

IRSN

INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Faire avancer la sûreté nucléaire

Mémoire d'habilitation à diriger des recherches

Transfert des radionucléides sous forme de gaz et d'aérosols dans les environnements complexes : études expérimentales de dispersion atmosphérique et d'échanges aux interfaces

Denis MARO



ÉDITORIAL

L'enjeu central de la sûreté nucléaire est d'éviter la survenue d'un enchaînement malheureux de circonstances et d'incidents de fonctionnement qui conduise à un accident très grave. Pour autant, l'approche de sûreté impose de se tenir prêt à faire face aux conséquences d'un tel accident, pour en réduire autant que possibles les conséquences. En effet, compte tenu des processus industriels mis en œuvre et des quantités de produits radioactifs présents dans les installations, une séquence accidentelle grave peut conduire à exposer les travailleurs, la population et l'environnement. Dans ce cas, les processus de dispersion atmosphérique et ceux des échanges aux interfaces dans les milieux complexes sont parmi les premiers éléments à prendre en considération pour évaluer correctement les conséquences radioécologiques sur l'environnement et sanitaires sur l'Homme. La maîtrise et la mise en œuvre des connaissances dans ce domaine sont donc des clés indispensables pour soutenir efficacement un dispositif de gestion de crise. C'est donc dans une double exigence de qualité scientifique et d'applicabilité opérationnelle que Denis MARO a développé ses travaux de recherche. Les phénomènes en jeu sont particulièrement complexes et la combinatoire des mécanismes et des substances à investiguer puis valider expérimentalement est quasiment sans limite. Cela illustre de manière singulière l'enjeu d'une HDR, à savoir de passer de la capacité à mener à bien une investigation scientifique, à celle de choisir, parmi un ensemble de chemins possibles, celui qui préservera le cap global. Dans ce mémoire, je mesure très clairement le besoin permanent des allers-retours entre les études expérimentales, de terrain et l'amélioration des modèles opérationnels, qui doivent, par les impasses faites au bénéfice de la rapidité, ne pas négliger des mécanismes qui pourraient avoir des conséquences majeures. Plus largement, j'ai également la conviction que les enseignements obtenus qui servent, et serviront, dans le cadre de la problématique des transferts de radionucléides, pourraient gagner à être étendus plus largement à d'autres types de polluants, qu'ils soient chimiques ou bactériologiques.

L'habilitation à diriger les recherches (HDR) est un diplôme délivré par un établissement universitaire. Pour un chercheur, elle constitue la consécration d'un cycle - typiquement d'une dizaine d'année - d'activité de recherche remarquable dans son domaine et une double reconnaissance : bien sûr, celle de l'atteinte d'un haut niveau scientifique, mais surtout celle de la capacité à impulser un ensemble cohérent de travaux articulés au service d'un défi scientifique. Cette capacité comporte notamment l'aptitude à encadrer des étudiants en formation doctorale ou post-doctorale. Cette visibilité s'avère d'ailleurs précieuse tant pour les chercheurs que pour l'Institut, compte tenu de sa volonté de multiplier les configurations de partenariat, depuis

le co-encadrement doctoral, jusqu'à la conduite partagée de laboratoires mixtes où la capacité à développer une vision scientifique joue un rôle déterminant.

C'est pourquoi le nombre de passages d'HDR par les chercheurs de l'Institut est un signe de la vitalité de la recherche menée dans ses laboratoires et de sa capacité à former de jeunes chercheurs.

Ainsi, je suis honoré de présenter, au nom de l'Institut, ce cinquième numéro de la collection HDR. Il concrétise la volonté d'une mise en lumière des travaux de recherche de l'Institut, attendue par différentes parties prenantes de la gestion des risques nucléaires et radiologiques et s'adresse plus largement à la communauté académique. J'en remercie donc tout particulièrement Denis MARO de m'en donner l'opportunité, à l'occasion de cette étape importante de sa carrière scientifique.

Matthieu Schuler,
Directeur de la stratégie, du développement et des partenariats
Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire
Octobre 2013

Illustration en page de couverture : turbulence moteur de la dispersion et du dépôt des polluants (crédit photo : NASA).

« L'imagination est plus importante que la connaissance.
La connaissance est limitée alors que l'imagination englobe le monde entier,
stimule le progrès, suscite l'évolution ».
Albert Einstein (1879-1955)

Ce travail de HDR s'est déroulé à l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN), au sein du pôle radioprotection – environnement (PRP-ENV) dans le Service de recherche et d'expertise sur les risques environnementaux (SERIS).

