CNC.

Un camion laboratoire est également déployé sur le terrain (Figure 3.3). Différents matériels comme la baie alpha, le PSM et l'incubateur, (voir chapitre 2) sont disposés dans ce dernier et permettent des analyses directes sur le terrain.



Figure 3.3 : Camion laboratoire déployé sur le terrain lors des campagnes DEPECHEMOD.

3.2 DEPECHEMOD 1

Cette campagne s'est déroulée du 22 au 30 avril 2015 sur la prairie de Lusignan d'environ 50 cm de haut. Cette hauteur de couvert permet de déterminer la longueur de rugosité ainsi que les

différentes classes de Pasquill (voir paragraphe 1.1.2). Les classes de stabilité sont ainsi résumées dans le Tableau 3.2. De plus, pour cette campagne, la prairie a été traitée avec des dérivés azotés de type nitrate une semaine avant la campagne.

Tableau 3.2 : Classe de stabilité pour la campagne DEPECHEMOD 1.

| DEPECHEMOD 1 | |
|----------------------|------------------------|
| $z_o = 5 \text{ cm}$ | |
| Instable | $1/L \leq -0,010$ |
| Neutre | $-0,010 < 1/L < 0,008$ |
| Stable | $0,008 \leq 1/L$ |

Les hauteurs (h) de mesure de différentes méthodes utilisées durant cette campagne sont données dans le Tableau 3.3. Pour des raisons de logistique la méthode twin CNC s'est effectuée avec deux CNC différents : un CNC 3786 (TSI Inc.) et un CNC 3788 (TSI Inc.). Le CNC 3786 à un temps de réponse électronique plus important (de l'ordre de 2s) que le CNC 3788, ainsi peu de valeur sont validés par la méthode par correction spectrale. Par la suite deux compteurs CNC 3788 seront utilisés.

Tableau 3.3 : Hauteur de mesures pour les différentes méthodes utilisées lors de DEPECHEMOD 1.

| | | |
|---------------------------------------|--|--|
| DEPECHEMOD 1 (22 au 30 avril 2015) | Dépôt par corrélation turbulente : Twin CNC | $z = 2 \text{ m}$ |
| | Dépôt par corrélation turbulente : ELPI | $z = 5 \text{ m}$ |
| | Emission de bactérie par la méthode du gradient | $z_{max} = 2 \text{ m}$ $z_{min} = 0,2 \text{ m}$ |

3.2.1 Paramètres micrométéorologiques

Les principaux paramètres micrométéorologiques de la campagne sont présentés sous la forme de moyenne sur 30 minutes, correspondant à l'échelle classique des variations atmosphériques (Held et Klemm, 2006). Ces résultats sont issus des mesures de l'anémomètre ultrasonique couplé à l'ELPI situé à une hauteur de 5 m.

Les directions moyennes de vent ont été principalement de sud-ouest (240°) du 23 avril au 27 avril et nord-ouest (320°) à partir du 27 avril. La partie grisée correspond aux valeurs exclues du fait de

la présence de bâtiment dans ces directions de vent. Le nombre de valeurs exclues correspond à 20 % du nombre total de valeurs obtenues durant cette campagne (Figure 3.4).

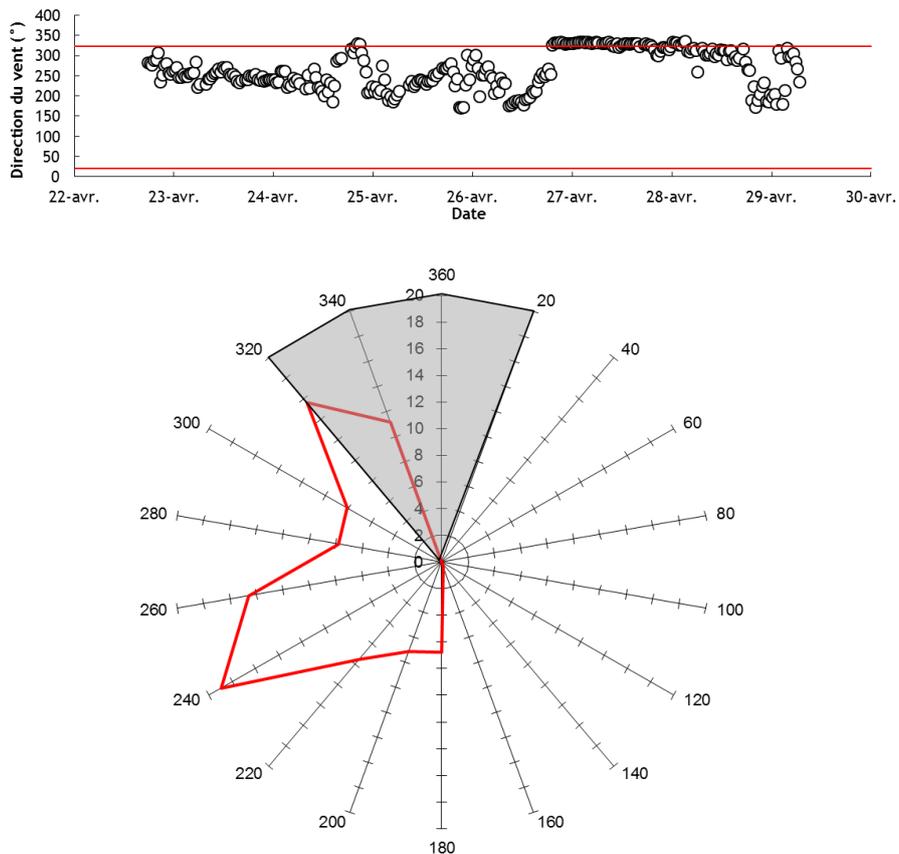


Figure 3.4 : Direction du vent lors de la campagne expérimentale DEPECHEMOD 1.

Les principaux paramètres micrométéorologiques : la vitesse du vent u , la vitesse de frottement du vent u^* (turbulence mécanique) ainsi que l'évolution de la température T , du flux de chaleur sensible H (turbulence thermique) et de l'inverse la longueur de Monin-Obhukov (L) sont regroupés dans la Figure 3.5. Les absences de données correspondent aux sauvegardes et à la maintenance (nettoyage de l'ELPI ; zéro des électromètres, etc...).

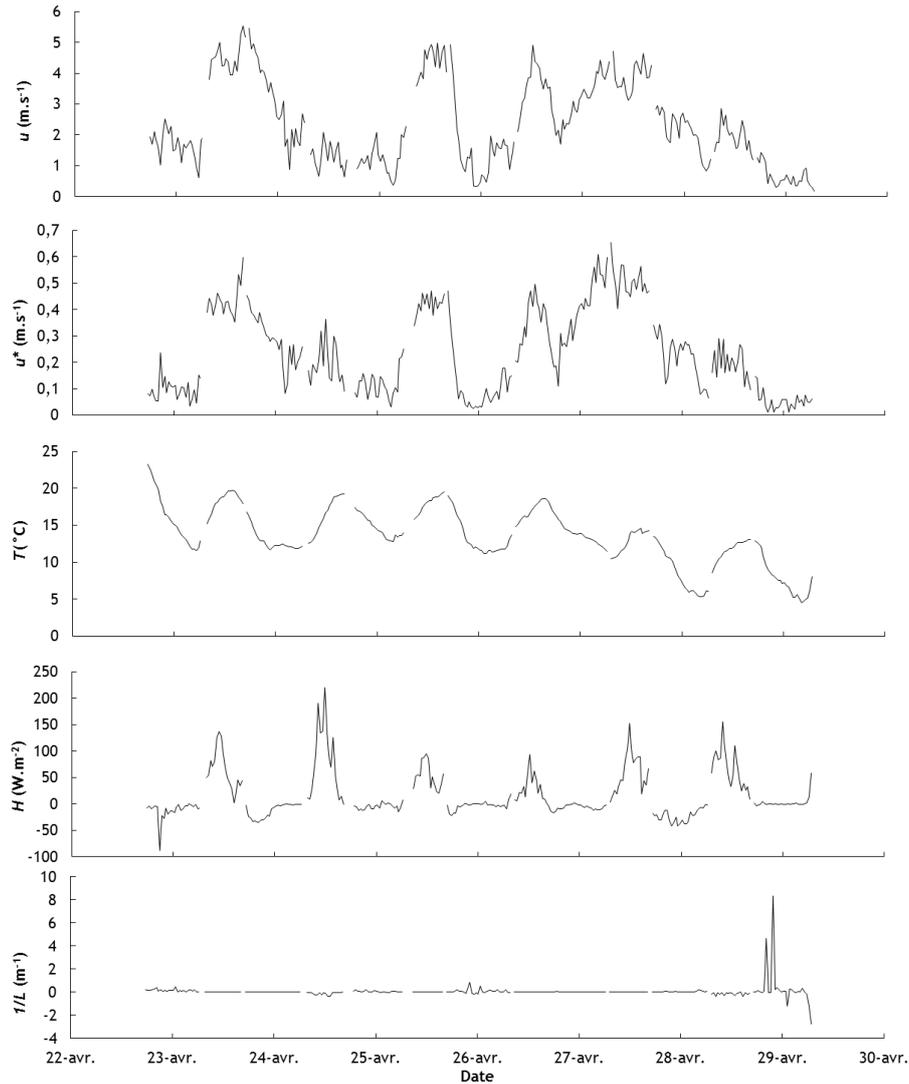


Figure 3.5 : Principaux paramètres micrométéorologiques durant la campagne DEPECHEMOD 1.

Lors de cette campagne la vitesse du vent u n'a jamais excédé 6 m.s^{-1} . Le vent est faible (environ 1 m.s^{-1}) pour les journées du 24 et du 29 avril. On reconnaît le cycle d'évolution diurne-nocturne à part pour la journée avec des valeurs faibles la nuit, entre 1 et 2 m.s^{-1} et des valeurs les plus importantes en milieu de journée de 5 à 6 m.s^{-1} . Cependant, le maximum est moins élevé pour la journée du 28 avril 2015 avec un maximum à environ 3 m.s^{-1} . De plus le cycle diurne est beaucoup moins marqué pour la journée précédente avec des vitesses de vent fortes, de l'ordre de 3 m.s^{-1} dans la nuit du 26 au 27 avril. La vitesse de frottement u^* suit la même évolution que u avec des maximums entre $0,6$ et $0,7 \text{ m.s}^{-1}$ et des minimums d'environ $0,1 \text{ m.s}^{-1}$ la nuit sauf pour la nuit du 26 au 27 avril avec des valeurs entre $0,3$ et $0,4 \text{ m.s}^{-1}$.

Concernant la température T , on reconnaît là aussi un cycle diurne-nocturne avec des valeurs quasi-similaire lors des 4 premiers jours (23, 24, 25 et 26 avril 2015) avec des maximums en milieu de journée à $20 \text{ }^\circ\text{C}$ et des minimums d'environ $12 \text{ }^\circ\text{C}$ la nuit. La température va ensuite diminuer le 27

et le 28 avril avec des maximums de 15 °C et des minimums de 5 °C. Concernant le flux de chaleur sensible H , il est faible la nuit et tend vers un pic autour de 100 W.m⁻² au milieu de la journée, avec des valeurs plus fortes le 24 avril 2015. Cette valeur plus forte est due à la présence de moins de nuage durant cette journée. On remarque également une inversion du flux de chaleur sensible au coucher du soleil avant de tendre vers 0 la nuit. En effet à cette période le sol devient plus froid que l'air ambiant d'où cette inversion de signe.

L'évolution de la stabilité de l'atmosphère est évaluée par l'inverse de la longueur de Monin-Obukhov. Sur la Figure 3.6 l'échelle est telle que seuls les épisodes de stabilité nocturne peuvent être identifiés. Elle permet de distinguer plus précisément les périodes de faibles stabilités ou instabilités vis-à-vis des périodes neutres, caractérisées par : $-0,010 < 1/L < 0,008$ et représentées par les pointillés bleues. Durant cette campagne DEPECHEMOD 1, il existe des phases de stabilité atmosphérique neutre au milieu des journées du 23, 25 et 27 avril 2015 et lors des nuits du 23 au 24 et du 26 au 27 avril. Des phases d'instabilité de l'atmosphère durant les journées du 24 et 28 avril 2015, tandis que les phases de stabilité sont présentes les nuits à part la nuit du 25 au 26 avril 2016.

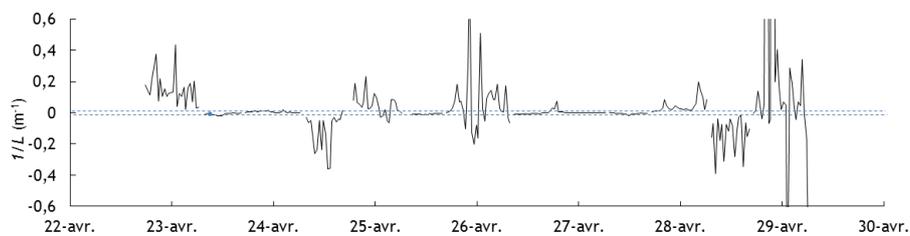


Figure 3.6 : Précision sur l'évolution de la stabilité atmosphérique durant la campagne DEPECHEMOD 1.

3.2.2 Quantification de la vitesse de dépôt sec : évolution de la vitesse de transfert vertical avec la méthode des corrélations turbulentes en utilisant l'aérosol atmosphérique (6 nm - 1,2 μm)

La méthode par corrélation turbulente est la méthode de base, utilisée lors de toutes les campagnes expérimentales de cette thèse, pour étudier les vitesses de dépôt sec. Le choix a été fait ici de donner uniquement l'évolution de la vitesse de transfert vertical au cours de toute la campagne, les résultats des mesures sont présentés en fonction du temps Figure 3.7, Figure 3.8, Figure 3.9, Figure 3.10 et Figure 3.11. Ces figures présentes à la fois les mesures faites par les étages ayant une concentration suffisamment élevée pour être au-dessus de la limite de détection du granulomètre ELPI (14-1,2 μm) et par le couplage des deux CNC (6 nm). Ces diamètres sont obtenus en effectuant la moyenne géométrique pour la méthode twin CNC (2,5-14 nm) et pour chaque plateau de l'ELPI. Les mesures de concentration pour chaque étage de l'ELPI et la méthode twin CNC seront données en annexe. Le principal intérêt de tels graphes est de pouvoir distinguer les tailles d'aérosols et les périodes où les flux ont des caractéristiques facilement dissociables. Ainsi, il y a une majorité de flux d'émission observés (vitesses de transfert verticale négatives) sur les plateaux 5, 6, 7, 8, et 9

correspondant à des aérosols ayant des diamètres compris entre $0,202 \mu\text{m}$ et $1,2 \mu\text{m}$ (mode accumulation de l'aérosol atmosphérique). A l'inverse, avec la méthode twin CNC et sur les étages 1, 2 et 3 donc pour un diamètre compris entre 6 nm et 74 nm (mode nucléation et mode Aitken de l'aérosol atmosphérique) un flux de dépôt d'aérosols est mesuré dans la plupart des cas. L'étage 4 apparaît comme une frontière entre le mode accumulation et le mode Aitken de l'aérosol atmosphérique : en effet on remarque la présence sur ce plateau à la fois de l'émission et du dépôt à part quasiment égale. L'évolution des vitesses de transfert vertical suit celles des paramètres turbulents commentés précédemment (notamment le flux de chaleur sensible et la vitesse de frottement du vent) : de fortes valeurs le jour avec un pic aux alentours de midi et des valeurs plus faibles la nuit. Cette observation est vraie pour tous les étages de l'ELPI même si elle est dans certains cas moins marquée, mais également pour la méthode twin CNC même si le nombre de points validés n'est pas important. Les amplitudes les plus fortes pour les vitesses de dépôt et d'émission sont présentes le 24 et le 28 avril, jours où le vent est le moins fort durant la campagne DEPECHEMOD 1.

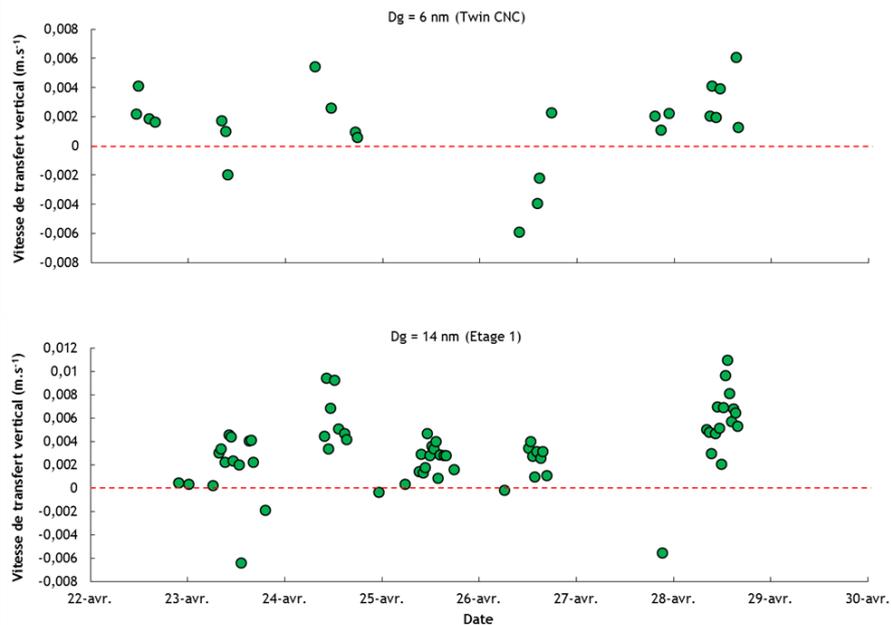


Figure 3.7 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 1 pour les twin CNC et l'étage 1 de l'ELPI. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

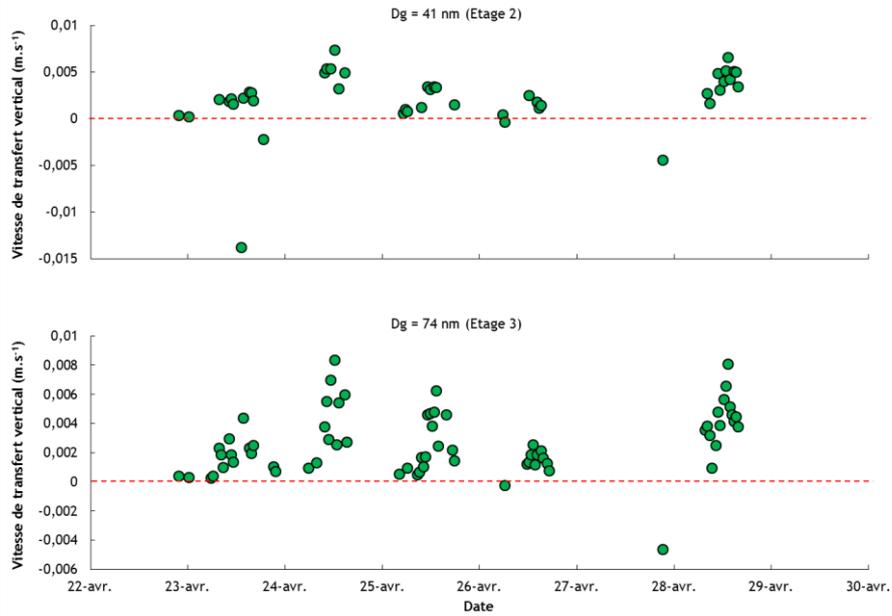


Figure 3.8 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 1 pour l'étage 2 et l'étage 3. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

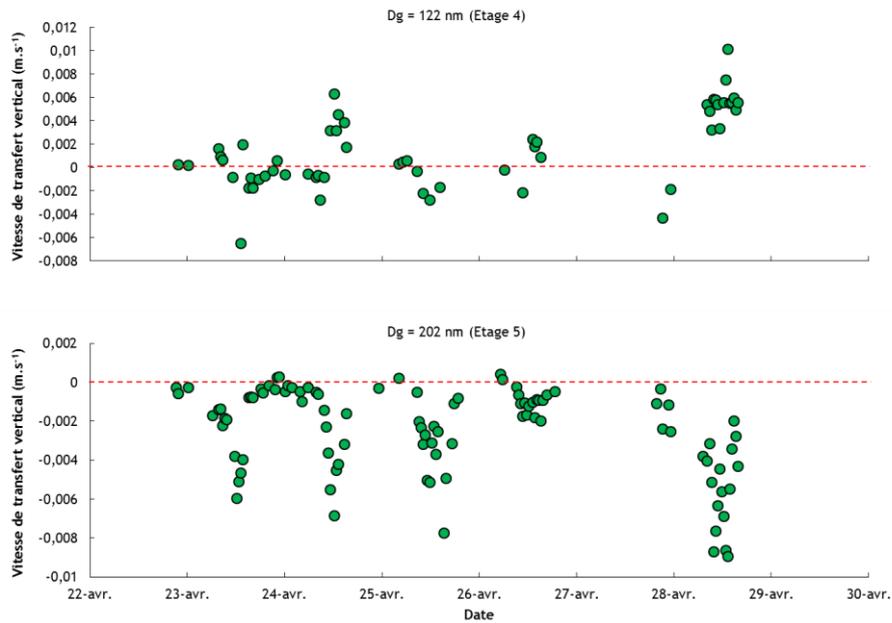


Figure 3.9 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 1 pour l'étage 4 et l'étage 5. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

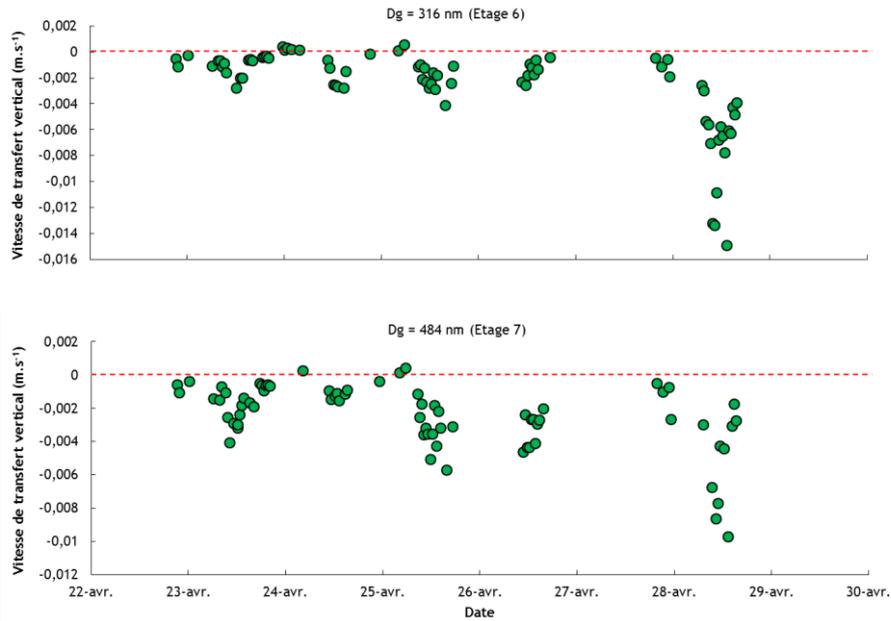


Figure 3.10 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 1 pour l'étage 6 et l'étage 7. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

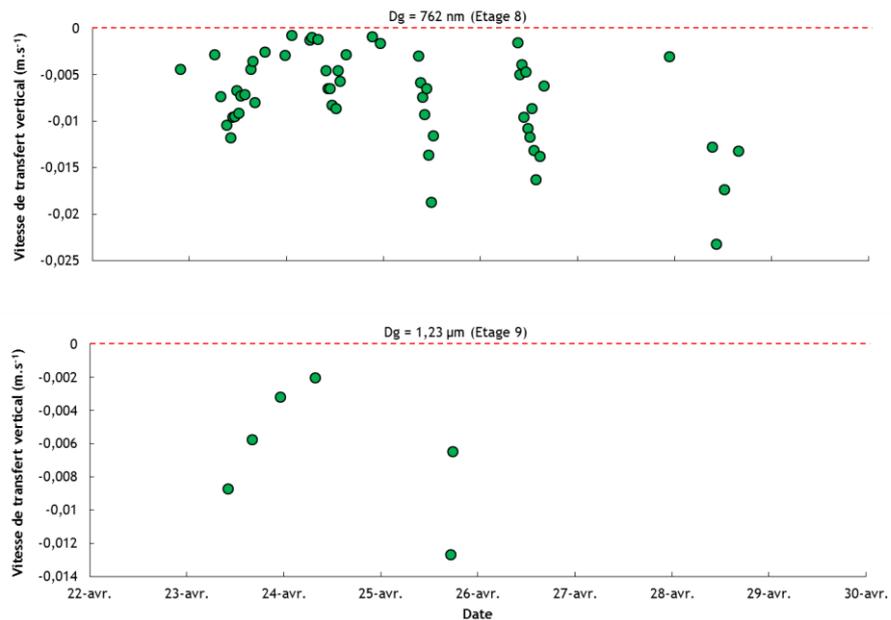


Figure 3.11 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 1 pour l'étage 8 et l'étage 9. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

Afin de compléter l'inventaire des données de vitesses de transfert vertical, les Tableau 3.4 et Tableau 3.5 regroupent respectivement les valeurs des vitesses dépôt sec et d'émission, les données

des vitesses d'émission étant prises en valeur absolue (alors qu'elles étaient présentées par des valeurs négatives sur les Figure 3.7, Figure 3.8, Figure 3.9, Figure 3.10 et Figure 3.11). D'après le Tableau 3.4, les vitesses de dépôt moyennes sont proches de $3 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$ pour la méthode twin CNC et les étages 1, 2, 3 et 4 de l'ELPI, tandis que pour des aérosols ayant une taille comprise 0,2 et 0,5 μm , elles sont de l'ordre de $2,5 \times 10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$. Après correction spectrale, il n'y a pas de vitesses de dépôt validées lors de cette campagne pour les étages 8 et 9. Pour finir on remarque un ordre de grandeur ou plus de différence entre la valeur minimale et maximale pour les twin CNC, l'étage 1, 2, 3 et 4 et 6. La différence est plus minime pour les étages 5 et 7.

Tableau 3.4 : Vitesses de dépôt de la campagne DEPECHEMOD 1.

| Etage | Diamètre (μm) | V_d maximum (m.s^{-1}) | V_d minimum (m.s^{-1}) | V_d moyenne (m.s^{-1}) | Pourcentage sur les données validées (Nombres de valeurs) |
|----------|----------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|---|
| Twin CNC | 0,006 | $6,06 \times 10^{-3}$ | $5,69 \times 10^{-4}$ | $2,45 \times 10^{-3}$ | 83% (20) |
| 1 | 0,014 | $1,09 \times 10^{-2}$ | $1,95 \times 10^{-4}$ | $3,89 \times 10^{-3}$ | 92% (59) |
| 2 | 0,041 | $7,32 \times 10^{-3}$ | $1,96 \times 10^{-4}$ | $2,92 \times 10^{-3}$ | 91% (41) |
| 3 | 0,074 | $8,32 \times 10^{-3}$ | $2,61 \times 10^{-4}$ | $2,86 \times 10^{-3}$ | 97% (68) |
| 4 | 0,102 | $1,01 \times 10^{-2}$ | $1,70 \times 10^{-4}$ | $3,46 \times 10^{-3}$ | 61% (35) |
| 5 | 0,202 | $4,07 \times 10^{-4}$ | $1,48 \times 10^{-4}$ | $2,59 \times 10^{-4}$ | 5% (5) |
| 6 | 0,316 | $5,30 \times 10^{-4}$ | $9,71 \times 10^{-5}$ | $2,51 \times 10^{-4}$ | 9% (7) |
| 7 | 0,484 | $3,98 \times 10^{-4}$ | $1,16 \times 10^{-4}$ | $2,44 \times 10^{-4}$ | 4% (3) |
| 8 | 0,762 | | | | |
| 9 | 1,2 | | | | |

D'après le Tableau 3.5, les vitesses d'émissions maximum s'échelonnent de $4,65 \times 10^{-3}$ à $1,38 \times 10^{-2} \text{ m.s}^{-1}$ sur pour des aérosols de 6 à 102 nm, tandis que les vitesses minimum sont comprises entre $1,89 \times 10^{-4}$ et $1,97 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$, enfin les vitesses moyennes correspondantes restent entre $1,66 \times 10^{-3}$ et $5,22 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$.

Concernant les étages 5 à 9 de l'ELPI, les valeurs des vitesses moyennes d'émissions vont de $2,51 \times 10^{-4}$ à $7,53 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$, les vitesses d'émission minimum de $1,75 \times 10^{-4}$ à $2,06 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$ et les vitesses d'émission maximum de $8,94 \times 10^{-3}$ à $2,32 \times 10^{-2} \text{ m.s}^{-1}$.

Les nombres de valeurs mesurées de vitesses de dépôt, ainsi que le pourcentage qu'ils représentent vis-à-vis du nombre total de valeurs validées, confirment les observations précédentes sur la répartition des phénomènes de dépôt et d'émission en fonction de la taille. Il y a un fort pourcentage (supérieur à 80 %) de dépôt mesuré sur les étages correspondant aux tailles les plus

petites (de 6 à 74 nm), alors que pour des tailles plus grandes d'aérosols des flux d'émission sont majoritairement mesurés. L'étage 4 semble être une interface entre le phénomène de dépôt du mode Aitken (étage 1, 2 et 3 de l'ELPI) et du mode nucléation (twin CNC) et le phénomène d'émission du mode accumulation (étage 5 à 9), en effet on retrouve sur cet étage 61 % de dépôt. L'étude et la discussion des observations des flux d'émission seront abordées dans le détail dans la suite du mémoire (Chapitre 4).

Tableau 3.5 : Vitesses d'émission de la campagne DEPECHEMOD 1.

| Etage | Diamètre (µm) | V_e maximum (m.s ⁻¹) | V_e minimum (m.s ⁻¹) | V_e moyenne (m.s ⁻¹) | Pourcentage sur les données validées (Nombres de valeurs) |
|----------|---------------|------------------------------------|------------------------------------|------------------------------------|---|
| Twin CNC | 0,006 | $5,90 \times 10^{-3}$ | $1,97 \times 10^{-3}$ | $3,52 \times 10^{-3}$ | 17% (4) |
| 1 | 0,014 | $6,40 \times 10^{-3}$ | $1,89 \times 10^{-4}$ | $2,88 \times 10^{-3}$ | 8% (5) |
| 2 | 0,041 | $1,38 \times 10^{-2}$ | $3,81 \times 10^{-4}$ | $5,22 \times 10^{-3}$ | 9% (4) |
| 3 | 0,074 | $4,65 \times 10^{-3}$ | $2,33 \times 10^{-4}$ | $2,44 \times 10^{-3}$ | 3% (2) |
| 4 | 0,102 | $6,53 \times 10^{-3}$ | $2,68 \times 10^{-4}$ | $1,66 \times 10^{-3}$ | 39% (22) |
| 5 | 0,202 | $8,94 \times 10^{-3}$ | $1,75 \times 10^{-4}$ | $2,61 \times 10^{-3}$ | 95% (91) |
| 6 | 0,316 | $1,50 \times 10^{-2}$ | $1,95 \times 10^{-4}$ | $2,51 \times 10^{-4}$ | 91% (71) |
| 7 | 0,484 | $9,73 \times 10^{-3}$ | $3,98 \times 10^{-4}$ | $2,62 \times 10^{-3}$ | 96% (69) |
| 8 | 0,762 | $2,32 \times 10^{-2}$ | $7,74 \times 10^{-4}$ | $7,53 \times 10^{-3}$ | 100% (55) |
| 9 | 1,2 | $1,27 \times 10^{-2}$ | $2,06 \times 10^{-3}$ | $3,69 \times 10^{-3}$ | 100%(6) |

3.2.3 Documentation des processus d'émission des bactéries : évolution de vitesse de transfert vertical en utilisant la méthode du gradient

Ce paragraphe a pour but de faire un inventaire des différentes vitesses de transfert obtenues pour les bactéries via la méthode du gradient détaillée dans le chapitre 2. De la même façon que pour la méthode par corrélation turbulente lors de DEPECHEMOD 1 l'évolution de la vitesse de transfert vertical sur la campagne a été tracée sur la Figure 3.12. Il a été effectué 40 prélèvements lors de cette campagne pour les mesures de flux par la méthode du gradient. Il est important de noter que les mesures se sont effectuées uniquement en journée étant donné que les prélèvements ne peuvent se faire en continu du fait du chargement et du déchargement des géloses dans les Andersen 1 étage. De plus, nous n'étions pas sur site le dimanche 26 avril 2015 d'où l'absence de données. Les résultats présentés ici sont ceux où la différence entre la concentration au niveau haut (2 m) et au niveau bas (0,2 m) est supérieure à 1 écart-type. De plus certains champignons sont résistants à l'antifongique ajouté au milieu de culture et donc chaque prélèvements contenant

des boîtes de Pétri contaminées avec des champignons n'ont également pas été pris en compte. Ainsi 23 valeurs de vitesses de transfert vertical ont été retenues.

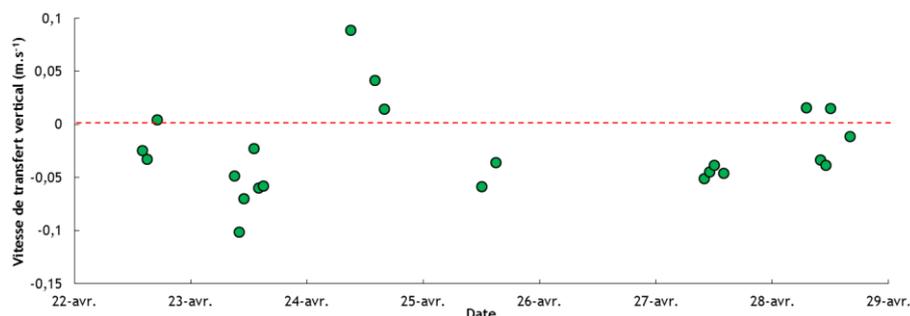


Figure 3.12 : Evolution journalière de la vitesse de transfert des bactéries par la méthode du gradient.

La première remarque que l'on peut effectuer est que les flux de bioaérosols sont en grande majorité de l'émission (74%) et il semble que la vitesse de transfert vertical soit liée aux principaux paramètres micrométéorologiques, en témoignent les plus fortes émissions en milieu de journée. Le 24 juin le vent est faible ($<2 \text{ m.s}^{-1}$) et on s'aperçoit de la présence de dépôt cette journée. Le processus de mise en suspension des bactéries serait alors essentiellement éolien. Pour finir, l'ordre de grandeur des vitesses de dépôt, ou d'émission, est de $4 \times 10^{-2} \text{ m.s}^{-1}$ en moyenne (Tableau 3.6). Les vitesses de dépôt retrouvées sont fortes et pourraient correspondre au dépôt de particules comprises dont le diamètre aérodynamique serait compris entre $10 \mu\text{m}$ et $60 \mu\text{m}$.

Tableau 3.6 : Vitesses de transfert vertical de bactéries lors de la campagne DEPECHEMOD 1.

| | Maximum (m.s ⁻¹) | Minimum (m.s ⁻¹) | Moyenne (m.s ⁻¹) | Nombre de valeurs |
|--------------------|------------------------------|------------------------------|------------------------------|-------------------|
| Vitesse de dépôt | $8,89 \times 10^{-2}$ | $4,19 \times 10^{-3}$ | $3,00 \times 10^{-2}$ | 6 |
| Vitesse d'émission | $1,01 \times 10^{-1}$ | $1,11 \times 10^{-2}$ | $4,56 \times 10^{-2}$ | 18 |

3.3 DEPECHEMOD 2

Cette campagne s'est déroulée du 23 septembre au 02 octobre 2015 sur la prairie de Lusignan d'environ 60 cm de haut. La longueur de rugosité et les classes de stabilité sont ainsi résumées dans le Tableau 3.7. De plus, pour cette campagne, la prairie a été amendée par des dérivés azotés de type urée environ une semaine avant la campagne.

Tableau 3.7 : Classe de stabilité pour la campagne DEPECHEMOD 2.

| DEPECHEMOD 2 | |
|----------------------|------------------------|
| $z_o = 6 \text{ cm}$ | |
| Instable | $1/L \leq -0,005$ |
| Neutre | $-0,005 < 1/L < 0,004$ |
| Stable | $0,004 \leq 1/L$ |

Les hauteurs de mesure de différentes méthodes utilisées durant cette campagne sont données dans le Tableau 3.8. La méthode Twin CNC s'est effectuée pour cette campagne avec deux Cnc 3788 (TSI Inc.).

Tableau 3.8 : Hauteur de mesures pour les différentes méthodes utilisées lors de DEPECHEMOD 2.

| | | |
|---------------------------------------|--|--|
| DEPECHEMOD 2 (22 au 30 avril 2015) | Dépôt par corrélation turbulente : Twin CNC | $z = 2 \text{ m}$ |
| | Dépôt par corrélation turbulente : ELPI | $z = 5 \text{ m}$ |
| | Emission de bactérie par la méthode du gradient | $z_{max} = 2 \text{ m}$ $z_{min} = 0,2 \text{ m}$ |

3.3.1 Paramètres micrométéorologiques

Les directions moyennes de vent ont été principalement de sud-ouest (240°) du 23 septembre au 24 septembre et nord-est (60°) à partir du 25 septembre (Figure 3.13). La partie grisée correspond aux valeurs exclues du fait de la présence de bâtiment dans ces directions de vent. Le nombre de valeurs exclues correspond à 16 % du nombre total de valeurs obtenues durant cette campagne.

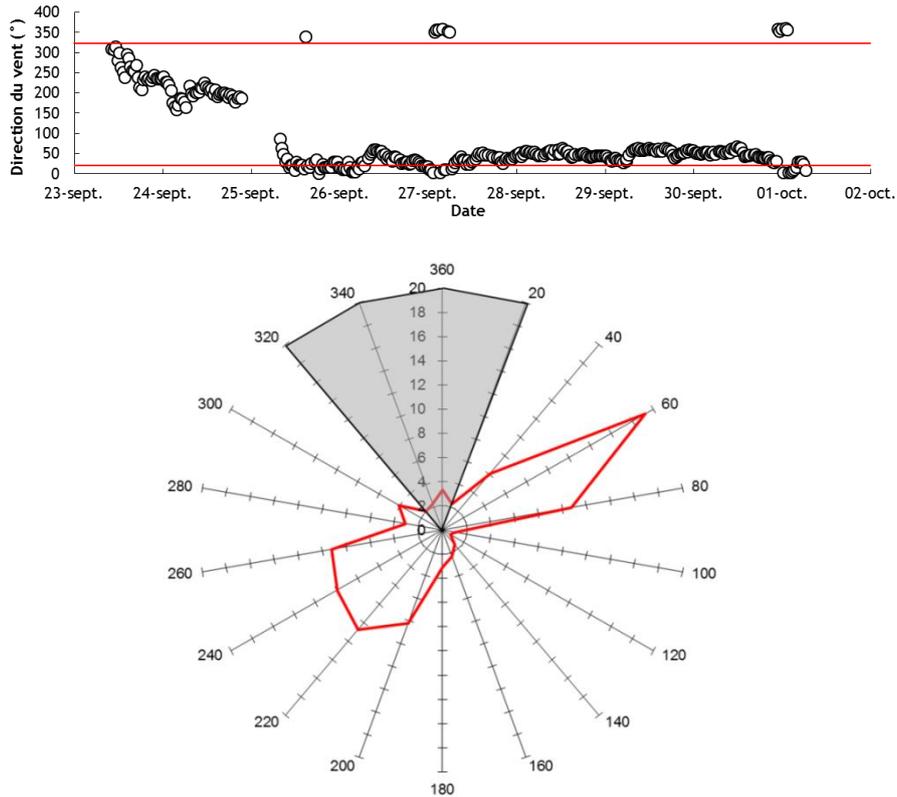


Figure 3.13 : Direction du vent lors de la campagne expérimentale DEPECHEMOD 2.

La Figure 3.14 regroupe les paramètres micrométéorologiques moyennés sur 30 min, permettant une description précise de l'évolution de la turbulence atmosphérique durant la campagne. L'absence de données est due à la sauvegarde mise à part dans la nuit du 24 au 25 septembre où une coupure d'électricité est survenue.

Les vitesses moyennes du vent suivent toujours la phase diurne, mais sont relativement faibles (en moyenne 3 m.s^{-1} le jour et 1 m.s^{-1} la nuit) en début de campagne jusqu'au 26 septembre. Elles deviennent plus fortes par la suite de l'ordre de 6 à 7 m.s^{-1} et 3 à 4 m.s^{-1} la nuit. L'évolution de la vitesse de friction du vent est liée à celle de la vitesse du vent, elle est comprise entre $0,1$ (nuit) et $0,4 \text{ m.s}^{-1}$ (jour) jusqu'au 27 septembre et augmente entre $0,3 \text{ m.s}^{-1}$ (nuit) et $0,6 \text{ m.s}^{-1}$ (jour) avant de légèrement baisser entre $0,15 \text{ m.s}^{-1}$ et $0,4 \text{ m.s}^{-1}$.

La température suit le cycle des variations diurne-nocturne au fil des jours, conditionnée par le levé et le coucher du soleil. Toutefois, la valeur moyenne est sensiblement la même pour toute la campagne que ce soit le jour ou la nuit. La température moyenne est d'une quinzaine de degrés le jour et d'environ 8°C la nuit. Le cycle du flux de chaleur sensible est classique, c'est-à-dire lié au rayonnement solaire, avec un pic en journée et des minima nocturnes. Toutefois, les flux de chaleur des premiers jours (23 et 24 septembre) témoignent de passages nuageux, en effet leurs profils sont marqués par des variations de plusieurs dizaines de W.m^{-2} par demi-heures. Les valeurs maximales

journalières et minimales sont, comme la température, très peu changeantes durant la campagne et sont respectivement d'environ 100 W.m^{-2} et de -10 W.m^{-2} .

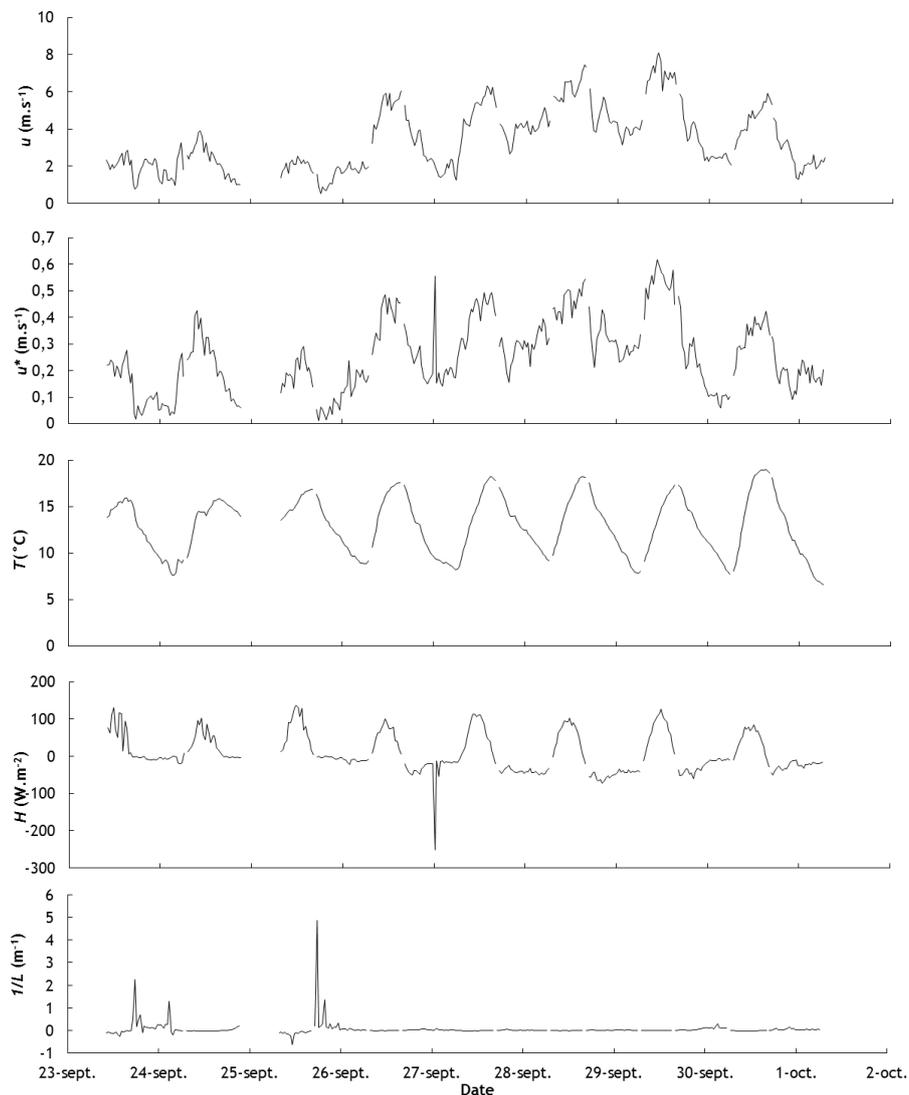


Figure 3.14 : Principaux paramètres micrométéorologiques durant la campagne DEPECHEMOD

2.

La stabilité atmosphérique quantifiée par l'inverse de la longueur de Monin-Obukhov (Figure 3.15) donne des périodes très stables ($1/L > 0,012$) les nuits du 24, 26, 30 septembre et 1^{er} octobre ainsi qu'une période très instable ($1/L < -0,015$) la journée du 25 septembre. Les autres journées, la stabilité atmosphérique est globalement neutre le jour ($-0,015 < 1/L < 0,012$) et stable la nuit. Ces bornes sont représentées par les pointillés bleus sur la Figure 3.15.

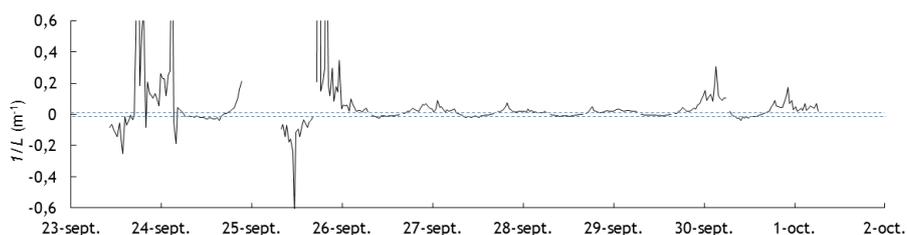


Figure 3.15 : Précision sur l'évolution de la stabilité atmosphérique durant la campagne DEPECHEMOD 2.

3.3.2 Quantification de la vitesse de dépôt sec : évolution de la vitesse de transfert vertical avec la méthode des corrélations turbulentes en utilisant l'aérosol atmosphérique (6 nm - 1,2 µm)

Pour donner une vision globale de l'évolution de la vitesse de transfert vertical au cours de toute la campagne, les résultats des mesures sont présentés en fonction du temps Figure 3.16, Figure 3.17, Figure 3.18, Figure 3.19 et Figure 3.20. Ces figures représentent toutes les mesures obtenues par corrélation turbulente, seule technique utilisée lors de cette campagne DEPECHEMOD 2 pour mesurer les vitesses de dépôt sec. Les évolutions des vitesses de dépôt sec sur les étages 1, 2, 3 et 4 suivent clairement celles des paramètres micrométéorologiques (H et u^*), et en particulier durant les journées du 26, 27, 28, 28 et 29 septembre pour lesquelles le flux de chaleur sensible varie peu. La méthode twin CNC semble également donner des résultats de vitesse de dépôt sec évoluant avec les principaux paramètres micrométéorologiques (H et u^*). Cependant les étages 1, 2, 3 et 4 présentent un épisode d'émission qui suit également les paramètres micrométéorologiques (pics en milieu de journée) la journée du 24 septembre. Les étages 5, 6, 7, 8 et 9, quant à eux, présentent, comme lors de la campagne DEPECHEMOD 1, une majorité de vitesses d'émission qui sont également fonction des paramètres micrométéorologiques. Le nombre de valeurs validées étages 8 et 9 est moins important car les concentrations mesurées dans cette campagne se rapprochent des limites de détection de l'ELPI pour ces étages. La différence d'amplitude des vitesses de transfert vertical est très faible pour chaque étage et pour la méthode twin CNC étant donné les faibles variations des paramètres micrométéorologiques (en particulier H et u^*).

Pour finir, on remarque toujours, durant cette campagne, la présence d'une majorité de dépôt pour les twin CNC et sur les étages 1, 2 et 3 mais également sur l'étage 4. Cependant, il y a une majorité d'émission pour les particules supérieures à 202 nm.

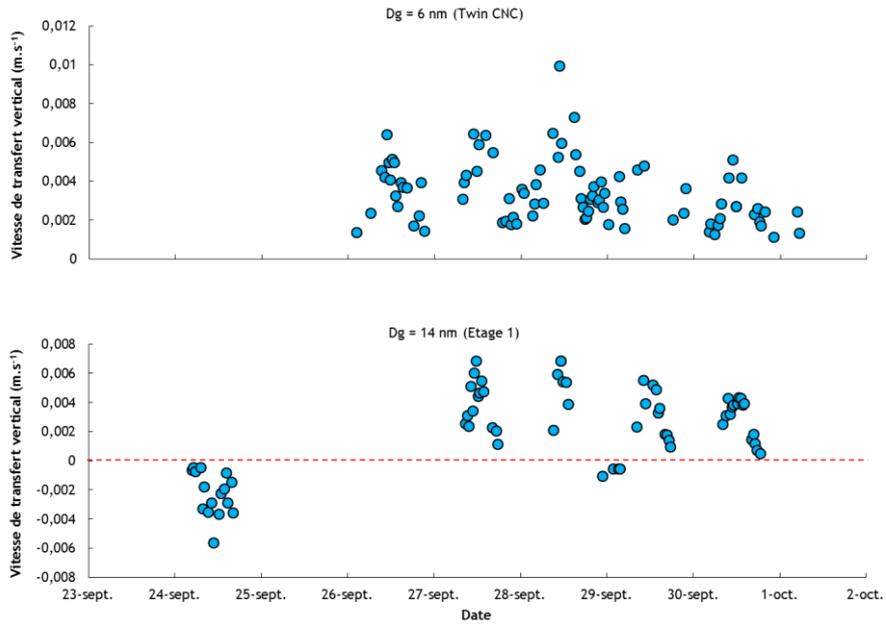


Figure 3.16 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 2 pour les twin CNC et l'étage 1 de l'ELPI. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

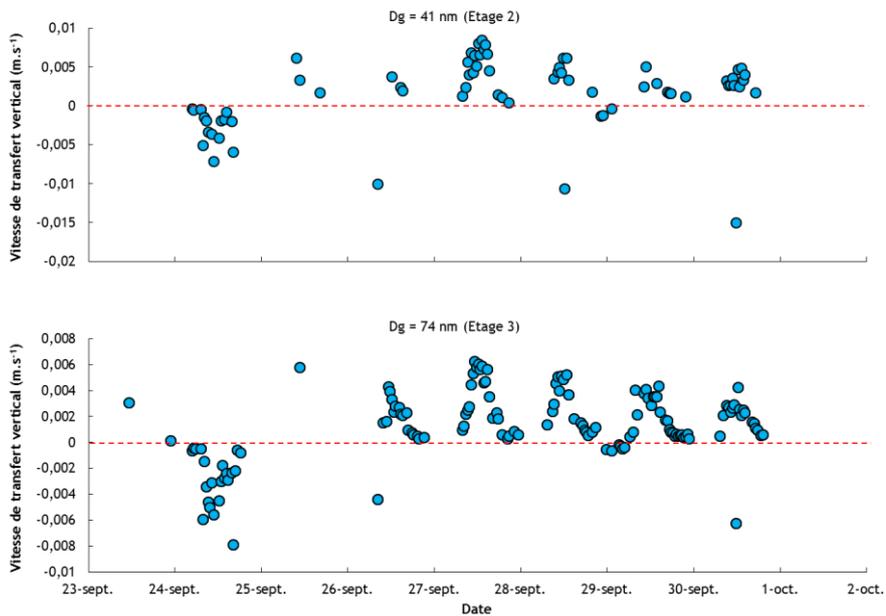


Figure 3.17 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 2 pour l'étage 2 et l'étage 3. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

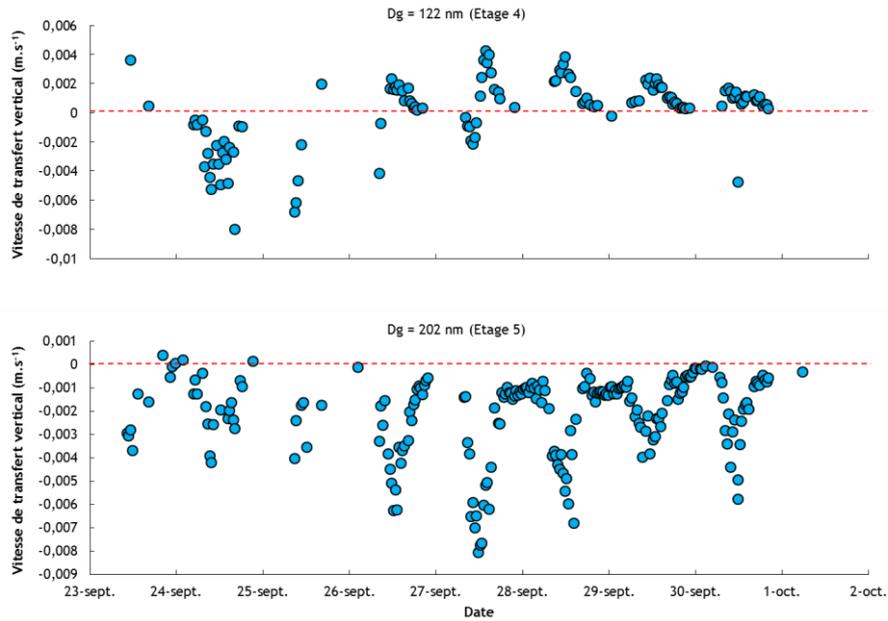


Figure 3.18 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 2 pour l'étage 4 et l'étage 5. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

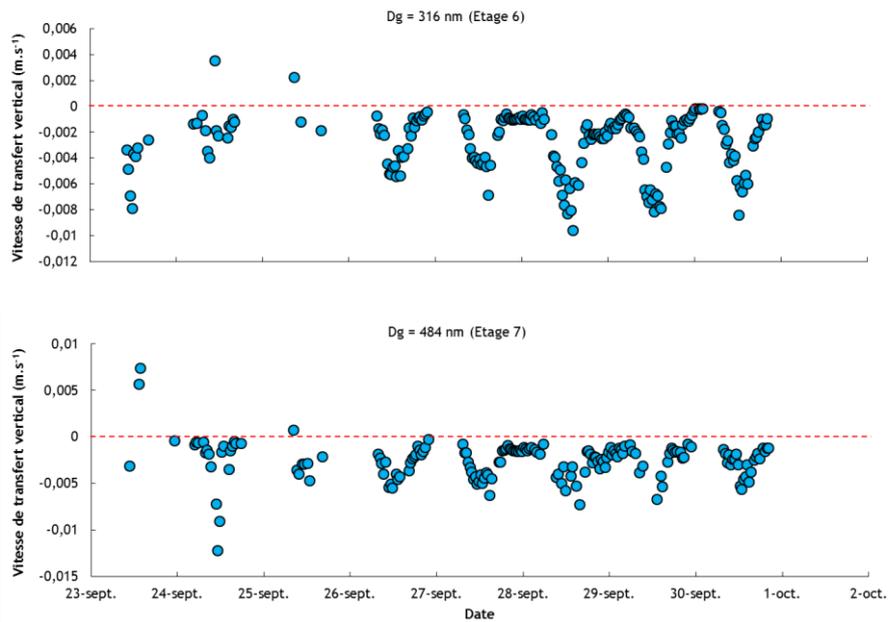


Figure 3.19 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 2 pour l'étage 6 et l'étage 7. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

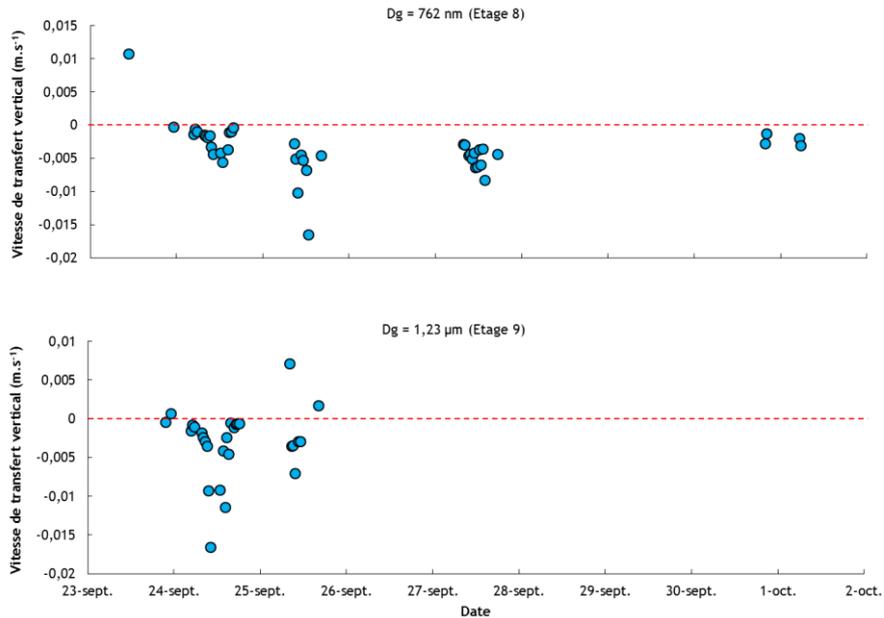


Figure 3.20 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 2 pour l'étage 8 et l'étage 9. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

L'ensemble des valeurs des vitesses de dépôt mesurées durant la campagne DEPECHEMOD 2 est regroupé dans le Tableau 3.9. Sur les quatre premiers étages (majorité de vitesse de dépôt) la moyenne, les valeurs maximum s'étendent entre $4,25 \times 10^{-3} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ à $9,94 \times 10^{-3} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ tandis que les valeurs minimum sont entre $1,21 \times 10^{-4}$ et $1,12 \times 10^{-3} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Pour les tailles d'aérosols entre 0,7 et 1,2 μm les valeurs des vitesses de dépôt minimum sont dispersés entre $4,27 \times 10^{-5}$ et $2,24 \times 10^{-3}$, alors que les vitesses de dépôt maximum valent respectivement $3,95 \times 10^{-4}$ et $7,31 \times 10^{-3} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Il est important de noter que l'étage 8 a mesuré essentiellement que des vitesses d'émission d'où l'absence de valeur de vitesses de dépôt.

Tableau 3.9 : Vitesses de dépôt de la campagne DEPECHEMOD 2.

| Etage | Diamètre (µm) | V_d maximum (m.s ⁻¹) | V_d minimum (m.s ⁻¹) | V_d moyenne (m.s ⁻¹) | Pourcentage sur les données validées (Nombres de valeurs) |
|----------|---------------|------------------------------------|------------------------------------|------------------------------------|---|
| Twin CNC | 0,006 | $9,94 \times 10^{-3}$ | $1,12 \times 10^{-3}$ | $3,41 \times 10^{-3}$ | 100% (86) |
| 1 | 0,014 | $6,86 \times 10^{-3}$ | $4,95 \times 10^{-4}$ | $3,58 \times 10^{-3}$ | 71% (48) |
| 2 | 0,041 | $8,43 \times 10^{-3}$ | $3,77 \times 10^{-4}$ | $3,85 \times 10^{-3}$ | 70% (50) |
| 3 | 0,074 | $6,22 \times 10^{-3}$ | $1,21 \times 10^{-4}$ | $2,32 \times 10^{-3}$ | 78% (108) |
| 4 | 0,102 | $4,25 \times 10^{-3}$ | $2,01 \times 10^{-4}$ | $1,41 \times 10^{-3}$ | 70% (87) |
| 5 | 0,202 | $3,95 \times 10^{-4}$ | $4,27 \times 10^{-5}$ | $1,88 \times 10^{-4}$ | 2% (4) |
| 6 | 0,316 | $3,50 \times 10^{-3}$ | $2,24 \times 10^{-3}$ | $2,87 \times 10^{-3}$ | 1% (2) |
| 7 | 0,484 | $7,31 \times 10^{-3}$ | $6,85 \times 10^{-4}$ | $4,54 \times 10^{-3}$ | 2% (3) |
| 8 | 0,762 | | | $1,07 \times 10^{-2}$ | 2% (1) |
| 9 | 1,2 | $7,09 \times 10^{-3}$ | $6,29 \times 10^{-4}$ | $3,13 \times 10^{-3}$ | 11% (3) |

La même démarche a été effectuée pour les valeurs absolues des vitesses d'émissions présentées dans le Tableau 3.10. Les valeurs moyennes de vitesse d'émission sont relativement proches pour tous les étages de l'ELPI, et peu différentes de 3×10^{-3} m.s⁻¹. Les V_e maximums et les V_e minimums des quatre premiers étages de l'ELPI sont respectivement comprises entre $3,95 \times 10^{-4}$ et $1,51 \times 10^{-2}$ m.s⁻¹ et entre $1,96 \times 10^{-4}$ et $4,64 \times 10^{-4}$. Pour des aérosols ayant des tailles supérieures à 0,2 µm, les valeurs maximum s'étendent de $4,3 \times 10^{-5}$ à $7,31 \times 10^{-3}$ m.s⁻¹ et les valeurs minimums sont comprises entre $5,73 \times 10^{-5}$ et $5,02 \times 10^{-4}$ m.s⁻¹.

Tableau 3.10 : Vitesses d'émission de la campagne DEPECHEMOD 2.

| Etage | Diamètre (µm) | V_e maximum (m.s ⁻¹) | V_e minimum (m.s ⁻¹) | V_e moyenne (m.s ⁻¹) | Pourcentage sur les données validées (Nombres de valeurs) |
|----------|---------------|------------------------------------|------------------------------------|------------------------------------|---|
| Twin CNC | 0,006 | | | | |
| 1 | 0,014 | $5,64 \times 10^{-3}$ | $4,64 \times 10^{-4}$ | $1,95 \times 10^{-3}$ | 29% (20) |
| 2 | 0,041 | $1,51 \times 10^{-2}$ | $3,73 \times 10^{-4}$ | $3,81 \times 10^{-3}$ | 30% (21) |
| 3 | 0,074 | $7,93 \times 10^{-3}$ | $1,96 \times 10^{-4}$ | $2,54 \times 10^{-3}$ | 22% (30) |
| 4 | 0,102 | $8,01 \times 10^{-3}$ | $2,10 \times 10^{-4}$ | $2,72 \times 10^{-3}$ | 30% (37) |
| 5 | 0,202 | $8,06 \times 10^{-3}$ | $5,73 \times 10^{-5}$ | $2,22 \times 10^{-3}$ | 98% (205) |
| 6 | 0,316 | $9,61 \times 10^{-3}$ | $1,71 \times 10^{-4}$ | $2,86 \times 10^{-3}$ | 99% (197) |
| 7 | 0,484 | $1,23 \times 10^{-2}$ | $3,04 \times 10^{-4}$ | $2,70 \times 10^{-3}$ | 98% (165) |
| 8 | 0,762 | $1,65 \times 10^{-2}$ | $2,85 \times 10^{-4}$ | $3,97 \times 10^{-3}$ | 98% (41) |
| 9 | 1,2 | $1,66 \times 10^{-2}$ | $5,02 \times 10^{-4}$ | $3,86 \times 10^{-3}$ | 89% (25) |

3.3.3 Documentation des processus d'émission des bactéries : évolution de vitesse de transfert vertical en utilisant la méthode du gradient

Ce paragraphe a pour but de faire un inventaire des différentes vitesses de transfert obtenues pour les bactéries via la méthode du gradient détaillée dans le chapitre 2. De la même façon que pour la méthode des corrélations turbulentes lors de DEPECHEMOD 2, l'évolution de la vitesse de transfert vertical sur la campagne a été tracée sur la Figure 3.21. Il a été effectué 53 prélèvements lors de cette campagne pour les mesures de flux par la méthode du gradient.

Les résultats présentés ici sont ceux où la différence entre la concentration au niveau haut (2 m) et au niveau bas (0,2 m) est supérieure à 1 écart type. De plus certains champignons sont résistants à l'antifongique ajouté au milieu de culture et donc chaque prélèvement contenant des boîtes de Pétri contaminées avec des champignons n'a également pas été pris en compte. Ainsi 41 valeurs de vitesses de transfert vertical ont été retenues.

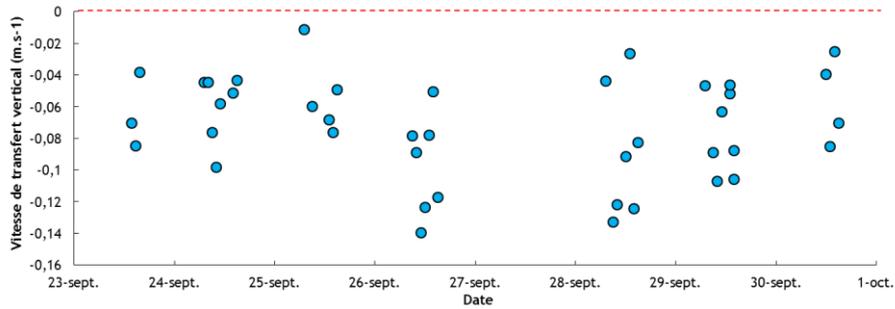


Figure 3.21 : Evolution journalière de la vitesse de transfert des bactéries par la méthode du gradient. Les $V_z > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_z < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

Pour cette campagne, il a été mesuré uniquement des émissions pour les vitesses de transfert vertical des bactéries. Ces vitesses d'émission suivent l'évolution des principaux paramètres micrométéorologiques (H et u^*) avec la présence des plus fortes valeurs d'émission en milieu de journée. On remarque que les maximums de vitesses d'émissions sont plus forts le 26, 28 et 29 septembre, lorsque les vents plus forts ont été enregistrés durant la campagne (voir paragraphe 3.3.1). Ce processus de mise ou de remise en suspension serait donc une fois de plus bien éolien. De plus, le vent lors de DEPECHEMOD 2 étant plus fort que pendant DEPECHEMOD 1, l'ordre de grandeur des vitesses d'émission est plus important et atteint $7,3 \times 10^{-2} \text{ m.s}^{-1}$ en moyenne (Tableau 3.11).

Tableau 3.11 : Vitesses de transfert vertical de bactéries lors de la campagne DEPECHEMOD 3.

| | Maximum (m.s^{-1}) | Minimum (m.s^{-1}) | Moyenne (m.s^{-1}) | Nombre de valeurs |
|--------------------|-------------------------------|-------------------------------|-------------------------------|-------------------|
| Vitesse de dépôt | | | | 0 |
| Vitesse d'émission | $1,40 \times 10^{-1}$ | $1,14 \times 10^{-2}$ | $7,30 \times 10^{-2}$ | 41 |

3.4 DEPECHEMOD 3

La campagne de mesure a eu lieu du 9 au 17 juin 2016, sur le même site de mesure. Cette campagne fut la moins réussie de la thèse à cause principalement de problèmes électrique sur le terrain et de la météo peu clémente. Pour cette campagne, la prairie a également été amendée par des dérivés azotés de type urée une semaine avant la campagne. La hauteur de la prairie pour cette campagne est d'environ 40 cm et donne donc les différentes classes de stabilité résumées dans le Tableau 3.12.

Tableau 3.12 : Classe de stabilité pour la campagne DEPECHEMOD 3.

| DEPECHEMOD 3 | |
|----------------------|------------------------|
| $z_o = 4 \text{ cm}$ | |
| Instable | $1/L \leq -0,010$ |
| Neutre | $-0,010 < 1/L < 0,008$ |
| Stable | $0,008 \leq 1/L$ |

Une nouvelle méthode de mesure de dépôt sec a été utilisée lors de cette campagne (Maro *et al.*, 2014) afin d'obtenir des mesures de vitesses de dépôt pour des particules du mode accumulation ($>0,2 \mu\text{m}$), qui sont peu nombreuses lors des deux premières campagnes (essentiellement de l'émission). Ainsi une méthode de dépôt direct de particules faiblement polydispersées ($0,6 \mu\text{m}$) de fluorescéine (voir chapitre 2). Les différentes méthodes et les hauteurs de prélèvements sont résumées dans le Tableau 3.13.

Tableau 3.13 : Hauteur de mesures pour les différentes méthodes utilisées lors de DEPECHEMOD 3.

| | | |
|-------------------------------------|--|--|
| DEPECHEMOD 3 (9 au 17 mars 2016) | Dépôt par corrélation turbulente : Twin CNC | $z = 2 \text{ m}$ |
| | Dépôt par corrélation turbulente : ELPI | $z = 5 \text{ m}$ |
| | Dépôt direct de particules de Fluorescéine | Herbe synthétique : sur le couvert Prélèvement sur filtre : $h = 0,2 \text{ m}$ |
| | Emission de bactérie par la méthode du gradient | $z_{max} = 2 \text{ m}$ $z_{min} = 0,2 \text{ m}$ |

3.4.1 Paramètres micrométéorologiques

Les directions moyennes de vent (Figure 3.22) ont été essentiellement de sud-ouest (240°) à partir du milieu de la journée du 10 juin. La partie grisée correspond aux valeurs exclues du fait de la présence de bâtiments dans ces directions de vent. Le nombre de valeurs exclues correspond à moins de 2% du nombre total de valeurs obtenues durant cette campagne.

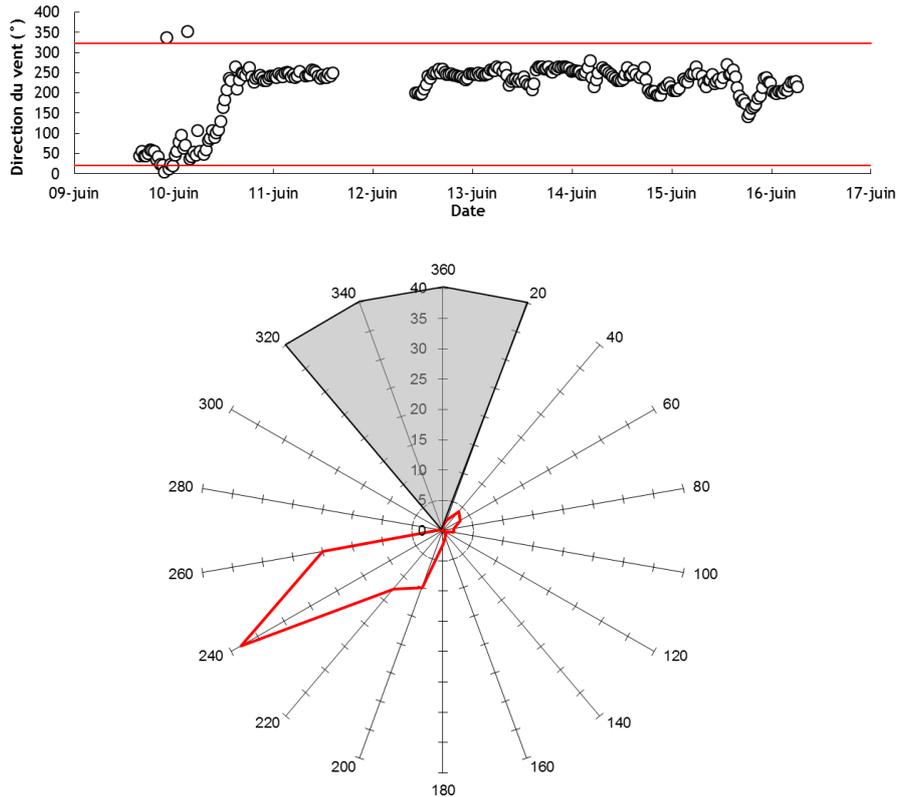


Figure 3.22 : Direction du vent lors de la campagne expérimentale DEPECHEMOD 3.

La Figure 3.23 regroupe les paramètres micrométéorologiques moyennés sur 30 min, permettant une description précise de l'évolution de la turbulence atmosphérique durant la campagne. L'absence de données est due à la sauvegarde : du 12 au 13 juin des problèmes électriques sont survenus, pouvant ainsi jouer sur l'intégrité du matériel déployé sur le terrain. .

Les vitesses moyennes du vent suivent toujours la phase diurne mais elle est cette fois ci moins marquée. En effet, la différence entre les maximums journaliers et les minimums nocturnes est moins présente au niveau de la vitesse de vent durant cette campagne. Ainsi, avant la bascule de vent (dans la journée du 10 juin) la valeur moyenne de vitesse horizontale de vent est d'environ $1,5 \text{ m.s}^{-1}$ puis augmente jusqu'à une moyenne de 4 m.s^{-1} , avant de diminuer à nouveau à partir du 15 juin (valeur moyenne d'environ 2 m.s^{-1}). L'évolution de la vitesse de frottement du vent est liée à celle de la vitesse du vent, et donc, l'évolution avec le cycle diurne-nocturne est également moins marquée lors de cette campagne. Elle est comprise entre 0,1 en moyenne en début de campagne puis augmente à $0,4 \text{ m.s}^{-1}$ et diminue par la suite à $0,2 \text{ m.s}^{-1}$ en fin de campagne.

La température, de même que pour les mesures de vitesse de vent et de frottement du vent, est très peu variable entre le jour et la nuit. En effet, on remarque une différence de quelques degrés entre les minimums nocturnes et les maximums diurnes. La température moyenne est d'une vingtaine de degrés le jour et d'environ 17°C la nuit. Le cycle du flux de chaleur sensible est classique, c'est-à-dire liée au rayonnement solaire, et on retrouve ainsi une évolution attendue

avec un pic en journée et des minima nocturnes. Toutefois, les flux de chaleur, en plus d'être relativement faibles le jour (entre 50 et 100 $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$), témoignent de passages nuageux. En effet, leurs profils sont marqués par des variations de plusieurs dizaines de $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$ par demi-heures.

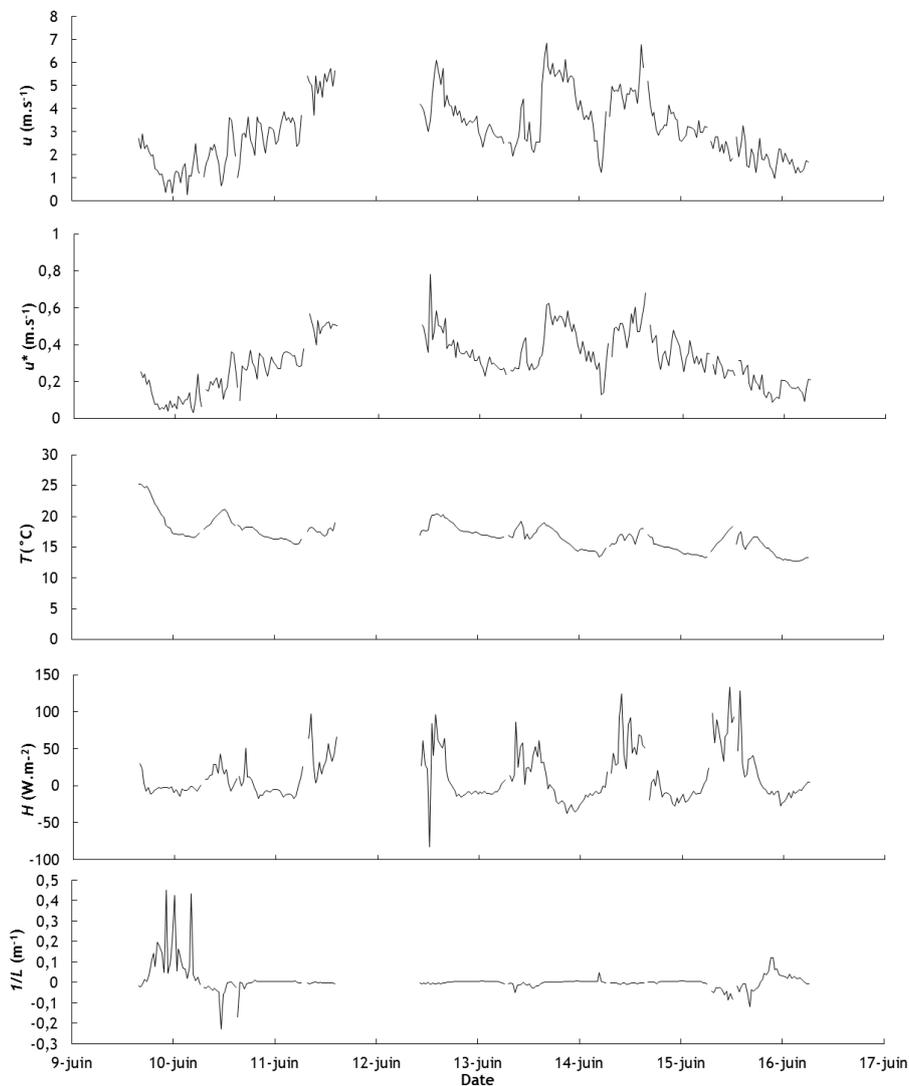


Figure 3.23 : Principaux paramètres micrométéorologiques durant la campagne DEPECHEMOD

3.



Figure 3.24 : Précision sur l'évolution de la stabilité atmosphérique durant la campagne DEPECHEMOD 3.

La stabilité atmosphérique quantifiée par l'inverse de la longueur de Monin-Obukhov (Figure 3.24) donne des périodes très stables ($1/L > 0,008$) les nuits du 9 au 10 et du 15 au 16 juin, ainsi que des périodes d'instabilité ($1/L < -0,01$) les journées du 25 septembre. Les autres journées, la stabilité atmosphérique est globalement neutre ($-0,015 < 1/L < 0,012$) avec des périodes peu instables telles que la journée du 13 juin. Ces bornes sont représentées par les pointillés bleus.

3.4.2 Quantification de la vitesse de dépôt sec

3.4.2.1 *Evolution de la vitesse de transfert vertical avec la méthode des corrélations turbulentes en utilisant l'aérosol atmosphérique (6 nm - 1,2 µm)*

Les résultats chronologiques des mesures (vitesses de dépôt ou d'émission), sont présentés en fonction des tailles croissantes (repérées par les étages de l'ELPI) sur les Figure 3.25, Figure 3.26, Figure 3.27, Figure 3.28 et Figure 3.29. Comme pour les campagnes précédentes, seuls les neuf premiers étages de l'ELPI ont fourni des concentrations suffisantes pour être exploitables, c'est-à-dire au-dessus des limites de détection. Le nombre de valeurs validées par la méthode par correction spectrale est moins important que lors des précédentes campagnes et plus précisément pour les étages 1, 2, 3 et 4 ainsi que pour la méthode twin CNC. De plus, la présence de maxima diurnes et des minima nocturnes (en valeurs absolue) est ici plus difficile à reconnaître à part pour les aérosols supérieurs à 316 nm et le phénomène est vraiment marqué la journée du 15, journée qui présente les conditions les plus instables.

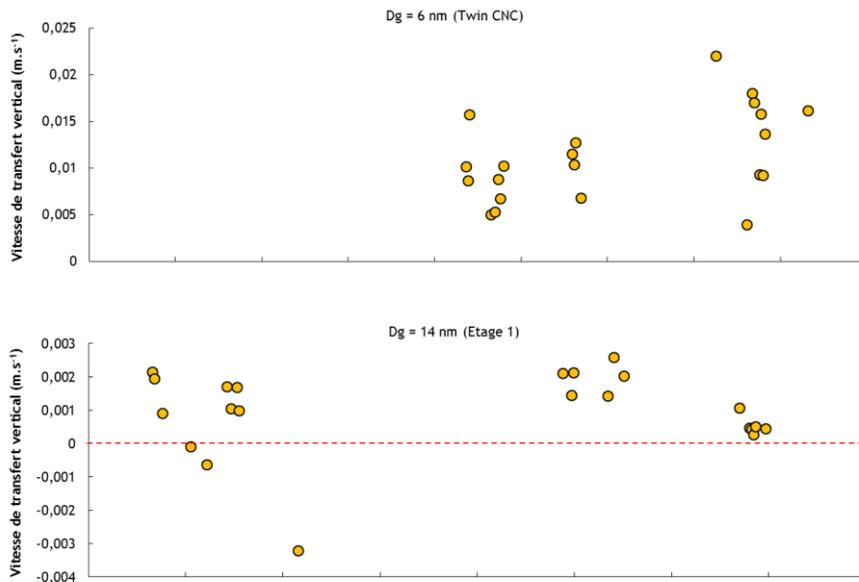


Figure 3.25 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 3 pour les twin CNC et l'étage 1 de l'ELPI. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

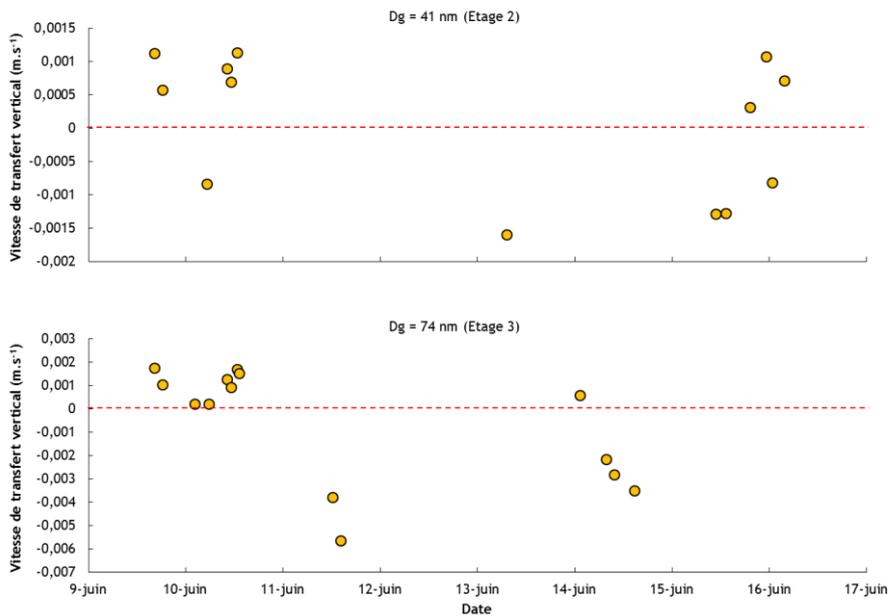


Figure 3.26 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 3 pour l'étage 2 et l'étage 3. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

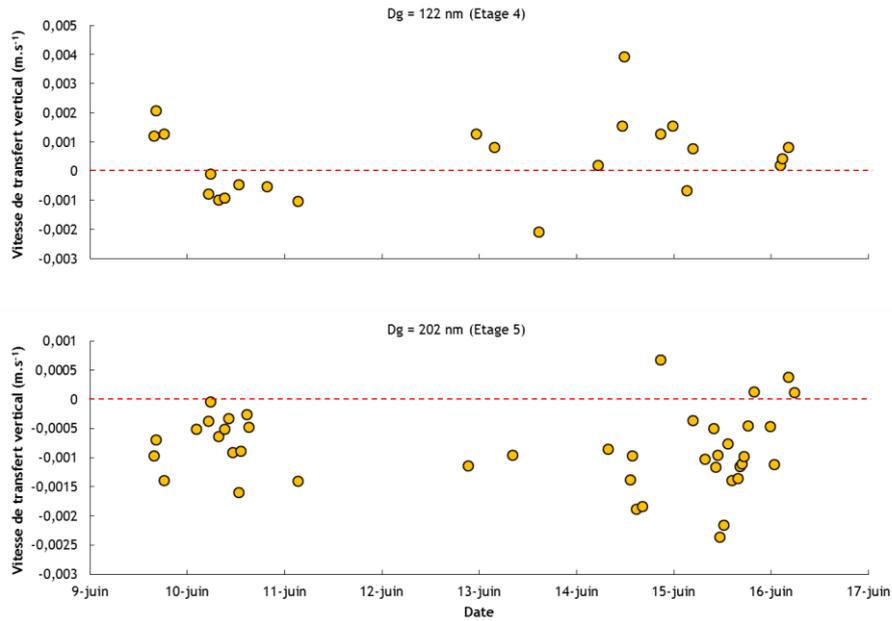


Figure 3.27 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 3 pour l'étage 4 et l'étage 5. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

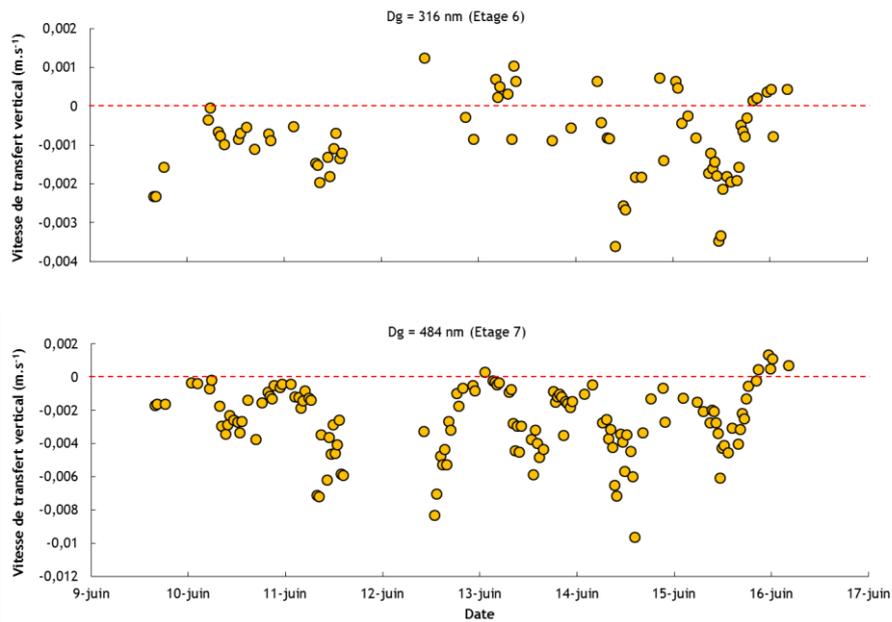


Figure 3.28 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 3 pour l'étage 6 et l'étage 7. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

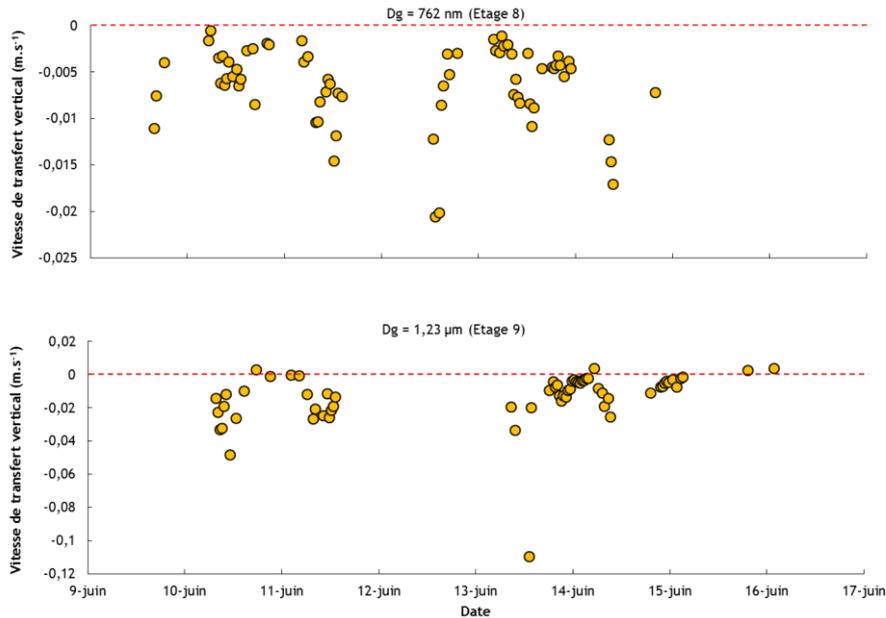


Figure 3.29 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 3 pour l'étage 8 et l'étage 9. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

Les résultats de vitesses de transfert vertical sont répertoriés dans le Tableau 3.14 et Tableau 3.15. Pour la méthode twin CNC et sur les quatre premiers étages de l'ELPI, donc pour des aérosols ayant un diamètre compris entre 0,006 et 0,122 μm , les vitesses de transfert mesurées sont à plus de 60% des cas des vitesses de dépôt. Pour les étages 5 à 9, la répartition tend quasi-essentiellement à des vitesses d'émission, avec moins de 25% de vitesses de dépôt mesurées. De plus, l'étage 8 ne présente aucune vitesse d'émission.

Concernant les ordres de grandeurs des vitesses de dépôt, les valeurs maximums pour les étages 1, 2, 3, 4, 6, 7, 9 sont comprises entre $1,13 \times 10^{-3}$ et $3,93 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$. Le maximum de vitesse de dépôt est plus élevé pour la méthode twin CNC avec $6,75 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$ et plus faible pour l'étage 5 avec $6,82 \times 10^{-4} \text{ s}$. Les valeurs minimums (pour le dépôt) sont toutes du même ordre de grandeur et sont très proches pour tous les étages de l'ELPI (entre $1,14 \times 10^{-4}$ et $3,11 \times 10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$). La valeur minimum pour la méthode twin CNC est un peu plus élevée et atteint $5,43 \times 10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$. Les vitesses de dépôt moyennes s'échelonnent sur un ordre de grandeur allant de $3,24 \times 10^{-4}$ et $1,88 \times 10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$ (respectivement étage 4 et étage 5) à $2,95 \times 10^{-3}$ et $2,86 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$ (respectivement étage 9 et twin CNC), les autres vitesses de dépôt moyennes sont proches de $1 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$.

Tableau 3.14 : Vitesses de dépôt de la campagne DEPECHEMOD 3.

| Etage | Diamètre (µm) | V_d maximum (m.s ⁻¹) | V_d minimum (m.s ⁻¹) | V_d moyenne (m.s ⁻¹) | Pourcentage sur les données validées (Nombres de valeurs) |
|----------|---------------|------------------------------------|------------------------------------|------------------------------------|---|
| Twin CNC | 0,006 | $6,75 \times 10^{-3}$ | $5,43 \times 10^{-4}$ | $2,86 \times 10^{-3}$ | 100% (38) |
| 1 | 0,014 | $2,57 \times 10^{-3}$ | $2,48 \times 10^{-4}$ | $1,32 \times 10^{-3}$ | 86% (19) |
| 2 | 0,041 | $1,13 \times 10^{-3}$ | $3,11 \times 10^{-4}$ | $8,09 \times 10^{-4}$ | 62% (8) |
| 3 | 0,074 | $1,73 \times 10^{-3}$ | $1,92 \times 10^{-4}$ | $1,00 \times 10^{-3}$ | 64%(9) |
| 4 | 0,102 | $3,93 \times 10^{-3}$ | $1,88 \times 10^{-4}$ | $3,24 \times 10^{-4}$ | 61% (14) |
| 5 | 0,202 | $6,82 \times 10^{-4}$ | $1,14 \times 10^{-4}$ | $1,88 \times 10^{-4}$ | 10% (4) |
| 6 | 0,316 | $1,24 \times 10^{-3}$ | $1,40 \times 10^{-4}$ | $5,43 \times 10^{-4}$ | 22% (16) |
| 7 | 0,484 | $1,30 \times 10^{-3}$ | $2,64 \times 10^{-4}$ | $7,02 \times 10^{-4}$ | 5% (6) |
| 8 | 0,762 | | | | |
| 9 | 1,2 | $3,48 \times 10^{-3}$ | $2,23 \times 10^{-3}$ | $2,95 \times 10^{-3}$ | 6% (4) |

Les vitesses d'émission moyenne (Tableau 3.15) sont proches de 1×10^{-3} m.s⁻¹. La valeur de vitesse d'émission moyenne mesurée sur l'étage 3 est plus forte que sur les autres étages de l'ELPI.

Les vitesses d'émission maximum se répartissent entre l'étage 2 et l'étage 9. Les vitesses d'émission minimum sont globalement plus élevées d'un ordre de grandeur sur les étages 2 et 3 comparé aux autres étages de l'ELPI.

Tableau 3.15 : Vitesses d'émission de la campagne DEPECHEMOD 3.

| Etage | Diamètre (µm) | V_e maximum (m.s ⁻¹) | V_e minimum (m.s ⁻¹) | V_e moyenne (m.s ⁻¹) | Pourcentage sur les données validées (Nombres de valeurs) |
|----------|---------------|------------------------------------|------------------------------------|------------------------------------|---|
| Twin CNC | 0,006 | | | | |
| 1 | 0,014 | $3,23 \times 10^{-3}$ | $1,12 \times 10^{-4}$ | $1,33 \times 10^{-3}$ | 14% (3) |
| 2 | 0,041 | $1,60 \times 10^{-3}$ | $8,25 \times 10^{-4}$ | $1,17 \times 10^{-3}$ | 38% (5) |
| 3 | 0,074 | $5,68 \times 10^{-3}$ | $2,18 \times 10^{-3}$ | $3,61 \times 10^{-3}$ | 36% (5) |
| 4 | 0,102 | $2,09 \times 10^{-3}$ | $9,61 \times 10^{-5}$ | $8,46 \times 10^{-4}$ | 39% (9) |
| 5 | 0,202 | $2,36 \times 10^{-3}$ | $4,24 \times 10^{-5}$ | $9,83 \times 10^{-4}$ | 90% (38) |
| 6 | 0,316 | $3,61 \times 10^{-3}$ | $5,17 \times 10^{-5}$ | $1,29 \times 10^{-3}$ | 78% (56) |
| 7 | 0,484 | $9,66 \times 10^{-3}$ | $1,96 \times 10^{-4}$ | $2,81 \times 10^{-3}$ | 95% (126) |
| 8 | 0,762 | $2,06 \times 10^{-2}$ | $5,58 \times 10^{-4}$ | $6,39 \times 10^{-3}$ | 100% (69) |
| 9 | 1,2 | $1,10 \times 10^{-1}$ | $3,92 \times 10^{-4}$ | $1,45 \times 10^{-2}$ | 94% (59) |

3.4.2.2 Evolution de la vitesse de transfert vertical avec la méthode de dépôt direct de particules de fluorescéine (0,6 µm)

L'émission et le dépôt de particules de fluorescéine ont été effectués lors de cette campagne DEPECHEMOD 3 (Figure 3.30). Cette technique a été utilisée avant tout pour obtenir plus de vitesses de dépôt pour les particules du mode accumulation. En effet, comme on a pu le voir lors des campagnes DEPECHEMOD 1 et 2, très peu d'évènements de dépôt ont été mesurés pour les plateaux 5, 6, 7, 8 et 9 de l'ELPI (mode accumulation). Ainsi 9 émissions et échantillonnages de la fluorescéine sur herbe synthétique (flux) et filtre (concentration atmosphérique) ont permis d'obtenir 9 vitesses de dépôt sec robustes et permettant de valider le peu de données de vitesses de dépôt obtenues.

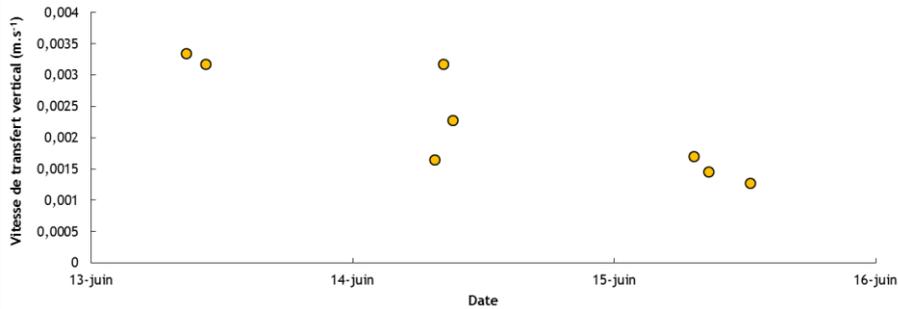


Figure 3.30 : Evolution journalière de la vitesse de dépôt sec de particules de fluorescéine de 0,6 µm. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

Le nombre de points obtenu ne permet pas de voir un lien avec les paramètres micrométéorologiques mais la valeur moyenne obtenue $2,3 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$.

3.4.3 Documentation des processus d'émission des bactéries : évolution de vitesse de transfert vertical en utilisant la méthode du gradient

Ce paragraphe a pour but de faire un inventaire des différentes vitesses de transfert obtenues pour les bactéries via la méthode du gradient, détaillée dans le chapitre 2. De la même façon que pour la méthode des corrélations turbulentes lors de DEPECHEMOD 3, l'évolution de la vitesse de transfert vertical sur la campagne a été tracée sur la Figure 3.31. Le nombre de prélèvements a été moins important pour cette campagne en raison de la maintenance nécessaire sur les autres appareils déployés sur le terrain. Il a été effectué 26 échantillonnages lors de cette campagne pour les mesures de flux par la méthode du gradient. Il est important de noter que les mesures se sont effectuées uniquement en journée étant donné que les prélèvements ne peuvent se faire en continu du fait du chargement et du déchargement des géluses dans les Andersen 1 étage. De plus, nous n'étions pas sur site le dimanche 12 juin, d'où l'absence de données. Les résultats présentés ici sont ceux où la différence entre la concentration au niveau haut (2 m) et au niveau bas (0,2 m) est supérieure à 1 écart type. De plus, certains champignons sont résistants à l'antifongique ajouté au milieu de culture et donc chaque prélèvement contenant des boîtes de Pétri contaminées avec des champignons n'a également pas été pris en compte. Ainsi 11 valeurs de vitesses de transfert vertical ont été retenues.