Je tiens à remercier sincèrement Évelyne Géhin, Professeur des universités (CERTES, Créteil), Yves Brunet, Directeur de recherche à l'INRA (EPHYSE, Bordeaux) et Pierre Durand, Directeur de recherche au CNRS (LA, Toulouse) pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ce HDR. Je remercie également Patrick Launeau, Professeur des universités (LPGN, Nantes), de m'avoir fait l'honneur d'être président du jury lors de ma soutenance. Je voudrais également adresser mes remerciements à Denis Boulaud, Directeur adjoint du pôle radioprotection-environnement (Le Vésinet) et Jean-François Sini, Professeur à l'École centrale de Nantes (LMF, Nantes) pour avoir accepté d'être les examinateurs de mon travail.

Je remercie sincèrement Patrice Mestayer, Directeur de recherche émérite au CNRS, pour avoir été mon tuteur qui, malheureusement, n'a pas pu assister à ma soutenance. Les quelques lignes en avant-propos de ce mémoire ne suffiront jamais à lui exprimer toute ma gratitude. Merci pour ton aide et toutes les discussions passionnantes et passionnées en physique de l'atmosphère.

J'adresse mes sincères et chaleureux remerciements à Jacqueline Garnier-Laplace, chef du Service de recherche et d'expertise sur les risques environnementaux et à Dominique Boust, chef du Laboratoire de radioécologie de Cherbourg-Octeville, pour m'avoir soutenu et accompagné dans ma démarche.

Les recherches résumées dans ce rapport sont, en fait, issues de travaux collectifs, fruits de collaborations multiples. Tout d'abord avec mes collègues de l'IRSN et, plus particulièrement, ceux du Laboratoire de radioécologie de Cherbourg-Octeville : Didier Hébert avec qui tout a commencé et qui m'a réinitié aux manipulations précises en laboratoire ; Rémi Gandon et Luc Solier pour leurs aides et conseils respectivement en chimie et en métrologie nucléaire, plus particulièrement lors des travaux sur l'iode 129 ; Marianne Rozet, Serge Le Cavalier, Gaël Leclerc qui ont fait partie du « noyau dur » de six personnes, avec Didier et Luc, pour la mise au point et la réalisation des campagnes de mesures atmosphériques sous ballon captif, première réalisation originale de la thématique atmosphérique du laboratoire ; Colette Lecomte et Marianne Lamotte pour leur assistance permanente sur les aspects administratifs me permettant ainsi de conserver un peu plus de temps aux études et recherches ; Claire Voiseux et Alain Bochet qui, selon leur disponibilité, sont toujours prêts à aider lors de la préparation d'une mission et de sa réalisation ; Olivier Connan et

Philippe Laguionie pour leurs discussions enrichissantes permettant de faire émerger des idées nouvelles de recherche ; Bruno Fiévet pour son aide en informatique mais surtout pour les discussions passionnantes sur les transferts vers les organismes vivants ; Pascal Bailly du Bois pour nos échanges, car le milieu marin a aussi une interface importante avec l'atmosphère ; Julien Pommier pour nos discussions sur des radionucléides comme le carbone 14 et le tritium ; Michel Masson qui m'a fait découvrir le monde de la radioécologie à travers le suivi radioécologique des centres nucléaires de production d'électricité ; Pierre Guéguéniat et Pierre Germain mes deux premiers chefs de laboratoire ; Pierre Damay et Pierre Rousard qui m'ont permis d'aborder la recherche sous un angle académique lors leur thèse de doctorat ; Céline Leroy, Mathieu Goriaux et Mirvatte Francis dont les travaux post-doctoraux originaux m'ont ravi. Je n'oublie pas non plus, mes collègues des services scientifiques de l'Institut avec qui j'échange régulièrement : François Gensdarmes, Olivier Isnard, Damien Didier, Anne Mathieu, Olivier Masson et Séverine Le Dizes-Maurel. Il est clair que les travaux de recherche présentés ici n'auraient pas pu non plus se faire sans une aide des collègues des services administratifs, Frédéric Goldschmidt, Isabelle Guyot, Jean-Luc Guyot et Magali Penot.

Des collègues d'autres instituts et universités français ont grandement participé à l'élaboration de ce travail : Eric Lamaud, Yves Brunet, Mark Irvine, Jean-Marc Bonnefond d'EPHYSE, Isabelle Calmet et Jean-Michel Rosant de l'École centrale de Nantes, Alexis Coppalle et Martine Talbot du CORIA, Christine Lac de Météo-France, Michel Fontugne du LSCE, Yves Baron et Lionel Tenailleau de l'EAMEA. Mes collègues d'instituts et universités étrangers ont aussi participé largement aux réflexions composant ce document : Daniel Contini et Antonio Donateo de l'ISAC-Lecce (Italie), Eiko Nemitz du CEH-Edimbourg (Grande-Bretagne), Otto Klemm du BITOK-Bayreuth (Allemagne) et Christer Johansson d'ITM-Stockholm (Suède).

Enfin, je remercie mes parents, Michel et Micheline, pour m'avoir inculqué le goût de la science et de la recherche ; mes enfants Florian et Anaïs et mon épouse Karine qui m'apportent tout simplement le bonheur nécessaire à toute activité professionnelle sereine.