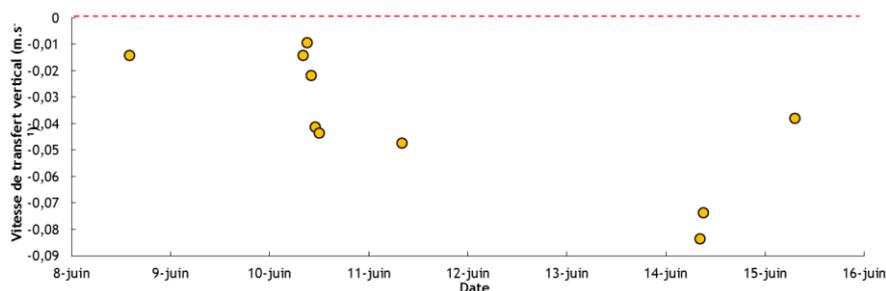


Figure 3.31 : Evolution journalière de la vitesse de transfert des bactéries par la méthode du gradient. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

Pour cette campagne comme la précédente, il a été mesuré uniquement des émissions pour les vitesses de transfert vertical des bactéries.

Il n'y a qu'une seule journée (10 juin) où le nombre de valeurs est assez élevé pour voir une évolution avec les principaux paramètres micrométéorologiques (H et u^*) avec la présence des plus fortes valeurs d'émission en milieu de journée. On remarque que les maximums de vitesses d'émissions sont plus forts le 14 juin, lorsque les vents plus forts ont été enregistrés durant la campagne (voir paragraphe 3.4.1). L'ordre de grandeur des vitesses d'émission est plus important et atteint $4 \times 10^{-2} \text{ m.s}^{-1}$ en moyenne (Tableau 3.16).

Tableau 3.16 : Vitesses de transfert vertical de bactéries lors de la campagne DEPECHEMOD 3.

| | Maximum (m.s^{-1}) | Minimum (m.s^{-1}) | Moyenne (m.s^{-1}) | Nombre de valeurs |
|--------------------|-------------------------------|-------------------------------|-------------------------------|-------------------|
| Vitesse de dépôt | | | | 0 |
| Vitesse d'émission | $8,35 \times 10^{-2}$ | $9,44 \times 10^{-3}$ | $3,87 \times 10^{-2}$ | 10 |

3.5 DEPECHEMOD 4

La campagne de mesure a eu lieu du 27 septembre au 7 octobre 2016, sur le même site de mesure. La hauteur de la prairie est plus faible que sur DEPECHEMOD 3 et, cette fois ci, elle n'a pas été amendée récemment par des dérivés azotés. Ainsi la hauteur de couvert est d'environ 20 cm et donne donc les différentes classes de stabilité, résumées dans le Tableau 3.17.

Tableau 3.17 : Classe de stabilité pour la campagne DEPECHEMOD 4.

| DEPECHEMOD 4 | |
|----------------------|------------------------|
| $z_o = 2 \text{ cm}$ | |
| Instable | $1/L \leq -0,018$ |
| Neutre | $-0,018 < 1/L < 0,008$ |
| Stable | $0,008 \leq 1/L$ |

Les résultats de vitesses de dépôt sec obtenu, par corrélation turbulente et par dépôt direct de fluorescéine, lors des trois premières campagnes étant très satisfaisant en qualité et en nombre, une nouvelle méthode est venue se greffer au dispositif déployé lors de DEPECHEMOD 3. En effet, afin d'obtenir un nouveau point pour les particules inférieures à 10 nm, une méthode du gradient a été développée pour la mesure des particules de 1,5 nm correspondant à la fraction libre des descendants du ^{222}Rn . Le Tableau 3.18 résume les hauteurs de mesures des différentes méthodes et appareils déployés sur le terrain.

Tableau 3.18 : Hauteur de mesures pour les différentes méthodes utilisées lors de DEPECHEMOD.

| | | |
|--|---|--|
| DEPECHEMOD 4 27 septembre au 7 octobre 2016 | Dépôt par la méthode du gradient | $z_{max} = 2 \text{ m}$ $z_{min} = 0,2 \text{ m}$ |
| | Dépôt par corrélation turbulente : Twin CNC | $z = 2 \text{ m}$ |
| | Dépôt par corrélation turbulente : ELPI | $z = 5 \text{ m}$ |
| | Dépôt direct de particules de Fluorescéine | Herbe synthétique : sur le couvert Prélèvement sur filtre : $h = 0,2 \text{ m}$ |
| | Emission de bactérie par la méthode du gradient | $z_{max} = 2 \text{ m}$ $z_{min} = 0,2 \text{ m}$ |

3.5.1 Paramètres micrométéorologiques

Les directions moyennes de vent (Figure 3.32) ont été essentiellement de sud-ouest ($220^\circ - 260^\circ$) en début de campagne jusqu'à la bascule de vent qui intervient le 3 octobre et une direction de vent direction nord-est (60°) est alors observée. La partie grisée correspond aux valeurs exclues du fait

de la présence de bâtiments dans ces directions de vent. Le nombre de valeurs exclues correspond à moins de 8% du nombre total de valeurs obtenues durant cette campagne

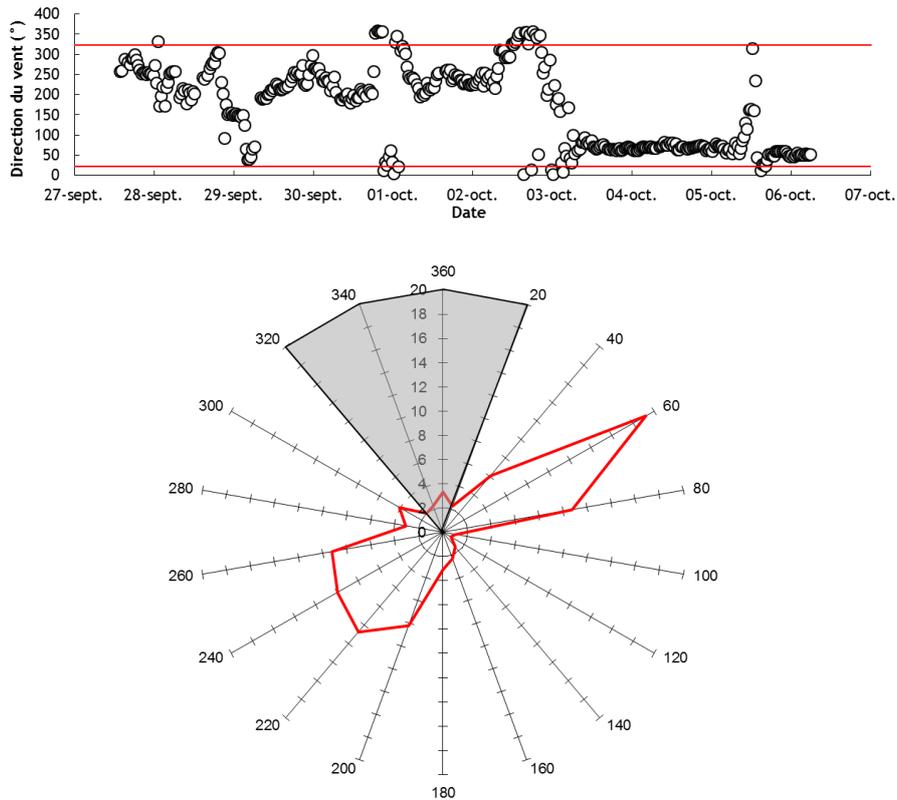


Figure 3.32 : Direction du vent lors de la campagne expérimentale DEPECHEMOD 4.

Les principaux paramètres micrométéorologiques moyennés sur 30 minutes sont regroupés sur la Figure 3.33 permettant d’appréhender la turbulence et les flux au niveau du sol pendant la campagne.

Les vitesses sont faibles en journée jusqu’au 3 octobre, la plupart sont en dessous de 5 m.s^{-1} , sauf la journée du 1^{er} octobre, où l’on atteint 7 m.s^{-1} . La vitesse du vent augmente ensuite à partir du 3 octobre pour atteindre des valeurs moyennes en journée de 7 m.s^{-1} avant une baisse le 5 octobre à 2 m.s^{-1} . La vitesse de frottement est liée à l’évolution de la vitesse du vent, des valeurs fortes en journée de $0,6 \text{ m.s}^{-1}$ ont été observées sauf le 30 septembre et le 6 octobre. Toutefois, les maxima diurnes des vitesses de frottement sont plus facilement identifiables que ceux des vitesses moyennes du vent.

Un passage nuageux conséquent les 25 et 26, et dans une moindre mesure le 29, entraîne quelques perturbation sous forme d’un profil plus dentelé de l’évolution du flux de chaleur sensible (H en W.m^{-2}). Toutefois, l’augmentation en journée avec le soleil est clairement établie sur toute la durée de la campagne. Des pics de l’ordre de 200 à 300 W.m^{-2} sont observés quand le soleil est au zénith, tandis que le flux de chaleur est proche de 0 et parfois négatif la nuit.

L'écart entre les températures atteintes en journée et la nuit, est sensiblement le même durant toute la campagne (entre 8 et 9 °C). Les températures maximales sont observées pendant la journée sont autour de 25 °C en début de campagne et diminue jusqu'à 20 °C le 2 octobre avant d'augmenter à nouveau jusqu'à la fin de la campagne tandis que les températures nocturnes sont proches de 15°C les premières nuits puis descendent à moins de 10°C le 2 octobre, avant d'augmenter à 12°C les deux derniers jours. Un conséquent passage nuageux les 1^{er}, 2 et 5 octobre entraîne quelques perturbations sous forme d'un profil plus dentelé de l'évolution du flux de chaleur sensible (H en $W.m^{-2}$), toutefois l'augmentation en journée avec le soleil est clairement établie sur toute la durée de la campagne. Des pics de l'ordre de 200 à 250 $W.m^{-2}$ sont observés quand le soleil est au zénith, tandis que le flux de chaleur est proche de 0 et parfois négatif la nuit, comme lors de la nuit du 4 au 5 octobre et du 5 au 6 octobre.

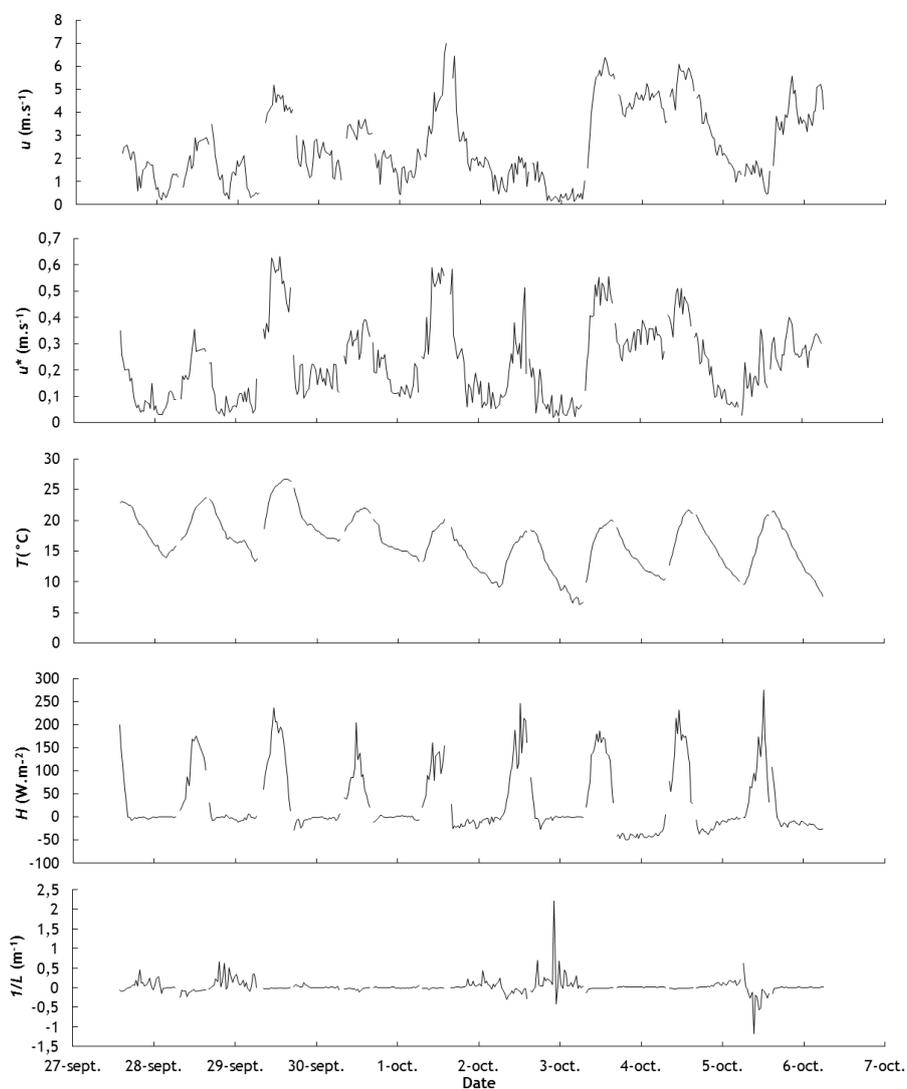


Figure 3.33 : Principaux paramètres micrométéorologiques durant la campagne DEPECHEMOD

3.

Concernant l'évolution de la stabilité atmosphérique, l'échelle de l'axe vertical ($1/L$) est telle que seuls les épisodes de très forte stabilité ou instabilité peuvent être identifiés. Sur la Figure 3.34 une autre échelle, plus dilatée, permet de mieux identifier les conditions neutres ($-0,010 < 1/L < 0,008$).

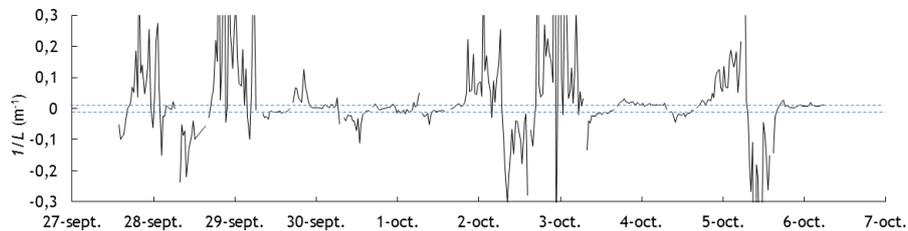


Figure 3.34 : Précision sur l'évolution de la stabilité atmosphérique durant la campagne DEPECHEMOD 4.

La stabilité atmosphérique quantifiée par l'inverse de la longueur de Monin-Obukhov donne des périodes très stables ($1/L > 0,008$) lors de la campagne DEPECHEMOD 4 à part les nuits du 30 septembre, du 1^{er} et 4 octobre, dont la stabilité est moins importante. Les journées du 28 septembre, du 2 octobre et du 5 octobre présentent des périodes de très fortes instabilité ($1/L < -0,01$) alors que les autres journées sont moins instables. La stabilité atmosphérique est globalement neutre ($-0,015 < 1/L < 0,012$) lors des périodes de transition au levé et au coucher du soleil.

3.5.2 Quantification de la vitesse de dépôt sec

3.5.2.1 *Evolution de la vitesse de transfert vertical avec la méthode du gradient de la fraction libre des descendants du ²²²Rn (1,5 nm)*

Cette méthode a été la dernière mise en œuvre à la toute fin de la campagne DEPECHEMOD 4. Le but de ces mesures de vitesses de dépôt sec de particules, qui ont une taille de l'ordre du nm, est de valider les modèles avec des mesures expérimentales, inexistantes *in situ* pour cette taille de particules. De plus, ces particules du mode nucléation sont issues de la conversion gaz/particules et pourraient donc avoir un impact en champ proche. Ainsi, l'évolution des vitesses de transfert vertical de la fraction libre des descendants du ²²²Rn a été tracée sur la Figure 3.35. 24 prélèvements ont été effectués. Dans le but d'avoir des résultats convenables et validés, la différence de concentration entre le niveau haut (2 m) et le niveau bas (0,2 m) est supérieure à 2 écart type. Ainsi, 17 valeurs de vitesse de transfert vertical ont pu être obtenues.

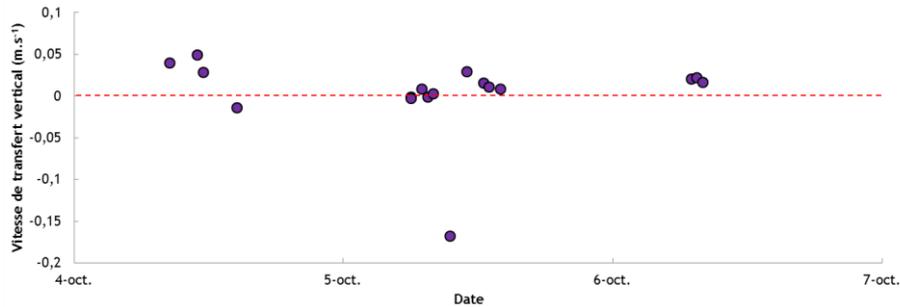


Figure 3.35 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 4 pour la fraction libre des descendants du ^{222}Rn (particules de 1,5 nm). Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

La tendance est plutôt au dépôt avec 71% des données validées. La journée du 5 octobre est intéressante car elle présente le plus de points et permet d'apercevoir un semblant d'évolution journalière avec un maximum en milieu de journée comme on pouvait le voir avec la méthode des corrélations turbulentes. Pour finir, la valeur moyenne des vitesses de dépôt et d'émission a le même ordre de grandeur : respectivement $2,1 \times 10^{-2}$ et $-3,7 \times 10^{-2} \text{ m.s}^{-1}$.

3.5.2.2 Evolution de la vitesse de transfert vertical avec la méthode corrélation turbulente (6 nm - 1,2 μm)

Les valeurs des vitesses de transferts sont tracées en fonction du temps sur les Figure 3.36, Figure 3.37, Figure 3.38, Figure 3.39 et Figure 3.40. De plus, les Tableau 3.19 et Tableau 3.20 donnent un récapitulatif des vitesses de dépôt et d'émission pour chaque taille de particules.

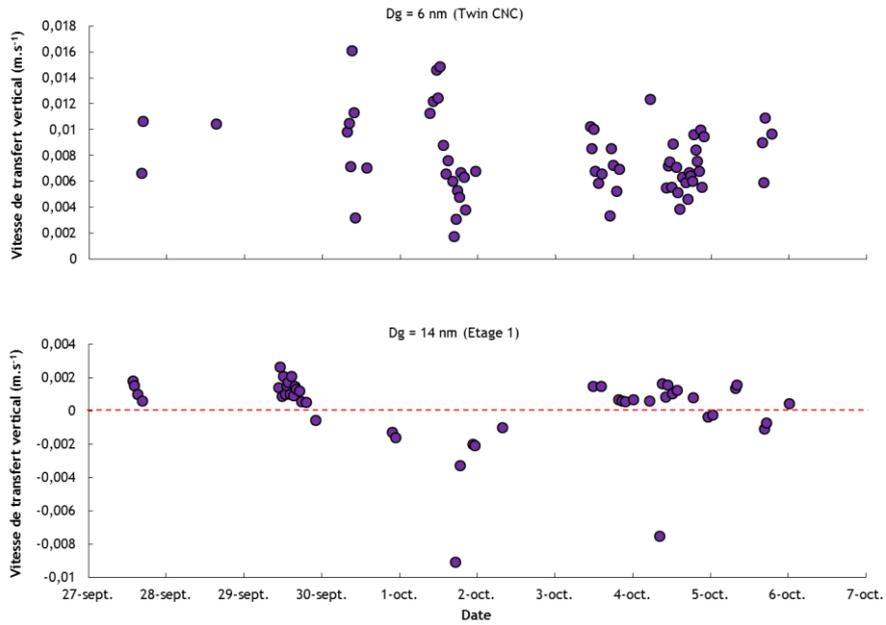


Figure 3.36 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 4 pour les twin CNC et l'étage 1 de l'ELPI. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

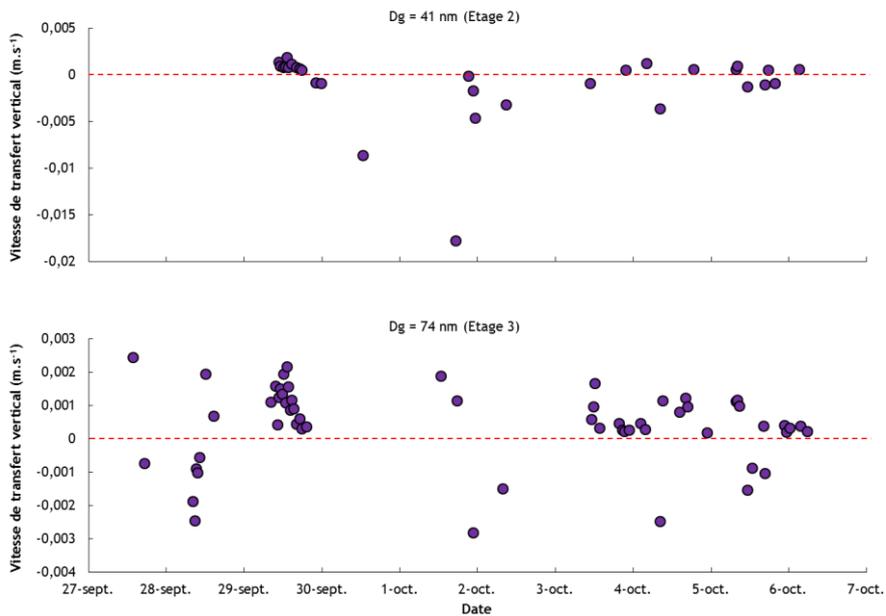


Figure 3.37 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 4 pour l'étage 2 et l'étage 3. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

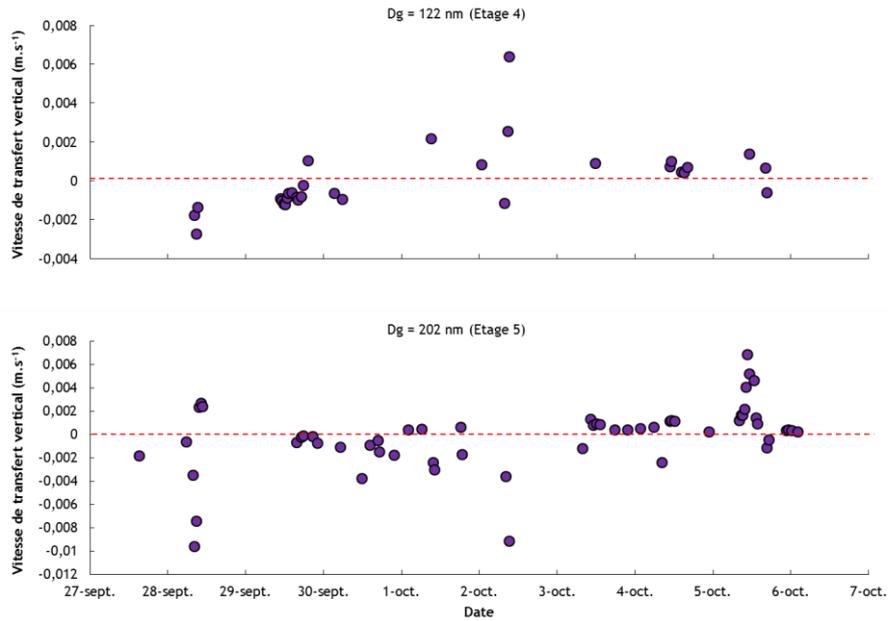


Figure 3.38 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 4 pour l'étage 4 et l'étage 5. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

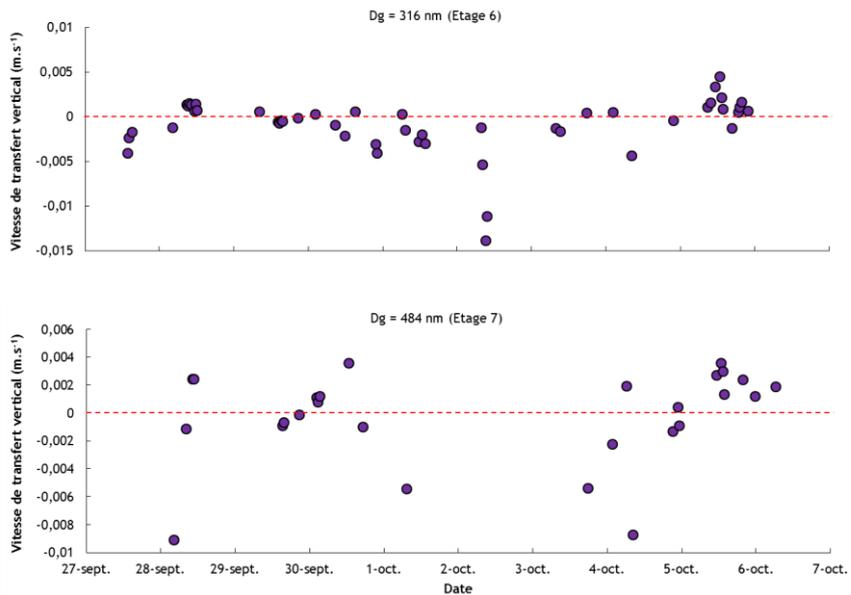


Figure 3.39 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 4 pour l'étage 6 et l'étage 7. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

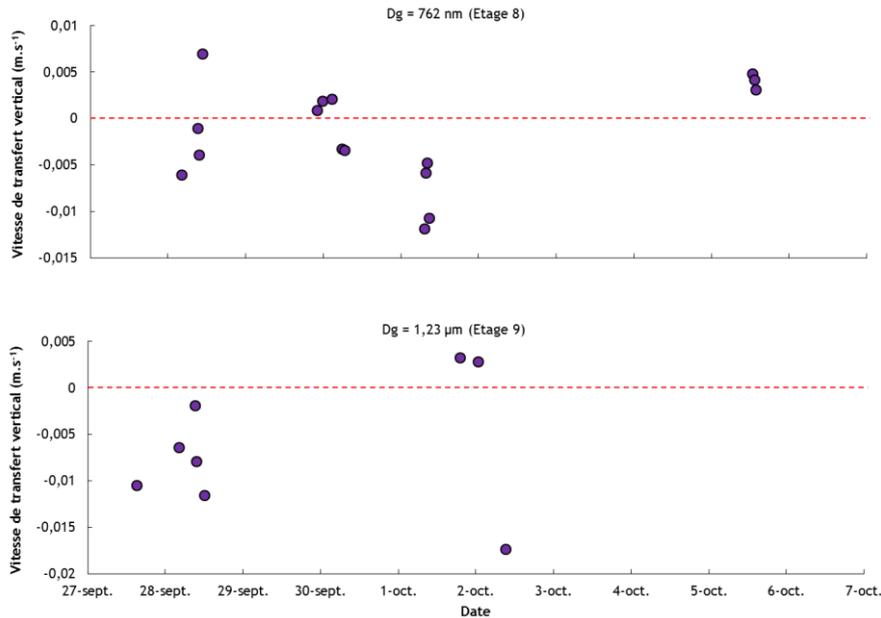


Figure 3.40 : Evolution journalière de la vitesse de transfert vertical durant la campagne DEPECHEMOD 4 pour l'étage 8 et l'étage 9. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

Comparé aux différentes campagnes, on ne retrouve pas autant d'épisodes d'émission sur les plateaux 5, 6, 7, 8 et 9. Cependant, l'évolution journalière avec les différents paramètres micrométéorologiques, que l'on retrouvait précédemment, n'est pas présente sur cette campagne à part la journée du 29 septembre pour les étages 1, 2 et 3 et la journée du 5 octobre pour les étages 5, 6 et 7. La méthode twin CNC, quant à elle, montre exclusivement des vitesses de dépôt et il semble y avoir une évolution journalière avec un pic en milieu de journée mais il n'y a cependant pas de valeur validée par correction spectrale la nuit.

Pour les étages 1, 2, 3, 4, 5, 6 et 7, ainsi que la méthode twin CNC, les vitesses de dépôt minimales sont proches et sont situées entre $1,78 \times 10^{-4}$ et $4,75 \times 10^{-4}$ $m.s^{-1}$. Elles sont légèrement plus importantes pour les étages 8 et 9 avec des valeurs respectives de $8,15 \times 10^{-4}$ et $2,80 \times 10^{-3}$ $m.s^{-1}$. Les V_d maximums sont de l'ordre de 2×10^{-3} $m.s^{-1}$ pour les étages 1, 2 et 3, de l'ordre de $6,5 \times 10^{-3}$ $m.s^{-1}$ pour les étages 4, 5 et 8 et de l'ordre de $6,5 \times 10^{-3}$ $m.s^{-1}$ pour les étages 6 et 9. La méthode twin CNC, quant à elle, présente un maximum de V_d de $5,73 \times 10^{-3}$ $m.s^{-1}$ pour une valeur moyenne de $2,40 \times 10^{-3}$ $m.s^{-1}$. Pour finir, les vitesses de dépôt moyennes sont proches pour tous les étages de l'ELPI avec des valeurs situées entre $8,33 \times 10^{-4}$ et $3,36 \times 10^{-3}$ $m.s^{-1}$.

Tableau 3.19 : Vitesses de dépôt de la campagne DEPECHEMOD 4.

| Etage | Diamètre (µm) | V_d maximum (m.s ⁻¹) | V_d minimum (m.s ⁻¹) | V_d moyenne (m.s ⁻¹) | Pourcentage sur les données validées (Nombres de valeurs) |
|----------|---------------|------------------------------------|------------------------------------|------------------------------------|---|
| Twin CNC | 0,006 | $5,73 \times 10^{-3}$ | $4,37 \times 10^{-4}$ | $2,40 \times 10^{-3}$ | 100% (64) |
| 1 | 0,014 | $2,65 \times 10^{-3}$ | $4,41 \times 10^{-4}$ | $1,18 \times 10^{-3}$ | 73% (35) |
| 2 | 0,041 | $1,81 \times 10^{-3}$ | $4,75 \times 10^{-4}$ | $8,33 \times 10^{-4}$ | 57% (17) |
| 3 | 0,074 | $2,43 \times 10^{-3}$ | $1,78 \times 10^{-4}$ | $8,96 \times 10^{-4}$ | 79% (46) |
| 4 | 0,102 | $6,37 \times 10^{-3}$ | $4,24 \times 10^{-4}$ | $1,47 \times 10^{-3}$ | 42% (13) |
| 5 | 0,202 | $6,81 \times 10^{-3}$ | $2,22 \times 10^{-4}$ | $1,53 \times 10^{-3}$ | 56% (32) |
| 6 | 0,316 | $4,50 \times 10^{-3}$ | $2,43 \times 10^{-4}$ | $1,21 \times 10^{-3}$ | 47% (23) |
| 7 | 0,484 | $3,58 \times 10^{-3}$ | $4,19 \times 10^{-4}$ | $1,99 \times 10^{-3}$ | 56% (15) |
| 8 | 0,762 | $6,93 \times 10^{-3}$ | $8,15 \times 10^{-4}$ | $3,36 \times 10^{-3}$ | 44% (7) |
| 9 | 1,2 | $3,16 \times 10^{-3}$ | $2,80 \times 10^{-3}$ | $2,98 \times 10^{-3}$ | 25% (2) |

Concernant l'émission, on remarque que la méthode twin CNC ne présente aucune vitesse validée. Les valeurs minimales sont du même ordre de grandeur pour les aérosols de 0,014 µm à 0,484 µm et comprises entre $5,74 \times 10^{-4}$ et $1,58 \times 10^{-4}$ m.s⁻¹. Les vitesses d'émission des étages 8 et 9 sont supérieures d'un ordre de grandeur et sont respectivement $1,10 \times 10^{-3}$ et $1,94 \times 10^{-3}$ m.s⁻¹. L'observation peut également être valable pour les V_e moyennes et sont donc comprises $1,04 \times 10^{-3}$ à $3,54 \times 10^{-3}$ pour les 7 premiers étages de l'ELPI et sont supérieures pour les étages 8 et 9 (respectivement $5,69 \times 10^{-3}$ et $9,31 \times 10^{-3}$). Au niveau des V_e maximum, elles sont proches de 1×10^{-2} m.s⁻¹ sauf pour les étages 2 et 3 avec des valeurs proches de 3×10^{-3} m.s⁻¹.

Tableau 3.20 : Vitesses d'émission de la campagne DEPECHEMOD 4.

| Etage | Diamètre (µm) | V_e maximum (m.s ⁻¹) | V_e minimum (m.s ⁻¹) | V_e moyenne (m.s ⁻¹) | Pourcentage sur les données validées (Nombres de valeurs) |
|----------|---------------|------------------------------------|------------------------------------|------------------------------------|---|
| Twin CNC | 0,006 | | | | |
| 1 | 0,014 | $9,09 \times 10^{-3}$ | $2,41 \times 10^{-4}$ | $2,38 \times 10^{-3}$ | 27% (13) |
| 2 | 0,041 | $1,78 \times 10^{-2}$ | $1,84 \times 10^{-4}$ | $3,54 \times 10^{-3}$ | 43% (13) |
| 3 | 0,074 | $2,83 \times 10^{-3}$ | $5,74 \times 10^{-4}$ | $1,49 \times 10^{-3}$ | 21% (12) |
| 4 | 0,102 | $2,73 \times 10^{-3}$ | $2,39 \times 10^{-4}$ | $1,04 \times 10^{-3}$ | 58% (18) |
| 5 | 0,202 | $9,61 \times 10^{-3}$ | $1,19 \times 10^{-4}$ | $2,40 \times 10^{-3}$ | 44% (25) |
| 6 | 0,316 | $1,39 \times 10^{-2}$ | $1,31 \times 10^{-4}$ | $2,78 \times 10^{-3}$ | 53% (26) |
| 7 | 0,484 | $9,08 \times 10^{-3}$ | $1,58 \times 10^{-4}$ | $3,09 \times 10^{-3}$ | 44% (12) |
| 8 | 0,762 | $1,19 \times 10^{-2}$ | $1,10 \times 10^{-3}$ | $5,69 \times 10^{-3}$ | 56% (9) |
| 9 | 1,2 | $1,74 \times 10^{-2}$ | $1,94 \times 10^{-3}$ | $9,31 \times 10^{-3}$ | 75% (6) |

3.5.2.3 Evolution de la vitesse de transfert vertical avec la méthode de dépôt direct de particules de fluorescéine (0,6 µm)

Les mesures de dépôt de particules de fluorescéine sont plus nombreuses que lors de DEPECHEMOD 3. En effet, durant DEPECHEMOD 4, 19 émissions de fluorescéine ont été effectuées et ont permis d'obtenir 17 vitesses de dépôt (Figure 3.41).

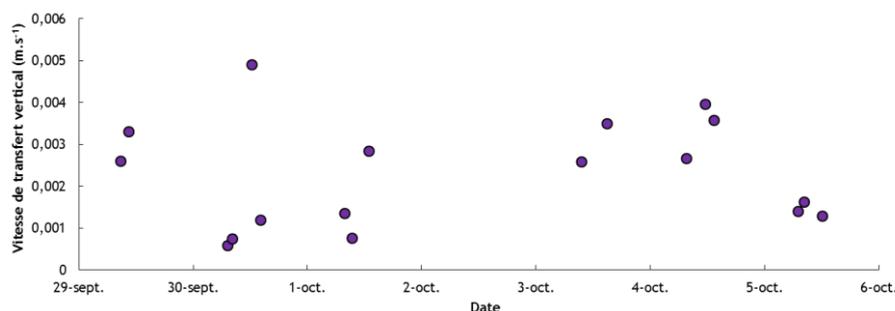


Figure 3.41 : Evolution journalière de la vitesse de dépôt sec de particules de fluorescéine de 0,6 µm. Les $V_t > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_t < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

Le cycle diurne-nocturne dû aux paramètres micrométéorologiques est encore une fois difficile à distinguer du fait du peu de nombre de valeurs par journée. Cependant, une valeur semble plus

forte à chaque milieu de journée. La valeur moyenne de ces vitesses de dépôt sec est $2,46 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$, valeur très proche de la vitesse de dépôt sec obtenu lors de DEPECHEMOD 3.

3.5.3 Documentation des processus d'émission des bactéries : évolution de vitesse de transfert vertical en utilisant la méthode du gradient

Ce paragraphe a pour but de faire un inventaire des différentes vitesses de transfert vertical obtenues pour les bactéries via la méthode du gradient détaillée dans le chapitre 2. De la même façon que pour la méthode des corrélations turbulentes lors de DEPECHEMOD 4, l'évolution de la vitesse de transfert vertical sur la campagne a été tracée sur la Figure 3.42. Le nombre de prélèvements a été moins important pour cette campagne en raison de la maintenance nécessaire sur les autres appareils déployés sur le terrain. Il a été effectué 47 échantillonnages lors de cette campagne pour les mesures de flux par la méthode du gradient. Il est important de noter que les mesures se sont effectuées uniquement en journée, étant donné que les prélèvements ne peuvent se faire en continu, du fait du chargement et du déchargement des géloses dans les Andersen 1 étage. De plus, nous n'étions pas sur site le dimanche 2 octobre, d'où l'absence de données. Les résultats présentés ici sont ceux où la différence entre la concentration au niveau haut (2 m) et au niveau bas (0,2 m) est supérieure à 1 écart type. De plus, certains champignons sont résistants à l'antifongique ajouté au milieu de culture et donc chaque prélèvement contenant des boîtes de Pétri contaminées avec des champignons n'a également pas été pris en compte. Ainsi, 30 valeurs de vitesses de transfert vertical ont été retenues.

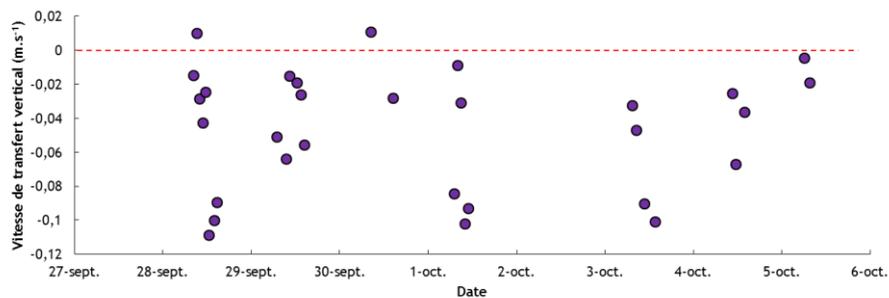


Figure 3.42 : Evolution journalière de la vitesse de transfert des bactéries par la méthode du gradient. Les $V_z > 0$ correspondent à des épisodes de dépôts et les $V_z < 0$ correspondent à des épisodes d'émissions.

Pour cette campagne, comme la précédente, il a été mesuré des dépôts (7%) mais surtout des émissions pour les vitesses de transfert vertical des bactéries. Les journées du 28 septembre et du 30 septembre donnent du dépôt de bactérie le matin. La vitesse du vent est relativement faible ($< 3 \text{ m.s}^{-1}$) à cette période et pourrait donc expliquer ce dépôt. Cependant les valeurs fortes de vitesses d'émissions fortes ($< -0,08 \text{ m.s}^{-1}$) ne peuvent pas être expliquées par la remise en suspension éolienne étant donné les faibles vents rencontrés dans la journée ($< 3 \text{ m.s}^{-1}$), et pourraient donc être dues à de la remise en suspension mécanique (activités agricoles, humaine... autour du site de

mesure). Les valeurs maximales rencontrées le 1^{er} et le 3 octobre peuvent s'expliquer par la mise en suspension éolienne. Pour finir, l'ordre de grandeur d'émission est le même que les précédentes campagnes : environ $5 \times 10^{-2} \text{ m.s}^{-1}$ (Tableau 3.21). Les vitesses de dépôt sont élevées et du même ordre de grandeur que lors de DEPECHEMOD 1 et, elles correspondent à des particules dont le diamètre aérodynamique est d'environ 20 μm .

Tableau 3.21 : Vitesses de transfert vertical de bactéries lors de la campagne DEPECHEMOD 4.

| | Maximum (m.s^{-1}) | Minimum (m.s^{-1}) | Moyenne (m.s^{-1}) | Nombre de valeurs |
|--------------------|-------------------------------|-------------------------------|-------------------------------|-------------------|
| Vitesse de dépôt | $1,06 \times 10^{-2}$ | $1,00 \times 10^{-2}$ | $1,03 \times 10^{-2}$ | 2 |
| Vitesse d'émission | $1,09 \times 10^{-1}$ | $4,67 \times 10^{-3}$ | $5,05 \times 10^{-2}$ | 28 |

3.6 Conclusion

Ce chapitre a permis de dresser un inventaire de l'ensemble des observations réalisées durant les quatre campagnes de mesures. Les sites expérimentaux et les matériels mis en œuvre ont été décrits. La prise en compte de l'évolution des principaux paramètres météorologiques comme le flux de chaleur sensible, la vitesse du vent, la température ou encore la stabilité atmosphérique, est nécessaire pour caractériser la turbulence et son évolution sur l'ensemble de la campagne. Les évolutions des vitesses de transfert vertical sont présentées en fonction de la taille d'aérosols (de 1,5 nm à 1,2 μm) et permettent de montrer leur ordre de grandeur suivant la taille des particules. Les résultats concernant l'étude de la mise ou remise en suspension des bactéries ont également été présentés sous forme d'évolution journalière de vitesses de transfert vertical.

Les campagnes DEPECHEMOD se sont déroulées sur une prairie de la ferme expérimentale de l'INRA de Lusignan. Cette prairie a subi différents traitements aux dérivés azotés lors des 3 premières campagnes.

DEPECHEMOD 1 qui s'est déroulée en avril 2015, a été la campagne de mise au point de la méthode Twin CNC et de la méthode du gradient pour le calcul des flux de bactéries. La méthode par corrélation turbulente avec l'ELPI avec déjà été mise en œuvre lors des campagnes de la thèse de Damay (2010). Le fait que les 2 CNC utilisés soient différents (temps de réponse différent) a engendré la validation de peu de données mais la méthodologie a pu être validée. Contrairement aux mesures de vitesses de transferts verticaux effectuées avec l'ELPI lors de cette campagne, l'évolution journalière liée à celle des paramètres micrométéorologiques, plus particulièrement la vitesse de frottement du vent et le flux de chaleur sensible. Les premiers résultats concernant la mise en suspension des bactéries montrent une majorité de phénomène d'émission et il semblerait

qu'il soit intimement lié à la vitesse du vent et plus particulièrement à la vitesse de frottement du vent.

Pour DEPECHEMOD 2, l'utilisation de deux CNC identiques a permis d'obtenir beaucoup plus de vitesses de dépôt, et qui, cette fois ci semble liées aux évolutions journalières des principaux paramètres micrométéorologiques. Le nombre de valeurs de vitesses de transfert vertical validées sur les différents étages de l'ELPI est également très important et les évolutions journalières sont vraiment intéressantes et marquées. La tendance, déjà aperçue lors de DEPECHEMOD 1, selon laquelle une majorité de cas de vitesses de dépôt, par rapport aux vitesses d'émission, est observée sur les premiers étages de l'ELPI. Ceci a pu être confirmé pour la méthode twin CNC. De plus, les plateaux de l'ELPI qui concernent les particules supérieures à $0,2 \mu\text{m}$ (mode accumulation) présentent quasi-essentiellement des vitesses d'émissions. Concernant la mise en suspension des bactéries, le nombre de prélèvements et de vitesses de transfert vertical validées est également beaucoup plus important. La première tendance aperçue lors de DEPECHEMOD 1 avec la présence d'un processus de remise en suspension éolien est confirmée.

Concernant la campagne DEPECHEMOD 3, pour l'étude du dépôt sec, les ordres de grandeurs des vitesses de transfert vertical sont assez proches des valeurs observées lors des campagnes précédentes. Une forte proportion de dépôt d'aérosols est encore détectée sur les étages de l'ELPI, correspondant aux tailles les plus petites et avec la méthode twin CNC et une forte proportion en émission pour les aérosols du mode accumulation (taille les plus grande). Cependant le nombre de valeurs validées est moins important pour les aérosols inférieurs à $0,2 \mu\text{m}$ que ce soit au niveau de l'étage de l'ELPI mais également avec la méthode twin CNC. Le lien entre l'évolution des paramètres micrométéorologiques et celles des vitesses de transferts est pour cette campagne moins marqué (météo pluvieuse sur cette campagne). Du fait de la part importante de vitesse d'émission pour les aérosols ($>0,2 \mu\text{m}$), une méthode de dépôt direct de fluorescéine de particules de $0,6 \mu\text{m}$ a été utilisée afin d'obtenir plus de vitesses de dépôt sec pour cette taille d'aérosols. Cependant, pour cette technique, aucune relation avec les paramètres micrométéorologiques n'a pu être mis en exergue lors de cette campagne expérimentale. Concernant l'étude des processus d'émission des bactéries, le nombre de point acquis est assez faible et aucune nouvelle observation en plus par rapport aux précédentes campagnes ne peut être effectuée.

Enfin, la campagne DEPECHEMOD 4 a permis d'approfondir les mesures de vitesses de dépôt pour les particules ultrafines. En effet, une nouvelle méthode du gradient concernant la fraction des descendants du ^{222}Rn a permis d'obtenir des vitesses de dépôt sec pour les particules ultrafines de l'ordre du nanomètre. De plus, il semblerait que ces vitesses ne suivent pas l'évolution journalière des principaux paramètres micrométéorologiques. Concernant les mesures par corrélation turbulente, les proportions d'émission pour les particules les plus grosses sont beaucoup moins importantes par rapport aux autres campagnes, ce qui a permis d'obtenir un nombre de points conséquent de vitesse de dépôt pour ces tailles d'aérosols, à part pour l'étage 9 où les concentrations rencontrées sont proches de la limite de détection. L'évolution des vitesses de

transfert vertical est, comme DEPECHEMOD 3, moins marquée ; à part pour certains jours et en fonction des différents étages de l'ELPI. Concernant le dépôt des particules de fluorescéine, la valeur moyenne de vitesse de dépôt est très proche de celle obtenue sur la campagne DEPECHEMOD 3. Pour finir, le processus d'émission des bactéries semble être une nouvelle fois éolien et les valeurs de vitesses de transfert vertical sont du même ordre de grandeur pendant les 4 campagnes expérimentales.

4 CHAPITRE 4 : ANALYSE DES RESULTATS DE L'ENSEMBLE DES CAMPAGNES EXPERIMENTALES

Dans cette partie, l'objectif est d'identifier et de quantifier les principaux paramètres influençant le dépôt et les processus d'émission des bactéries au niveau d'une prairie, à savoir : les paramètres micrométéorologiques et la taille des particules.

Ce chapitre est divisé en 2 parties, la première partie traite des flux d'émissions observés durant les expérimentations. Puis, l'influence des paramètres micrométéorologiques et de la taille des particules, sur les vitesses de dépôt sec, sera étudiée. D'une part, l'approche choisie de ne pas faire la moyenne entre les flux d'émission et de dépôt comme dans certains travaux (Nemitz *et al.*, 2002), a été justifiée, et d'autre part l'origine des flux d'émission a été étudiée. Cette première partie permettra également de quantifier l'influence de la correction de Webb sur les vitesses de dépôt sec. Enfin, pour conclure cette première partie, une comparaison des résultats obtenus lors des campagnes DEPECHEMOD sera effectuée avec les résultats de Damay (2010) et les différents modèles détaillés dans le chapitre 1.

La deuxième partie permettra d'évaluer l'impact des différents paramètres micrométéorologiques sur les processus d'émission des bactéries. Les différentes mesures et observations lors des campagnes expérimentales ont conduit à développer une technique permettant de mesurer la taille des bioaérosols, basée sur une chambre de sédimentation développée par Boulaud *et al.* (1983).

4.1 Dépôt et émission de l'aérosol atmosphérique

Cette partie va permettre de faire le bilan des différentes vitesses de transfert vertical obtenues avec trois techniques différentes. Cependant, avant de discuter les vitesses de dépôt, on a pu voir dans le chapitre 3 qu'avec la méthode des corrélations turbulentes (particules de 6 nm à 1,2 μm) il y avait un nombre non négligeable de vitesses d'émission.

4.1.1 Emission de l'aérosol atmosphérique : méthode par corrélation turbulente (6 nm - 1,2 μm)

De nombreuses vitesses d'émissions ont été mesurées lors des campagnes DEPECHEMOD. Beaucoup d'auteurs (Deventer *et al.*, 2015; Held & Klemm, 2006; Nemitz *et al.*, 2004) les ont étudiées et ont émis des hypothèses qui n'ont, pour l'instant, pas été confirmées. La Figure 4.1 présente une comparaison des cospectres normalisés par leur flux respectifs du flux de chaleur sensible ($\overline{w'T'}$) et du flux de particules ($\overline{w'C'}$). En effet, cette figure correspond à un cospectre de flux d'émission d'aérosols validé par la méthode de correction spectrale (A) et invalidé (B).