Université des Sciences de Nantes
École doctorale SPIGA (Sciences pour l'Ingénieur, Géosciences, Architecture)
Spécialité physique de l'atmosphère
Habilitation à diriger des recherches
(HDR)

Transfert des radionucléides sous forme de gaz et d'aérosols dans les environnements complexes : études expérimentales de dispersion atmosphérique et d'échanges aux interfaces

2 décembre 2011

Denis MARO
Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire

Directeur de recherche : Patrice Mestayer
Directeur de laboratoire : Dominique Boust

Composition du jury :

Rapporteurs :
Yves Brunet Directeur de recherche à l'INRA, EPHYSE, Bordeaux
Pierre Durand Directeur de recherche au CNRS, LA, Toulouse
Évelyne Géhin Professeur des universités, CERTES, Créteil

Examineurs :
Denis Boulaud Directeur à l'IRSN, Le Vésinet
Patrick Launeau Professeur des universités, LPGN, Nantes
Patrice Mestayer Directeur de recherche émérite au CNRS, IRSTV, Nantes
Jean-François Sini Professeur à l'École centrale de Nantes, LMF, Nantes

ISBN 978-2-9545237-0-5

©2013, IRSN. Tous droits réservés.

SOMMAIRE

Résumé	13
Chapitre 1	
Synthèse des travaux de recherche	15
1.1 Contexte scientifique	15
1.1.1 Importance de la voie atmosphérique sur le transfert des polluants	16
1.1.2 Comportement des radionucléides rejetés dans l'atmosphère	16
1.1.3 Environnements complexes et activités nucléaires	18
1.1.4 Radionucléides rejetés en fonctionnement normal ou susceptibles d'être rejetés accidentellement	19
1.1.4.1 Cas de rejets directs dans l'atmosphère	19
1.1.4.2 Cas de rejets en milieu liquide puis transferts entre l'eau et l'atmosphère	21
1.1.5 Une approche expérimentale complémentaire de la modélisation	23
1.1.6 Structure du mémoire	24
1.1.7 Publications et communications significatives	25
1.2 Comportement des polluants dans l'atmosphère : rappel sur les processus et la modélisation opérationnelle associée	26
1.2.1 Dispersion atmosphérique	26
1.2.1.1 Description des processus de dispersion atmosphérique	26
1.2.1.1.1 Transport et diffusion	26
1.2.1.1.2 Turbulence atmosphérique	27
1.2.1.1.2.1 Turbulence et ses échelles	27
1.2.1.1.2.2 Couche limite et stabilité atmosphérique	30
1.2.1.1.2.3 Couche de surface ou couche à flux constant	32
1.2.1.2 Modélisation opérationnelle gaussienne de la dispersion atmosphérique	39
1.2.1.2.1 Bases de la formulation gaussienne	39
1.2.1.2.2 Cas d'une émission instantanée	41
1.2.1.2.3 Cas d'une émission prolongée	42
1.2.1.2.4 Prise en compte de phénomènes particuliers	44
1.2.1.2.4.1 Réflexion sur le sol et la couche de mélange	44
1.2.1.2.4.2 Dépôt sec et dépôt humide	45
1.2.1.2.5 Modèles gaussiens utilisés dans le cadre de nos études	45
1.2.1.2.5.1 Modèle de Briggs	45
1.2.1.2.5.2 Modèle de Doury	47
1.2.1.2.5.3 Modèle ADMS 4.0	49
1.2.2 Échanges aux interfaces	53
1.2.2.1 Description des processus de dépôt sec et de dépôt humide des aérosols	54
1.2.2.1.1 Dépôt sec des aérosols	56
1.2.2.1.2 Dépôt humide des aérosols	57