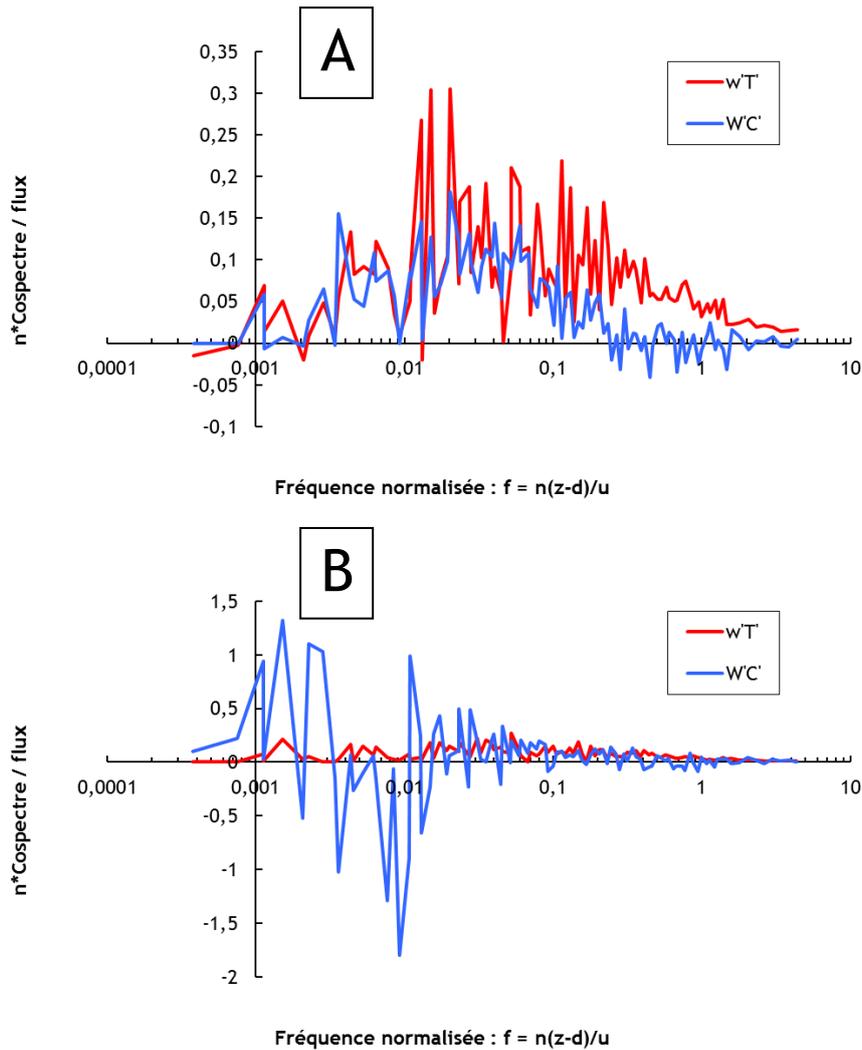


Figure 4.1 : Exemples de cospectres correspondant au flux d'émission d'aérosols comparés avec le cospectre du flux de chaleur sensible. A : cospectre retenu après analyse cospectrale. B : cospectre rejeté après analyse cospectrale

Il est observé une forte similarité des cospectres (Figure 4.1 A)), garantissant alors le caractère physique des phénomènes observés (Damay *et al.*, 2009). Ainsi, le phénomène d'émission représenté sur la Figure 4.1 A) est bien physiquement réel. De plus, cette prédominance ou non de phénomène d'émission est liée au diamètre des particules. En effet, la Figure 4.2 montre une prédominance, lors des différentes campagnes, des phénomènes d'émission pour les aérosols au-dessus de $1 \mu\text{m}$, tandis que les flux de dépôt sont nettement en majorité pour les aérosols plus petits ($< 0,1 \mu\text{m}$). De plus, cette tendance est également observée pour le point des particules ultrafines correspondant à la méthode twin CNC (prédominance du dépôt).

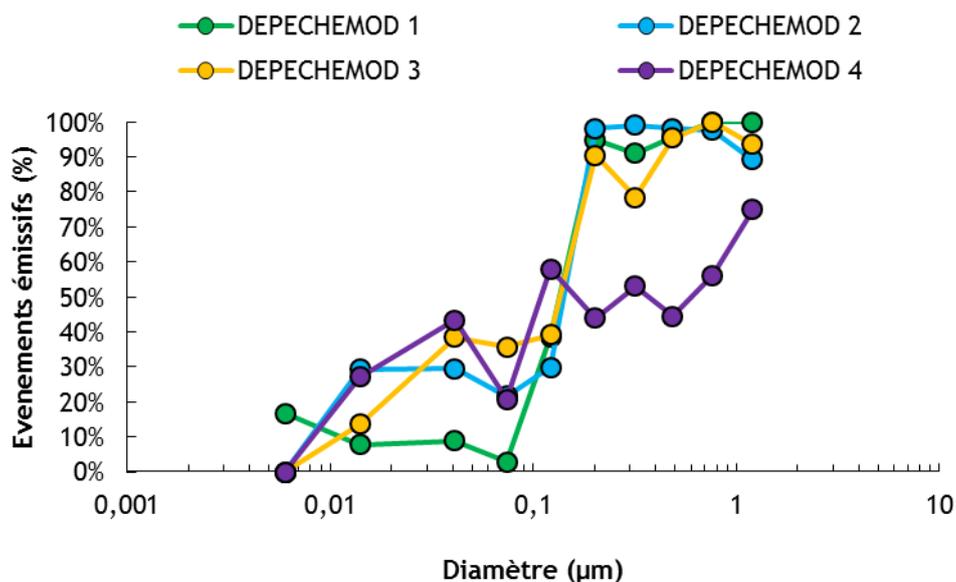


Figure 4.2 : Proportion d'événements émissifs en fonction du diamètre géométrique des particules pour l'ensemble des données 4 campagnes expérimentales DEPECHEMOD

Lamaud, Chapuis, *et al.* (1994) ont caractérisé l'érosion éolienne comme source de flux d'émission lors de campagnes expérimentales en milieu aride. Les vitesses de vent identifiées lors de ces mesures sont supérieures à 7 m.s^{-1} . Cependant, ce processus ne permet pas d'expliquer nos phénomènes d'émissions, étant donné les valeurs de vitesses de vent rencontrées dans les différentes campagnes. De plus, la gamme de taille des particules concernées par un tel processus est de l'ordre de $10 \mu\text{m}$ alors que notre étude se limite aux particules de diamètres inférieures à $1,2 \mu\text{m}$. En effet, plus la particule est fine moins le soulèvement éolien est important (voir paragraphe 1.4.1). Cette taille correspond au diamètre de coupure entre l'étage 8 et l'étage 9 de l'ELPI. Les tailles mesurées sont donc trop petites pour répondre à des processus de soulèvement éolien (Figure 4.3) correspondant aux vitesses de vents mesurées, c'est-à-dire inférieures à 7 m.s^{-1} (Marticorena & Bergametti, 1995).

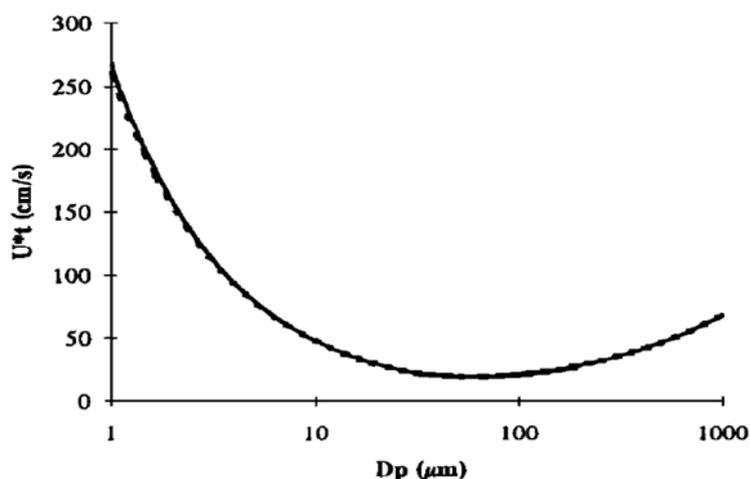


Figure 4.3 : Vitesses de frottement seuils u^*_t nécessaires pour la remise en suspension éolienne des particules $2,65 \text{ g.cm}^{-3}$ sur un sol nu en fonction de leur diamètre D_p (Marticorena & Bergametti, 1995)

Held *et al.* (2007) évoquent la conversion gaz/particules due aux terpènes comme sources de flux d'émissions, mais leurs mesures sont réalisées dans un milieu forestier et donc les épisodes d'émissions sur la prairie, étudiés ici, ne peuvent pas être expliqués uniquement par ce phénomène. Toutefois, l'hypothèse d'une conversion des gaz, émis par le couvert végétal en particules, est reprise dans la littérature pour d'autres couverts que le couvert forestier. Nemitz *et al.* (2004) observent une répartition similaire entre le dépôt et l'émission au-dessus de garrigues (Heathland) et expliquent que le phénomène est lié aux pratiques agricoles. On remarque ainsi que la prédominance de phénomènes d'émission est d'autant plus marquée pour les couverts qui ont subi un amendement récent (une semaine avant les campagnes expérimentales). En effet, lors de DEPECHEMOD 1, 2 et 3, la prairie a été amendée avec des dérivés azotés tandis qu'elle n'a subi aucun traitement lors DEPECHEMOD 4. La fertilisation par des dérivés azotés favorise des phénomènes de conversion des gaz (NH_3 , HNO_3) en particules de quelques nanomètres (mode nucléation de l'aérosol atmosphérique) par condensation (Duporté *et al.*, 2017). Ces particules, de quelques nanomètres très réactives, peuvent :

- (1) réagir entre elles pour former les clusters du mode d'Aitken et ces clusters vont ensuite coaguler sur le mode accumulation de l'aérosol atmosphérique ;
- (2) condenser directement sur les particules du mode accumulation.

De plus, on remarque que l'augmentation du nombre de phénomène d'émission se fait lors du changement de mode de l'aérosol atmosphérique : on passe du mode d'Aitken au mode accumulation. Il y aura donc une augmentation de la taille des particules du mode accumulation et donc un décalage du spectre granulométrique vers les plus grosses tailles qui pourrait être traduit par un flux vertical d'émission de ces particules.

Les flux verticaux d'émission d'aérosol ont été mesurés et analysés dans la littérature (Deventer *et al.*, 2015; Nemitz *et al.*, 2004), et la stratégie vis-à-vis des mesures de flux positifs peut différer suivant les approches. Certains auteurs (Nemitz *et al.*, 2002) intègrent les flux d'émissions à leurs moyennes de calcul de flux normalisés par la concentration tout en gardant l'appellation vitesse de dépôt. L'autre approche consiste à étudier séparément les flux de dépôt des flux d'émission (Deventer *et al.*, 2015; Lamaud, Chapuis, *et al.*, 1994). Dans ce cas, il faut considérer les données comme étant des vitesses de transfert minimales des aérosols entre le couvert et l'air. Nous avons choisi la deuxième approche, dans la mesure où les critères de qualité nous permettent d'estimer que le phénomène résultant observé ait lieu de façon stationnaire durant chaque demi-heure de mesure.

4.1.2 Paramètres micrométéorologiques (H et u^*) influençant la vitesse de dépôt sec

Dans ce paragraphe nous allons nous intéresser au lien entre les principaux paramètres micrométéorologiques et les vitesses de dépôt sec. Ainsi, cet impact sera évalué suivant les différentes techniques de mesures de vitesses de dépôt sec.

4.1.2.1 Particules de 1,5 nm : méthode du gradient avec la fraction libre des descendants ^{222}Rn

Les Figure 4.4 et Figure 4.5 regroupe l'ensemble des résultats validés concernant les vitesses de dépôt sec de la fraction libre des descendants du ^{222}Rn .

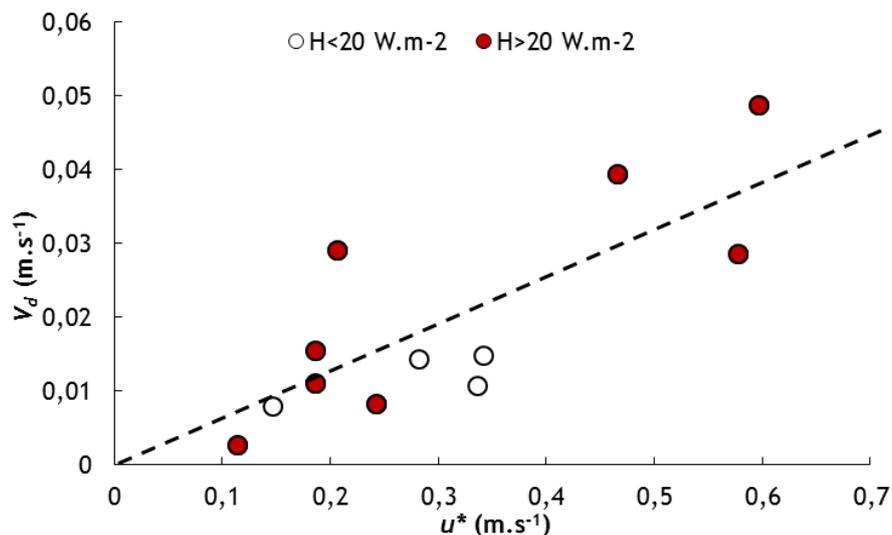


Figure 4.4 : Influence de u^* sur les vitesses de dépôt sec obtenu par la méthode du gradient des descendants du ^{222}Rn

La vitesse de frottement du vent semble avoir une influence sur les vitesses de dépôt sec de particules ultrafines. De plus, afin de découpler turbulence mécanique et thermique, deux catégories de flux de chaleur sensibles ont été définies. La première catégorie concerne l'ensemble

des vitesses de dépôt mesurées durant des épisodes où le flux de chaleur est faible, c'est-à-dire en dessous de 20 W.m^{-2} . La seconde catégorie regroupe les données de vitesses de dépôt mesurées pendant des épisodes de flux de chaleur sensible supérieurs à 20 W.m^{-2} . Ce seuil, qui est commun à toutes les granulométries, a été choisi par itérations afin d'obtenir une réponse linéaire de V_d en fonction de H . On peut alors observer que la turbulence ne semble pas avoir un impact sur la vitesse de dépôt sec des particules nanométriques. Afin de renforcer cette observation, la Figure 4.5 a été tracée.

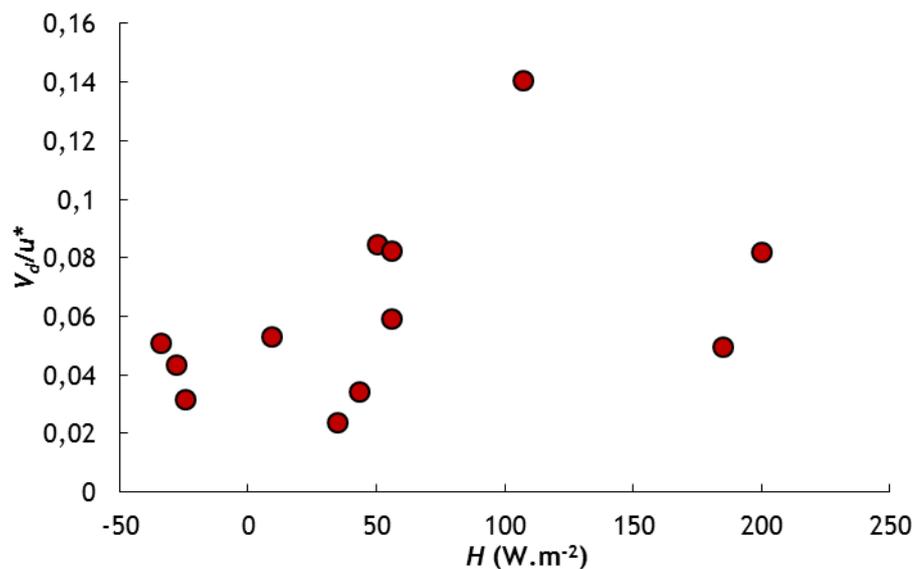


Figure 4.5 : Influence de H sur les vitesses de dépôt sec normalisées par u^* obtenues par la méthode du gradient des descendants du ^{222}Rn .

On peut clairement voir sur cette figure que le flux de chaleur sensible ne semble pas avoir une influence sur la vitesse de dépôt sec des particules ultrafines. En effet, si on s'affranchit de l'impact de u^* en normalisant la vitesse de dépôt sec par la vitesse de frottement du vent, on obtient un rapport quasi-constant. La vitesse de dépôt, pour cette taille de particules, est pilotée par le mécanisme de diffusion brownienne et la turbulence mécanique (u^*) indépendamment de la turbulence thermique (H) (voir chapitre 1). En effet on peut voir sur la Figure 4.6, que le coefficient de diffusion brownienne D_b (Équation 1.17) pour des particules de 1 nm est supérieur de deux ordres de grandeurs à celui de particules de 10 nm.

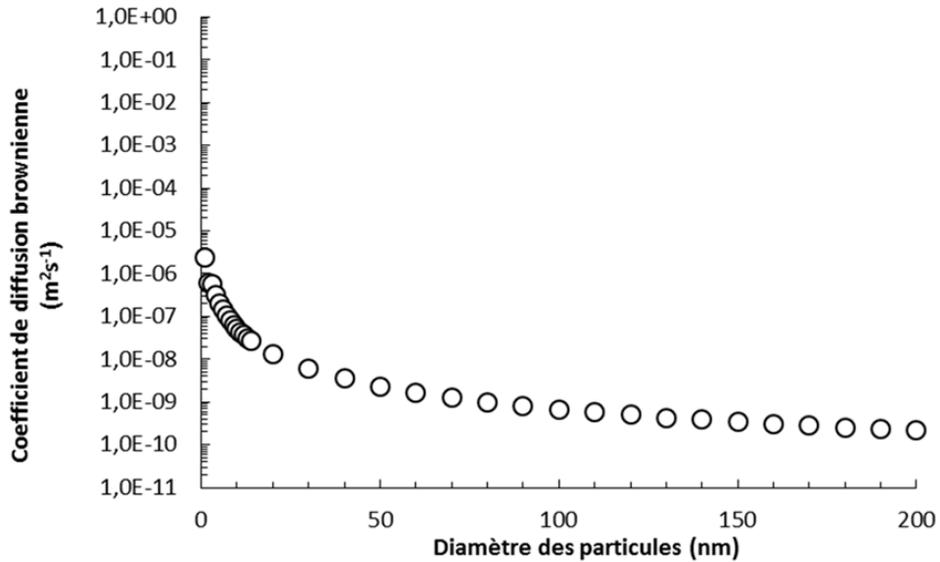


Figure 4.6 : Coefficient de diffusion brownienne en fonction du diamètre des particules.

Cependant, le nombre de points n'est pas suffisant pour affirmer cette tendance déjà aperçue dans le chapitre 2.

4.1.2.2 Particules de 6 nm - 1,2 µm : méthode des corrélations turbulentes avec l'aérosol atmosphérique

Avant de présenter les résultats concernant les principaux paramètres micrométéorologiques et les vitesses de dépôt, il a été choisi de montrer l'influence des différentes corrections effectuées lors du calcul de flux par corrélations turbulentes, et donc, sur les vitesses de dépôt présentées dans les paragraphes précédents.

Damay *et al.* (2009) ont montré que la correction spectrale est obligatoire, si on veut présenter des résultats cohérents et peu dispersés de vitesses de dépôt sec. L'impact de la correction de Webb a également été quantifié (Tableau 4.1).

Tableau 4.1 : Ecart relatifs sur la vitesse de dépôt sec dus à la correction de Webb lors des 4 campagnes expérimentales DEPECHEMOD.

| Etage | Taille (µm) | DEPECHEMOD 1 | DEPECHEMOD 2 | DEPECHEMOD 3 | DEPECHEMOD 4 |
|----------|-------------|--------------|--------------|--------------|--------------|
| Twin CNC | 0,006 | 0% | -1% | -2% | -1% |
| 1 | 0,014 | -3% | -2% | -3% | -2% |
| 2 | 0,041 | -3% | -2% | -6% | -2% |
| 3 | 0,074 | -3% | -3% | -4% | -2% |
| 4 | 0,102 | -3% | -5% | -3% | -1% |
| 5 | 0,202 | 0% | 1% | -4% | -1% |
| 6 | 0,316 | 0% | -1% | -2% | -1% |
| 7 | 0,484 | 0% | -1% | 0% | 0% |
| 8 | 0,762 | | -1% | | 0% |
| 9 | 1,2 | | -1% | -1% | 0% |

Les résultats montrent que la correction de Webb tend à diminuer les flux de particules et a très peu d'impact sur les vitesses de dépôt sec obtenu par corrélation turbulente. En effet, la correction de Webb tend à diminuer le flux de particules. En effet, la moyenne des corrections est d'environ -3 % avec un maximum (en valeur absolue) de -6% pour l'étage 2 lors de DEPECHEMOD 3. Seule la correction de Webb moyenne pour l'étage 2 lors de DEPECHEMOD 2 augmente faiblement (1%) le flux de particules. Ainsi, il a été décidé de ne pas prendre en compte cette correction.

L'influence sur l'évolution des vitesses de dépôt sec en fonction de u^* est représentée sur la Figure 4.7. L'évolution globale est majoritairement confirmée, avec l'augmentation de la vitesse de dépôt en même temps que u^* . Toutefois, il y a une forte dispersion. La principale raison de cette évolution est que l'augmentation du paramètre u^* accroît le mélange turbulent et par conséquent le dépôt (Nemitz *et al.*, 2002). Mais là encore, la simultanéité des phénomènes thermiques et mécaniques ne nous permet pas de conclure de manière définitive sur la prépondérance de l'influence de H ou u^* . Comme précédemment, afin de pouvoir découpler les deux phénomènes, les vitesses de dépôt tracées en fonction de la vitesse de frottement du vent ont été classées en deux catégories de flux de chaleur sensibles, comme cela est illustré sur la Figure 4.7. La première catégorie concerne l'ensemble des vitesses de dépôt mesurées durant des épisodes où le flux de chaleur est faible, c'est-à-dire en dessous de 20 W.m^{-2} . La seconde catégorie regroupe les données de vitesses de dépôt mesurées pendant des épisodes de flux de chaleur sensible supérieurs à 20 W.m^{-2} .

L'évolution de la vitesse de dépôt, pour les particules du mode Aitken et du mode accumulation, mesurée par corrélation turbulente avec l'ELPI, en fonction de la vitesse de frottement du vent pour les flux de chaleur sensible faibles, est beaucoup moins dispersée que celle observée pour des flux de chaleur sensible plus forts. Ainsi, on peut considérer que pour des H inférieurs à 20 W.m^{-2} , c'est principalement la vitesse de frottement du vent qui impactera les valeurs de vitesse de dépôt.

Cependant, pour les particules de 6 nm (mode nucléation), les vitesses de dépôt sec mesurées par corrélation turbulente via la méthode twin CNC n'ont pas du tout la même évolution. En effet, il semble que l'influence de la turbulence thermique (indiquée par H) soit négligeable devant la turbulence mécanique (symbolisée par u^*), phénomène observé pour les particules nanométriques dans le paragraphe 4.1.2.1. La relation entre la vitesse de dépôt sec avec u^* pour des particules du mode nucléation (<10 nm) est linéaire et la dispersion est sûrement due aux incertitudes de mesure.

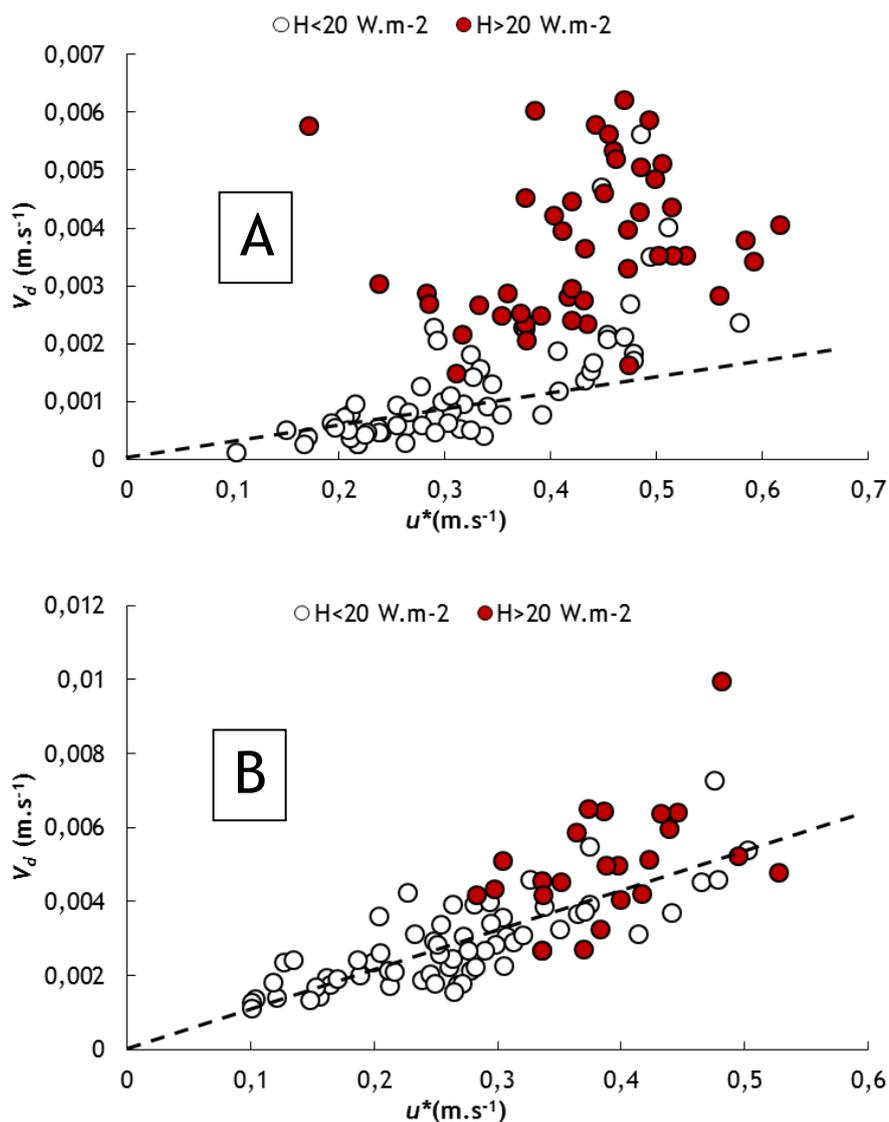


Figure 4.7 : Influence de u^* sur les vitesses de dépôt sec obtenues par corrélation turbulente sur l'étage 3 (74 nm) lors de DEPECHEMOD 2 (A) et pour la méthode twin CNC (6 nm) lors de DEPECHEMOD 2 (B).

Pour renforcer ces observations, le rapport V_d/u^* en fonction de H a été tracé afin d'évaluer plus précisément l'impact de H sur les vitesses de dépôt sec indépendamment de la turbulence mécanique (Figure 4.8). Chaque point correspond aux mêmes demi-heures de mesures validées de la Figure 4.7, que ce soit pour la méthode twin CNC mais également pour l'étage 3 de l'ELPI lors de DEPECHEMOD 2. Les résultats reportés sur la Figure 4.8 montrent une assez bonne corrélation entre V_d/u^* et H et ils pourraient suggérer d'utiliser une relation linéaire entre V_d/u^* et H . L'explication réside dans l'impact du flux de chaleur sensible sur la turbulence atmosphérique : plus ce flux sera fort plus les courants convectifs le seront et plus les échanges entre l'air et le substrat seront favorisés. Cependant, il semble que l'influence de H sur les particules ultrafines du mode de

nucléation soit minime, (6 nm) à l'instar des particules nanométriques. Comme précédemment pour la fraction libre des descendants du ^{222}Rn , le mécanisme de dépôt majoritaire pour cette taille de particules est la diffusion brownienne et donc le flux de chaleur sensible n'aurait pas ou peu d'impact pour cette taille de particules du fait de la valeur constante du rapport de V_d/u^* en fonction de H . Pour finir, la dispersion des points autour de la droite de régression est donc due aux incertitudes de mesures. L'ensemble des graphes de V_d en fonction de H pour toutes les campagnes et pour tous les étages de l'ELPI (dans la limite de détection) ainsi que pour la méthode twin CNC est présenté en annexe.

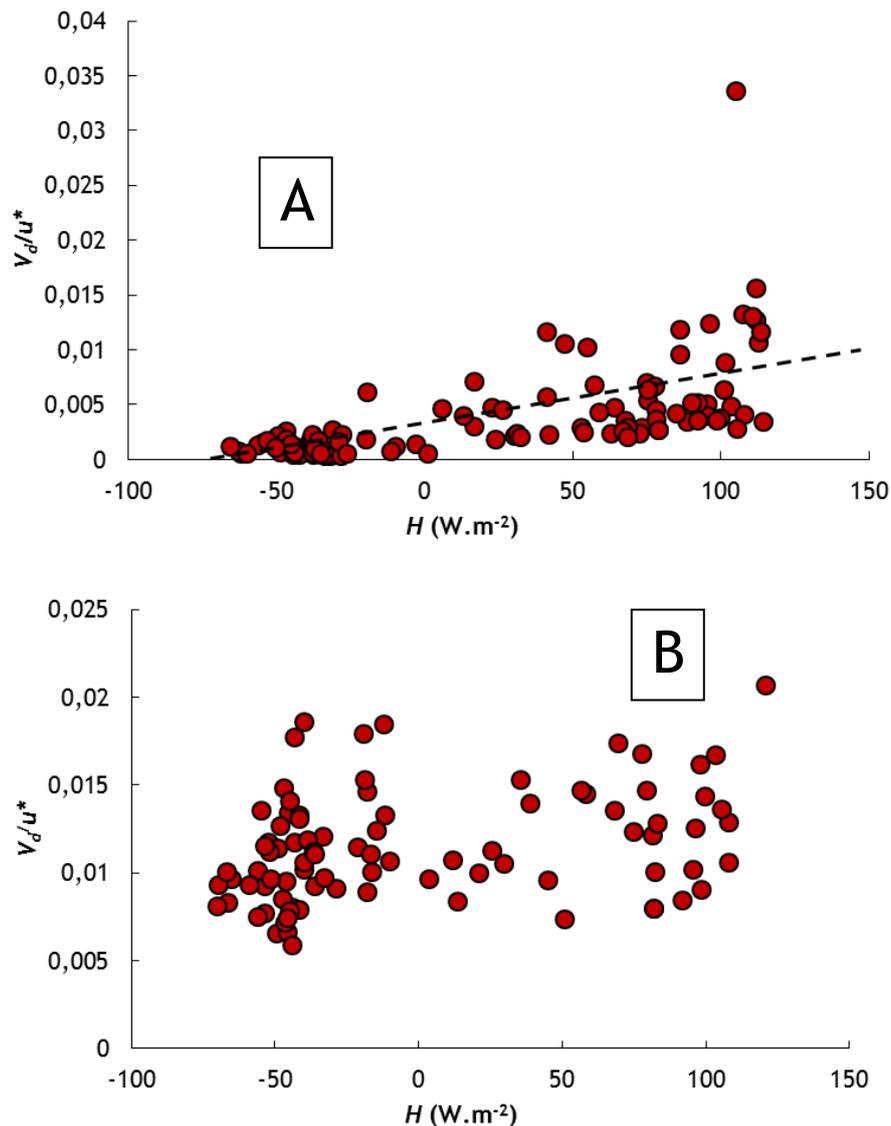


Figure 4.8 : Influence de H sur les vitesses de dépôt sec normalisées par u^* obtenues par corrélation turbulente sur l'étage 3 (74 nm) lors de DEPECHEMOD 2 (A) et pour la méthode twin CNC (6 nm) lors de DEPECHEMOD 2 (B).

4.1.2.3 Particules de 0,6 μm : dépôt direct de particules de fluorescéine

L'évolution de la vitesse de dépôt par la turbulence mécanique via u^* a été tracée sur la Figure 4.9. La tendance est à l'augmentation. De plus, lorsque que l'on sépare, comme précédemment, le jeu de données afin de discréditer l'impact de la turbulence thermique par rapport à la turbulence mécanique, la tendance est toujours à l'augmentation de la vitesse dépôt avec u^* . Cependant, la tendance linéaire est moins marquée que précédemment. L'influence de la turbulence thermique est difficile à mettre en avant sur cette figure étant donné que le nombre de points pour un H inférieur à 20 $\text{W}\cdot\text{m}^{-2}$ est faible (3).

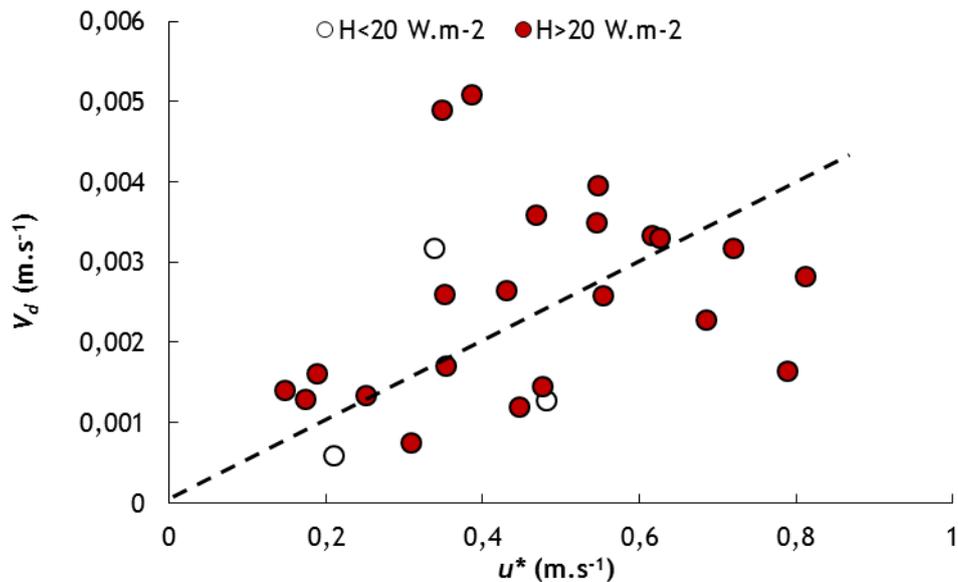


Figure 4.9 : Influence de u^* sur les vitesses de dépôt sec obtenues par dépôt direct de particules de fluorescéine de 0,6 μm .

La Figure 4.10 renforce cette observation. La tendance linéaire du rapport de V_d/u^* avec H est ici absente. Les incertitudes de mesure par fluorimétrie peuvent expliquer cette dispersion car ces mesures sont difficiles à mettre en place proprement sur le terrain.

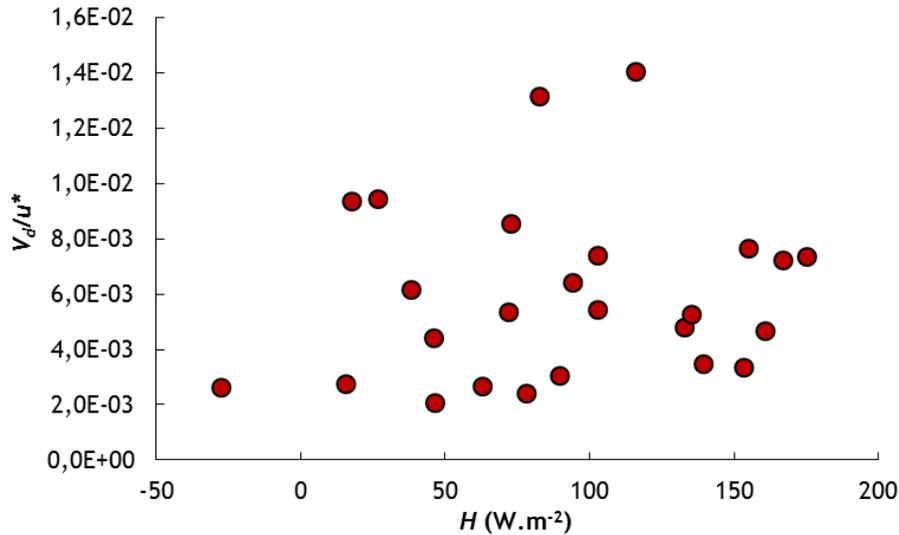


Figure 4.10 : Influence de H sur les vitesses de dépôt sec obtenues par dépôt direct de particules de fluorescéine de $0,6 \mu\text{m}$.

4.1.3 Paramétrisation du rapport entre la vitesse de dépôt et la vitesse de frottement du vent en fonction de la stabilité atmosphérique

Comme décrit au chapitre 1, la compétition entre la turbulence d'origine thermique et celle d'origine mécanique peut être analysée à l'aide de la stabilité atmosphérique. Par exemple, le cas de condition atmosphérique neutre décrit une prédominance des forces mécaniques, tandis que le cas de condition atmosphérique instable caractérise la prédominance des phénomènes convectifs. Dans la littérature, plusieurs auteurs suggèrent que l'écart observé entre les vitesses de dépôt mesurées pendant la journée et celles mesurées la nuit est dû à la différence entre les conditions de stabilité (Wesely *et al*, 1985, Lamaud *et al*, 1994b). De plus, ils ont observé que les vitesses de dépôt divisées par la vitesse de frottements du vent augmentent de manière significative avec l'instabilité. Pour interpréter les données en fonction des conditions de turbulence atmosphérique, il a été décidé d'utiliser l'approche proposée par Zhang and He (2014). La vitesse de dépôt sec des particules peut alors être calculée grâce à (Gallagher *et al.*, 2002; Slinn, 1982; Zhang *et al.*, 2001) :

$$V_d = V_s + \frac{1}{R_a + R_s} \quad \text{Équation 4.1}$$

Avec V_g la vitesse de sédimentation, R_a la résistance aérodynamique au-dessus de la canopée et R_s la résistance de surface. A noter que l'inverse de R_s a la dimension d'une vitesse et est appelée vitesse de dépôt de surface V_{ds} .

$$V_{ds} = \frac{1}{R_s} \quad \text{Équation 4.2}$$

Un formule simple est disponible dans la littérature pour calculer R_a (Gallagher *et al.*, 2002) :

$$R_a = \frac{\ln\left(\frac{z_{ref} - d}{z_0}\right) - \psi_H}{\kappa u^*} \quad \text{Équation 4.3}$$

Avec z_{ref} la hauteur de référence à laquelle est calculée V_d , z_0 la hauteur de rugosité, ψ_H est la fonction de stabilité sans dimension, κ la constant de Von Karman (0,4), u^* la vitesse de frottement et d la hauteur de déplacement.

V_g peut être négligé pour la taille des particules que l'on étudie ici. En accord avec Zhang *et al.* (2001), V_{ds} est calculé par :

$$V_{ds} = \varepsilon_0 u^* (E_B + E_M + E_{IN}) R_1 \quad \text{Équation 4.4}$$

Avec ε_0 une constante empirique (égale à 3.0), E_B E_M E_{IN} les efficacités de collection de la diffusion Brownienne de l'impaction et de l'interception, respectivement, et R_1 le facteur de correction représentant la fraction de particules qui reste sur la surface.

Il est souvent montré dans la littérature (Gallagher *et al.*, 2002; Lamaud, Chapuis, *et al.*, 1994; Zhang & He, 2014) que la vitesse de déposition de surface V_{ds} en condition neutre et stable peut-être paramétrée comme une simple fonction linéaire de u^* :

$$V_{ds} = k_1 u^* \quad \text{Équation 4.5}$$

Le Tableau 4.2 regroupe les différentes valeurs de paramétrisation de vitesses de dépôt de surface normalisées par la vitesse de frottement du vent que l'on retrouve dans la littérature.

Tableau 4.2 : Valeurs de paramétrisation pour les conditions neutres et stables retrouvées dans la littérature.

| Diamètre des particules (µm) | Couvert étudié | Référence | Paramétrisation |
|------------------------------|--|---|---|
| 0,4 | Forêt, Hollande; <i>Douglas Fir</i> | Beswick et al. [1994]; | $V_{ds}/u^* = 0,003-0,004$ |
| 0,4 | Lush grass | (Wesely <i>et al.</i> , 1985) | $V_{ds}/u^* = 0,002$ |
| 0,05-1 | Forêt des Landes <i>Pinus Pinaster</i> | (Lamaud, Brunet, <i>et al.</i> , 1994; Lamaud, Chapuis, <i>et al.</i> , 1994) | $V_{ds}/u^* = k_1$ $k_1 = 0,004$ |
| 0,1-0,2 | Toutes surfaces | (Gallagher <i>et al.</i> , 2002) | $V_{ds}/u^* = k_1$ $k_1 = 0,001222 * \log(z_0) + 0,003906$ |
| <2,5 | Toutes surfaces | (Zhang & He, 2014) | $V_{ds}/u^* = a_1$ où a_1 est une constant empirique comprise entre 0,0034 et 0,0069 |

Pour des conditions instables Nemitz *et al.* (2002) et Gallagher *et al.* (2002) ont proposé une paramétrisation qui sera utilisée lors de cette étude :

$$\frac{V_{ds}}{u^*} = k_1 + k_2 \left(-300 \frac{z}{L} \right)^{2/3} \quad \text{Équation 4.6}$$

Avec L la longueur de Monin-Obhukov et z la hauteur de prélèvement.

Le paramètre k_2 est déterminé par la méthode des moindres carrés lorsque le nombre de valeurs le permet (au moins supérieure à 3). Dans les paragraphes suivant la paramétrisation sera détaillée pour les trois techniques utilisés et donc suivant la taille des particules.

4.1.3.1 Particules de 1,5 nm : méthode du gradient avec la fraction libre des descendants ^{222}Rn

Lorsque l'on trace les vitesses de dépôts secs de surface pour les particules de 1,5 nm adimensionnées à la vitesse de frottement du vent en fonction de l'inverse de la longueur de Monin-Obhukov (Figure 4.11), on remarque que les observations faites dans le paragraphe précédent sont vérifiées. En effet, aucune évolution de la vitesse de dépôt de surface en fonction de la stabilité atmosphérique n'est présente ici.

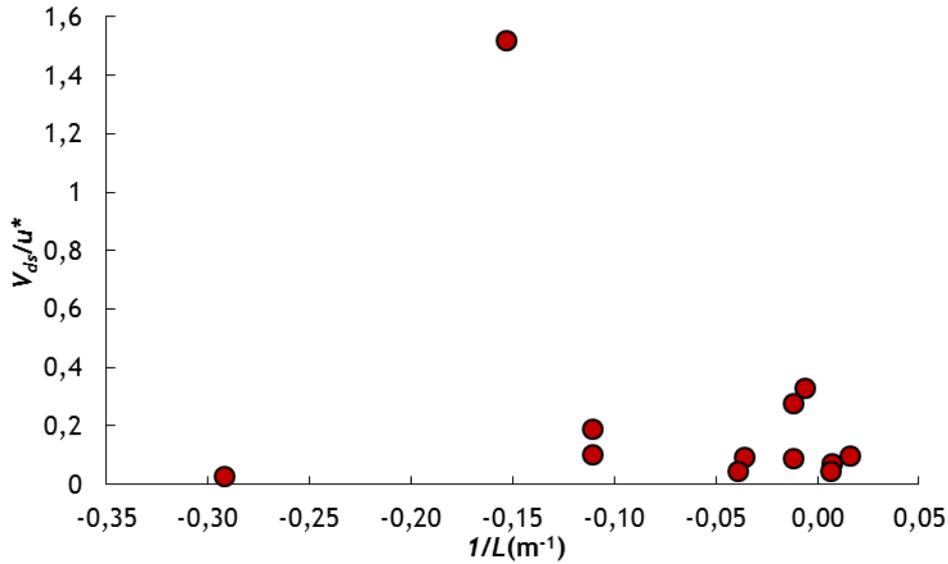


Figure 4.11 : Données expérimentales pour les particules de 1,5 nm lors de DEPECHEMOD 4.

Cependant, pour valider ces observations, d'autres campagnes sont nécessaires afin d'obtenir plus de vitesses de dépôt sec pour des conditions instables.

4.1.3.2 Particules de 6 nm - 1,2 μm : méthode des corrélations turbulentes avec l'aérosol atmosphérique

La Figure 4.12 est un exemple de paramétrisation sur l'ensemble des vitesses de dépôt mesurées lors de DEPECHEMOD 2 pour des aérosols de 6 nm (méthode twin CNC). Les valeurs de V_d sont divisées par u^* et tracées en fonction de $1/L$. L'ensemble des paramétrisations des vitesses de dépôt de surface obtenues par la méthode des corrélations turbulentes est présenté en annexe.

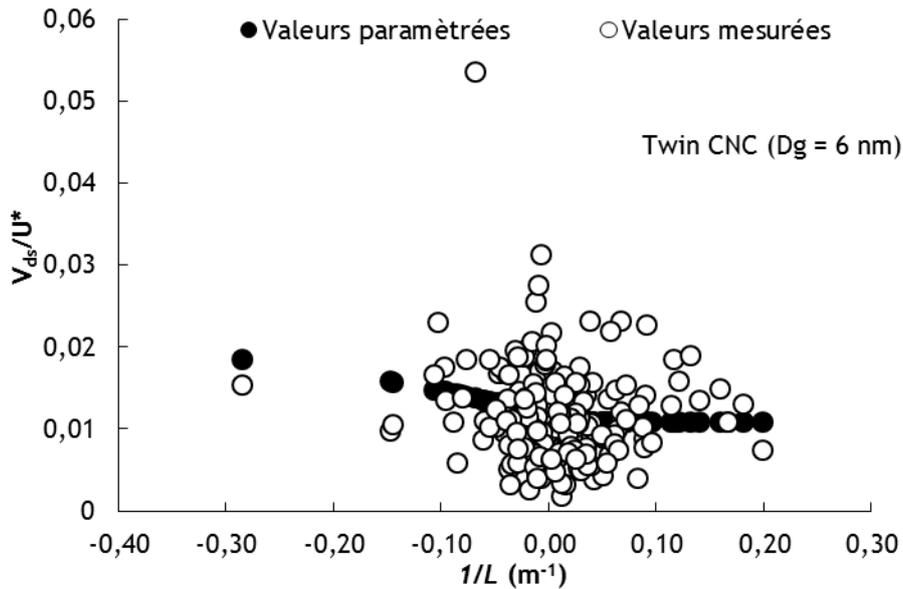


Figure 4.12 : Données expérimentales et paramétrisation ($k_1= 1,22 \times 10^{-2}$ et $k_2= 2,48 \times 10^{-4}$) pour les particules de 6 nm lors de DEPECHEMOD 2.

Les résultats montrent très peu de valeurs pour les conditions très instables (pas de valeurs pour $1/L$ inférieures à $-0,05 \text{ m}^{-1}$). On remarque également que les vitesses de dépôts secs de surface normalisées à u^* n'évoluent pas sensiblement avec la stabilité atmosphérique à l'instar des particules de 1,5 nm. Il est important de noter que ces deux granulométries de particules font partie du mode nucléation. Ainsi, la diffusion brownienne, principal mécanisme de dépôt pour les particules du mode nucléation, ne serait pas influencée par la turbulence thermique.

La Figure 4.13 est la même que la Figure 4.12 mais cette fois pour des particules de 74 nm (Étage 3 de l'ELPI). Cette fois, l'augmentation de la vitesse de dépôt sec surfacique normalisée par u^* avec l'inverse de longueur de Monin-Obukhov est visible et bien marquée. Ces observations valent principalement pour les cinq plus petites tailles de particules mesurées, étant donné le faible nombre de valeurs de dépôt validées pour les plus grandes tailles.

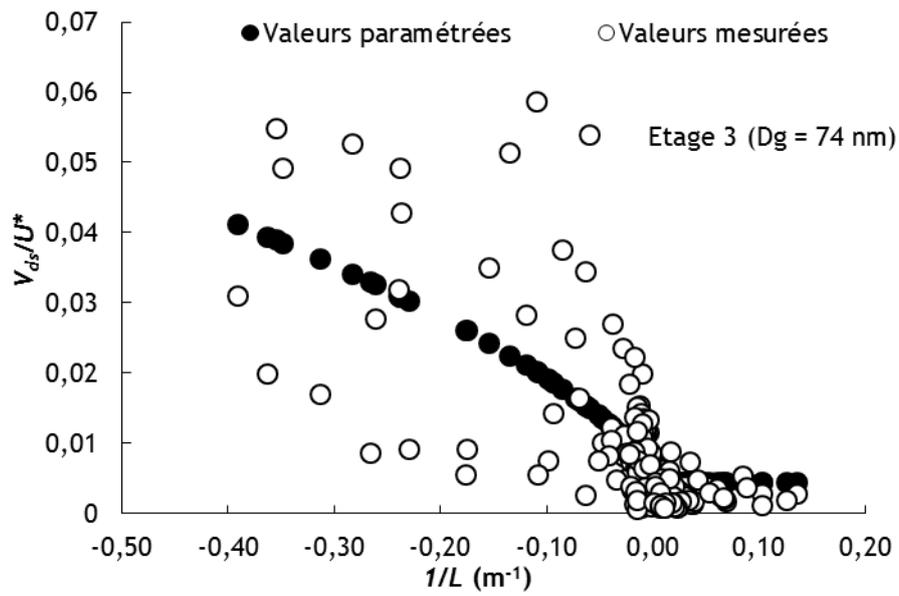


Figure 4.13 : Données expérimentales et paramétrisation ($k_1 = 4,76 \times 10^{-3}$ et $k_2 = 6,74 \times 10^{-4}$) pour les particules de 74 nm lors de DEPECHEMOD 1.