1.2.2.1.3	Principaux phénomènes physiques impliqués dans le dépôt sec et le dépôt humide	58
1.2.2.1.3.1	Sédimentation	58
1.2.2.1.3.2	Diffusion brownienne	60
1.2.2.1.3.3	Interception	62
1.2.2.1.3.4	Impaction	62
1.2.2.1.3.5	Thermophorèse	62
1.2.2.1.3.6	Diffusiophorèse	63
1.2.2.1.3.7	Effets électrostatiques	64
1.2.2.2	Modélisation opérationnelle du dépôt sec et du dépôt humide des aérosols	65
1.2.2.2.1	Modèles de dépôt sec des aérosols utilisés dans le cadre de nos études	65
1.2.2.2.1.1	Substrat de type rural	66
1.2.2.2.1.2	Substrat de type urbain	69
1.2.2.2.2	Modèles de dépôt humide des aérosols utilisés dans le cadre de nos études	69
1.3	Dispersion atmosphérique : synthèse des études réalisées	74
1.3.1	Contexte	74
1.3.2	Dispersion en milieu de topographie complexe : étude de la dispersion atmosphérique du krypton 85 rejeté par l'usine de retraitement des combustibles nucléaires usés AREVA NC La Hague	75
1.3.2.1	Contexte et objectif	75
1.3.2.2	Campagnes expérimentales dans la région de La Hague	76
1.3.2.2.1	Caractéristiques de la zone d'étude	76
1.3.2.2.2	Émission de krypton 85	77
1.3.2.2.3	Prélèvements et mesures au sol	77
1.3.2.2.4	Mesures en altitude	79
1.3.2.2.5	Paramètres météorologiques	81
1.3.2.3	Évaluation des modèles gaussiens	82
1.3.2.3.1	Modèles gaussiens utilisés	82
1.3.2.3.2	Méthode d'évaluation	82
1.3.2.3.2.1	Mesures au sol	82
1.3.2.3.2.2	Mesures en altitude	84
1.3.2.4	Résultats	84
1.3.2.4.1	Caractérisation des campagnes de mesures au sol	84
1.3.2.4.2	Caractérisation des campagnes de mesures en altitude	85
1.3.2.4.3	Comparaison des résultats des mesures au sol avec les résultats des modèles	86
1.3.2.4.3.1	Résultats des campagnes	86
1.3.2.4.3.2	Comparaison des mesures avec les modèles de Briggs-rural, Doury et ADMS 4.0	87
1.3.2.4.3.3	Analyse statistique	90
1.3.2.4.4	Comparaison des résultats des mesures en altitude avec les résultats des modèles	90

1.3.3	Dispersion en milieu urbain : étude de la dispersion d'un gaz traceur passif réalisée dans le cadre du projet CAPITOUL	91
1.3.3.1	Contexte et objectif	91
1.3.3.2	Campagnes expérimentales dans la ville de Toulouse	92
1.3.3.2.1	Caractéristiques de la zone d'étude	92
1.3.3.2.2	Émission de traceur SF ₆	93
1.3.3.2.3	Prélèvements et mesures au sol	94
1.3.3.2.4	Prélèvements en altitude	95
1.3.3.2.5	Mesures météorologiques	96
1.3.3.3	Évaluation des modèles gaussiens	96
1.3.3.3.1	Modèles gaussien utilisés	96
1.3.3.3.2	Méthode d'évaluation	96
1.3.3.4	Résultats	97
1.3.3.4.1	Caractérisation des campagnes de prélèvements au sol et en altitude	97
1.3.3.4.2	Comparaison des résultats des mesures au sol avec les résultats des modèles	98
1.3.4	Conclusions	100
1.3.5	Publications et communications significatives	101
1.4	Échanges aux interfaces : synthèse des études réalisées	102
1.4.1	Contexte	103
1.4.2	Dépôt sec des aérosols	104
1.4.2.1	Milieu rural	104
1.4.2.1.1	Contexte et objectif	104
1.4.2.1.2	Méthode de mesure des vitesses de dépôt par corrélation turbulente	105
1.4.2.1.2.1	Détermination du flux de particules et de la vitesse de dépôt sec	105
1.4.2.1.2.2	Prise en compte du temps de réponse de l'ELPI dans la détermination du flux	108
1.4.2.1.2.3	Conditions d'application de la méthode de mesure	109
1.4.2.1.3	Instrumentation et campagnes de mesures	109
1.4.2.1.4	Résultats et discussions	110
1.4.2.1.4.1	Dépôt et émission des aérosols	110
1.4.2.1.4.2	Influence des paramètres micro-météorologiques et optimisation du modèle de Wesely <i>et al.</i> (1985) pour différentes tailles de particules	113
1.4.2.1.4.3	Influence de la granulométrie et du couvert	116
1.4.2.1.5	Comparaison entre les résultats des mesures et les résultats des modèles	120
1.4.2.2	Milieu urbain	121
1.4.2.2.1	Contexte et objectif	121
1.4.2.2.2	Utilisation de la fluorescéine : campagne de courte durée	122
1.4.2.2.2.1	Principe	122
1.4.2.2.2.2	Émission des aérosols de fluorescéine et du gaz traceur SF ₆	124
1.4.2.2.2.3	Prélèvements des aérosols de fluorescéine et du gaz traceur SF ₆	125
1.4.2.2.2.4	Mesure de concentration d'aérosols de fluorescéine et de SF ₆	125
1.4.2.2.2.5	Acquisition de données micro-météorologiques	125
1.4.2.2.3	Utilisation du béryllium 7 : campagne de longue durée	126
1.4.2.2.4	Résultats et discussions	127

1.4.2.2.4.1	Campagnes de courte durée	127
1.4.2.2.4.2	Campagne de longue durée	129
1.4.2.2.4.3	Comparaison avec les principaux résultats de mesures <i>in situ</i> obtenus par Roed (1983, 1985, 1986, 1987)	131
1.4.2.2.5	Comparaison entre les mesures et les modèles	133
1.4.3	Dépôt humide des aérosols	134
1.4.3.1	Contexte et objectif	134
1.4.3.2	Deux processus pour le lessivage des aérosols par voie humide	134
1.4.3.3	Méthode de mesure du coefficient de rabattement	135
1.4.3.3.1	Protocole expérimental	135
1.4.3.3.2	Résultats obtenus	137
1.4.3.3.3	Comparaison entre les mesures et les modèles	139
1.4.4	Conclusions	140
1.4.5	Publications et communications significatives	141