L'ensemble des résultats pour les 4 campagnes expérimentales est présenté dans le Tableau 4.3, Tableau 4.4, Tableau 4.5, Tableau 4.6.

Tableau 4.3 : Résultats de la paramétrisation pour la campagne DEPECHEMOD 1.

| Etage | Diamètre (μm) | k_1 | Nombre de valeurs en stables et neutres | k_2 | Nombre de valeurs en instable | Incertitude (%) |
|----------|-------------------------------|-----------------------|--|-----------------------|---|--------------------|
| Twin CNC | $5,92 \times 10^{-3}$ | $1,32 \times 10^{-2}$ | 7 | $2,66 \times 10^{-4}$ | 9 | 72% |
| 1 | $1,40 \times 10^{-2}$ | $5,76 \times 10^{-3}$ | 26 | $1,00 \times 10^{-3}$ | 33 | 47% |
| 2 | $4,10 \times 10^{-2}$ | $4,21 \times 10^{-3}$ | 17 | $6,37 \times 10^{-4}$ | 24 | 42% |
| 3 | $7,40 \times 10^{-2}$ | $4,76 \times 10^{-3}$ | 33 | $6,22 \times 10^{-4}$ | 35 | 55% |
| 4 | $1,22 \times 10^{-1}$ | $3,10 \times 10^{-3}$ | 13 | $8,17 \times 10^{-4}$ | 22 | 50% |
| 5 | $2,02 \times 10^{-1}$ | $1,60 \times 10^{-3}$ | 5 | | 0 | 65% |
| 6 | $3,16 \times 10^{-1}$ | $1,14 \times 10^{-3}$ | 7 | | 0 | 59% |
| 7 | $4,84 \times 10^{-1}$ | $1,21 \times 10^{-3}$ | 3 | | 0 | 44% |
| 8 | $7,62 \times 10^{-1}$ | | 0 | | 0 | |
| 9 | 1,23 | | 0 | | 0 | |

Tableau 4.4 : Résultats de la paramétrisation pour la campagne DEPECHEMOD 2.

| Etage | Diamètre (μm) | k_1 | Nombre de valeurs en stables et neutres | k_2 | Nombre de valeurs en instables | Incertitude (%) |
|----------|-------------------------------|-----------------------|--|-----------------------|--|--------------------|
| Twin CNC | $5,92 \times 10^{-3}$ | $1,24 \times 10^{-2}$ | 60 | $5,03 \times 10^{-4}$ | 22 | 32% |
| 1 | $1,40 \times 10^{-2}$ | $5,04 \times 10^{-3}$ | 15 | $8,98 \times 10^{-4}$ | 33 | 28% |
| 2 | $4,10 \times 10^{-2}$ | $9,81 \times 10^{-3}$ | 31 | $6,87 \times 10^{-4}$ | 37 | 59% |
| 3 | $7,40 \times 10^{-2}$ | $5,79 \times 10^{-3}$ | 96 | $7,64 \times 10^{-4}$ | 50 | 65% |
| 4 | $1,22 \times 10^{-1}$ | $3,65 \times 10^{-3}$ | 71 | $3,77 \times 10^{-4}$ | 40 | 60% |
| 5 | $2,02 \times 10^{-1}$ | $3,03 \times 10^{-3}$ | 4 | | 0 | 75% |
| 6 | $3,16 \times 10^{-1}$ | | | | 0 | |
| 7 | $4,84 \times 10^{-1}$ | | | | 0 | |
| 8 | $7,62 \times 10^{-1}$ | | | | 0 | |
| 9 | 1,23 | $5,29 \times 10^{-3}$ | 1 | | 2 | |

Tableau 4.5 : Résultats de la paramétrisation pour la campagne DEPECHEMOD 3.

| Etage | Diamètre (μm) | k_1 | Nombre de valeurs en stables et neutres | k_2 | Nombre de valeurs en instables | Incertitude (%) |
|----------|-------------------------------|-----------------------|--|-----------------------|--|--------------------|
| Twin CNC | $5,92 \times 10^{-3}$ | $1,11 \times 10^{-2}$ | 22 | $1,19 \times 10^{-4}$ | 15 | 58% |
| 1 | $1,40 \times 10^{-2}$ | $4,07 \times 10^{-3}$ | 13 | $1,80 \times 10^{-4}$ | 6 | 40% |
| 2 | $4,10 \times 10^{-2}$ | $4,25 \times 10^{-3}$ | 5 | | 3 | 28% |
| 3 | $7,40 \times 10^{-2}$ | $4,07 \times 10^{-3}$ | 6 | | 3 | 63% |
| 4 | $1,22 \times 10^{-1}$ | $4,35 \times 10^{-3}$ | 11 | | 3 | 59% |
| 5 | $2,02 \times 10^{-1}$ | $1,67 \times 10^{-3}$ | 4 | | 0 | 63% |
| 6 | $3,16 \times 10^{-1}$ | $2,14 \times 10^{-3}$ | 13 | | 2 | 47% |
| 7 | $4,84 \times 10^{-1}$ | $3,93 \times 10^{-3}$ | 6 | | 0 | 55% |
| 8 | $7,62 \times 10^{-1}$ | | | | | |
| 9 | 1,23 | $2,21 \times 10^{-2}$ | 4 | | 0 | 51% |

Tableau 4.6 : Résultats de la paramétrisation pour la campagne DEPECHEMOD 4.

| Etage | Diamètre (μm) | k_1 | Nombre de valeurs en stables et neutres | k_2 | Nombre de valeurs en instables | Incertitude (%) |
|----------|-------------------------------|-----------------------|--|-----------------------|--|--------------------|
| Twin CNC | $5,92 \times 10^{-3}$ | $7,36 \times 10^{-3}$ | 43 | $4,51 \times 10^{-4}$ | 21 | 35% |
| 1 | $1,40 \times 10^{-2}$ | $2,85 \times 10^{-3}$ | 29 | $1,56 \times 10^{-4}$ | 6 | 35% |
| 2 | $4,10 \times 10^{-2}$ | $2,19 \times 10^{-3}$ | 15 | | 2 | 38% |
| 3 | $7,40 \times 10^{-2}$ | $1,97 \times 10^{-3}$ | 38 | $1,47 \times 10^{-4}$ | 8 | 54% |
| 4 | $1,22 \times 10^{-1}$ | $2,61 \times 10^{-3}$ | 8 | $2,75 \times 10^{-4}$ | 5 | 69% |
| 5 | $2,02 \times 10^{-1}$ | $1,94 \times 10^{-3}$ | 16 | $3,00 \times 10^{-4}$ | 16 | 49% |
| 6 | $3,16 \times 10^{-1}$ | $2,20 \times 10^{-3}$ | 10 | $2,34 \times 10^{-4}$ | 13 | 49% |
| 7 | $4,84 \times 10^{-1}$ | $6,00 \times 10^{-3}$ | 8 | $2,23 \times 10^{-4}$ | 7 | 16% |
| 8 | $7,62 \times 10^{-1}$ | $1,02 \times 10^{-3}$ | 3 | $4,86 \times 10^{-4}$ | 4 | 62% |
| 9 | 1,23 | $1,73 \times 10^{-3}$ | 2 | | 0 | 40% |

Afin de baisser les incertitudes, il a été décidé de regrouper l'ensemble des données des quatre campagnes expérimentales DEPECHEMOD et d'effectuer une paramétrisation globale. Les résultats de cette dernière sont donnés dans le Tableau 4.7.

Tableau 4.7 : Résultats de la paramétrisation globale pour les 4 campagnes DEPECHEMOD.

| Etage | Diamètre (µm) | k_1 | Nombre de valeur en stable et neutre | k_2 | Nombre de valeurs en Instable | Incertitude (%) |
|----------|-----------------------|-----------------------|--------------------------------------|-----------------------|-------------------------------|-----------------|
| Twin CNC | $5,92 \times 10^{-3}$ | $1,08 \times 10^{-2}$ | 135 | $2,48 \times 10^{-4}$ | 75 | 46% |
| 1 | $1,40 \times 10^{-2}$ | $5,79 \times 10^{-3}$ | 88 | $7,97 \times 10^{-4}$ | 73 | 61% |
| 2 | $4,10 \times 10^{-2}$ | $6,17 \times 10^{-3}$ | 64 | $4,89 \times 10^{-4}$ | 52 | 75% |
| 3 | $7,40 \times 10^{-2}$ | $4,48 \times 10^{-3}$ | 149 | $5,24 \times 10^{-4}$ | 82 | 74% |
| 4 | $1,22 \times 10^{-1}$ | $3,58 \times 10^{-3}$ | 99 | $6,51 \times 10^{-4}$ | 50 | 59% |
| 5 | $2,02 \times 10^{-1}$ | $1,93 \times 10^{-3}$ | 24 | $2,93 \times 10^{-4}$ | 21 | 64% |
| 6 | $3,16 \times 10^{-1}$ | $1,94 \times 10^{-3}$ | 30 | $2,48 \times 10^{-4}$ | 18 | 54% |
| 7 | $4,84 \times 10^{-1}$ | $4,48 \times 10^{-3}$ | 17 | $3,83 \times 10^{-4}$ | 10 | 51% |
| 8 | $7,62 \times 10^{-1}$ | $1,04 \times 10^{-2}$ | 3 | $6,58 \times 10^{-4}$ | 5 | 61% |
| 9 | 1,23 | $1,88 \times 10^{-2}$ | 7 | | 2 | 57% |

4.1.3.3 Particules de 0,6 µm : dépôt direct de particules de fluorescéine

La Figure 4.14 présente les résultats obtenus lors de DEPECHEMOD 3 et 4. On remarque alors que la majorité des vitesses de dépôt sec ont été obtenu pour des conditions neutres et stables voir faiblement instable. Il n'est donc pas possible d'effectuer une paramétrisation de ces données pour les conditions instables.

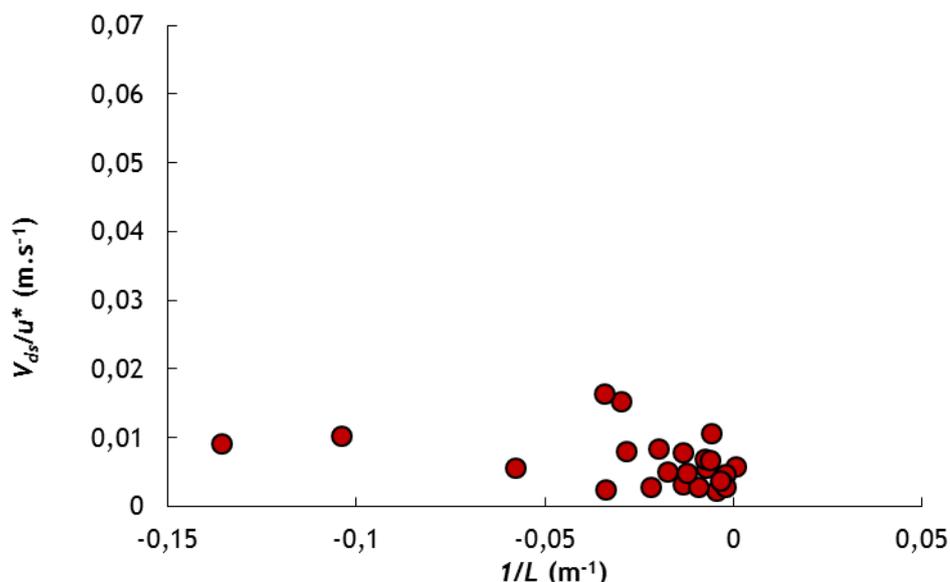


Figure 4.14 : Données expérimentales pour les particules de fluorescéine de 0,6 μm lors de DEPECHEMOD 2.

4.1.4 Influence de la granulométrie sur les vitesses de dépôt sec

Comme décrit dans le chapitre 1, la taille des particules conditionne le comportement des aérosols dans l'air et au voisinage du substrat. Les aérosols de quelques nanomètres de diamètre sont régis par la diffusion Brownienne, les aérosols ayant un diamètre de plusieurs micromètres sont sous l'effet de la sédimentation, tandis que les processus d'impaction et d'interception gouvernent le dépôt des tailles intermédiaires.

4.1.4.1 *Conditions neutres et stables*

La Figure 4.15 représente les évolutions des vitesses de dépôt de surfaces divisées par la vitesse de frottement du vent en fonction de la taille des particules, obtenues avec les trois techniques différentes et lors des 4 campagnes expérimentales DEPECHEMOD en conditions atmosphériques neutres et stables. Bien que la hauteur de la prairie ait été différente lors des campagnes expérimentales, l'écart entre les valeurs trouvées sur les différents couverts est faible comparativement à la dispersion des valeurs disponibles et présentées dans la bibliographie du paragraphe 1.1.2. En effet, pour une même taille, les incertitudes dues à la dispersion des résultats se recoupent d'une campagne à l'autre. De plus, pour la première fois au niveau internationale, des données *in situ* pour les particules inférieures à 10 nm sont présentées ici. Il est possible d'identifier des tendances similaires durant toutes les campagnes expérimentales : une valeur de l'ordre de 10^{-2} pour la méthode twin CNC, puis des valeurs proches sur les trois premiers étages de l'ELPI (4×10^{-3}), suivies d'une faible baisse du rapport sur les deux étages suivants (3×10^{-3} puis 2×10^{-3}), les valeurs de l'étage 5 sont semblables à celles de l'étage 6 (2×10^{-3}) et ont atteint le minimum sur un de ces deux étages suivant les campagnes. Enfin, une forte hausse de ce même rapport sur

les étages 7, 8 et 9 (respectivement 4×10^{-3} , 10^{-2} , 2×10^{-2}). De plus, il est important de noter que le rapport pour les particules de 1,5 (6×10^{-2}) est en adéquation avec le reste de la courbe et la tendance à l'augmentation par rapport aux particules de 6 nm est logique étant donné que le processus de diffusion brownienne est plus important pour les particules de 1,5 nm. Pour finir, les rapports calculés suite au dépôt direct de particules de fluorescéine de 0,6 μm sont similaires au rapport mesurés par corrélations turbulentes pour la même taille de particules. Cette observation confirme la robustesse des méthodes appliquées ici.

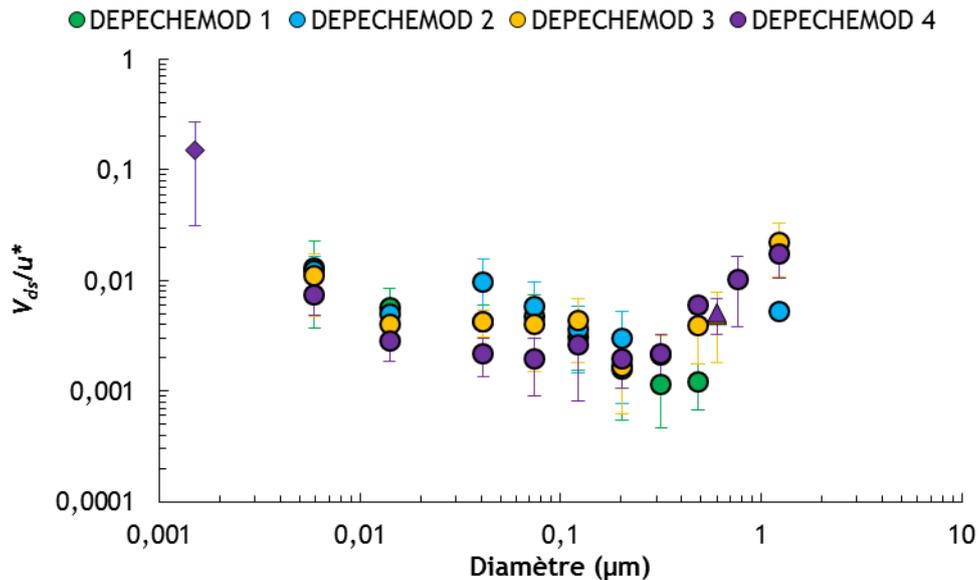


Figure 4.15 : Vitesses de dépôt pour des conditions neutres et stables normalisées à la vitesse de frottement du vent en fonction du diamètre des particules obtenues lors des différentes campagnes DEPECHEMOD ; losange : méthode du gradient avec la fraction libre des descendants du ^{222}Rn ; rond : méthode de corrélations turbulentes avec l'aérosol atmosphérique ; triangle : méthode de dépôt direct avec des particules de fluorescéine de 0,6 μm .

4.1.4.2 Conditions instables

Afin de quantifier l'impact de la turbulence thermique sur les vitesses de dépôts sec, les valeurs des rapports $\frac{V_{ds}}{U^*}$ pour certaines conditions instables (pour $1/L$ fixé à $-0,2 \text{ m}^{-1}$) sont regroupées sur la Figure 4.16. Cependant, comme on l'a vu précédemment, les mesures effectuées par la méthode du gradient, pour les particules de 1,5 nm (fraction libre des descendants du ^{222}Rn) et pour les particules de fluorescéine de 0,6 μm , ne permettent pas de ressortir un impact de la turbulence thermique. Ainsi, il a été décidé de représenter uniquement les résultats obtenus par corrélations turbulentes. Cependant, certains étages lors des différentes campagnes ne présentent pas assez de vitesses de dépôt en conditions instables ou alors pas de vitesses de dépôt du tout (majorité d'émission voir paragraphe 4.1.1), d'où l'absence de valeurs pour certaines tailles de particules lors des différentes campagnes expérimentales. On remarque que d'une campagne à l'autre, les valeurs

sont plus dispersées que pour les conditions instables. Le manque de valeurs peut expliquer cette dispersion.

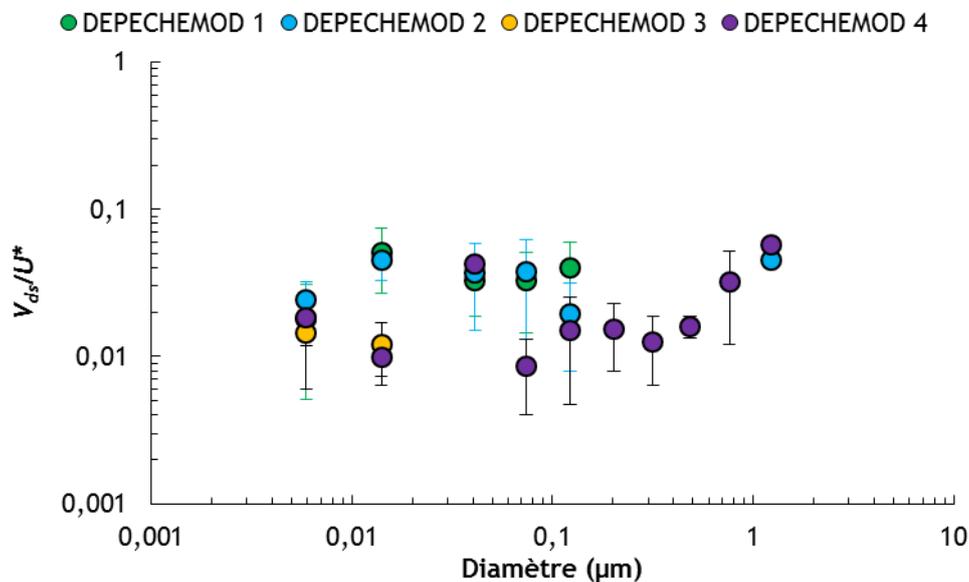


Figure 4.16 : Vitesses de dépôt pour des conditions instables ($1/L = 0,2 \text{ m}^{-1}$) normalisées à la vitesse de frottement du vent en fonction du diamètre des particules obtenues lors des différentes campagnes DEPECHEMOD.

Afin d'améliorer la lisibilité des deux courbes précédentes et plus particulièrement pour les conditions instables, la moyenne de l'ensemble des résultats pour les cas neutres et stables, ainsi que pour les cas instables, est présentée en fonction du diamètre des particules sur la Figure 4.17. Les barres d'incertitudes représentent l'écart-type sur l'ensemble des données obtenues lors des 4 campagnes expérimentales.

En conditions neutres et stables, la méthode du gradient de la fraction libre des descendants du ^{222}Rn (particules de 1,5 nm) a permis d'obtenir une valeur de rapport de 8×10^{-2} et la méthode twin CNC (particules de 6 nm) quant à elle présente une valeur d'environ 10^{-2} . Les valeurs obtenues par corrélation turbulente à l'aide de l'ELPI sont toutes proches de 4×10^{-3} pour les quatre premiers étages (particules comprises 14 nm et 0,102 µm).

Ce rapport diminue par la suite jusqu'à atteindre son minimum de 2×10^{-3} à l'étage 6, pour des particules mesurant 0,384 µm. Ce rapport augmente ensuite sensiblement du fait de l'augmentation de l'influence du mécanisme d'impaction. Ainsi, les valeurs pour les étages 7,8 et 9 (particules de 0,484 nm à 1,23 µm) sont respectivement de 4×10^{-3} , 1×10^{-2} et $1,5 \times 10^{-2}$. La faible décroissance sur les plus petites tailles s'explique par le fait que les phénomènes régissant les dépôts des aérosols (diffusion brownienne, interception et impaction) se compensent pour les particules d'un diamètre inférieur à 0,6 µm ; au fur et à mesure que les diamètres augmentent, l'impact de la diffusion

brownienne est de plus en plus faible, mais simultanément le dépôt dû aux phénomènes d'interception et d'impaction augmente.

Pour finir les particules de fluorescéine de $0,6 \mu\text{m}$ ont la même valeur que celle obtenue par corrélation turbulente grâce à l'étage 7. Au-delà de $0,6 \mu\text{m}$ et jusqu'à $1 \mu\text{m}$, l'influence de la diffusion Brownienne est négligeable, l'augmentation est due à l'accroissement important de l'influence de l'interception et de l'impaction en fonction de la taille des particules, car pour ces tailles, la vitesse de sédimentation reste négligeable (voir paragraphe 1.3.2.1).

En conditions instables (à $1/L = -0,2 \text{ m}^{-1}$), les valeurs de vitesses de surface de dépôt sec, adimensionnées par la vitesse de frottement, présentent une courbe semblable aux résultats obtenus en conditions neutres et stables. Cependant, les rapports sont supérieurs de pratiquement un ordre de grandeur en moyenne pour les 6 premiers étages de l'ELPI. La différence pour les étages 7, 8 et 9 est moins importante. Cependant, on remarque que ce n'est pas le cas pour la méthode twin CNC.

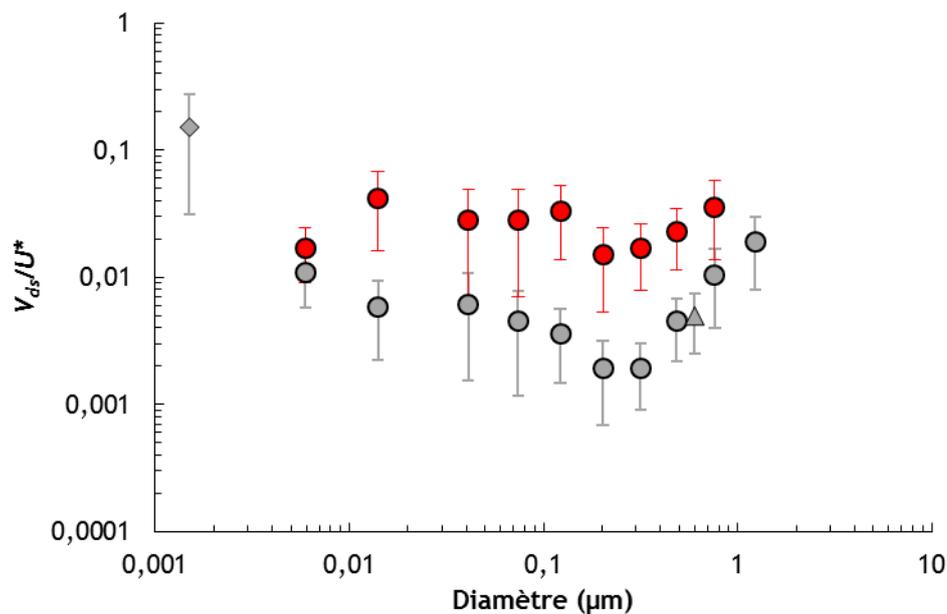


Figure 4.17 : Vitesses de dépôt moyennées pour des conditions neutres et stables et instables ($1/L = -0,2 \text{ m}^{-1}$) normalisées à la vitesse de frottement du vent en fonction du diamètre des particules ; losange : méthode du gradient avec la fraction libre des descendants du ^{222}Rn ; rond : méthode de corrélations turbulentes avec l'aérosol atmosphérique ; triangle : méthode de dépôt direct avec des particules de fluorescéine de $0,6 \mu\text{m}$.

Les données moyennées des rapports entre les vitesses de dépôt sec des aérosols et les vitesses de frottement du vent sont ensuite confrontées aux modèles analytiques.

4.1.5 Confrontation modèles/mesures

Les valeurs mesurées sont confrontées aux modèles dits résistifs de Slinn (1982) et Zhang *et al.* (2001) mais également au modèle semi-empirique de Piskunov (2009) via Sehmel and Hodgson (1978), dont la description a été abordée au Chapitre 1. Les valeurs de vitesse de dépôt sont modélisées pour des conditions atmosphériques neutres et stables. Une vitesse de frottement du vent de $0,26 \text{ m.s}^{-1}$, correspondant à la moyenne de l'ensemble des vitesses de frottement du vent en conditions neutre et stables pour chaque granulométrie de particules a été fixée.

Les paramètres d'entrée des modèles de Slinn et Zhang sont regroupés dans le Tableau 4.8.

Tableau 4.8 : Valeurs d'entrées des modèles de dépôt de Slinn (1982) et de Zhang *et al.* (2001) *et al.* (2001).

| Données utilisées pour la modélisation | | Paramètres d'entrée (Zhang <i>et al.</i> , 2001) | | Paramètres d'entrée (Slinn, 1982) | |
|--|--|--|------------------------|-----------------------------------|-----------------------|
| $\rho_{\text{particule}} \text{ (kg.m}^{-3}\text{)}$ | 2650 | C_1 | 0,279 | C_D | $3,79 \times 10^{-3}$ |
| $\eta_{\text{air}} \text{ (kg.m}^{-1}\text{.s}^{-1}\text{)}$ | $1,80 \times 10^{-5}$ | C_2 | 3,12 | c_v/c_d | 0,33 |
| $\lambda \text{ (m)}$ | $6,58 \times 10^{-8}$ | C_3 | $5,42 \times 10^{-11}$ | c | 1 |
| $g \text{ (m.s}^{-2}\text{)}$ | 9,81 | C_4 | -1,399 | $\hat{A} \text{ (m)}$ | 1×10^{-3} |
| RH (%) | 75% | a | 1,2 | $\hat{A} \text{ (m)}$ | 1×10^{-5} |
| $\rho_{\text{air}} \text{ (kg.m}^{-3}\text{)}$ | 1,2 | γ | 0,54 | b | 2 |
| $k_B \text{ (J.K}^{-1}\text{)}$ | $1,38 \times 10^{-23}$ | $\psi_H \text{ (m)}$ | 0 | F | 1% |
| $u^* \text{ (m.s}^{-1}\text{)}$ | 0,25 | ϵ_0 | 3 | K_o | $9,61 \times 10^{-3}$ |
| $1/L \text{ (m}^{-1}\text{)}$ | -0,018 | B | 2 | λ_{slinn} | 0,09 |
| $z, z_r, z_0, h \text{ (m)}$ | Dépend du couvert lors des différentes campagnes (cf chapitre 3) | | $A \text{ (m)}$ | 0,002 | |
| K | 0,41 | | | | |
| T (K) | 293 | | | | |

- Paramètres de Zhang et al.(2001):

C_1 , C_2 , C_3 et C_4 sont des constantes empiriques permettant de calculer l'erreur sur le diamètre des aérosols due au taux d'humidité dans l'air (Gerber et al. 1985) :

$$r_w = \frac{C_1 r_d^{C_2}}{C_3 r_d^{C_4 - \log(RH)} + r_d^3} \quad \text{Équation 4.7}$$

Avec r_d , le rayon sec des particules et r_w le rayon humide. L'ensemble de l'étude portant sur le dépôt sec des particules, les humidités relatives mesurées sont trop faibles, et la différence entre les deux rayons est négligeable.

Le paramètre γ décrit la puissance appliquée au nombre de Schmidt pour quantifier l'efficacité de la diffusion brownienne.

La fonction de stabilité est exprimée par ψ_H (m) et est utilisée dans le calcul de la résistance aérodynamique. ψ_H s'exprime en fonction de la hauteur de mesure et de la longueur de Monin-Obukhov.

ε_0 est le coefficient empirique dépendant du couvert étudié. Il est appliqué dans la formulation de la résistance de surface (voir Chapitre 1). Dans le cas d'un couvert prairial, ε_0 vaut 3.

Les constantes α et β sont utilisées dans l'expression de l'efficacité de l'impaction faisant intervenir le nombre de Stokes décrite dans le Chapitre 1.

Enfin le rayon caractéristique est $A(m)$ est utilisé dans la modélisation de l'efficacité d'interception. Il dépend lui aussi du couvert étudié, Zhang et al. proposent différentes valeurs suivant les saisons et les couverts.

- Paramètres de Slinn (1982) :

C_D est le coefficient de traînée globale pour le couvert étudié, il est calculé par :

$$C_D = \frac{u^*}{u} \quad \text{Équation 4.8}$$

Ce coefficient pondère le calcul de la résistance de surface (voir chapitre 1), il est fourni par les auteurs pour une hauteur de 5 m au-dessus de la prairie. Les efficacités d'impaction et de diffusion brownienne sont pondérées par le rapport empirique c_v/c_d (voir chapitre 1). Il s'agit du rapport entre le coefficient de traînée moyen à la hauteur du couvert (c_d) et du coefficient de traînée visqueux c_v .

La constante empirique utilisée dans la définition du nombre de Stokes est c .

\hat{A} (m) et \acute{A} (m) sont les longueurs caractéristiques du substrat traitant respectivement de l'impaction (brin d'herbe) et de l'interception (poils végétaux).

Le pourcentage de l'interception totale uniquement dû aux éléments végétaux de petites tailles (poils végétaux) est estimé selon les couverts par le paramètre F .

b est la constante empirique utilisée dans l'expression du rebond (voir chapitre 1)

La constante de diffusivité turbulente à l'intérieur du couvert est K_o .

γ_{slinn} est un paramètre empirique déterminé par Lemon (1965) permettant le calcul des profils de vitesses de vent dans le couvert.

Comme on a pu le voir dans le paragraphe 4.1.3, la paramétrisation utilisée et retrouvée dans la littérature impose l'obtention de vitesse de dépôt de surface. Cependant, pour des raisons de représentativité dans l'environnement, les modèles présentés ici représentent l'évolution de la vitesse de dépôt sec (et non de surface). Ainsi la Figure 4.18 représente la comparaison entre V_{ds} et V_d brutes pour les conditions neutres et stables. On remarque alors que les différences entre les deux vitesses sont très faibles et comprises dans les incertitudes de mesures. L'influence de la résistance aérodynamique (R_a , voir paragraphe 4.1.3) sur la vitesse de dépôt est minime devant la résistance surfacique R_s . La différence est cependant plus importante pour les particules de 1,5 μm . Cependant il n'y a aucune donnée dans la littérature pour cette taille de particules et aucune comparaison n'est donc possible.

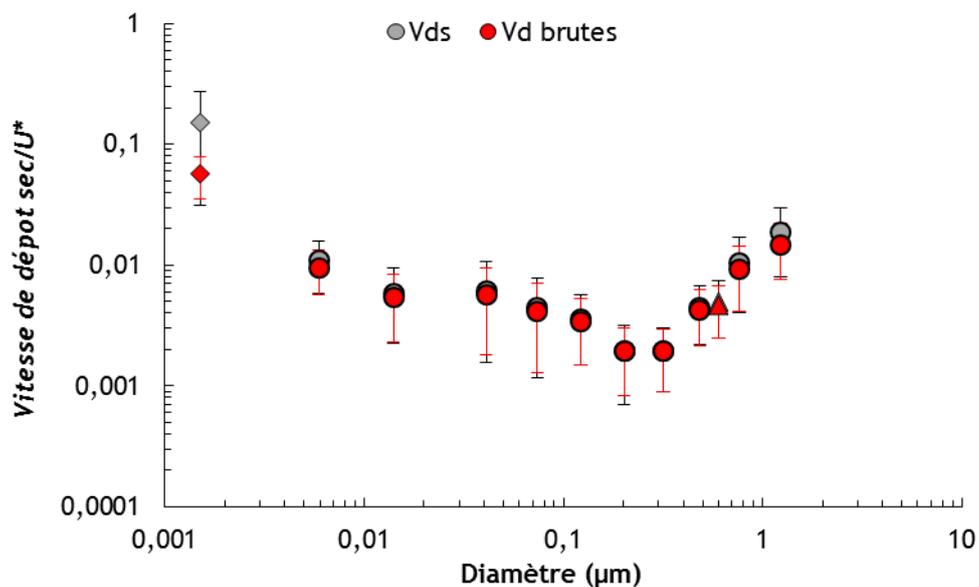


Figure 4.18: Comparaison entre vitesses de dépôt surfacique V_{ds} et vitesse de dépôt brutes V_d . Valeurs moyennées pour les campagnes expérimentales.

Les évolutions modélisées de $\frac{V_d}{U^*}$ en fonction de la granulométrie et les mesures moyennées sont présentées Figure 4.19. Dans le cas des particules ultrafines (moins de 10 nm), seuls les modèles de Slinn et de Zhang permettent de modéliser pour ces tailles de particules. En effet, le modèle semi empirique de Sehmel n'est pas validé pour ces tailles de particules. Le modèle de Slinn est le plus

proche des valeurs expérimentales pour les particules inférieures à 10 nm. Néanmoins, les deux modèles de Slinn et de Zhang ont des valeurs relativement proches et semble bien modéliser le point des particules de 1,5 nm.

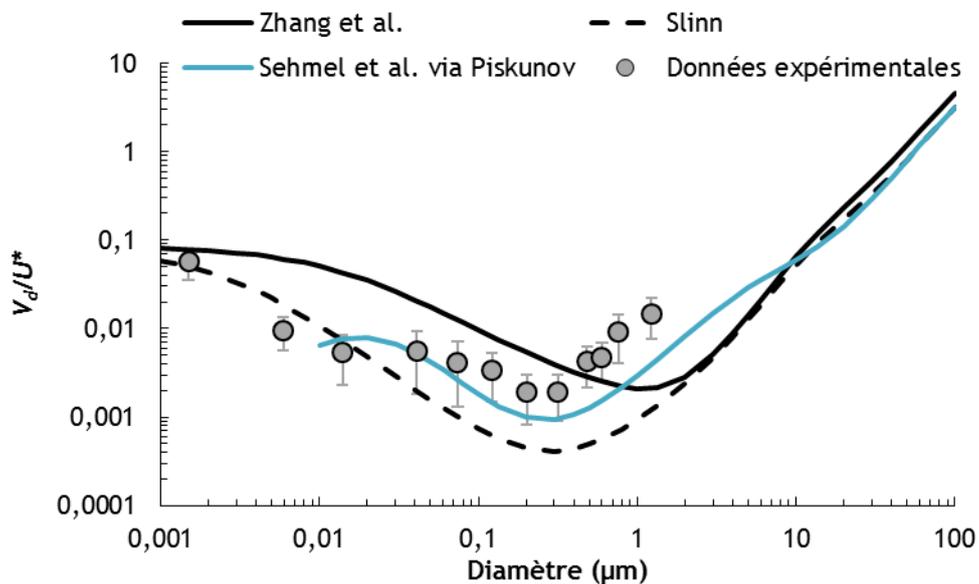


Figure 4.19: Confrontations des modèles analytiques avec les mesures en conditions neutres et stables.

Pour les particules supérieures à 10 nm, il y a une différence entre l'évolution générale des vitesses de dépôt issues des modèles et les valeurs observées. Le modèle de Zhang maximise les vitesses de dépôt pour des particules de 202 nm et minimise ensuite les valeurs pour les plus grosses particules. Le modèle de Slinn minimise globalement les valeurs de vitesses de dépôt pour toutes les tailles de particules supérieures à 10 nm sauf pour le premier étage de l'ELPI particules de 14 nm. Il est également important de noter que le minimum des données expérimentales et celui du modèle de Slinn est atteint pour la même taille de particules (0,202 µm), tandis que le modèle de Zhang atteint son minimum plus loin pour des particules d'environ 1,5 µm. Ainsi, le modèle de Slinn semble mieux représenter les mécanismes de dépôt sec : la diffusion brownienne, l'interception et l'impaction mais ces deux modèles sous-estiment les mécanismes d'interception et d'impaction influençant les vitesses de dépôt sec pour le mode accumulation (particules supérieures à 0,3 µm). Le modèle de Sehmel via Piskunov semble néanmoins être le plus intéressant ici. L'évolution des données calculées en fonction de la taille des particules par ce modèle est similaire avec nos données expérimentales et ces valeurs calculées sont très proches de nos valeurs expérimentales. Les modèles de Slinn et de Zhang *et al.* présentent des résultats éloignés des mesures dans la gamme d'accumulation (comprises entre 0,04 et 1 µm), où les phénomènes d'impaction et d'interception sont prépondérants.

4.2 Processus d'émission des bactéries.

De la même façon que pour les vitesses de dépôt sec, les vitesses de transfert vertical des bactéries ont été analysées en fonction des paramètres micrométéorologiques principaux : H et u^* .

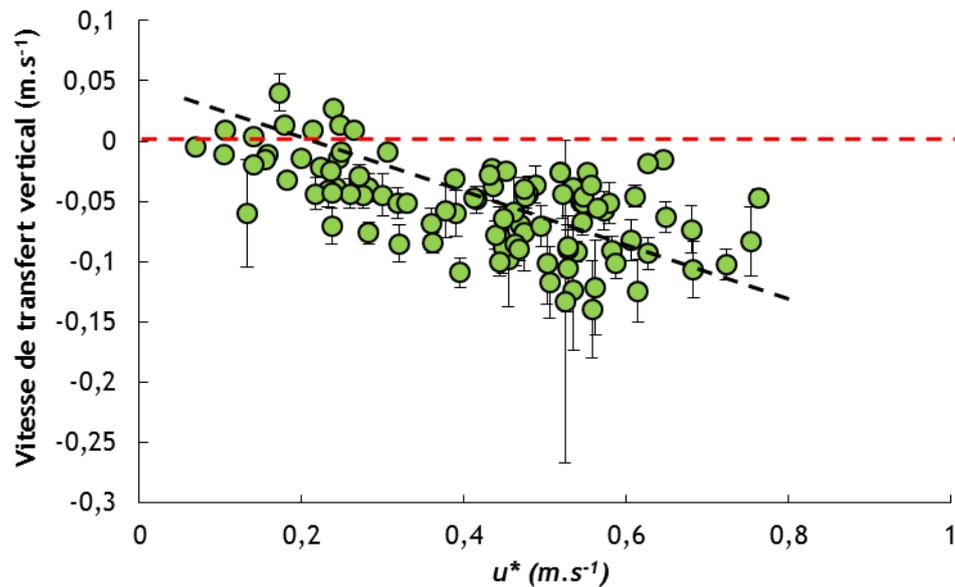


Figure 4.20 : Influence de u^* sur les vitesses de transfert vertical obtenues par la méthode du gradient des bactéries.

La vitesse de transfert vertical en fonction de la vitesse de frottement du vent est représentée sur la Figure 4.20. On remarque également une tendance à l'augmentation de la vitesse d'émission des bactéries avec u^* ce qui est en accord avec le processus éolien de remise en suspension souvent retrouvé dans la littérature. De plus, ce processus de remise en suspension pourrait être également à seuil avec une vitesse de frottement limite située entre 0,2 et 0,3 $m.s^{-1}$. En effet, on remarque la présence de vitesse de dépôt en dessous de 0,2-0,3 $m.s^{-1}$ et exclusivement des vitesses d'émission au-dessus de cette valeur.

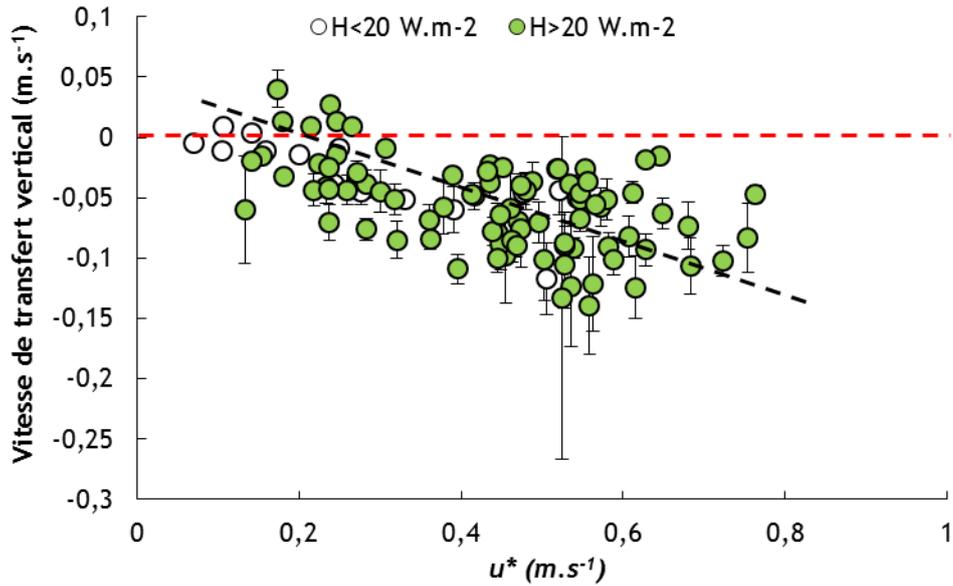


Figure 4.21 : Influence de la turbulence thermique H et mécanique u^* sur les vitesses de transfert vertical obtenues par la méthode du gradient des bactéries.

De la même façon que les vitesses de dépôt sec dans le paragraphe précédent, lorsque l'on sépare les vitesses de transfert vertical en fonction de H (Figure 4.21), on s'aperçoit que l'influence de la turbulence thermique (H) est minime devant la turbulence mécanique (u^*). Ainsi, le processus de mise ou de remise en suspension des bactéries serait donc principalement éolien et avec un seuil de 0.3 m.s^{-1} . On remarque que l'influence de H est minime sur les vitesses d'émission des bactéries. Cette observation est renforcée lorsque l'on trace la vitesse de transfert vertical normalisée par u^* afin de s'affranchir des effets de la turbulence mécanique (Figure 4.22).

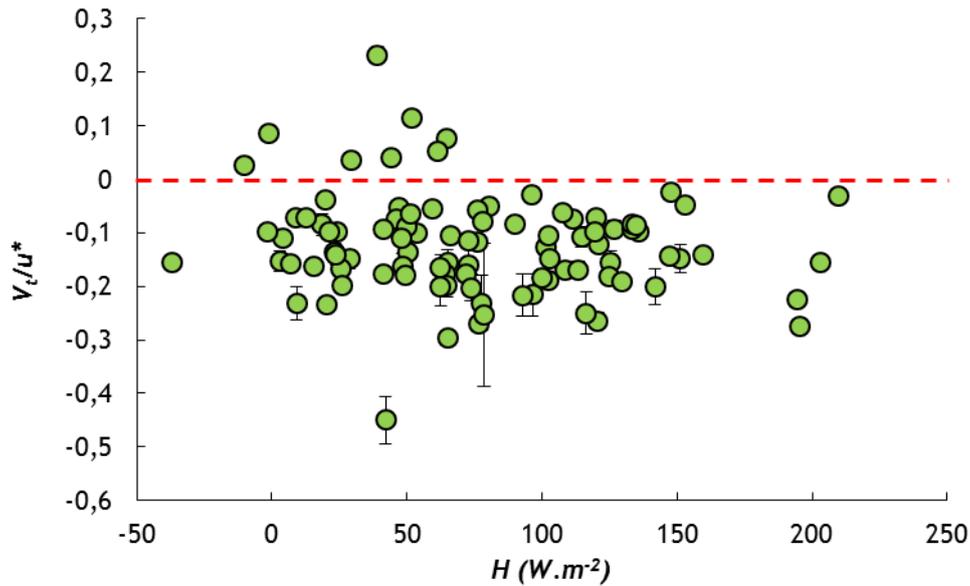


Figure 4.22 : Influence de H sur les vitesses de transfert vertical V_t normalisées par u^* obtenues par la méthode du gradient des bactéries.

Si on reporte cette vitesse de frottement seuil de 0.3 m.s^{-1} sur la courbe de la vitesse de frottement seuil pour la remise en suspension en fonction du diamètre des particules (Marticorena & Bergametti, 1995) et adaptant une densité de particules équivalente à des bactéries ($d = 1 \text{ g.cm}^{-3}$), (Figure 4.23) on remarque que l'on se trouve au minimum de la courbe. Cependant, ce qu'il est important de noter ici est que les particules remises en suspension pour cette valeur de vitesse de frottement sont comprise entre 20 et $50 \text{ }\mu\text{m}$. Sachant que les bactéries individualisées ont des tailles de l'ordre du μm , trois hypothèses peuvent alors être émises :

- la morphologie des bactéries (pilis, ...) pourrait modifier les forces de cohésion par rapport aux particules inertes ;
- les bourrasques de vent pourraient avoir un impact, non pris en compte dans la valeur moyenne de la vitesse de frottement du vent u^* ;
- les bactéries pourraient être remises en suspension sous forme d'agrégats compris entre 20 à $50 \text{ }\mu\text{m}$.

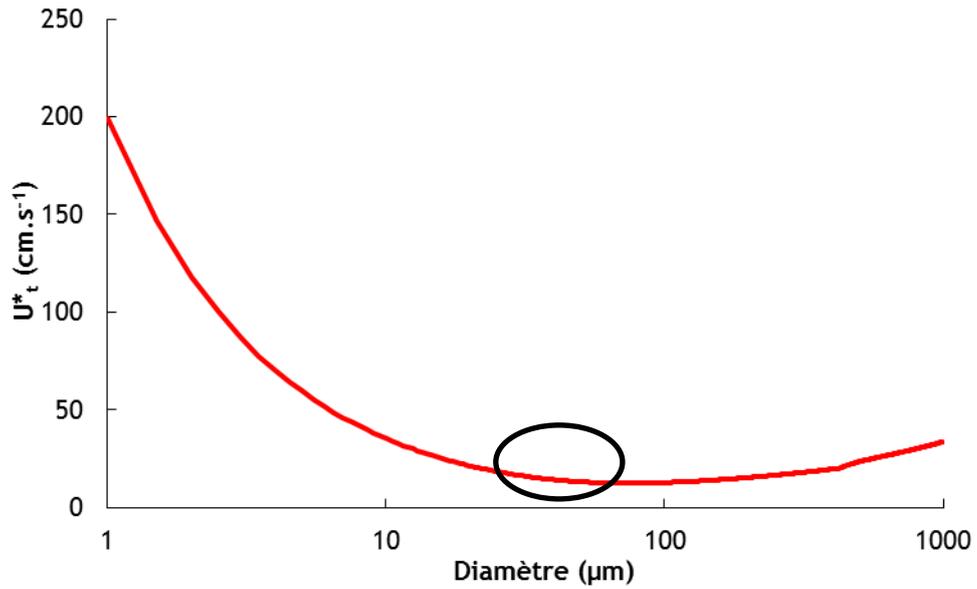


Figure 4.23 : Courbe de la vitesse de frottement seuil pour la remise en suspension en fonction de la taille des particules de densité $1 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ (Marticorena & Bergametti, 1995).

Dans le but de vérifier la troisième hypothèse sur la présence d'agrégats de bactérie dans l'atmosphère, une chambre de sédimentation a été développée (voir paragraphe 2.2.2). Ainsi, durant la campagne DEPECHEMOD 4, 13 prélèvements de 30 minutes ont été effectués. La figure présente le pourcentage moyen des 13 prélèvements en UFC sur chaque boîte de Pétri et sur le filtre.