Chapitre 2

	Synthèse des acquis et projet de recherche	143
2.1	Avancées scientifiques	143
2.1.1	Dispersion atmosphérique	144
2.1.2	Échanges aux interfaces	146
2.2	Perspectives	149
2.2.1	Dispersion atmosphérique	149
2.2.1.1	Cas du champ proche (< 5 km de l'émissaire)	149
2.2.1.2	Cas des échelles méso et synoptiques	151
2.2.2	Échanges aux interfaces	151
2.2.2.1	Cas des aérosols	151
2.2.2.1.1	Dépôt sec en milieu rural	151
2.2.2.1.2	Dépôt sec en milieu urbain	152
2.2.2.1.3	Dépôt humide	153
2.2.2.2	Cas des gaz et en particulier de l'iode	153
2.2.2.3	Cas de l'émission de gaz ou d'aérosols	154
2.3	Proposition de priorités	155

Chapitre 3

	Présentation personnelle	159
3.1	<i>Curriculum vitae</i>	159
3.2	Publications	164
3.2.1	Revue internationale à comité de lecture	164
3.2.2	Actes de congrès, rapports techniques, conférences sur invitation, ouvrages	165
3.2.3	Brevets	172
	Bibliographie	173

Résumé

En situation de rejets accidentels ou chroniques, l'atmosphère est la principale voie de transfert des rejets radioactifs d'une installation nucléaire vers l'environnement et, de ce fait, vers l'Homme. Il est donc nécessaire de disposer de renseignements suffisants sur cette voie de transfert pour évaluer précisément les conséquences radiologiques sur l'Homme et son environnement.

L'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire développe ses propres outils de dispersion et de transfert atmosphérique pour ses besoins d'expertises, dans le cadre de situation de fonctionnement normal d'une installation, mais surtout, en situation de crise ou post-accidentelle. Ces outils doivent avoir une reconnaissance nationale et internationale notamment au travers de validations scientifiques par rapport à des expériences de référence réalisées au niveau international, au niveau national ou au sein de l'IRSN.

Le Laboratoire de radioécologie de Cherbourg-Octeville apporte, et devra de plus en plus apporter, une contribution importante au rayonnement scientifique de l'Institut dans ce domaine. Les travaux présentés dans ce mémoire ont contribué au développement ou à l'amélioration de techniques expérimentales dans les domaines de la dispersion atmosphérique et des transferts des radionucléides aux interfaces dans les environnements complexes (topographie complexe, milieu urbain). Ces techniques expérimentales, appliquées lors de campagnes de terrain, ont permis d'acquérir des données nouvelles afin d'avoir une meilleure compréhension des transferts de radionucléides sous forme de gaz et d'aérosols.

Abstract

In situations of chronic or accidental releases, the atmosphere is the main pathway of radioactive releases from nuclear facilities to the environment and, consequently, to humans. It is therefore necessary to have sufficient information on this pathway to accurately assess the radiological impact on man and his environment.

Institute for Radioprotection and Nuclear Safety develops its own tools of dispersion and atmospheric transfer for its expertise, under normal operation conditions of a facility, but especially in crisis or post-accident. These tools must have a national and international recognition in particular through scientific validation against benchmark experiments performed internationally, nationally or within the IRSN.

The Radioecology Laboratory of Cherbourg-Octeville provides, and will increasingly make, a significant contribution to the scientific influence of the Institute in this field. The work presented in this report has contributed to the development or improvement of experimental techniques in the fields of atmospheric dispersion of radionuclides and transfer at interfaces, in complex environments (complex topography, urban area). These experimental techniques, applied during field campaigns, have allowed to acquire new data in order to get a better understanding of radionuclide transfers in the form of gases and aerosols.

Liminaire

Afin de mettre en exergue les travaux réalisés et la valorisation qui en a été faite, je signale que mes références sont indiquées dans le texte entre crochets [] avec un renvoi au chapitre 3.2 en complément des références bibliographiques classiquement placées à la fin du texte.