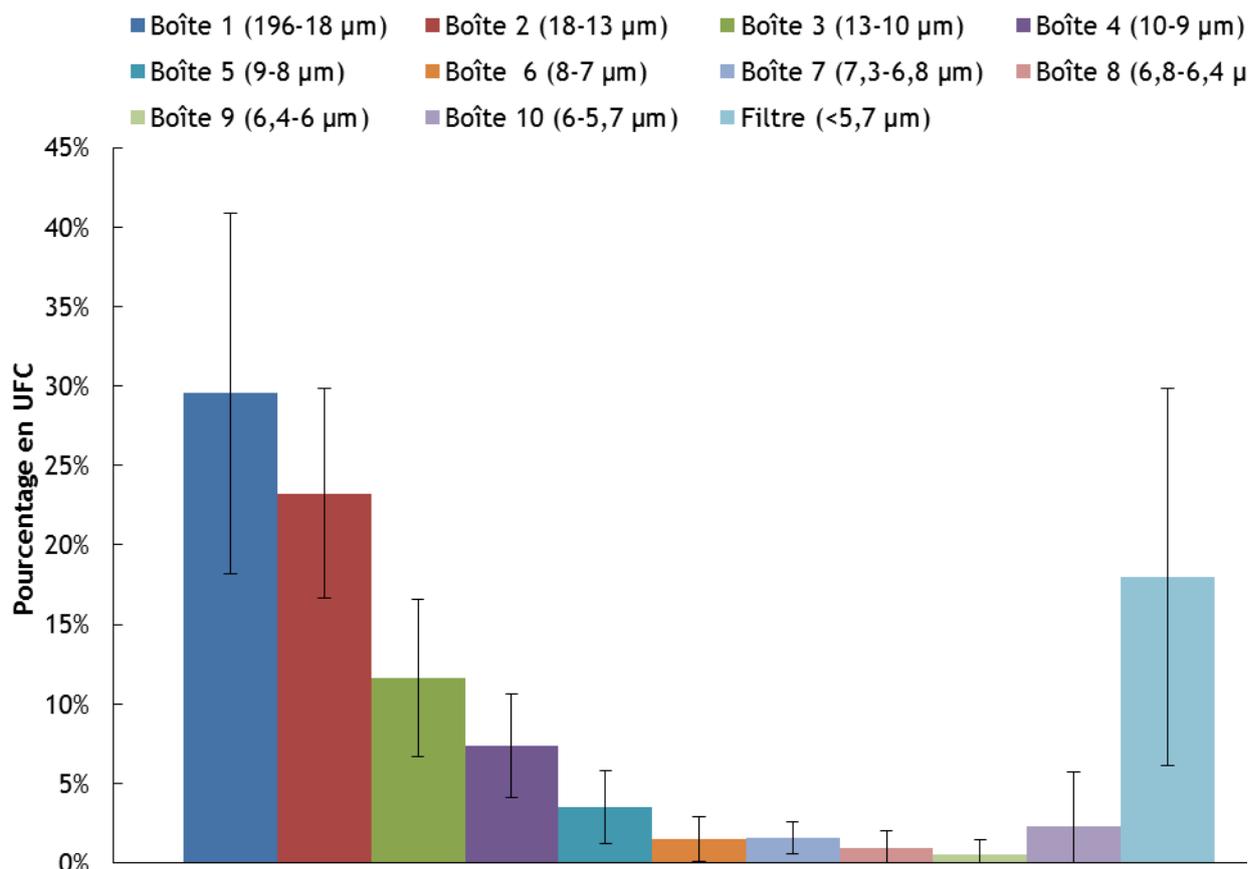


Figure 4.24 : Pourcentage en UFC moyen présent sur les différentes boîtes de Pétri et sur le filtre après culture lors des 9 prélèvements, les barres d'erreurs représentent les écarts types.

Les résultats (Figure 4.24) montrent qu'une grosse partie (plus de 60 %) des bioaérosols de type bactérie auraient une taille supérieure à 10 µm. Ainsi, les bioaérosols de type bactérie ne seraient pas en majorité individualisés et seraient donc sous forme d'agrégats. Cependant, les résultats du pourcentage d'UFC sur le filtre montrent également que 20 % des bactéries ont une taille inférieure à 5,7 µm. Il est possible d'expliquer ce résultat par le fait qu'il peut y avoir de la remise en suspension mécanique. En effet, étant donné la dispersion des résultats pour ce point, une contamination ou alors la remise en suspension par les engins agricoles présents sur le site ou alors par les manipulateurs autour de la chambre de sédimentation serait possible.

4.3 Conclusion

Les données des campagnes de mesures présentées au Chapitre 3 ont été analysées sous différents angles au cours de ce chapitre.

D'abord, une analyse de la répartition statistique des flux verticaux d'émissions et de dépôt en fonction de la taille des aérosols nous a permis d'identifier l'origine des flux d'émission. Les pratiques agricoles de fertilisation des sols par des dérivés azotés pourraient induire des flux d'émission par l'augmentation du nombre de particules pour une taille donnée au niveau du mode accumulation.

Les paramètres, influençant les vitesses de dépôt sec obtenues avec les trois techniques différentes, ont été ensuite étudiés. L'influence de la turbulence sur la vitesse de dépôt a été étudiée par l'intermédiaire de la vitesse de frottement du vent, du flux de chaleur sensible et de la stabilité atmosphérique. A partir de ces observations, une paramétrisation a été mise en place, permettant de décrire l'évolution de la vitesse de dépôt normée à la vitesse de frottement du vent en fonction des différentes conditions de stabilité atmosphériques. Le ratio entre la vitesse de dépôt et la vitesse de frottement du vent est constant en conditions atmosphériques neutres et stables, et s'exprime sous la forme d'une fonction de la longueur de Monin-obukhov lorsque les conditions sont instables. Enfin, l'influence de la taille des particules sur les valeurs de vitesses de dépôt, il apparaît que le rapport entre la vitesse de dépôt sec des aérosols et la vitesse de frottement du vent décroît pour les particules inférieures à 10 nm (mode nucléation), puis reste constant pour les aérosols entre 14 nm et 122 nm (mode d'Aitken) et décroît jusqu'à atteindre la valeur minimum pour les particules de 316 nm. Le rapport remonte ensuite pour les plus grosses particules (mode accumulation). Pour finir, la vitesse de dépôt sec des particules inférieures à 10 nm ne semble pas être influencée par la turbulence thermique liée à H .

Enfin, la confrontation des résultats obtenus en conditions stables et neutres avec deux modèles analytiques couramment utilisés a ensuite été menée (Piskunov, 2009; Slinn, 1982; Zhang *et al.*, 2001). Cela a permis de montrer que les modèles de Slinn et de Zhang sous-estiment des processus d'impaction et d'interception et semble être assez cohérent concernant la diffusion Brownienne régissant le dépôt. Le modèle de Sehmel via Piskunov est le plus représentatif de nos données expérimentales que ce soit en termes d'évolution ou de valeurs.

Dans un deuxième temps, les processus d'émission des bioaérosols de type bactérie ont été étudiés. L'influence des principaux paramètres micrométéorologique (H et u^*) sur les vitesses de transfert vertical des bactéries a été étudié. De plus, le processus éolien de remise en suspension ne semblerait pas être influencé par la turbulence thermique et donc par les flux de convection. Cependant, la taille de bactéries individualisées (environ 1 μm) ne pourrait pas expliquer cette remise en suspension éolienne, les bactéries remis en suspension par ces vitesses de frottements seraient de l'ordre de 50 μm . Trois hypothèses peuvent alors être émises :

- la morphologie des bactéries (pilis, ...) pourrait modifier les forces de cohésion par rapport aux particules inertes ;
- les bourrasques de vent pourraient avoir un impact, non pris en compte dans la valeur moyenne de la vitesse de frottement du vent u^* ;
- les bactéries pourraient être remises en suspension sous forme d'agrégats compris entre 20 à 50 μm .

Ainsi, afin de déterminer la granulométrie des bioaérosols de type bactérie dans l'atmosphère, une chambre de sédimentation a été développée et mise en œuvre sur le terrain. Le résultat à retenir ici est que plus de 60 % des bactéries auraient une taille supérieure à 10 μm .

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

L'objectif de cette étude était de déterminer la vitesse de dépôt sec des aérosols submicroniques, et plus particulièrement les particules inférieures à 10 nm, en milieu naturel et de documenter les processus d'émissions des bactéries.

Bilan :

Notre démarche a d'abord consisté à introduire les notions de base en physique de l'atmosphère et de l'aérosol. Le fonctionnement de la couche limite atmosphérique et surtout de la couche de surface (couche à flux constant) ont été détaillées. Ensuite des écarts entre les différentes vitesses de dépôt modélisées allant jusqu'à plusieurs ordres de grandeur ont été mis en évidence par la revue des principaux modèles de dépôt. La diversité des expressions de la captation des aérosols par la végétation et le fait qu'elles soient rarement validées par des résultats expérimentaux sont la cause principale des écarts observés. L'étude bibliographique des résultats expérimentaux déjà existant montre une forte dispersion des vitesses de dépôt mesurées, notamment en fonction des conditions de mesures variées (méthode, substrat, turbulence) ne se recoupant pas. La même démarche a été faite concernant les processus de remise en suspension des bioaérosols type bactérie. En effet, la théorie de la remise en suspension éolienne a été étudiée avec la définition du coefficient de remise en suspension. Une étude bibliographique a ensuite été effectuée avec une revue des différents coefficients de remise en suspension de la littérature. Une grande dispersion des résultats a pu être observée avec des incertitudes pouvant aller à plusieurs ordres de grandeurs. La difficulté dans l'étude de la remise en suspension des bioaérosols de type bactérie repose dans la mesure du flux de bactérie. Ainsi une revue de méthode de captation des bioaérosols type bactérie et un choix s'adaptant à nos besoins (adaptable sur le terrain, facilité de mise en œuvre...) ont finalement été faits (Chapitre 1).

Les trois différentes méthodes : méthode du gradient, corrélation turbulente et dépôt directe, utilisées pour le calcul de flux de dépôt sec et donc vitesse de dépôt sec ont été ensuite présentées. La méthode du gradient pour la fraction libre des descendants du ^{222}Rn (Porstendörfer, 1994) permet d'obtenir des vitesses de dépôt sec de particules de 1,5 nm en effectuant des prélèvements à deux hauteurs différentes sur des grilles de diffusion avec des débits de 200 L.min⁻¹. La théorie du calcul des flux par corrélation turbulente, ainsi que les appareils utilisés, à savoir un anémomètre ultrasonique, un couplage de Compteurs à Noyaux de condensation (twin CNC) pour les particules de 6 nm et un impacteur électrique à basse pression (ELPI) pour les particules de 7 nm à 1,2 µm ont ensuite été abordés. La présentation de l'ensemble des corrections (Webb *et al.*, 1980) dont la méthode de correction spectrale (Damay *et al.*, 2009; Lamaud, Brunet, *et al.*, 1994; Pellerin *et al.*, 2017) et des tests de qualités nécessaires ont été effectués (stationnarité, intégrale turbulence) (Foken & Wichura, 1996). Concernant la remise en suspension des bioaérosols type bactérie, la méthode du gradient a été une nouvelle fois utilisée, mais cette fois l'échantillonnage des bioaérosols de type bactérie s'est fait avec des bioimpacteurs Andersen 1 étage chargés avec

des boîtes Pétri contenant un milieu gélosé Luria-Bertani avec un antifongique (Amphotericin b) pour la culture des bactéries uniquement. En effet après l'échantillonnage une période d'incubation (48 heures à 30 °C) pour le dénombrement des Unités Formant Colonie (UFC).

Les méthodes développées ont été mises en œuvre durant quatre campagnes de mesures dans le centre ouest de la France sur une prairie de la ferme expérimentale de l'INRA de Lusignan, près de Poitiers. Le site expérimental et le matériel ainsi que l'évolution des principaux paramètres micrométéorologiques de chaque campagne sont décrits chronologiquement. La première campagne expérimentale (DEPECHEMOD 1) a eu lieu en avril 2015. Cette campagne de mise au point a permis de valider les premières mesures pour la méthode twin CNC ainsi que les premières mesures de vitesses de transfert vertical de bactérie. De plus, une relation entre ces vitesses de transfert vertical avec les principaux paramètres micrométéorologique (u^* et H). Lors de la campagne DEPECHEMOD 2, en septembre 2014, cette tendance a été confirmée. Concernant les vitesses de dépôt sec, comme pour DEPECHEMOD 1, la plupart des cas de vitesses de dépôt est observée avec la méthode twin CNC (6 nm) et sur les premiers étages de l'ELPI (entre 14 nm et 122 nm) alors que les vitesses d'émission ont majoritairement lieu pour des tailles plus grandes (202 nm - 1,2 μm). Cette observation est identique à celle faite par (Damay, 2010). La campagne DEPECHEMOD 3 a permis, quant à elle, d'effectuer les premières vitesses de dépôt sec avec dépôt direct de particules de fluorescéine de 0,6 μm . Cette méthode a été mise en œuvre étant donné que la méthode des corrélations turbulentes donnée une majorité de vitesses d'émission pour cette taille de particules. Les valeurs des vitesses de dépôt sec obtenues avec les particules de fluorescéine sont proches des valeurs observées par la méthode des corrélations turbulentes. Les observations concernant les vitesses de transfert vertical des bioaérosols type bactérie sont toujours valables et s'affinent. La dernière campagne (DEPECHEMOD 4) a permis de mettre en place deux nouvelles méthodes. La première concerne la méthode du gradient de la fraction libre des descendants du ^{222}Rn afin d'obtenir des vitesses de dépôt sec de particules de 1,5 nm. La deuxième méthode a été développée suite aux observations des campagnes précédentes concernant les vitesses de transfert vertical des bioaérosols de type bactérie. En effet, un seuil de vitesse de frottements de 0,3 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour la mise ou la remise en suspension n'est pas possible pour la taille de bactérie connue (environ 1 μm). Ainsi une chambre de sédimentation permettant de vérifier la taille des bactéries a été développée et mise en œuvre durant cette campagne.

L'ensemble de ces résultats a été analysé en vue d'identifier l'influence des paramètres comme la nature du couvert des conditions météorologiques ou la taille des particules sur le dépôt. D'abord l'origine des flux verticaux d'émissions a été étudiée en passant par une analyse de la répartition statistique des flux en fonction de la taille des aérosols et du couvert. L'hypothèse est que les dérivés azotés utilisés pour la fertilisation des sols soient à l'origine des flux d'émissions mesurés. Cette hypothèse est renforcée par le fait que la campagne DEPECHEMOD 4, qui présente le moins de proportions d'émissions pour les plus aérosols, a été effectuée au-dessus d'une prairie non-amendé récemment par des dérivés azotés. Une étude paramétrique des vitesses de dépôt en fonction de la

vitesse de frottement du vent et du flux de chaleur sensible a amené la mise en place d'une paramétrisation permettant l'expression de la vitesse de dépôt, adimensionnée par la vitesse de frottement du vent, en fonction des conditions de stabilité atmosphérique. Les vitesses de dépôt sec en conditions neutre et stable, très présentes durant les campagnes DEPECHEMOD, ont permis d'obtenir un courbe « en V » complète de 1,5 nm à 1,2 μm . Le nombre de point en conditions instables étant moins présentes la courbe moyenne obtenue présente plus d'incertitudes. Cependant il apparaît que pour les particules du mode nucléation (inférieur à 10 nm), la turbulence thermique n'ait pas d'influence sur les vitesses de dépôt sec. Enfin, les résultats des obtenus en conditions stables et neutres sont confrontés à trois modèles de la vitesse de dépôt sec en fonction des particules couramment utilisés. Le modèle semi-empirique de Sehmel via Piskunov représente le mieux nos valeurs expérimentales.

Concernant l'identification des processus d'émission des bioaérosols de type bactérie, il semblerait que ce phénomène éolien ne soit pas influencé par la turbulence thermique. En effet une relation linéaire avec une vitesse de frottement seuil pour la remise en suspension d'environ $0,3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$) semble être présente. Pour cette valeur de vitesse de frottement, les particules remises en suspension sont comprises entre 20 et 50 μm . Sachant que les bactéries individualisées ont des tailles de l'ordre du μm , trois hypothèses peuvent alors être émises :

- la morphologie des bactéries (pilis, ...) pourrait modifier les forces de cohésion par rapport aux particules inertes ;
- les bourrasques de vent pourraient avoir un impact, non pris en compte dans la valeur moyenne de la vitesse de frottement du vent u^* ;
- les bactéries pourraient être remises en suspension sous forme d'agrégats compris entre 20 à 50 μm .

Afin de vérifier la granulométrie des bactéries dans l'atmosphère, les premiers résultats de la chambre de sédimentations montrent que 60% des bactéries auraient une taille supérieure à 10 μm et donc sous forme d'agrégats ou de biofilms dans l'atmosphère.

Perspectives :

Cette étude a permis de combler en partie le manque de mesure de vitesse de dépôt constaté dans la littérature et d'améliorer les incertitudes. De plus l'absence de données *in situ* pour des particules inférieures à 10 nm a été comblée avec des mesures de vitesse de dépôt sec de particules de 1,5 nm et 6nm. Ainsi 3 différentes méthodes ont permis d'obtenir des vitesses de dépôt sec de particules allant de 1,5 nm à 1,2 μm .

Il serait opportun maintenant de déployer le dispositif (avec les trois méthodes) afin d'obtenir des vitesses de dépôt en milieu complexe comme le milieu urbain, le milieu forestier, de la glace ou de l'eau, couverts dont la rugosité est très différente des substrats rural. Ces milieux sont souvent rencontrés autour des installations nucléaires françaises. Concernant les mesures de vitesse

d'émission mesurées pour les plus gros aérosols, il serait utile de valider l'hypothèse sur l'évolution granulométrique de l'aérosol due aux réactions de coagulation/condensation dont résulterait une émission. Pour cela des mesures de spectres granulométriques à deux hauteurs différentes pourrait être effectuées afin de se rendre compte ou non de la différence de granulométrie de l'aérosol atmosphérique et en particulier du mode accumulation en fonction de la hauteur de mesure, ce qui pourrait expliquer les vitesses d'émission.

Concernant les processus d'émission des bioaérosols, les méthodes présentes ici ont permis de mettre en avant une hypothèse concernant la mise ou la remise en suspension de bactérie principalement sous forme d'agrégats. Des mesures par microscopie électronique (à balayage) en effectuant des prélèvements sur filtre à la place du milieu gélosé dans la chambre de sédimentation permettraient d'affiner cette hypothèse et de dire s'il s'agit effectivement de biofilms, d'agrégats de bactéries ou alors de bactéries fixées sur débris végétaux. Pour finir la méthode de dénombrement des bactéries par culture et comptage des UFC présente des limites et une adaptation à des mesures par quantification par Réaction en Chaîne par Polymérase (qPCR) serait bénéfique et permettrait également de différencier le type de bactérie mesuré.

Les résultats obtenus intéressent la communauté scientifique car ils permettront de mieux contraindre les modèles climatiques et de pollution atmosphérique. En particulier, ils pourront être directement intégrés dans les modèles de l'IRSN permettant d'évaluer, de comprendre et de prévoir l'impact d'un rejet accidentel ou chronique de radionucléides sous forme d'aérosols. Mais également de pouvoir donner une amorce d'explication à la remise en suspension de radionucléide n'étant, pour l'instant, pas ou très peu expliquée lorsque la vitesse du vent est faible ou en tout cas lorsque la vitesse de frottements seuil pour la remise en suspension n'est pas atteinte.

BIBLIOGRAPHIE

- Affre, C. (1997). *Méthodologie de la mesure (aéroportée et au sol) des flux turbulents. Application à l'ozone aux échelles locale et régionale.*
- Allen, A.G., Harrison, R.M., & Nicholson, K.W. (1991). Dry deposition of fine aerosol to a short grass surface. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, **25**, 2671-2676.
- Amano, H., Akiyama, M., Chunlei, B., Kawamura, T., Kishimoto, T., Kuroda, T., Muroi, T., Odaira, T., Ohta, Y., Takeda, K., Watanabe, Y., & Morimoto, T. (2012). Radiation measurements in the Chiba Metropolitan Area and radiological aspects of fallout from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plants accident. *Journal of Environmental Radioactivity*, **111**, 42-52.
- Andersen, A.A. (1958). New sampler for the collection, sizing, and enumeration of viable particles. *Journal of Bacteriology*, **76**, 471-484.
- Anspaugh, L., Phelps, P., Holladay, G., & Hamby, K. (1970). Distribution and redistribution of airborne particulates from the schooner cratering event. In (Edited Editor), *Book Distribution and redistribution of airborne particulates from the schooner cratering event.* California Univ., Livermore. Lawrence Radiation Lab., City.
- Anspaugh, L., Shinn, J.H., Phelps, P.L., & Kennedy, N. (1975). Resuspension and Redistribution of Plutonium in Soils. *Health Physics*, **29**, 571-582.
- Aylor, D.E. (1982). Modeling spore dispersal in a barley crop. *Agricultural Meteorology*, **26**, 215-219.
- 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.
- Baldocchi, D.D., Hincks, B.B., & Meyers, T.P. (1988). Measuring Biosphere-Atmosphere Exchanges of Biologically Related Gases with Micrometeorological Methods. *Ecology*, **69**, 1331-1340.
- Barnett, C., Belli, M., Beresford, N., Bossew, P., Boyer, P., Brittain, J., Calmon, P., Carini, F., Choi, Y., & Ciffroy, P. (2009). Quantification of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments. IAEA-TECDOC-1616. In (Edited Editor), *Book Quantification of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments for Radiological Assessments. IAEA-TECDOC-1616.* IAEA, City.
- Becker, K.H., Reineking, A., Scheibel, H.G., & Porstendörfer, J. (1984). Radon Daughter Activity Size Distributions. *Radiation Protection Dosimetry*, **7**, 147-150.
- Bennett, B. (1975). Transuranic element pathways to man. *Transuranium nuclides in the environment*, 367.
- Bondiotti, E.A., Papastefanou, C., & Rangarajan, C. (1987). Aerodynamic Size Associations of Natural Radioactivity with Ambient Aerosols. In *Radon and Its Decay Products Radon and Its Decay Products* (Vol. 331, pp. 377-397). American Chemical Society, City.
- Boulaud, D., Chouard, J., Frambourt, C., & Madelaine, G. (1983). Study of a sedimentation battery. *Journal of Aerosol Science*, **14**, 421-424.
- Bricard, J. (1977). *Physique des aérosols.* Centre d'études nucléaires de Saclay.
- Bunzl, K., Schimmack, W., Kreutzer, K., & Schierl, R. (1989). Interception and retention of chernobyl-derived ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs and ¹⁰⁶Ru in a spruce stand. *Science of The Total Environment*, **78**, 77-87.
- Businger, J.A. (1986). Evaluation of the Accuracy with Which Dry Deposition Can Be Measured with Current Micrometeorological Techniques. *Journal of Climate and Applied Meteorology*, **25**, 1100-1124.
- Businger, J.A., & Oncley, S.P. (1990). Flux Measurement with Conditional Sampling. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, **7**, 349-352.

- Buzorius, G., Rannik, Ü., Mäkelä, J.M., Keronen, P., Vesala, T., & Kulmala, M. (2000). Vertical aerosol fluxes measured by the eddy covariance method and deposition of nucleation mode particles above a Scots pine forest in southern Finland. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **105**, 19905-19916.
- Calec, N. (2013). *Dépôt sec des aérosols submicroniques sur une surface liquide en mouvement*. Aix-Marseille.
- Cambray, R.S., Cawse, P., Garland, J., Gibson, J.A.B., Johnson, P., Lewis, G., Newton, D., Salmon, L., & Wade, B. (1987). Observations on radioactivity from the Chernobyl accident. *Nuclear energy*, **26**, 77-101.
- Cetin, B., & Odabasi, M. (2007). Particle-phase dry deposition and air-soil gas-exchange of polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in Izmir, Turkey. *Environmental science & technology*, **41**, 4986-4992.
- Chamberlain. (1966). Transport of Gases To and From Grass and Grass-Like Surfaces. *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, **290**, 236-265.
- Chamberlain, & Chadwick. (1953). Deposition of airborne radioiodine vapor. **8**, 22-25.
- Chamberlain, & Chadwick, R.C. (1972). Deposition of spores and other particles on vegetation and soil. *Annals of Applied Biology*, **71**, 141-158.
- Chamberlain, A.C. (1974). Mass transfer to bean leaves. *Boundary-Layer Meteorol*, **6**, 477-486.
- Chen, W., Kuze, H., Uchiyama, A., Suzuki, Y., & Takeuchi, N. (2001). One-year observation of urban mixed layer characteristics at Tsukuba, Japan using a micro pulse lidar. *Atmospheric Environment*, **35**, 4273-4280.
- Cheng, Y.S., & Yeh, H.C. (1980). Theory of a screen-type diffusion battery. *Journal of Aerosol Science*, **11**, 313-320.
- Chu, C.-C., Fang, G.-C., Chen, J.-C., & Lin, I.C. (2008). Ambient air dry deposition and ionic species analysis by using various deposition collectors in Shalu, central Taiwan. *Atmospheric Research*, **88**, 212-223.
- Clement, R. (1999). EdiRe data software, v. 1.5. 0.32. *University of Edinburgh, Edinburgh, UK* [Available at <http://www.geos.ed.ac.uk/abs/research/micromet/EdiRe/>].
- Clough, W.S. (1975). The deposition of particles on moss and grass surfaces. *Atmospheric Environment (1967)*, **9**, 1113-1119.
- Colbeck, I. (2014). *Aerosol Science: Technology and Applications*. John Wiley & Sons.
- Connan, O., Maro, D., Hébert, D., Roupsard, P., Goujon, R., Letellier, B., & Le Cavalier, S. (2013). Wet and dry deposition of particles associated metals (Cd, Pb, Zn, Ni, Hg) in a rural wetland site, Marais Vernier, France. *Atmospheric Environment*, **67**, 394-403.
- Crook, B., & Burton, N.C. (2010). Indoor moulds, sick building syndrome and building related illness. *Fungal Biology Reviews*, **24**, 106-113.
- Dabberdt, W.F., Lenschow, D.H., Horst, T.W., Zimmerman, P.R., Oncley, S.P., & Delany, A.C. (1993). Atmosphere-Surface Exchange Measurements. *Science*, **260**, 1472-1481.
- Damay. (2010). *Experimental determination of submicron aerosol dry deposition velocity onto rural canopies : influence of aerosol size, of micrometeorological parameters and of the substrate*. INSA de Rouen.
- Damay, Maro, D., Coppalle, A., Lamaud, E., Connan, O., Hébert, D., Talbaut, M., & Irvine, M. (2009). Size-resolved eddy covariance measurements of fine particle vertical fluxes. *Journal of Aerosol Science*, **40**, 1050-1058.
- Davidson, C.I., & Friedlander, S.K. (1978). A filtration model for aerosol dry deposition: Application to trace metal deposition from the atmosphere. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, **83**, 2343-2352.

- Davidson, C.I., Lindberg, S.E., Schmidt, J.A., Cartwright, L.G., & Landis, L.R. (1985). Dry deposition of sulfate onto surrogate surfaces. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **90**, 2123-2130.
- De Moor, G. (1996). Les Théories de la turbulence dans la couche limite atmosphérique. *Cours et manuels, n°3, Ecole Nationale de la Météorologie, Météo France, Toulouse, France*.
- Delmas, R., Mégie, G., & Peuch, V.-H. (2005). *Physique et chimie de l'atmosphère*. Belin.
- Devell, L., Tovedal, H., Bergstrom, U., Appelgren, A., Chyssler, J., & Andersson, L. (1986). Initial observations of fallout from the reactor accident at Chernobyl. *Nature*, **321**, 192-193.
- Deventer, M.J., Held, A., El-Madany, T.S., & Klemm, O. (2015). Size-resolved eddy covariance fluxes of nucleation to accumulation mode aerosol particles over a coniferous forest. *Agricultural and Forest Meteorology*, **214-215**, 328-340.
- Doran, J., & Droppo, J. (1983). Profiles of elements in the surface boundary layer. Dans Pruppacher, H., Semonin, R. et Slinn, W. In (Precipitation scavenging, dry deposition and resuspension ed., Vol. 2, pp. 1003-1012.). Elsevier, Amsterdam. 43, City.
- Douwes, J., Thorne, P., Pearce, N., & Heederik, D. (2003). Bioaerosol health effects and exposure assessment: progress and prospects. *Annals of Occupational Hygiene*, **47**, 187-200.
- Droppo, J. (1979). Experimental techniques for dry deposition measurements. In (Edited Editor), *Book Experimental techniques for dry deposition measurements*. Battelle Pacific Northwest Labs., Richland, WA (USA), City.
- Duporté, G., Riva, M., Parshintsev, J., Heikkinen, E., Barreira, L.M.F., Myllys, N., Heikkinen, L., Hartonen, K., Kulmala, M., Ehn, M., & Riekkola, M.-L. (2017). Chemical Characterization of Gas- and Particle-Phase Products from the Ozonolysis of α -Pinene in the Presence of Dimethylamine. *Environmental Science & Technology*, **51**, 5602-5610.
- Duquenne, P., & Greff-Mirguet, G. (2005). L'échantillonnage et l'analyse des aérosols microbiens.
- Dyer, A. (1974). A Review of Flux-Profile Relationships, *Boundary-Layer Meteorol.*, **7**, pp. 363-372.
- Eduard, W. (2006). *The Nordic Expert Group for Criteria Documentation of Health Risks from Chemicals: 139. Fungal spores*.
- Eduard, W., Heederik, D., Duchaine, C., & Green, B.J. (2012). Bioaerosol exposure assessment in the workplace: the past, present and recent advances. *Journal of environmental monitoring*, **14**, 334-339.
- Eller, P.M., & Cassinelli, M.E. (1994). *NIOSH manual of analytical methods* (Vol. 94). Diane Publishing.
- Elster, J., & Geitel, H. (1913). *Zur Influenztheorie der Niederschlagsselektivität*.
- Energy, U.D.o. (1994). DOE Handbook. *Order*, **703**, 487-4650.
- Everett, R.G., Hicks, B.B., Berg, W.W., & Winchester, J.W. (1979). An analysis of particulate sulfur and lead gradient data collected at Argonne National Laboratory. *Atmospheric Environment (1967)*, **13**, 931-934.
- Fogh, C.L., Roed, J., & Andersson, K.G. (1999). Radionuclide resuspension and mixed deposition at different heights. *Journal of Environmental Radioactivity*, **46**, 67-75.
- Foken, T., Gööckede, M., Mauder, M., Mahrt, L., Amiro, B., & Munger, W. (2004). Post-field data quality control. In *Handbook of micrometeorology Handbook of micrometeorology* (pp. 181-208). Springer, City.
- Foken, T., & Wichura, B. (1996). Tools for quality assessment of surface-based flux measurements. *Agricultural and Forest Meteorology*, **78**, 83-105.
- Forthomme, A. (2012). *Caractérisation du comportement des aérosols microbiens dans les réseaux de ventilation d'espaces occupés*. Ecole des Mines de Nantes.

- Fowler, Erismann, J.W., Sutton, M., Nemitz, E., Pilegaard, K., Gallagher, M., Tuovinen, J.-P., Duyzer, J., Grünhage, L., & Dämmgen, U. (2002). Deposition fluxes of air pollutants to terrestrial surfaces in Europe.
- Fowler, D., Pilegaard, K., Sutton, M.A., Ambus, P., Raivonen, M., Duyzer, J., Simpson, D., Fagerli, H., Fuzzi, S., Schjoerring, J.K., Granier, C., Neftel, A., Isaksen, I.S.A., Laj, P., Maione, M., Monks, P.S., Burkhardt, J., Daemmgen, U., Neirynek, J., Personne, E., Wichink-Kruit, R., Butterbach-Bahl, K., Flechard, C., Tuovinen, J.P., Coyle, M., Gerosa, G., Loubet, B., Altimir, N., Gruenhage, L., Ammann, C., Cieslik, S., Paoletti, E., Mikkelsen, T.N., Ro-Poulsen, H., Cellier, P., Cape, J.N., Horváth, L., Loreto, F., Niinemets, Ü., Palmer, P.I., Rinne, J., Misztal, P., Nemitz, E., Nilsson, D., Pryor, S., Gallagher, M.W., Vesala, T., Skiba, U., Brüggemann, N., Zechmeister-Boltenstern, S., Williams, J., O'Dowd, C., Facchini, M.C., De Leeuw, G., Flossman, A., Chaumerliac, N., & Erismann, J.W. (2009). Atmospheric composition change: Ecosystems-Atmosphere interactions. *Atmospheric environment*, **43**, 5193-5267.
- Friedlander, S.K. (1977). Smoke, dust and haze: Fundamentals of aerosol behavior. *New York, Wiley-Interscience*, 1977. 333 p.
- Fuentes, J.D., Wang, D., Neumann, H.H., Gillespie, T.J., Den Hartog, G., & Dann, T.F. (1996). Ambient biogenic hydrocarbons and isoprene emissions from a mixed deciduous forest. *J Atmos Chem*, **25**, 67-95.
- Gallagher, Choularton, T.W., Morse, A.P., & Fowler, D. (1988). Measurements of the size dependence of cloud droplet deposition at a hill site. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, **114**, 1291-1303.
- Gallagher, M.W., Fontan, J., Wyers, P., Ruijgrok, W., Duyzer, J., Hummelshøj, P., Pilegaard, K., & Fowler, D. (1997). Atmospheric Particles and their Interactions with Natural Surfaces. In *Biosphere-Atmosphere Exchange of Pollutants and Trace Substances: Experimental and Theoretical Studies of Biogenic Emissions and of Pollutant Deposition* (Edited Slanina, S.), *Biosphere-Atmosphere Exchange of Pollutants and Trace Substances: Experimental and Theoretical Studies of Biogenic Emissions and of Pollutant Deposition* (pp. 45-92). Springer Berlin Heidelberg, City.
- Gallagher, M.W., Nemitz, E., Dorsey, J.R., Fowler, D., Sutton, M.A., Flynn, M., & Duyzer, J. (2002). Measurements and parameterizations of small aerosol deposition velocities to grassland, arable crops, and forest: Influence of surface roughness length on deposition. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **107**, AAC 8-1-AAC 8-10.
- Gaman, A., Rannik, Ü., Aalto, P., Pohja, T., Siivola, E., Kulmala, M., & Vesala, T. (2004). Relaxed Eddy Accumulation System for Size-Resolved Aerosol Particle Flux Measurements. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, **21**, 933-943.
- Garger, E.K., Hoffman, F.O., Thiessen, K.M., Galeriu, D., Kryshev, A.I., Lev, T., Miller, C.W., Nair, S.K., Talerko, N., & Watkins, B. (1998). Test of existing mathematical models for atmospheric resuspension of radionuclides. *Journal of Environmental Radioactivity*, **42**, 157-175.
- Garger, E.K., Kashpur, V., Belov, G., Demchuk, V., Tschiersch, J., Wagenpfeil, F., Paretzke, H.G., Besnus, F., Holländer, W., Martinez-Serrano, J., & Vintersved, I. (1997). Measurement of resuspended aerosol in the Chernobyl area. *Radiation and Environmental Biophysics*, **36**, 139-148.
- Garland, J. (1983). Some recent studies of the resuspension of deposited material from soil and grass. In *Precipitation scavenging, dry deposition, and resuspension. Volume 2. Proceedings Precipitation scavenging, dry deposition, and resuspension. Volume 2. Proceedings*, City.
- Garland, J., & Cox, L. (1982). Deposition of small particles to grass. *Atmospheric Environment (1967)*, **16**, 2699-2702.
- Garland, J., Pattenden, N., & Playford, K. (1992). Resuspension following Chernobyl. In (Edited Editor), *Book Resuspension following Chernobyl*, City.

- Giess, P., Goddard, A.J.H., & Shaw, G. (1997). Factors affecting particle resuspension from grass swards. *Journal of Aerosol Science*, **28**, 1331-1349.
- Golder, D. (1972). Relations among stability parameters in the surface layer. *Boundary-Layer Meteorol*, **3**, 47-58.
- Gregory, P.H., Longhurst, T.J., & Sreeramulu, T. (1961). Dispersion and deposition of airborne Lycopodium and Ganoderma spores. *Annals of Applied Biology*, **49**, 645-658.
- Griffiths, W.D., & DeCosemo, G.A.L. (1994). The assessment of bioaerosols: A critical review. *Journal of Aerosol Science*, **25**, 1425-1458.
- Grinshpun, S.A., Chang, C.-W., Nevalainen, A., & Willeke, K. (1994). Inlet characteristics of bioaerosol samplers. *Journal of Aerosol Science*, **25**, 1503-1522.
- Grönholm, T., Aalto, P.P., Hiltunen, V., Rannik, Ü., Rinne, J., Laakso, L., Hyvönen, S., Vesala, T., & Kulmala, M. (2007). Measurements of aerosol particle dry deposition velocity using the relaxed eddy accumulation technique. *Tellus B*, **59**, 381-386.
- Heerden, W.M.V. (1967). An Analysis of Soil Transportation by Raindrop Splash. **10**.
- Held, A., & Klemm, O. (2006). Direct measurement of turbulent particle exchange with a twin CPC eddy covariance system. *Atmospheric Environment*, **40**, Supplement 1, 92-102.
- Held, A., Niessner, R., Bosveld, F., Wrzesinsky, T., & Klemm, O. (2007). Evaluation and Application of an Electrical Low Pressure Impactor in Disjunct Eddy Covariance Aerosol Flux Measurements. *Aerosol Science and Technology*, **41**, 510-519.
- Hicks, B.B. (1986). Measuring dry deposition: A re-assessment of the state of the art. *Water, Air, and Soil Pollution*, **30**, 75-90.
- Hicks, B.B., Saylor, R.D., & Baker, B.D. (2016). Dry deposition of particles to canopies—A look back and the road forward. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **121**, 14,691-614,707.
- Hicks, B.B., Wesely, M.L., Durham, J.L., & Brown, M.A. (1982). Some direct measurements of atmospheric sulfur fluxes over a pine plantation. *Atmospheric Environment (1967)*, **16**, 2899-2903.
- Hidy, G. (2012). *Aerosols: an industrial and environmental science*. Elsevier.
- Hidy, G., & Heisler, S. (1978). Transport and deposition of flowing aerosols. *Recent Developments in Aerosol Science*, Wiley, New York, 135-165.
- Hinds, W.C. (1999). *Aerosol Technology: Properties, Behavior, and Measurement of airborne Particles (2nd)*.
- Holländer, W. (1994). Resuspension factors of ¹³⁷Cs in Hannover after the Chernobyl accident. *Journal of Aerosol Science*, **25**, 789-792.
- Hoven, I.V.d. (1957). Power spectrum of horizontal wind speed in the frequency range from 0.0007 to 900 cycles per hour. *Journal of Meteorology*, **14**, 160-164.
- Hummelshøj, P. (1994). *Dry Deposition of Particles and Gases*. Technical University of Denmark.
- Hussein, T., Smolik, J., Kerminen, V.-M., & Kulmala, M. (2012). Modeling Dry Deposition of Aerosol Particles onto Rough Surfaces. *Aerosol Science and Technology*, **46**, 44-59.
- Iranzo, E., Salvador, S., & Iranzo, C.E. (1987). Air Concentrations of ²³⁹Pu and ²⁴⁰Pu and Potential Radiation Doses to Persons Living Near Pu-contaminated Areas in Palomares, Spain. *Health Physics*, **52**, 453-461.
- Jaenicke, R. (2005). Abundance of cellular material and proteins in the atmosphere. *Science*, **308**, 73-73.
- Jaenicke, R., & Schütz, L. (1988). Physical and chemical properties of the air. *Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology, edited by G. Fischer, Landolt-Bornstein new Series, V: Geophysics and Space Research*, **4**, 391-457.

- Jenkins, P.H. (2002). Equations for Modeling of Grab Samples of Radon Decay Products.[Article]. *Health Physics*, **83**, S48-S51.
- Jensen, P.A., Todd, W.F., Davis, G.N., & Scarpino, P.V. (1992). Evaluation of eight bioaerosol samplers challenged with aerosols of free bacteria. *American Industrial Hygiene Association Journal*, **53**, 660-667.
- Jost, D.T., GaGgeler, H.W., Baltensperger, U., Zinder, B., & Haller, P. (1986). Chernobyl fallout in size-fractionated aerosol. *Nature*, **324**, 22-23.
- Kaimal, J.C., Abshire, N.L., Chadwick, R.B., Decker, M.T., Hooke, W.H., Kropfli, R.A., Neff, W.D., Pasqualucci, F., & Hildebrand, P.H. (1982). Estimating the Depth of the Daytime Convective Boundary Layer. *Journal of Applied Meteorology*, **21**, 1123-1129.
- Kaimal, J.C., & Finnigan, J.J. (1994). *Atmospheric Boundary Layer Flows. Their structure and measurement*, Oxford University press, Oxford
- Kajino, M., Ishizuka, M., Igarashi, Y., Kita, K., Yoshikawa, C., & Inatsu, M. (2016). Long-term assessment of airborne radiocesium after the Fukushima nuclear accident: re-suspension from bare soil and forest ecosystems. *Atmos. Chem. Phys.*, **16**, 13149-13172.
- Kashparov, V.A., Lundin, S.M., Kadygrib, A.M., Protsak, V.P., Levtchuk, S.E., Yoschenko, V.I., Kashpur, V.A., & Talerko, N.M. (2000). Forest fires in the territory contaminated as a result of the Chernobyl accident: radioactive aerosol resuspension and exposure of fire-fighters. *Journal of Environmental Radioactivity*, **51**, 281-298.
- Kharchenko, A.I. (1997). Parameterization of dry deposition velocity in the atmospheric surface layer. *Journal of Aerosol Science*, **28**, S589-S590.
- Kolmogorov, A. (1942). Equations of motion of an incompressible turbulent fluid. *Izv Akad Nauk SSSR Ser Phys*, **6**, 56-58.
- Kotroni, V., & Lagouvardos, K. (1994). Dynamic structure and evolution of the prefrontal boundary layer: Three case studies of FRONTS 87. *Atmospheric Research*, **35**, 55-70.
- Kulkarni, P., Baron, P.A., & Willeke, K. (2011). *Aerosol measurement: principles, techniques, and applications*. John Wiley & Sons.
- Kulmala, M., Vehkamäki, H., Petäjä, T., Dal Maso, M., Lauri, A., Kerminen, V.M., Birmili, W., & McMurry, P.H. (2004). Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: a review of observations. *Journal of Aerosol Science*, **35**, 143-176.
- Lamaud, E. (1994). *Mesure et paramétrisation des flux verticaux de l'aérosol atmosphérique*.
- Lamaud, E., Brunet, Y., Labatut, A., Lopez, A., Fontan, J., & Druilhet, A. (1994). The Landes experiment: Biosphere-atmosphere exchanges of ozone and aerosol particles above a pine forest. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **99**, 16511-16521.
- Lamaud, E., Chapuis, A., Fontan, J., & Serie, E. (1994). Measurements and parameterization of aerosol dry deposition in a semi-arid area. *Atmospheric Environment*, **28**, 2461-2471.
- Langham, W. (1971). Plutonium distribution as a problem in environmental science. *IN*.
- Lemon, E. (1965). Micrometeorology and the physiology of plant in their natural environment. *Plant Physiology*, 203-227.
- Lenschow, D.H., Pearson, R., & Stankov, B.B. (1981). Estimating the ozone budget in the boundary layer by use of aircraft measurements of ozone eddy flux and mean concentration. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, **86**, 7291-7297.
- Li, A., & Ahmadi, G. (1993). Aerosol Particle Deposition with Electrostatic Attraction in a Turbulent Channel Flow. *Journal of Colloid and Interface Science*, **158**, 476-482.
- Lighthart, B., & Shaffer, B.T. (1994). Bacterial flux from chaparral into the atmosphere in mid-summer at a high desert location. *Atmospheric Environment*, **28**, 1267-1274.
- Lindberg, S.E., & Lovett, G.M. (1982). Application of surrogate surface and leaf extraction methods to estimation of dry deposition to plant canopies. In (Edited Editor), *Book Application of*

surrogate surface and leaf extraction methods to estimation of dry deposition to plant canopies. Oak Ridge National Lab., TN (USA), City.

- Lindemann, J., Constantinidou, H.A., Barchet, W.R., & Upper, C.D. (1982). Plants as sources of airborne bacteria, including ice nucleation-active bacteria. *Applied and Environmental Microbiology*, **44**, 1059-1063.
- Linsley, G. (1978). Resuspension of the transuranium elements—a review of existing data. In (Edited Editor), *Book Resuspension of the transuranium elements—a review of existing data.* National Radiological Protection Board, City.
- Little, P., & Wiffen, R.D. (1977). Emission and deposition of petrol engine exhaust Pb—I. Deposition of exhaust pb to plant and soil surfaces. *Atmospheric Environment (1967)*, **11**, 437-447.
- Lorenz, R., & Murphy, C.E. (1989). Dry deposition of particles to a pine plantation. *Boundary-Layer Meteorol*, **46**, 355-366.
- Maro, D. (2012). Transfert des radionucléides sous forme de gaz et d'aérosols dans les environnements complexes : études expérimentales de dispersion atmosphérique et d'échanges aux interfaces. **Mémoire de HDR, 168 pp.**
- Maro, D., Connan, O., Flori, J.P., Hébert, D., Mestayer, P., Olive, F., Rosant, J.M., Rozet, M., Sini, J.F., & Solier, L. (2014). Aerosol dry deposition in the urban environment: Assessment of deposition velocity on building facades. *Journal of Aerosol Science*, **69**, 113-131.
- Maro, D., Connan, O., Hébert, D., Rozet, M., Solier, L., & Germain, P. (2006). Détermination des vitesses de dépôt sec des aérosols de granulométrie 0,2 µm et 7,8 µm en milieu prairial autour de l'usine Areva NC de la Hague. *DEI/SECRE/2006-42. Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire.*
- Maro, D., Connan, O., Hébert, D., Rozet, M., Talbaut, M., Coppalle, A., Sini, J.F., Rosant, J.M., Mestayer, P., Sacré, C., Flori, J.P., Giraud, D., Olive, F., Ruot, B., & Roupsard, P. (2010). Quantification of the dry deposition of aerosols in an urban environment: towards a new methodology. *International Aerosol Conference 2010, Helsinki.*
- Maro, D., Germain, P., Hébert, D., Boulaud, D., Coppalle, A., & Tenailleau, L. (2004). Validation of dry deposition models for submicronic and micronic aerosols.
- Martens, R. (1976). Degradation of [8, 9,-14C] endosulfan by soil microorganisms. *Applied and Environmental Microbiology*, **31**, 853-858.
- Martcorena, B., & Bergametti, G. (1995). Modeling the atmospheric dust cycle: 1. Design of a soil-derived dust emission scheme. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **100**, 16415-16430.
- Martcorena, B., Bergametti, G., Aumont, B., Callot, Y., N'Doumé, C., & Legrand, M. (1997). Modeling the atmospheric dust cycle: 2. Simulation of Saharan dust sources. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **102**, 4387-4404.
- McMahon, T., & Denison, P. (1979). Empirical atmospheric deposition parameters—a survey. *Atmospheric Environment (1967)*, **13**, 571-585.
- McMurry, P.H. (2000). A review of atmospheric aerosol measurements. *Atmospheric Environment*, **34**, 1959-1999.
- Meredith, L.K., Commane, R., Munger, J.W., Dunn, A., Tang, J., Wofsy, S.C., & Prinn, R.G. (2014). Ecosystem fluxes of hydrogen: a comparison of flux-gradient methods. *Atmos. Meas. Tech.*, **7**, 2787-2805.
- Mestayer, P. (2007). L'atmosphère habitée : dynamique, thermodynamique et dispersion des polluants. *Cours de l'Ecole Centrale de Nantes*, 225P.
- Milham, R.C., Schubert, J.F., Watts, J.R., Boni, A.L., & Corey, J.C. (1975). *Measured plutonium resuspension and resulting dose from agricultural operations on an old field at the Savannah River Plant in the southeastern United States.* ; Du Pont de Nemours (E.I.) and Co., Aiken, S.C. (USA). Savannah River Lab.