Ce document est composé des principales parties suivantes :

Chapitre 1 : Synthèse des travaux de recherche

1.1 Contexte scientifique

1.2 Comportement des polluants dans l'atmosphère : rappel sur les processus et la modélisation opérationnelle associée

1.3 Dispersion atmosphérique : synthèse des études réalisées

1.4 Échanges aux interfaces : synthèse des études réalisées

Chapitre 2 : Synthèse des acquis et projet de recherche

2.1 Avancées scientifiques

2.2 Perspectives

2.3 Proposition de priorités

Chapitre 3 : Présentation personnelle

3.1 *Curriculum vitae*

3.2 Publications

Chapitre 1

Synthèse des travaux de recherche

1.1 *Contexte scientifique*

Ce chapitre traite de la problématique des transferts atmosphériques des radionucléides (gaz, aérosol) émis dans l'atmosphère en situation de rejets chroniques ou accidentels. Il est particulièrement mis en exergue la complémentarité entre une approche par la modélisation opérationnelle et une approche expérimentale de terrain, pour l'étude des processus de dispersion atmosphérique et celle des échanges aux interfaces dans les milieux complexes (topographie complexe, milieu urbain). Depuis une vingtaine d'année, un grand nombre de modèles, plus ou moins simplifiés, ont été développés, dans le monde, par de nombreuses équipes (cf. les congrès : *HARMOnization within atmospheric dispersion for regulatory purpose*, HARMO et *International Aerosol Conference*, IAC) qui fondent toujours leur validation sur des anciennes expérimentations souvent réalisées dans des configurations simplifiées

tant du point de vue de la dispersion atmosphérique que des échanges aux interfaces. En effet, comme nous le verrons plus loin, les fortes simplifications physiques des modèles opérationnels et le manque de données expérimentales engendrent des écarts entre les résultats des modèles et les mesures, de plusieurs ordres de grandeur. C'est dans ce contexte que nous avons développé une approche expérimentale de terrain afin de mieux comprendre et quantifier les processus pour *in fine* diminuer les incertitudes sur les modèles. Les enseignements obtenus servent, et serviront, dans le cadre de la problématique des transferts de radionucléides, mais peuvent aussi être étendus à de nombreux polluants de type chimique, bactériologique ou autres.

1.1.1 Importance de la voie atmosphérique sur le transfert des polluants

Les polluants peuvent être transportés de la source vers l'Homme, *via* l'environnement, par différents vecteurs : l'atmosphère, les eaux douces et marines, les eaux souterraines. En situation accidentelle, la voie d'atteinte la plus préoccupante à court terme est l'atmosphère du fait de la vitesse à laquelle elle transporte la pollution. En effet, la vitesse de transport dans l'atmosphère est d'un à plusieurs ordres de grandeur supérieure à celle des autres milieux (Crabot, 1996).

En situation de rejets chroniques, cette voie peut aussi être importante dans l'évaluation de l'impact dosimétrique à l'Homme. L'étude d'impact de l'usine de retraitement des combustibles nucléaires usés AREVA NC La Hague indique que ce sont les rejets atmosphériques, principalement le krypton 85 (^{85}Kr), qui contribuent le plus à la dose aux populations (GRNC, 2000). À titre d'exemple, la figure 1.1 présente la place des transferts atmosphériques (dispersion, dépôts) dans la chaîne d'évaluation des doses annuelles à l'Homme (Quinault *et al.*, 1989). Les transferts atmosphériques sont les premiers maillons de la chaîne d'atteinte de l'environnement et de l'Homme.

Prévoir l'impact de rejets dans l'atmosphère de substances radioactives en conditions de fonctionnement normale ou accidentel d'une installation, quels que soient le site et les conditions d'émission, et en estimer les conséquences radiologiques sur la population ou les écosystèmes est un enjeu majeur pour l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN).

1.1.2 Comportement des radionucléides rejetés dans l'atmosphère

En situations de rejets chroniques ou accidentels de polluants dans l'atmosphère, leur dispersion est régie par leurs propriétés physiques et celles de l'atmosphère