- Mohan, S.M. (2016). An overview of particulate dry deposition: measuring methods, deposition velocity and controlling factors. *International Journal of Environmental Science and Technology*, **13**, 387-402.
- Mohr, A.J. (2007). Fate and transport of microorganisms in air. In *Manual of Environmental Microbiology, Third Edition Manual of Environmental Microbiology, Third Edition* (pp. 961-971). American Society of Microbiology, City.
- Moisio, M. (1999). *Real time size distribution measurement of combustion aerosols*. Tampere University of Technology.
- Monin, A., & Obukhov, A. (1954a). Dimensionless characteristics of turbulence in the surface layer. *Akad. Nank. SSSR. Geofiz Inst*, **2002**, 12-26.
- Monin, A.S., & Obukhov, A.M. (1954b). Basic laws of turbulent mixing in the atmosphere near the ground. *Trudy Geofizicheskogo Instituta, Akademiya Nauk SSSR*, **24**, 163-187.
- Morris, C.E., Sands, D.C., Bardin, M., Jaenicke, R., Vogel, B., Leyronas, C., Ariya, P.A., & Psenner, R. (2011). Microbiology and atmospheric processes: Research challenges concerning the impact of airborne micro-organisms on the atmosphere and climate. *Biogeosciences*, **8**, 17-25.
- Muilenberg, M. (1989). Aeroallergen assessment by microscopy and culture. *Immunology and allergy clinics of North America*, **9**, 245-268.
- Mussard, J. (2006). *Les parabens, des conservateurs omniprésents: un risque pour la santé?*
- Myers, D., Silver, W., Coles, D., Lamson, K., McIntyre, D., & Mendoza, B. (1975). Evaluation of the use of sludge containing plutonium as a soil conditioner for food crops. *Transuranium Nuclides*, 311.
- Myrup, L., & Ranzieri, A.J. (1976). A consistent scheme for estimating diffusivities to be used in air quality models. In (Edited Editor), *Book A consistent scheme for estimating diffusivities to be used in air quality models*, City.
- Nair, S.K., Miller, C.W., Thiessen, K.M., Garger, E.K., & Hoffman, F.O. (1997). Modeling the Resuspension of Radionuclides in Ukrainian Regions Impacted by Chernobyl Fallout. *Health Physics*, **72**, 77-85.
- Nemitz, E. (2015). Surface/atmosphere exchange of atmospheric acids and aerosols, including the effect and model treatment of chemical interactions. In *Review and Integration of Biosphere-Atmosphere Modelling of Reactive Trace Gases and Volatile Aerosols Review and Integration of Biosphere-Atmosphere Modelling of Reactive Trace Gases and Volatile Aerosols* (pp. 115-149). Springer, City.
- Nemitz, E., Fowler, D., Gallagher, M.W., Dorsey, J.R., Theobald, M.R., & Bower, K.N. (2001). Subproject BIATEX-2 Measurement and Interpretation of Land-Atmosphere Aerosol Fluxes: Current Issues and New Approaches. In *Transport and Chemical Transformation in the Troposphere: Proceedings of EUROTRAC Symposium 2000 Garmisch-Partenkirchen, Germany 27-31 March 2000 Eurotrac-2 International Scientific Secretariat GSF-National Research Center for Environment and Health Munich, Germany*(Edited Midgley, P.M., Reuther, M. & Williams, M.), *Transport and Chemical Transformation in the Troposphere: Proceedings of EUROTRAC Symposium 2000 Garmisch-Partenkirchen, Germany 27-31 March 2000 Eurotrac-2 International Scientific Secretariat GSF-National Research Center for Environment and Health Munich, Germany* (pp. 45-53). Springer Berlin Heidelberg, City.
- Nemitz, E., Gallagher, M.W., Duyzer, J.H., & Fowler, D. (2002). Micrometeorological measurements of particle deposition velocities to moorland vegetation. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, **128**, 2281-2300.
- Nemitz, E., Sutton, M.A., Wyers, G.P., Otjes, R.P., Mennen, M.G., van Putten, E.M., & Gallagher, M.W. (2004). Gas-particle interactions above a Dutch heathland: II. Concentrations and surface exchange fluxes of atmospheric particles. *Atmos. Chem. Phys.*, **4**, 1007-1024.

- Nerisson, P. (2009). *Modélisation du transfert des aérosols dans un local ventilé*. Institut National Polytechnique de Toulouse.
- Neumann, H.H., & Den Hartog, G. (1985). Eddy correlation measurements of atmospheric fluxes of ozone, sulphur, and particulates during the Champaign Intercomparison Study. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **90**, 2097-2110.
- Nicholson, K.W. (1988a). The dry deposition of small particles: A review of experimental measurements. *Atmospheric Environment (1967)*, **22**, 2653-2666.
- Nicholson, K.W. (1988b). A review of particle resuspension. *Atmospheric Environment (1967)*, **22**, 2639-2651.
- Nicholson, K.W., & Davies, T.D. (1987). Field measurements of the dry deposition of particulate sulphate. *Atmospheric Environment (1967)*, **21**, 1561-1571.
- Niemelä, S. (2002). *Uncertainty of quantitative determinations derived by cultivation of microorganisms*. Centre for Metrology and Accreditation Helsinki.
- Nieminen, T., Manninen, H.E., Sihto, S.L., Yli-Juuti, T., Mauldin, I.R.L., Petäjä, T., Riipinen, I., Kerminen, V.M., & Kulmala, M. (2009). Connection of Sulfuric Acid to Atmospheric Nucleation in Boreal Forest. *Environmental Science & Technology*, **43**, 4715-4721.
- Novitsky, J.A., & Morita, R.Y. (1977). Survival of a psychrophilic marine vibrio under long-term nutrient starvation. *Applied and Environmental Microbiology*, **33**, 635-641.
- Obukhov, A. (1946). Turbulence in thermally inhomogeneous atmosphere. *Trudy Inst. Teor. Geofiz. Akad. Nauk SSSR*, **1**, 95-115.
- Ogorodnikov, B., Budyka, A., & Skitovitch, V. (1994). 17. P. 12 Radioactive aerosols near chernobyl in 1986-1992. *Journal of Aerosol Science*, **25**, 269-270.
- Ould-Dada, Z., Copplestone, D., Toal, M., & Shaw, G. (2002). Effect of forest edges on deposition of radioactive aerosols. *Atmospheric Environment*, **36**, 5595-5606.
- Pal Arya, S. (2001). *Introduction to micrometeorology*. Academic Press.
- Palmgren, U., Ström, G., Blomquist, G., & Malmberg, P. (1986). Collection of airborne microorganisms on Nuclepore filters, estimation and analysis—CAMNEA method. *Journal of Applied Bacteriology*, **61**, 401-406.
- Panofsky, H.A., & Dutton, J. (1984). Atmospheric Turbulence: Models and Methods for Engineering Applications, 397 pp. In (Edited Editor), *Book Atmospheric Turbulence: Models and Methods for Engineering Applications*, 397 pp. John Wiley, New York, City.
- Panovsky, H.A. (1984). *Atmospheric turbulence: Models and methods for engineering applications*. Wiley.
- Papastefanou, C. (2008). Chapter 3 Radioactive nuclides as tracers of environmental processes. In *Radioactivity in the Environment* (Edited Constantin, P.), *Radioactivity in the Environment* (Vol. Volume 12, pp. 59-70). Elsevier, City.
- Paulson, C.A. (1970). The Mathematical Representation of Wind Speed and Temperature Profiles in the Unstable Atmospheric Surface Layer. *Journal of Applied Meteorology*, **9**, 857-861.
- Pellerin, G., Maro, D., Damay, P., Gehin, E., Connan, O., Laguionie, P., Hébert, D., Solier, L., Boulaud, D., Lamaud, E., & Charrier, X. (2017). Aerosol particle dry deposition above natural surfaces: quantification according to the particles diameter. *Journal of Aerosol Science*.
- Petroff, Mailliat, A., Amielh, M., & Anselmet, F. (2008). Aerosol dry deposition on vegetative canopies. Part I: Review of present knowledge. *Atmospheric Environment*, **42**, 3625-3653.
- Petroff, A., & Zhang, L. (2010). Development and validation of a size-resolved particle dry deposition scheme for application in aerosol transport models. *Geoscientific Model Development*, **3**, 753-769.

- Petzold, A., & Kärcher, B. (2012). Aerosols in the Atmosphere. In *Atmospheric Physics: Background - Methods - Trends* (Edited Schumann, U.), *Atmospheric Physics: Background - Methods - Trends* (pp. 37-53). Springer Berlin Heidelberg, City.
- Pilegaard, K., Hummelshøj, P., Jensen, N.O., & Kristensen, L. (1997). Measurements of Fluxes of Particles, Ozone, Nitrogen Oxides and Carbon Dioxide to Coniferous and Deciduous Forests. In *Biosphere-Atmosphere Exchange of Pollutants and Trace Substances: Experimental and Theoretical Studies of Biogenic Emissions and of Pollutant Deposition* (Edited Slanina, S.), *Biosphere-Atmosphere Exchange of Pollutants and Trace Substances: Experimental and Theoretical Studies of Biogenic Emissions and of Pollutant Deposition* (pp. 391-396). Springer Berlin Heidelberg, City.
- Piskunov, V.N. (2009). Parameterization of aerosol dry deposition velocities onto smooth and rough surfaces. *Journal of Aerosol Science*, **40**, 664-679.
- Poinssot, C., & Geckeis, H. (2012). *Radionuclide Behaviour in the Natural Environment: Science, Implications and Lessons for the Nuclear Industry*. Elsevier.
- Porstendörfer, J. (1994). Properties and behaviour of radon and thoron and their decay products in the air. *Journal of Aerosol Science*, **25**, 219-263.
- Porstendörfer, J., Reineking, A., Butterweck, G., & El-Hussein, A. (1990). Radioactive aerosols in the lower atmosphere. In *Aerosols: Science, Industry, Health and Environment* (Edited Masuda, S. & Takashi, K.), *Aerosols: Science, Industry, Health and Environment* (Vol. II, pp. 1217-1221). Pergamon Press, City.
- Powers, D.A., & Burson, S. (1993). A simplified model of aerosol removal by containment sprays. In (Edited Editor), *Book A simplified model of aerosol removal by containment sprays*. Nuclear Regulatory Commission, Washington, DC (United States). Div. of Safety Issue Resolution; Sandia National Labs., Albuquerque, NM (United States), City.
- Pryor, S., Gallagher, M., Sievering, H., Larsen, S.E., Barthelmie, R.J., Birsan, F., Nemitz, E., Rinne, J., Kulmala, M., & Grönholm, T. (2008). A review of measurement and modelling results of particle atmosphere-surface exchange. *Tellus B*, **60**, 42-75.
- Pryor, S.C. (2006). Size-resolved particle deposition velocities of sub-100nm diameter particles over a forest. *Atmospheric Environment*, **40**, 6192-6200.
- Pryor, S.C., Larsen, S.E., Sørensen, L.L., & Barthelmie, R.J. (2008). Particle fluxes above forests: Observations, methodological considerations and method comparisons. *Environmental Pollution*, **152**, 667-678.
- Randerson, D. (1984). Atmospheric science and power production. In (Edited Editor), *Book Atmospheric science and power production*. USDOE Technical Information Center, Oak Ridge, TN, City.
- Rannik, Ü., Vesala, T., & Keskinen, R. (1997). On the damping of temperature fluctuations in a circular tube relevant to the eddy covariance measurement technique. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **102**, 12789-12794.
- Ratray, G., & Sievering, H. (2001). Dry deposition of ammonia, nitric acid, ammonium, and nitrate to alpine tundra at Niwot Ridge, Colorado. *Atmospheric Environment*, **35**, 1105-1109.
- Raupach, M.R. (1994). Simplified expressions for vegetation roughness length and zero-plane displacement as functions of canopy height and area index. *Boundary-Layer Meteorol*, **71**, 211-216.
- Renoux, A., & Boulaud, D. (1998). *Les aérosols: physique et métrologie*. Tec/Doc-Lavoisier.
- Reynolds, S.E., Brook, M., & Gourley, M.F. (1957). THUNDERSTORM CHARGE SEPARATION. *Journal of Meteorology*, **14**, 426-436.
- Robine, E. (1999). *Fixation et survie des aérosols bactériens sur les surfaces*.
- Roed, J. (1987). Dry deposition in rural and in urban areas in Denmark. *Radiation Protection Dosimetry*, **21**, 33-36.

- Rose, C. (2014). *Nucléation et formation de nouvelles particules à haute altitude*. Université Blaise Pascal-Clermont-Ferrand II.
- Rosner, G., & Winkler, R. (2001). Long-term variation (1986-1998) of post-Chernobyl ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs, ²³⁸Pu and ^{239,240}Pu concentrations in air, depositions to ground, resuspension factors and resuspension rates in south Germany. *Science of The Total Environment*, **273**, 11-25.
- Rozsak, D., & Colwell, R. (1987). Survival strategies of bacteria in the natural environment. *Microbiological reviews*, **51**, 365.
- Ruijrok, W., Davidson, C.I., & Nicholson, W. (1995). Dry deposition of particles. *Tellus B*, **47**, 587-601.
- Schery, S.D., Wasiolek, P.T., Nemetz, B.M., Yarger, F.D., & Whittlestone, S. (1998). Relaxed Eddy Accumulator for Flux Measurement of Nanometer-Size Particles. *Aerosol Science and Technology*, **28**, 159-172.
- Schery, S.D., & Whittlestone, S. (1995). Evidence of high deposition of ultrafine particles at Mauna Loa Observatory. *Atmospheric Environment*, **29**, 3319-3324.
- Sehmel, G. (1980a). Particle resuspension: a review. *Environment International*, **4**, 107-127.
- Sehmel, G., & Hodgson, W. (1978). Model for predicting dry deposition of particles and gases to environmental surfaces. In (Edited Editor), *Book Model for predicting dry deposition of particles and gases to environmental surfaces*. Battelle Pacific Northwest Labs., Richland, WA (USA), City.
- Sehmel, G.A. (1973). Particle resuspension from an asphalt road caused by car and truck traffic. *Atmospheric Environment (1967)*, **7**, 291-309.
- Sehmel, G.A. (1980b). Particle and gas dry deposition: A review. *Atmospheric Environment (1967)*, **14**, 983-1011.
- Seinfeld, & Pandis. (2006). *Atmospheric Chemistry and Physics*.
- Seinfeld, J.H., & Pandis, S.N. (1998). From air pollution to climate change. *Atmospheric Chemistry and Physics*.
- Sellegri, K., Yoon, Y.J., Jennings, S.G., O'Dowd, C.D., Pirjola, L., Cautenet, S., Chen, H., & Hoffmann, T. (2005). Quantification of Coastal New Ultra-Fine Particles Formation from In situ and Chamber Measurements during the BIOFLUX Campaign. *Environmental Chemistry*, **2**, 260-270.
- Shaw, R.H., & Pereira, A.R. (1982). Aerodynamic roughness of a plant canopy: A numerical experiment. *Agricultural Meteorology*, **26**, 51-65.
- Sievering. (1986). Gradient measurements of sulfur and soil mass dry deposition rates under clean air and highwind-speed conditions. *Atmospheric Environment (1967)*, **20**, 341-345.
- Sievering, H. (1982). Profile measurements of particle dry deposition velocity at an air-land interface. *Atmospheric Environment (1967)*, **16**, 301-306.
- Sievering, H. (1983). Eddy flux and profile measurements of small particle dry deposition at the boulder atmospheric observatory. In: Pruppacher, H., Semonin, R., Slinn, W.G.N. (Eds.), *Precipitation Scavenging, Dry Deposition and Resuspension*. Elsevier, New York, pp. 1361-1416.
- Sievering, H. (1987). Small-particle dry deposition under high wind speed conditions: Eddy flux measurements at the boulder atmospheric observatory. *Atmospheric Environment (1967)*, **21**, 2179-2185.
- Sievering, H. (1989). The dry deposition of small particles: A review of experimental measurement** Nicholson KW (1988) *Atmospheric Environment* **22**, 2653-2666. *Atmospheric Environment (1967)*, **23**, 2863-2864.
- Sievering, H., & Pueschel, R. (1982). Impact of particle characterization in confounding reported particle deposition velocities. *Atmospheric Environment (1967)*, **16**, 359-361.

- 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**, 513-543.
- Slinn, W.G.N. (1982). Predictions for particle deposition to vegetative canopies. *Atmospheric Environment (1967)*, **16**, 1785-1794.
- Soderholm, S.C. (1979). Analysis of diffusion battery data. *Journal of Aerosol Science*, **10**, 163-175.
- Sportisse, B. (2007). A review of parameterizations for modelling dry deposition and scavenging of radionuclides. *Atmospheric Environment*, **41**, 2683-2698.
- Stanhill, G. (1969). A Simple Instrument for the Field Measurement of Turbulent Diffusion Flux. *Journal of Applied Meteorology*, **8**, 509-513.
- Stewart, K. (1964). The resuspension of particulate material from surfaces. In *Surface contamination; proceedings of a symposium held at Gatlinburg, Tennessee* (Edited Editor), *Book The resuspension of particulate material from surfaces* (pp. 63-74), City.
- Sutton, M.A., Milford, C., Nemitz, E., Theobald, M.R., Hill, P.W., Fowler, D., Schjoerring, J.K., Mattsson, M.E., Nielsen, K.H., Husted, S., Erisman, J.W., Otjes, R., Hensen, A., Mosquera, J., Cellier, P., Loubet, B., David, M., Genermont, S., Neftel, A., Blatter, A., Herrmann, B., Jones, S.K., Horvath, L., Führer, E.C., Mantzanas, K., Koukoura, Z., Gallagher, M., Williams, P., Flynn, M., & Riedo, M. (2001). Biosphere-atmosphere interactions of ammonia with grasslands: Experimental strategy and results from a new European initiative. *Plant and Soil*, **228**, 131-145.
- Takahashi, T. (1973). Measurement of electric charge of cloud droplets, drizzle, and raindrops. *Reviews of Geophysics*, **11**, 903-924.
- Tang, I.N., & Munkelwitz, H.R. (1993). Composition and temperature dependence of the deliquescence properties of hygroscopic aerosols. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, **27**, 467-473.
- Tasdemir, Y., Odabasi, M., Vardar, N., Sofuoglu, A., Murphy, T.J., & Holsen, T.M. (2004). Dry deposition fluxes and velocities of polychlorinated biphenyls (PCBs) associated with particles. *Atmospheric Environment*, **38**, 2447-2456.
- Tringe, S.G., Zhang, T., Liu, X., Yu, Y., Lee, W.H., Yap, J., Yao, F., Suan, S.T., Ing, S.K., & Haynes, M. (2008). The airborne metagenome in an indoor urban environment. *PloS one*, **3**, e1862.
- Vandenberg, J.J., & Knoerr, K.R. (1985). Comparison of surrogate surface techniques for estimation of sulfate dry deposition. *Atmospheric Environment (1967)*, **19**, 627-635.
- Venegas, B., González-Damián, J., Celis, H., & Ortega-Blake, I. (2003). Amphotericin B Channels in the Bacterial Membrane: Role of Sterol and Temperature. *Biophysical Journal*, **85**, 2323-2332.
- Vickers, D., & Mahrt, L. (1997). Quality Control and Flux Sampling Problems for Tower and Aircraft Data. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, **14**, 512-526.
- Vong, R.J., Vickers, D., & Covert, D.S. (2004). Eddy correlation measurements of aerosol deposition to grass. *Tellus B*, **56**, 105-117.
- Vonnegut, B. (1953). *Possible mechanism for the formation of thunderstorm electricity*. Little Boston, MA.
- Wang, Z., Reponen, T., A. Grinshpun, S., L. Górny, R., & Willeke, K. (2001). Effect of sampling time and air humidity on the bioefficiency of filter samplers for bioaerosol collection. *Journal of Aerosol Science*, **32**, 661-674.
- Waraghai, A., & Gravenhorst, G. (1989). Dry Deposition of Atmospheric Particles to an Old Spruce Stand. In *Mechanisms and Effects of Pollutant-transfer into Forests Mechanisms and Effects of Pollutant-transfer into Forests* (pp. 77-86). Springer, City.
- Webb, E.K., Pearman, G.I., & Leuning, R. (1980). Correction of flux measurements for density effects due to heat and water vapour transfer. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, **106**, 85-100.

- Wedding, J.B., Carlson, R.W., Stukel, J.J., & Bazzaz, F.A. (1977). Aerosol deposition on plant leaves. *Water, Air, and Soil Pollution*, **7**, 545-550.
- Wesely, M.L., Cook, D.R., Hart, R.L., Hicks, B.B., Durham, J.L., Speer, R.E., Stedman, D.H., & Tropp, R.J. (1982). Eddy-correlation measurements of the dry deposition of particulate sulfur and submicron particles. In (Edited Editor), *Book Eddy-correlation measurements of the dry deposition of particulate sulfur and submicron particles* (pp. Medium: X; Size: Pages: 8). ; Argonne National Lab., IL (USA); National Oceanic and Atmospheric Administration, Oak Ridge, TN (USA). Atmospheric Turbulence and Diffusion Lab.; Environmental Protection Agency, Research Triangle Park, NC (USA); Michigan Univ., Ann Arbor (USA). Dept. of Atmospheric and Oceanic Science; Texas Univ., Austin (USA). Dept. of Chemical Engineering, City.
- Wesely, M.L., Cook, D.R., Hart, R.L., Hicks, B.B., Durham, J.L., Speer, R.E., Stedman, O., & Tropp, R. (1983). Eddy correlation measurements of the dry deposition of particulate sulphur and submicron particles. In: Pruppacher, H., Semonin, R., Slinn, W.G.N. (Eds.), *Precipitation Scavenging, dry deposition and resuspension*. Elsevier, Amsterdam, pp. 943-952.
- Wesely, M.L., Cook, D.R., Hart, R.L., & Speer, R.E. (1985). Measurements and parameterization of particulate sulfur dry deposition over grass. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, **90**, 2131-2143.
- Wesely, M.L., Cook, D.R., Hart, R.L., & Speer, R.E. (1988). Field measurements of the dry deposition of particulate sulphate. *Atmospheric Environment (1967)*, **22**, 198-199.
- Wesely, M.L., & Hicks, B.B. (1977). Some Factors that Affect the Deposition Rates of Sulfur Dioxide and Similar Gases on Vegetation. *Journal of the Air Pollution Control Association*, **27**, 1110-1116.
- Wesely, M.L., & Hicks, B.B. (2000). A review of the current status of knowledge on dry deposition. *Atmospheric Environment*, **34**, 2261-2282.
- Wilson, C.T.R., & Jacksonian. (1929). Some thundercloud problems. *Journal of the Franklin Institute*, **208**, 1-12.
- Wilson, M., & Lindow, S. (1992). Relationship of total viable and culturable cells in epiphytic populations of *Pseudomonas syringae*. *Applied and Environmental Microbiology*, **58**, 3908-3913.
- Wiman, B.L.B., Agren, G.I., & Lannefors, H.O. (1985). Aerosol concentration profiles within a mature coniferous forest—Model versus field results. *Atmospheric Environment (1967)*, **19**, 363-367.
- Wyers, G.P., & Duyzer, J.H. (1997). Micrometeorological measurement of the dry deposition flux of sulphate and nitrate aerosols to coniferous forest. *Atmospheric Environment*, **31**, 333-343.
- Yi, S.-M., Totten, L.A., Thota, S., Yan, S., Offenber, J.H., Eisenreich, S.J., Graney, J., & Holsen, T.M. (2006). Atmospheric dry deposition of trace elements measured around the urban and industrially impacted NY-NJ harbor. *Atmospheric Environment*, **40**, 6626-6637.
- Zhang, L., Gong, S., Padro, J., & Barrie, L. (2001). A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module. *Atmospheric Environment*, **35**, 549-560.
- Zhang, L., & He, Z. (2014). Technical Note: An empirical algorithm estimating dry deposition velocity of fine, coarse and giant particles. *Atmos. Chem. Phys.*, **14**, 3729-3737.
- Zhang, L., & Vet, R. (2006). A review of current knowledge concerning size-dependent aerosol removal. *China Particuology*, **4**, 272-282.
- Zhao, B., & Wu, J. (2006). Modeling particle deposition from fully developed turbulent flow in ventilation duct. *Atmospheric Environment*, **40**, 457-466.
- Zheng, F. (2002). Thermophoresis of spherical and non-spherical particles: a review of theories and experiments. *Advances in Colloid and Interface Science*, **97**, 255-278.

Zufall, M.J., & Davidson, C.I. (1998). Dry Deposition of Particles from the Atmosphere. In *Air Pollution in the Ural Mountains: Environmental, Health and Policy Aspects*(Edited Linkov, I. & Wilson, R.), *Air Pollution in the Ural Mountains: Environmental, Health and Policy Aspects* (pp. 55-73). Springer Netherlands, City.

ANNEXES

ANNEXE 1 CORRECTION A EFFECTUER SUR LE NOMBRE D'UFC COMPTES SUR LES BOITES DE PETRI APRES UN PRELEVEMENT AVEC UN BIOIMPACTEUR ANDERSEN.

Positive hole conversion table: Positive hole counts (r) and corresponding corrected particle counts (P)

| r | P | r | P | r | P | r | P | r | P | r | P | r | P | r | P | r | P | r | P |
|----|----|----|----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|------|
| 1 | 1 | 41 | 43 | 81 | 91 | 121 | 144 | 161 | 206 | 201 | 279 | 241 | 369 | 281 | 485 | 321 | 649 | 361 | 931 |
| 2 | 2 | 42 | 44 | 82 | 92 | 122 | 146 | 162 | 208 | 202 | 281 | 242 | 372 | 282 | 488 | 322 | 654 | 362 | 942 |
| 3 | 3 | 43 | 45 | 83 | 93 | 123 | 147 | 163 | 209 | 203 | 283 | 243 | 374 | 283 | 492 | 323 | 659 | 363 | 952 |
| 4 | 4 | 44 | 47 | 84 | 94 | 124 | 148 | 164 | 211 | 204 | 285 | 244 | 377 | 284 | 495 | 324 | 664 | 364 | 963 |
| 5 | 5 | 45 | 48 | 85 | 96 | 125 | 150 | 165 | 213 | 205 | 287 | 245 | 379 | 285 | 499 | 325 | 670 | 365 | 974 |
| 6 | 6 | 46 | 49 | 86 | 97 | 126 | 151 | 166 | 214 | 206 | 289 | 246 | 382 | 286 | 502 | 326 | 675 | 366 | 986 |
| 7 | 7 | 47 | 50 | 87 | 98 | 127 | 153 | 167 | 216 | 207 | 292 | 247 | 384 | 287 | 506 | 327 | 680 | 367 | 998 |
| 8 | 8 | 48 | 51 | 88 | 99 | 128 | 154 | 168 | 218 | 208 | 294 | 248 | 387 | 288 | 508 | 328 | 686 | 368 | 1010 |
| 9 | 9 | 49 | 52 | 89 | 101 | 129 | 156 | 169 | 220 | 209 | 296 | 249 | 390 | 289 | 513 | 329 | 692 | 369 | 1023 |
| 10 | 10 | 50 | 53 | 90 | 102 | 130 | 157 | 170 | 221 | 210 | 298 | 250 | 392 | 290 | 516 | 330 | 697 | 370 | 1036 |
| 11 | 11 | 51 | 55 | 91 | 103 | 131 | 159 | 171 | 223 | 211 | 300 | 251 | 395 | 291 | 520 | 331 | 703 | 371 | 1050 |
| 12 | 12 | 52 | 56 | 92 | 105 | 132 | 160 | 172 | 225 | 212 | 302 | 252 | 398 | 292 | 524 | 332 | 709 | 372 | 1064 |
| 13 | 13 | 53 | 57 | 93 | 106 | 133 | 162 | 173 | 227 | 213 | 304 | 253 | 400 | 293 | 527 | 333 | 715 | 373 | 1078 |
| 14 | 14 | 54 | 58 | 94 | 107 | 134 | 163 | 174 | 228 | 214 | 306 | 254 | 403 | 294 | 531 | 334 | 721 | 374 | 1093 |
| 15 | 15 | 55 | 59 | 95 | 108 | 135 | 165 | 175 | 230 | 215 | 308 | 255 | 406 | 295 | 535 | 335 | 727 | 375 | 1109 |
| 16 | 16 | 56 | 60 | 96 | 110 | 136 | 166 | 176 | 232 | 216 | 311 | 256 | 409 | 296 | 539 | 336 | 733 | 376 | 1125 |
| 17 | 17 | 57 | 61 | 97 | 111 | 137 | 168 | 177 | 234 | 217 | 313 | 257 | 411 | 297 | 543 | 337 | 739 | 377 | 1142 |
| 18 | 18 | 58 | 63 | 98 | 112 | 138 | 169 | 178 | 236 | 218 | 315 | 258 | 414 | 298 | 547 | 338 | 746 | 378 | 1160 |
| 19 | 19 | 59 | 64 | 99 | 114 | 139 | 171 | 179 | 237 | 219 | 317 | 259 | 417 | 299 | 551 | 339 | 752 | 379 | 1179 |
| 20 | 21 | 60 | 65 | 100 | 115 | 140 | 172 | 180 | 239 | 220 | 319 | 260 | 420 | 300 | 555 | 340 | 759 | 380 | 1198 |
| 21 | 22 | 61 | 66 | 101 | 116 | 141 | 174 | 181 | 241 | 221 | 322 | 261 | 423 | 301 | 559 | 341 | 766 | 381 | 1219 |
| 22 | 23 | 62 | 67 | 102 | 118 | 142 | 175 | 182 | 243 | 222 | 324 | 262 | 426 | 302 | 563 | 342 | 772 | 382 | 1241 |
| 23 | 24 | 63 | 69 | 103 | 119 | 143 | 177 | 183 | 245 | 223 | 326 | 263 | 429 | 303 | 567 | 343 | 779 | 383 | 1263 |
| 24 | 25 | 64 | 70 | 104 | 120 | 144 | 179 | 184 | 246 | 224 | 328 | 264 | 432 | 304 | 571 | 344 | 786 | 384 | 1288 |
| 25 | 26 | 65 | 71 | 105 | 122 | 145 | 180 | 185 | 248 | 225 | 331 | 265 | 434 | 305 | 575 | 345 | 793 | 385 | 1314 |
| 26 | 27 | 66 | 72 | 106 | 123 | 146 | 182 | 186 | 250 | 226 | 333 | 266 | 437 | 306 | 579 | 346 | 801 | 386 | 1341 |
| 27 | 28 | 67 | 73 | 107 | 125 | 147 | 183 | 187 | 252 | 227 | 335 | 267 | 440 | 307 | 584 | 347 | 808 | 387 | 1371 |
| 28 | 29 | 68 | 75 | 108 | 126 | 148 | 185 | 188 | 254 | 228 | 338 | 268 | 443 | 308 | 588 | 348 | 816 | 388 | 1403 |
| 29 | 30 | 69 | 76 | 109 | 127 | 149 | 186 | 189 | 256 | 229 | 340 | 269 | 447 | 309 | 592 | 349 | 824 | 389 | 1438 |
| 30 | 31 | 70 | 77 | 110 | 129 | 150 | 188 | 190 | 258 | 230 | 342 | 270 | 450 | 310 | 597 | 350 | 832 | 390 | 1476 |
| 31 | 32 | 71 | 78 | 111 | 130 | 151 | 190 | 191 | 260 | 231 | 345 | 271 | 453 | 311 | 601 | 351 | 840 | 391 | 1518 |
| 32 | 33 | 72 | 79 | 112 | 131 | 152 | 191 | 192 | 262 | 232 | 347 | 272 | 456 | 312 | 606 | 352 | 848 | 392 | 1565 |
| 33 | 34 | 73 | 81 | 113 | 133 | 153 | 193 | 193 | 263 | 233 | 349 | 273 | 459 | 313 | 610 | 353 | 857 | 393 | 1619 |
| 34 | 36 | 74 | 82 | 114 | 134 | 154 | 194 | 194 | 265 | 234 | 352 | 274 | 462 | 314 | 615 | 354 | 865 | 394 | 1681 |
| 35 | 37 | 75 | 83 | 115 | 136 | 155 | 196 | 195 | 267 | 235 | 354 | 275 | 465 | 315 | 620 | 355 | 874 | 395 | 1754 |
| 36 | 38 | 76 | 84 | 116 | 137 | 156 | 198 | 196 | 269 | 236 | 357 | 276 | 468 | 316 | 624 | 356 | 883 | 396 | 1844 |
| 37 | 39 | 77 | 86 | 117 | 138 | 157 | 199 | 197 | 271 | 237 | 359 | 277 | 472 | 317 | 629 | 357 | 892 | 397 | 1961 |
| 38 | 40 | 78 | 87 | 118 | 140 | 158 | 201 | 198 | 273 | 238 | 362 | 278 | 475 | 318 | 634 | 358 | 902 | 398 | 2127 |
| 39 | 41 | 79 | 88 | 119 | 141 | 159 | 203 | 199 | 275 | 239 | 364 | 279 | 478 | 319 | 639 | 359 | 911 | 399 | 2427 |
| 40 | 42 | 80 | 89 | 120 | 143 | 160 | 204 | 200 | 277 | 240 | 367 | 280 | 482 | 320 | 644 | 360 | 921 | 400 | * |

Figure annexe.1: Correction à effectuer sur le nombre d'UFC obtenu après incubation avec un Andersen 1 étage (Andersen, 1958).

ANNEXE 2 CONCENTRATIONS (ELPI ET TWIN CNC)

Les graphes présentés dans cette annexe regroupent les évolutions des concentrations obtenus avec la méthode twin CNC et l'ELPI. Les mesures des quatre campagnes expérimentales sont listées chronologiquement. Les concentrations pour la méthode twin CNC ainsi que pour les trois premiers étages de l'ELPI ont été corrigées pour prendre en compte la perte par diffusion dans les tuyaux de prélèvement.

2.1 DEPECHEMOD 1

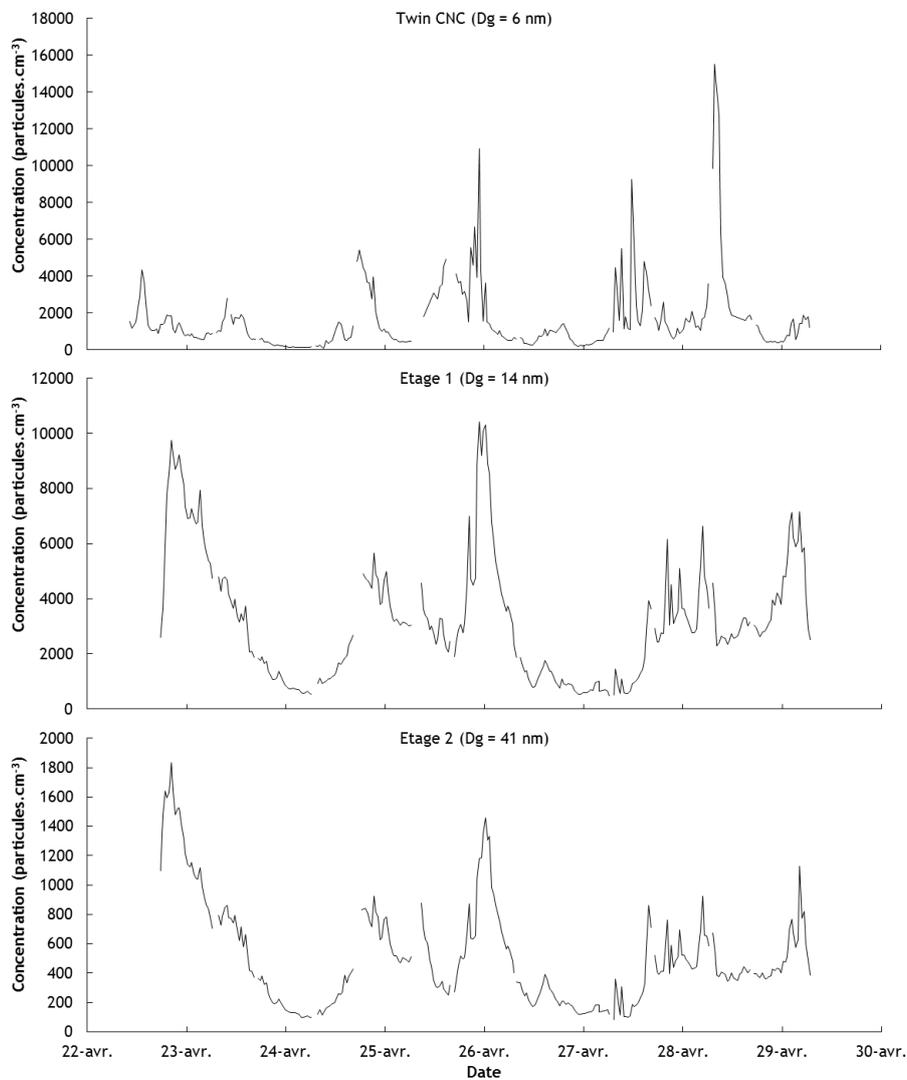


Figure annexe.2: Concentration DEPECHEMOD 1, twin CNC et étages 1 et 2.

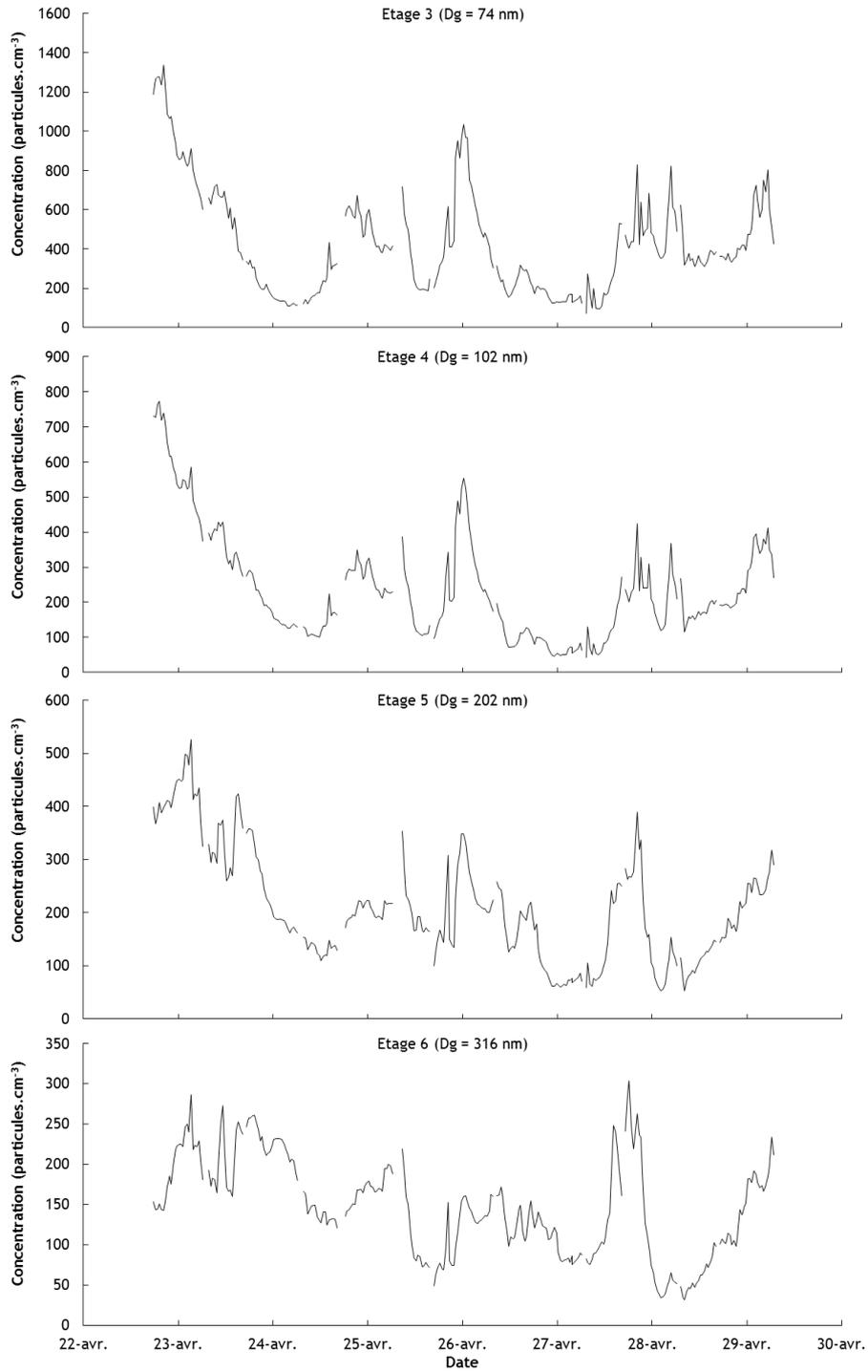


Figure annexe.3: Concentration DEPECHEMOD 1, étages 3 à 6.

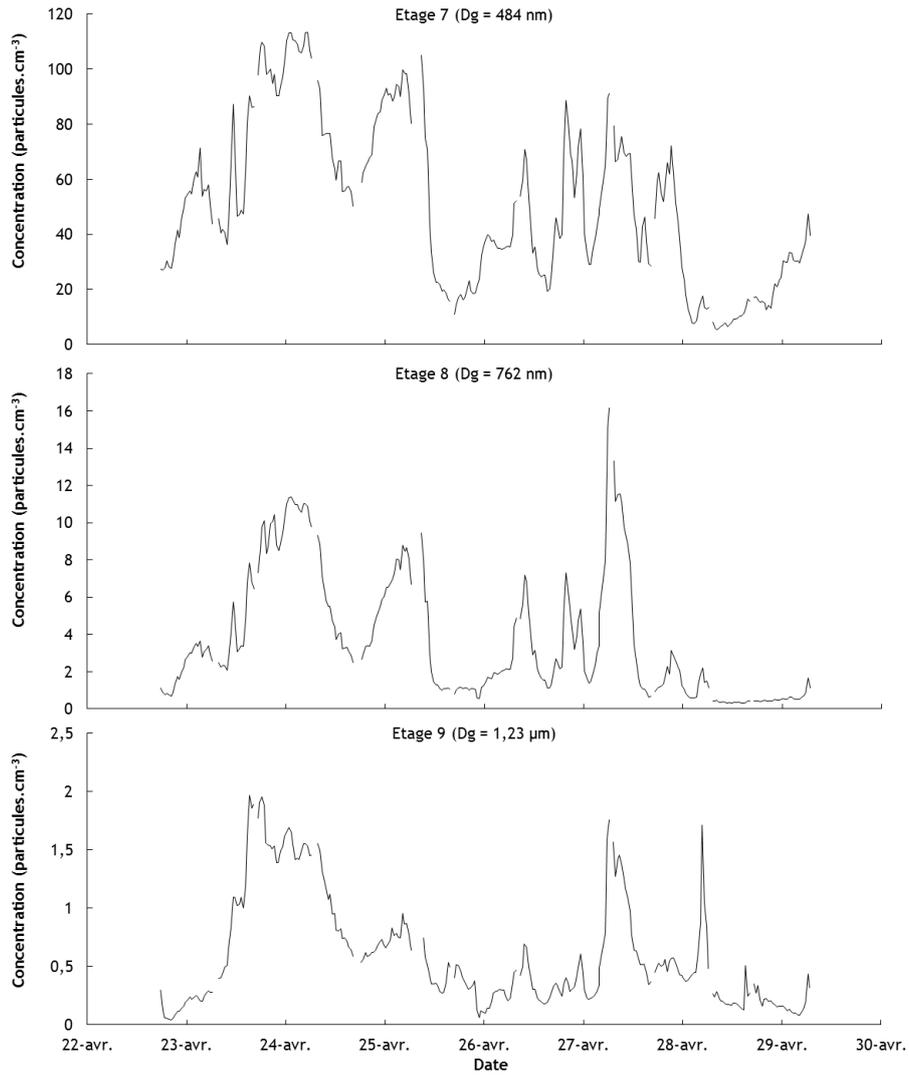


Figure annexe.4: Concentration DEPECHEMOD 1, étages 7 à 9.

2.2 DEPECHEMOD 2

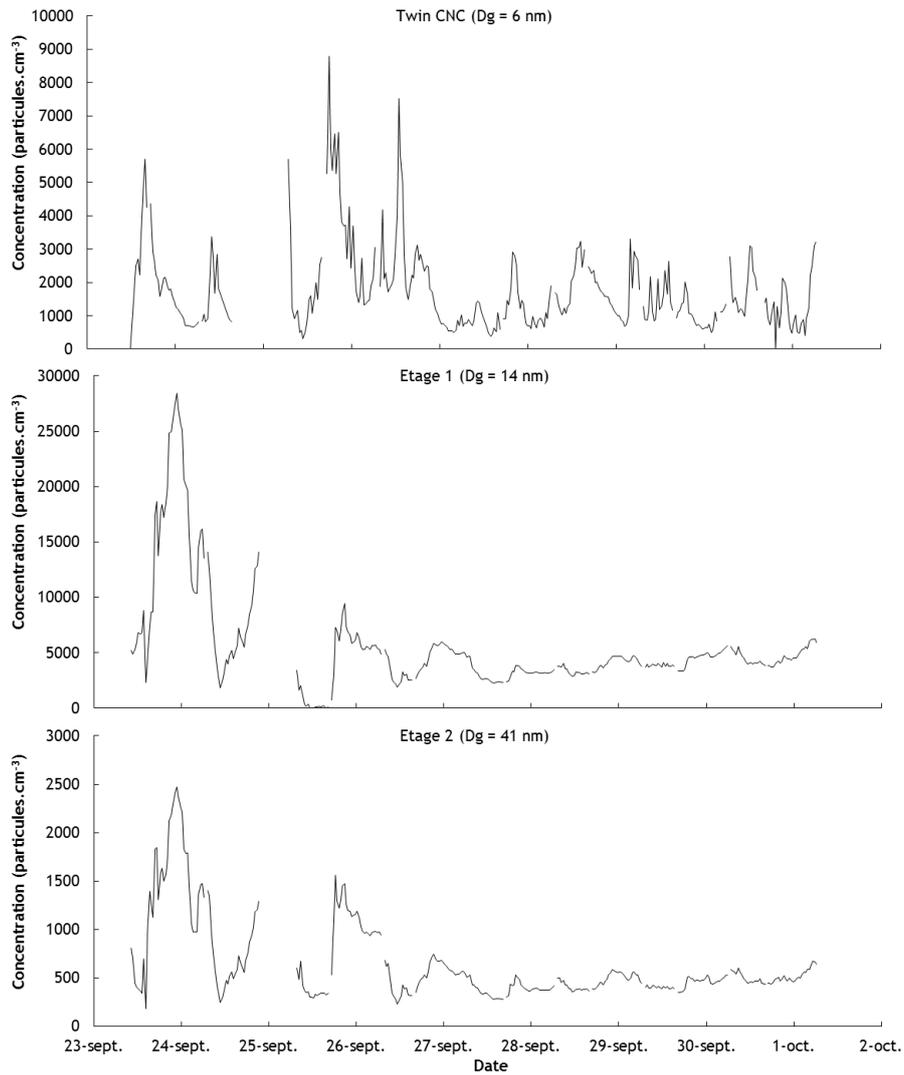


Figure annexe.5: Concentration DEPECHEMOD 2, twin CNC et étages 1 et 2.

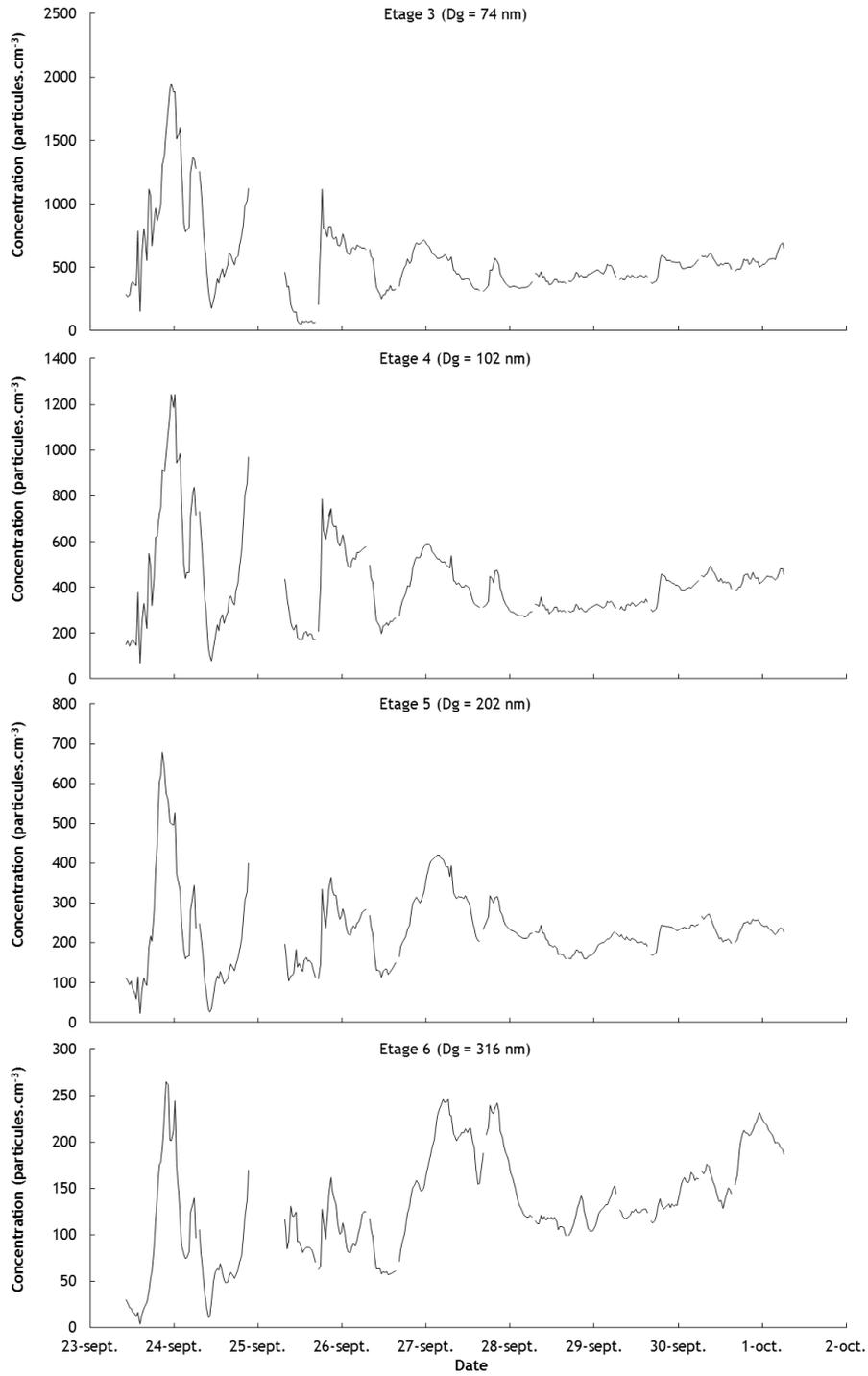


Figure annexe.6: Concentration DEPECHEMOD 2, twin CNC et étages 3 et 6.