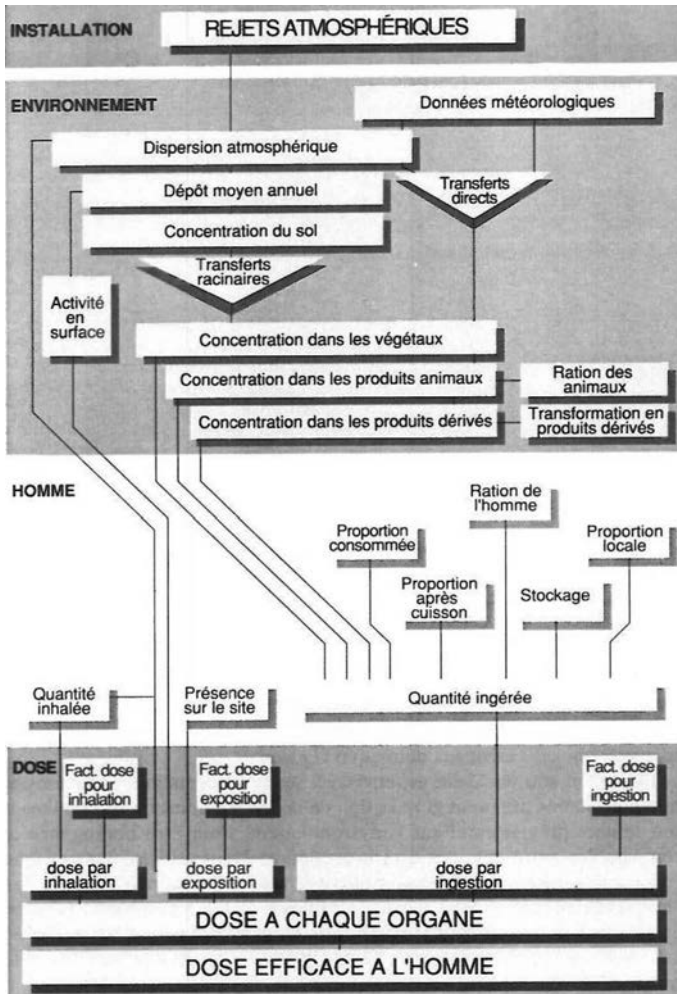


Figure 1.1. Place des transferts atmosphériques dans la chaîne d'évaluation des doses annuelles à l'Homme (Quinault et al., 1989).

dans laquelle ils sont rejetés (AIEA, 1981). Les effluents pénètrent dans l'atmosphère avec une vitesse et une température qui diffèrent généralement de celles de l'air ambiant, et provoquent ainsi une surélévation thermocinétique du panache. Cette surélévation modifie la hauteur effective du point de rejet et entraîne une modification de l'impact des polluants au sol. La présence d'obstacles de différentes hauteurs influence également le trajet de l'effluent (figure 1.2).

Le mouvement de l'effluent avec le vent, pendant et après la surélévation du panache, correspond au transport. La turbulence de l'atmosphère, induite par le frotte-

ment du vent sur le sol (turbulence mécanique) ou par les effets indirects du soleil (turbulence thermique) provoque des mouvements désordonnés de l'effluent qui entraînent progressivement sa diffusion.

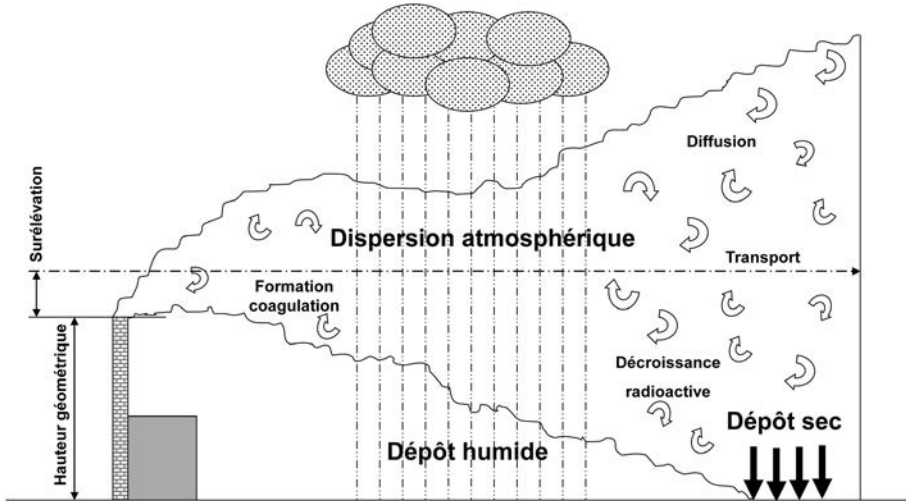


Figure 1.2. Comportement d'un effluent radioactif rejeté dans l'atmosphère (AIEA, 1981).

Suite à leur émission dans l'atmosphère, les gaz ou les aérosols radioactifs peuvent être soumis à des processus tels que :

- la formation ou la coagulation des aérosols ;
- la décroissance radioactive ;
- le dépôt sec (diffusion brownienne, interception, impaction inertielle, sédimentation gravitationnelle...);
- le dépôt humide par les précipitations (diffusion brownienne, interception, impaction inertielle, diffusion turbulente, effets phorétiques, effets électrostatiques...);
- la remise en suspension.

1.1.3 Environnements complexes et activités nucléaires

Les zones rurales et urbaines de densités variables composées de différents types de végétation (cultures, forêts...), de parcelles agricoles, de routes, de bâtiments sont représentatives des environnements complexes. En effet, ces paysages ruraux et urbains très fragmentés avec des propriétés de surface (thermique, mécanique) très variables influencent les transferts, la dispersion atmosphérique et les échanges aux interfaces des radionucléides.

Près des installations nucléaires, les surfaces terrestres sont généralement caractérisées par la très forte hétérogénéité spatiale des éléments de surface liées à la topographie et aux activités humaines. Par exemple, certains centres nucléaires de production d'électricité, ou CNPE, se trouvent en bord de mer sur des terrains de topographie complexe (figure 1.3) au pied de falaises (CNPE de Flamanville, Paluel...) ou près de milieux fortement urbanisés (CNPE de Gravelines...).