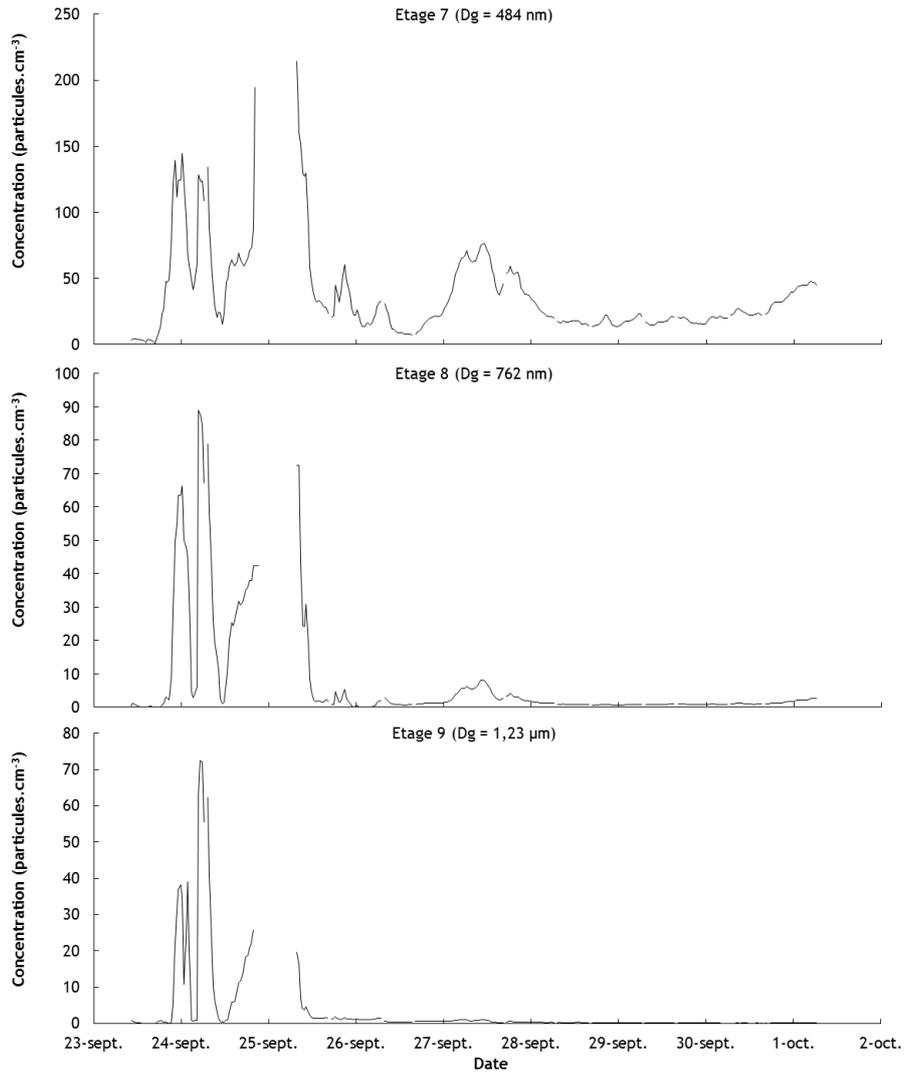


Figure annexe.7: Concentration DEPECHEMOD 2, twin CNC et étages 7 à 9.

2.3 DEPECHEMOD 3

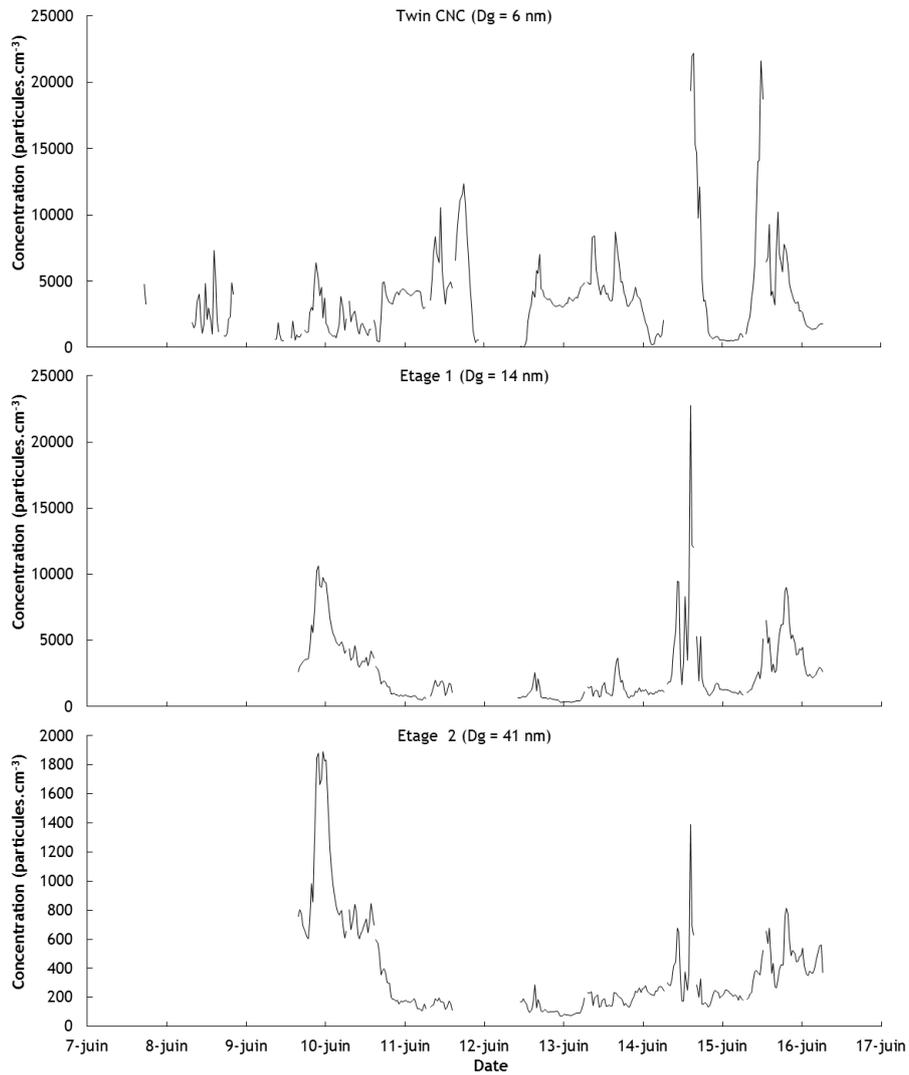


Figure annexe.8: Concentration DEPECHEMOD 3, twin CNC et étages 1 et 2.

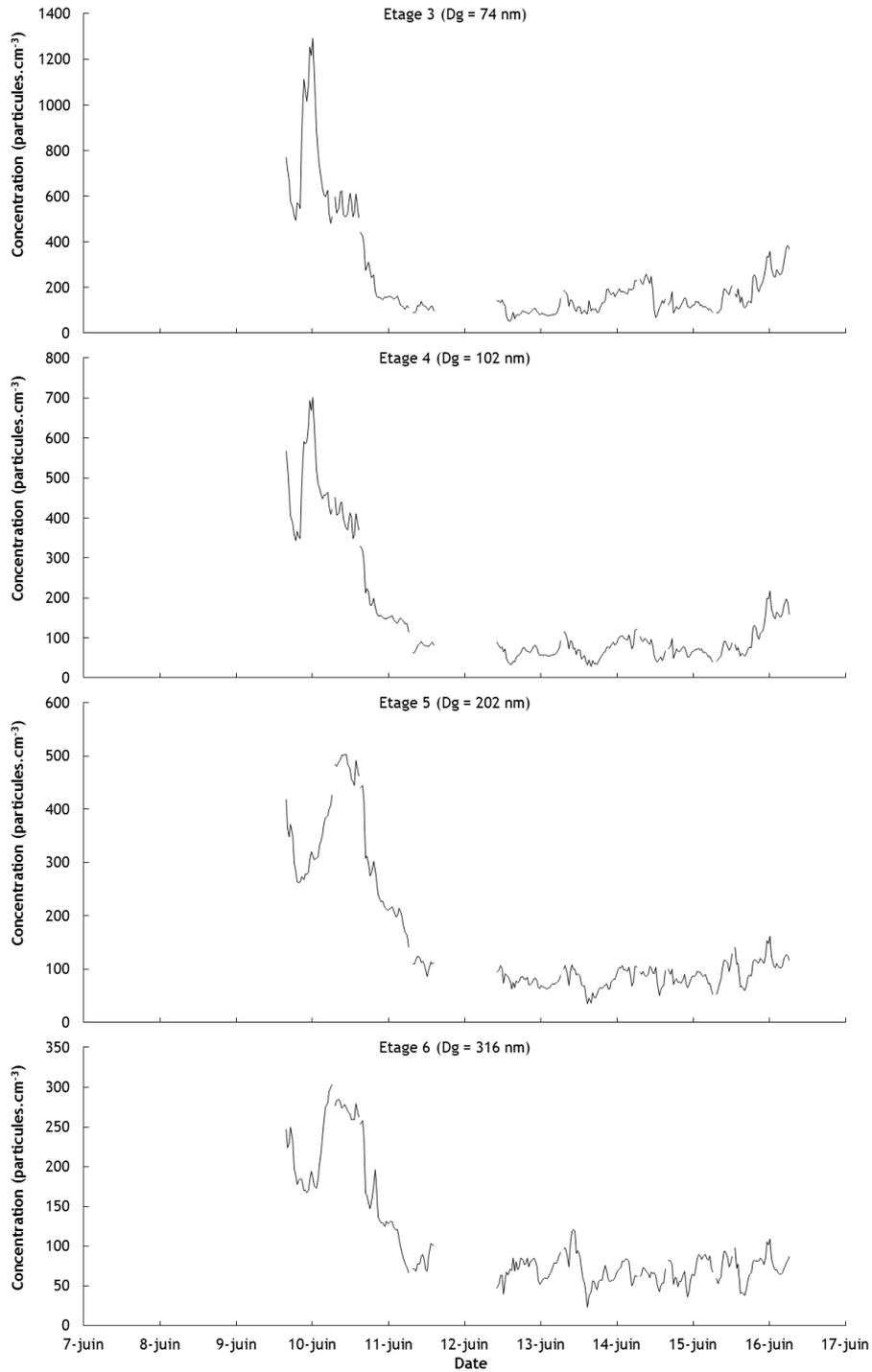


Figure annexe.9: Concentration DEPECHEMOD 3, étages 3 à 6.

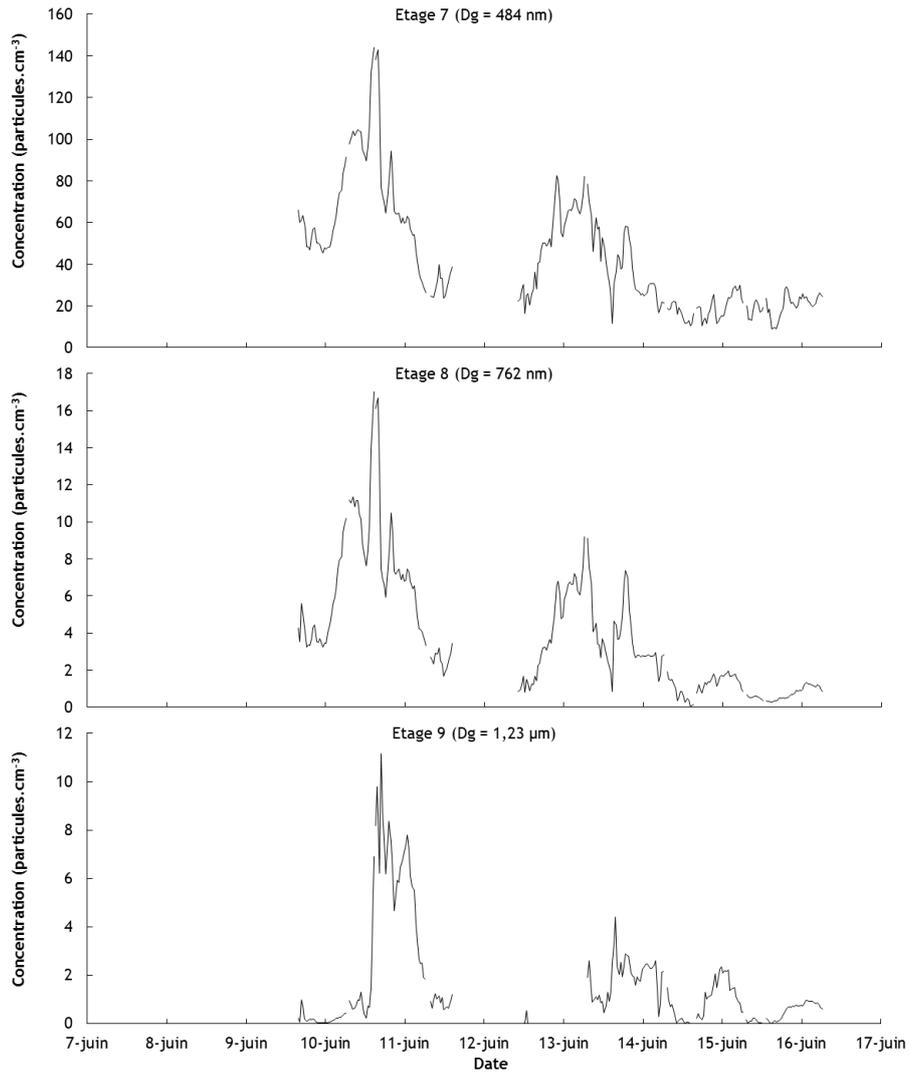


Figure annexe.10: Concentration DEPECHEMOD 3, étages 7 à 9.

2.4 DEPECHEMOD 4 :

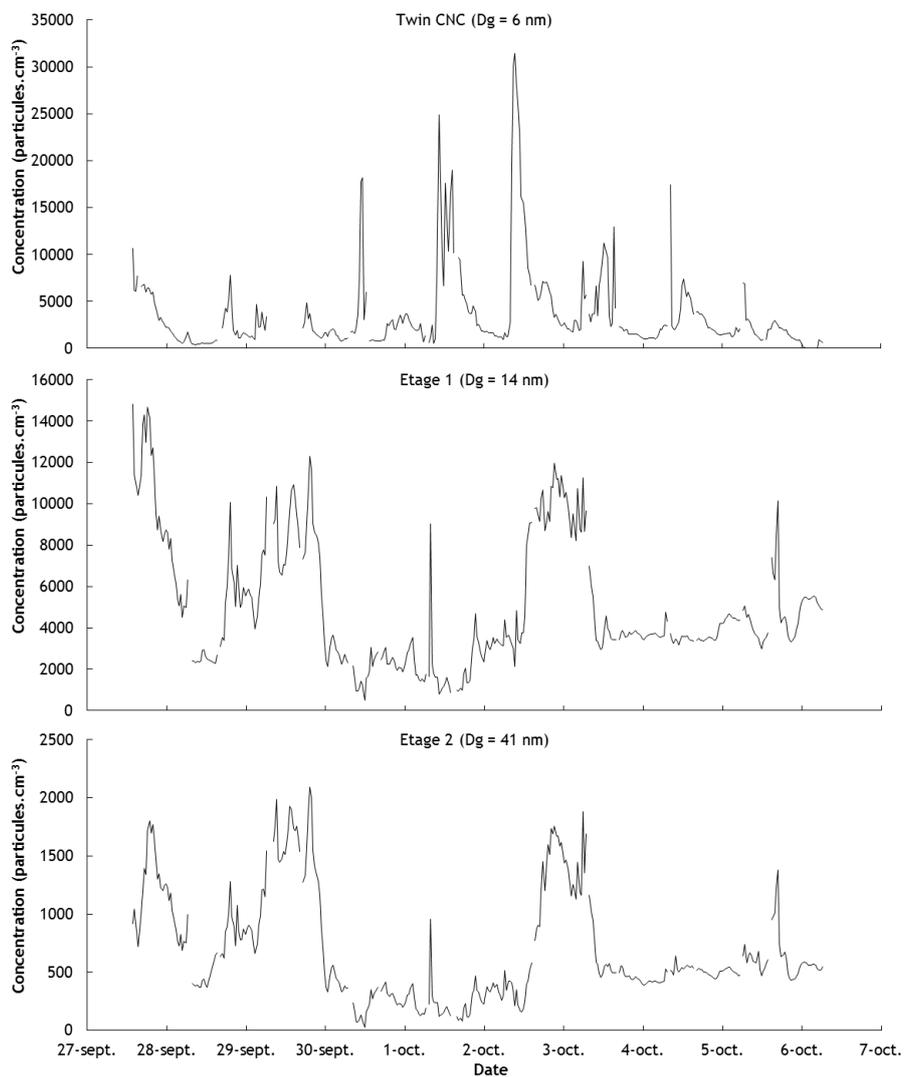


Figure annexe.11: Concentration DEPECHEMOD 4, twin CNC et étages 1 et 2.

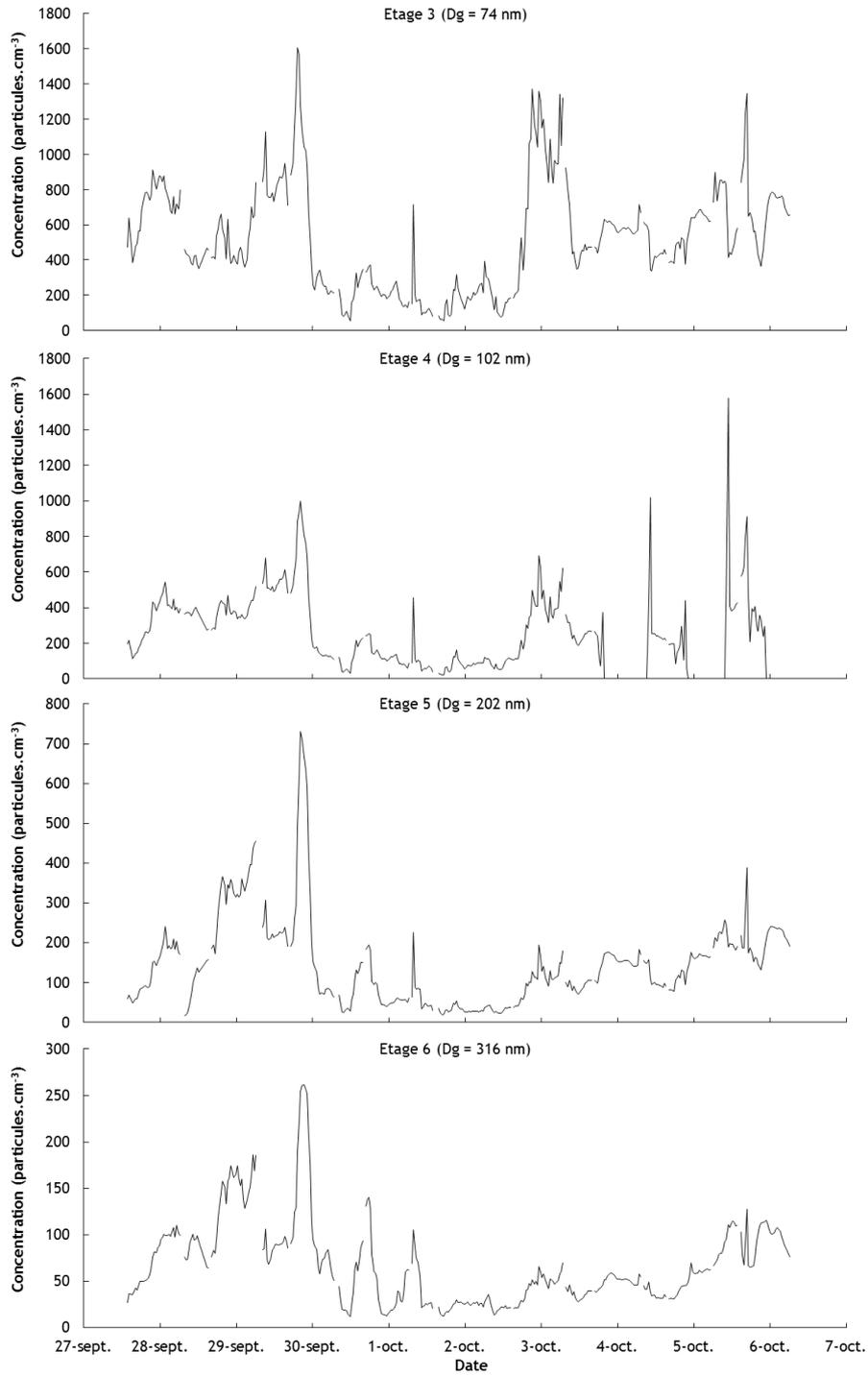


Figure annexe.12: Concentration DEPECHEMOD 4, étages 3 à 6.

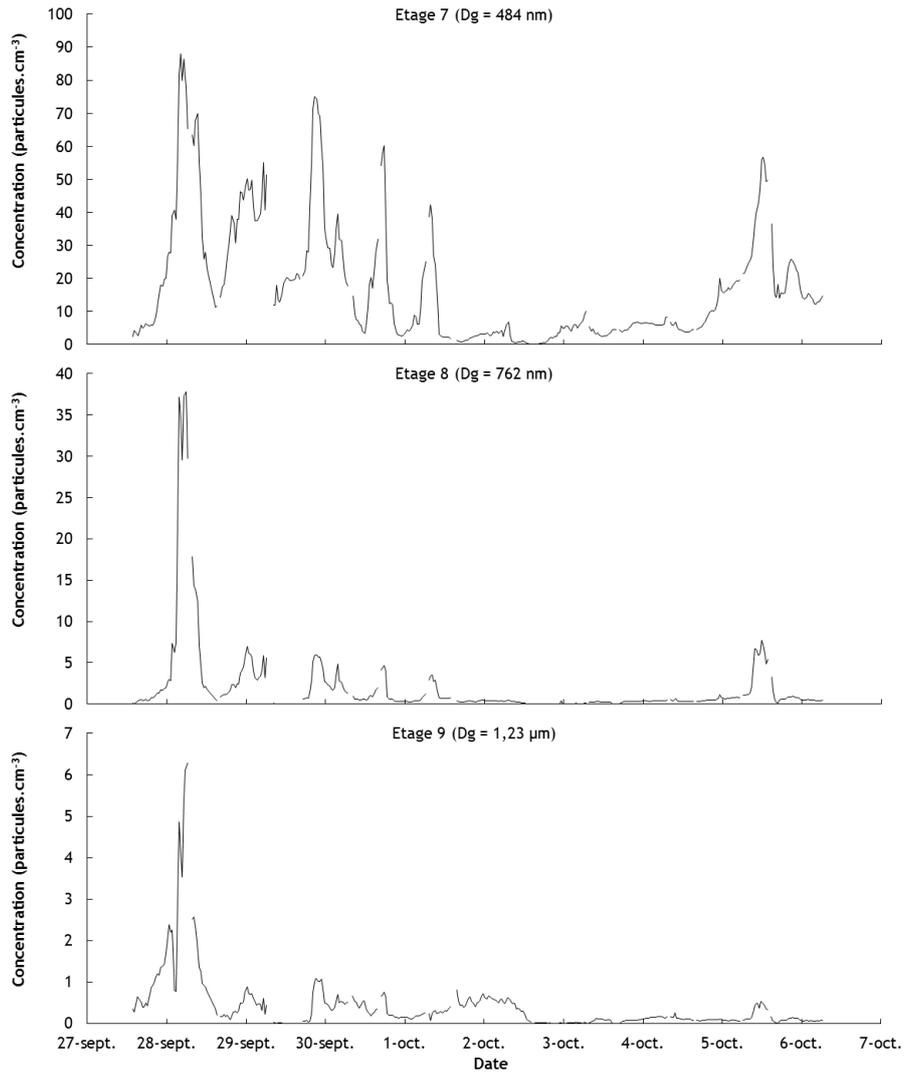


Figure annexe.13: Concentration DEPECHEMOD 4, étages 7 à 9.

ANNEXE 3 CONCENTRATIONS EN BIOAEROSOLS AUX DEUX NIVEAUX DE PRELEVEMENTS.

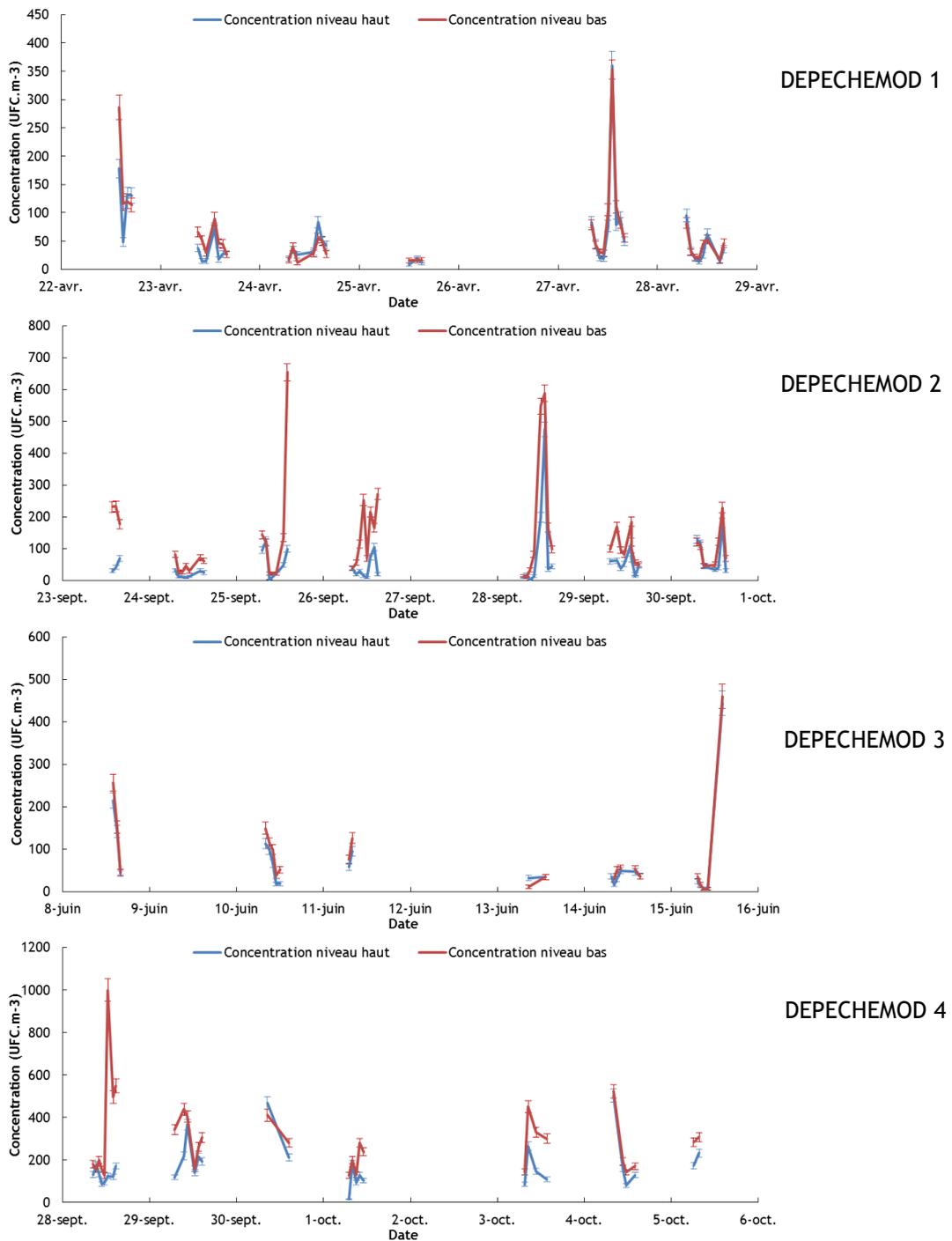


Figure annexe.14: Concentration en bactéries lors des différentes campagnes DEPECHEMOD.

ANNEXE 4 INFLUENCE DES PARAMETRES MICROMETEOROLOGIQUE SUR LES VITESSES DE DEPOT SEC

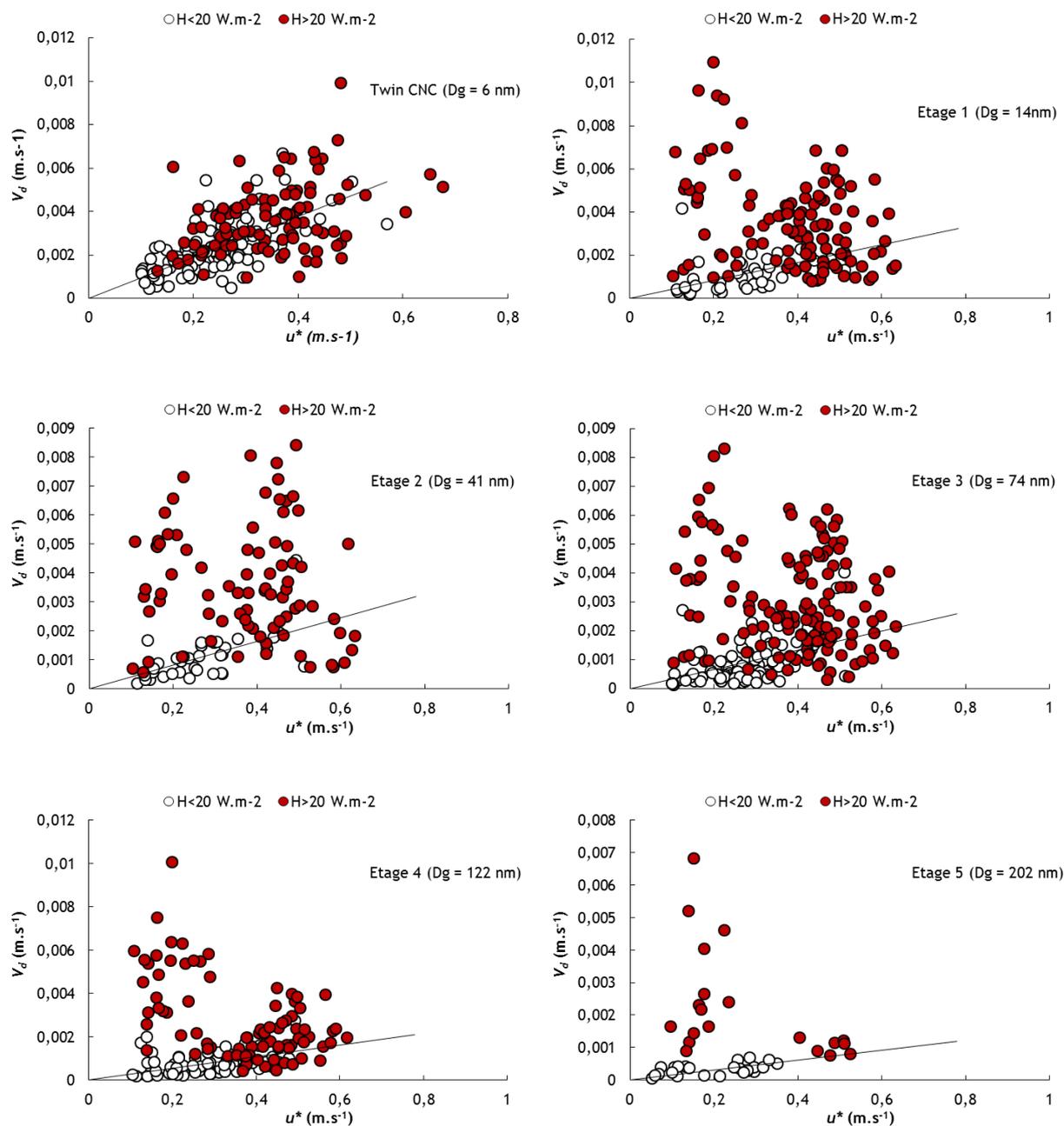


Figure annexe.15: Vitesses de dépôt sec obtenues durant l'ensemble des campagnes DEPECHEMOD en fonction de la vitesse de frottement du vent pour la méthode twin CNC et l'étage 1 à 5 de l'ELPI.

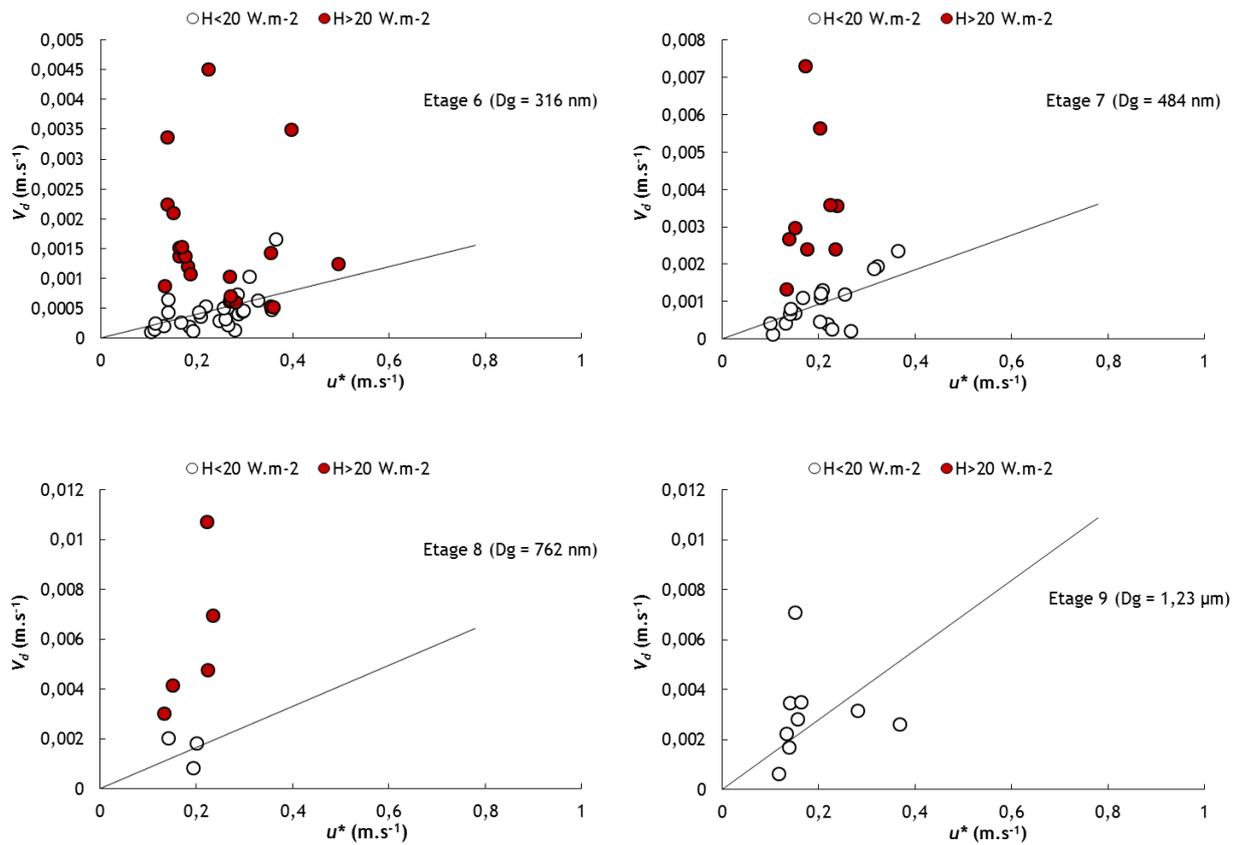


Figure annexe.16 : Vitesses de dépôt sec obtenues durant l'ensemble des campagnes DEPECHEMOD en fonction de la vitesse de frottement du vent pour l'étage 6 à 9 de l'ELPI.

ANNEXE 5 PARAMETRISATION POUR L'ENSEMBLE DES GRANULOMETRIE ET L'ENSEMBLE DES DONNEES OBTENUES LORS DES CAMPAGNES DEPECHEMOD.

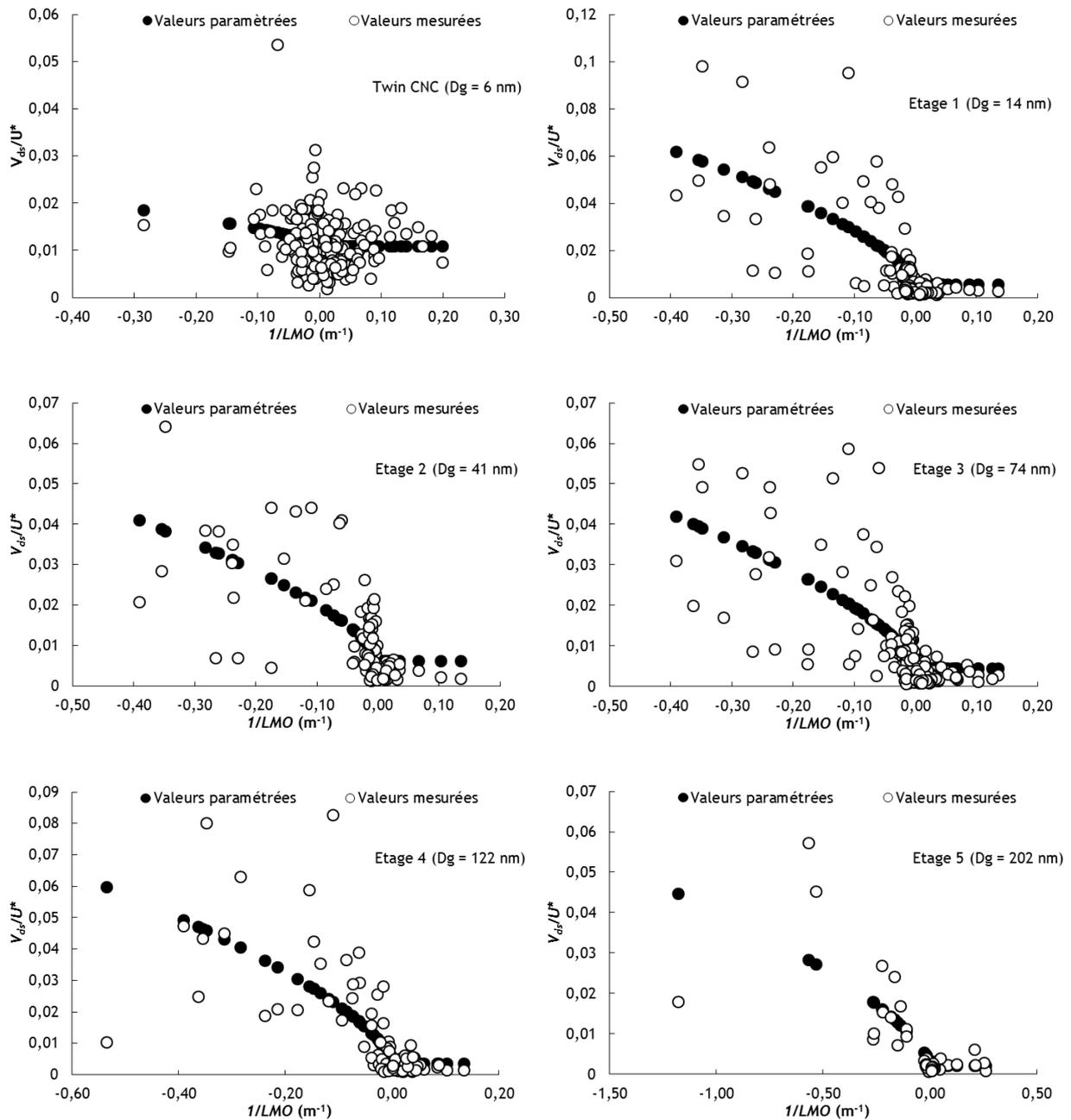


Figure annexe.17: Paramétrisation des vitesses de dépôt obtenues lors des campagnes DEPECHEMOD pour la méthode twin CNC et l'étage 1 à 5 de l'ELPI.

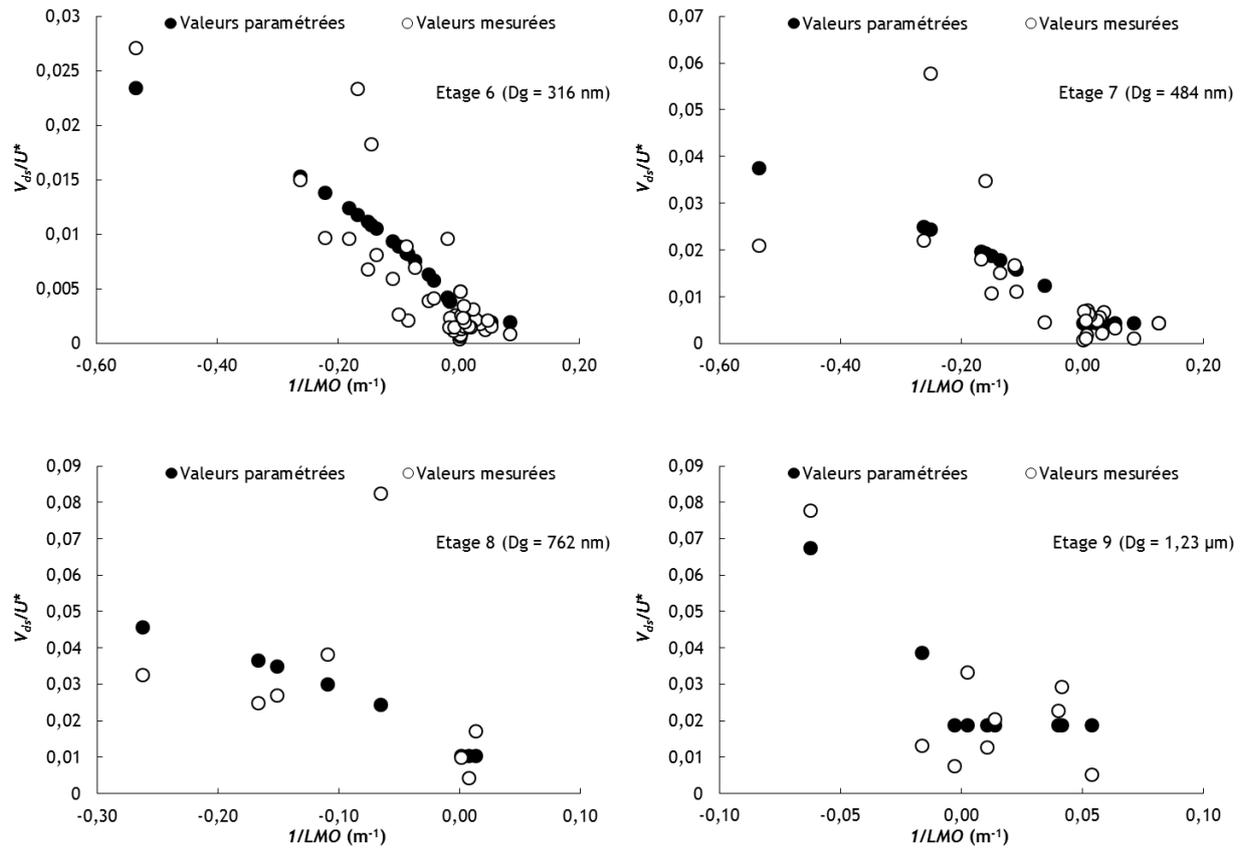


Figure annexe.18: Paramétrisation des vitesses de dépôt obtenues lors des campagnes DEPECHEMOD pour l'étage 6 à 9 de l'ELPI.

ABSTRACT

The particles emitted into the atmosphere during chronic or accidental release by the nuclear plants can be subjected, after dispersion, to vertical flows by dry weather: dry deposition and resuspension. Vertical flows in dry weather are characterized by the vertical transfer rate, which is the ratio between the particle flux and the atmospheric concentration of the aerosol in the vicinity of the surface. When this speed is positive, it is a dry deposition rate (V_d in $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) and conversely, when it is negative, it is a transmission rate.

It is important to study their dry deposition in a prairial environment. Indeed, the products resulting from this environment are a component of the human food chain via livestock. For particles less than $1\ \mu\text{m}$, there is a lack of experimental data, which results in uncertainty about the results of the models, which can reach up to two orders of magnitude. In addition, there are no in situ deposition rate measurement data available for particles less than $10\ \text{nm}$. These particles are derived from the gas / particle conversion (nucleation) and may relate to certain radionuclides such as iodine (129 , ^{131}I).

After their deposition, these radionuclides can be resuspended under the effect of the stress submitted by the wind on the canopy. Such a phenomenon is suspected around the Fukushima nuclear power plant. The aerosol resuspension processes are characterized by the vertical transfer rate ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) but also by the re-suspension coefficient (K_s in m^{-1}) which is the ratio of atmospheric concentration to surface concentration of particles. Relative uncertainties of 2 to 3 orders of magnitude on the resuspension coefficients exist. The resuspension concerns all the particles present on the canopy, whether they are inert or living (fungi, bacteria, yeasts, etc.). Unlike inert particles, these living particles can assimilate and concentrate radionuclides. However, there is very little data on the resuspension of microorganisms and bacteria in particular.

In this context, the objectives of the thesis are to quantify the dry deposition rate as a function of the particle size and the main micrometeorological parameters in the range $1.5\ \text{nm} - 1.2\ \mu\text{m}$. The second objective is to document the processes of emission of the bacteria.

RESUME

Les particules émises, dans l'atmosphère, lors de rejets chroniques ou accidentels par les installations peuvent être soumises après dispersion à des flux verticaux par temps sec : le dépôt sec et la remise en suspension. Les flux verticaux par temps sec sont caractérisés par la vitesse de transfert vertical, qui est le rapport entre le flux de particules et la concentration atmosphérique de l'aérosol au voisinage de la surface. Lorsque cette vitesse est positive, c'est une vitesse de dépôt sec (V_d en $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) et inversement, lorsqu'elle est négative, c'est une vitesse d'émission.

Il est important d'étudier leur dépôt sec en milieu prairial. En effet, les produits issus de ce milieu sont une composante de la chaîne alimentaire de l'homme via l'élevage. Pour les particules de moins de $1\ \mu\text{m}$, il y a un manque de données expérimentales, ce qui entraîne une incertitude sur les résultats des modèles, qui peuvent atteindre jusqu'à deux ordres de grandeur. En outre, il n'existe pas de données de mesure de la vitesse de dépôt *in situ* disponibles pour les particules inférieures à $10\ \text{nm}$. Ces particules sont issues de réaction gaz/particules (nucléation) et peuvent concerner certains radionucléides tels que l'iode ($^{129,131}\text{I}$). Après leur dépôt, ces radionucléides peuvent être remis en suspension sous l'effet de la contrainte soumise par le vent sur le couvert. Un tel phénomène est soupçonné autour de la centrale nucléaire de Fukushima. Les processus de remise en suspension des aérosols, est caractérisée par la vitesse de transfert vertical ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) mais également par le coefficient de remise en suspension (K_s en m^{-1}) qui est le rapport entre la concentration atmosphérique et la concentration surfacique de particules. Des incertitudes rémanentes de 2 à 3 ordres de grandeurs sur les coefficients de remise en suspension existent. La remise en suspension concerne l'ensemble des particules présent sur le couvert qu'elles soient inertes ou vivantes (champignons, bactéries, levures...). Contrairement aux particules inertes, ces particules vivantes peuvent assimiler et concentrer les radionucléides. Cependant, il y a très peu de données concernant la remise en suspension des microorganismes et des bactéries en particulier. Dans ce contexte, les objectifs de la thèse sont de quantifier la vitesse de dépôt sec en fonction de la taille des particules et des principaux paramètres micrométéorologique dans la gamme $1,5\ \text{nm} - 1,2\ \mu\text{m}$. Le second objectif est de documenter les processus d'émission des bactéries.