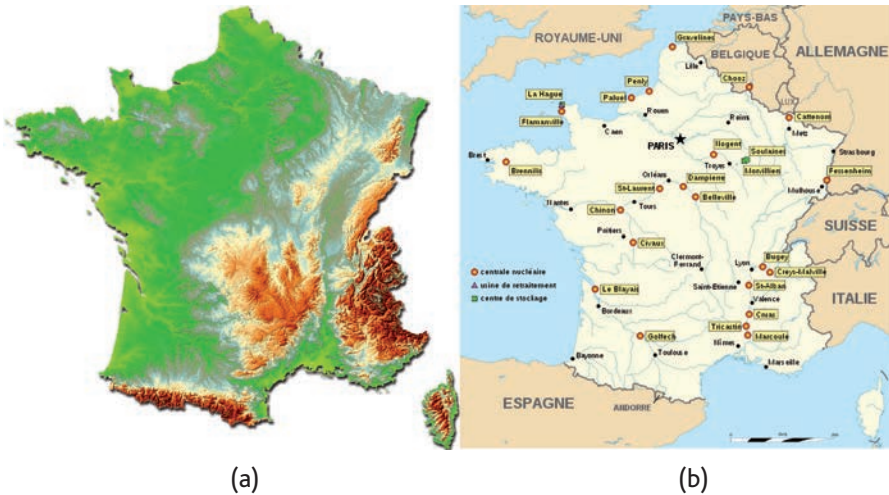


Figure 1.3. Relief en France (a) et localisation des principaux centres nucléaires (b).

1.1.4 Radionucléides rejetés en fonctionnement normal ou susceptibles d'être rejetés accidentellement

1.1.4.1 Cas de rejets directs dans l'atmosphère

L'émission d'un polluant dans l'atmosphère peut revêtir un caractère :

- soit chronique, avec des émissions dans l'atmosphère plus ou moins continues ou périodiques dans le temps ; ces rejets sont liés au fonctionnement normal des installations nucléaires de production d'électricité ou du cycle du combustible nucléaire ;
- soit accidentel, avec des émissions à l'atmosphère ponctuelles dans le temps et non prévues.

Rejets chroniques

La plupart des radionucléides rejetés de façon chronique dans l'atmosphère sont principalement émis sous forme gazeuse. Les centrales nucléaires rejettent prin-

cipalement dans l'atmosphère du tritium (^3H) et du carbone 14 (^{14}C) (GRNC, 2000). L'usine de retraitement des combustibles usés AREVA La Hague rejette du krypton 85 (^{85}Kr), du ^3H , du ^{14}C et de l'iode 129 (^{129}I) (GRNC, 2000). Les centres nucléaires militaires rejettent principalement du ^3H . Les émissions d'aérosols sont très faibles et concernent principalement l'amont du cycle du combustible avec des émissions d'uranium 238 (^{238}U) ou de ses descendants (Pal Arya, 2001). Les périodes de demi-vie de ces radionucléides sont données dans le tableau 1.1.

Tableau 1.1. Période des principaux radionucléides émis ou susceptibles d'être émis dans l'atmosphère et fraction émise en cas de fusion du cœur.

Radionucléide	Période	Fraction émise en cas de fusion du cœur
^3H	12 ans	-
^{14}C	5 730 ans	-
^{131}I	8,1 jours	1
^{129}I	$1,6 \cdot 10^7$ ans	1
^{133}Xe	5,2 jours	1
^{85}Kr	10,4 ans	1
^{137}Cs	30 ans	1
^{90}Sr	28 ans	0,1
^{238}U	$4,5 \cdot 10^9$ ans	0,001
^{238}Pu	87,7 ans	0,001
^{239}Pu	$2,4 \cdot 10^4$ ans	0,001

Rejets accidentels

Les radionucléides émis dans l'atmosphère par une installation nucléaire en situation accidentelle peuvent être très variés. Dans le cas d'un accident grave sur un réacteur nucléaire de type REP (réacteur à eau pressurisée), les principaux radionucléides émis dans l'atmosphère seraient le ^{133}Xe et l' ^{131}I sous forme gazeuse, et, le ^{90}Sr , le ^{137}Cs et l' ^{131}I sous forme d'aérosols. Des accidents comme ceux de Tchernobyl et Fukushima ont injecté dans l'atmosphère un grand nombre de radionucléides sous forme de gaz et d'aérosols. De plus, lors de l'explosion de la centrale de Tchernobyl, des radionucléides comme les plutoniums 238 et 239 ont été émis dans l'atmosphère, mais en plus faible quantité (tableau 1.1).

Lors d'un accident grave sur un réacteur à eau pressurisée de 900 MWe (Lhiaubet, 1990), les aérosols émis dans l'enceinte de confinement, dont une partie pourrait

être relâchée dans l'environnement auraient une granulométrie comprise entre une centaine de nanomètres et une dizaine de micromètres (figure 1.4).

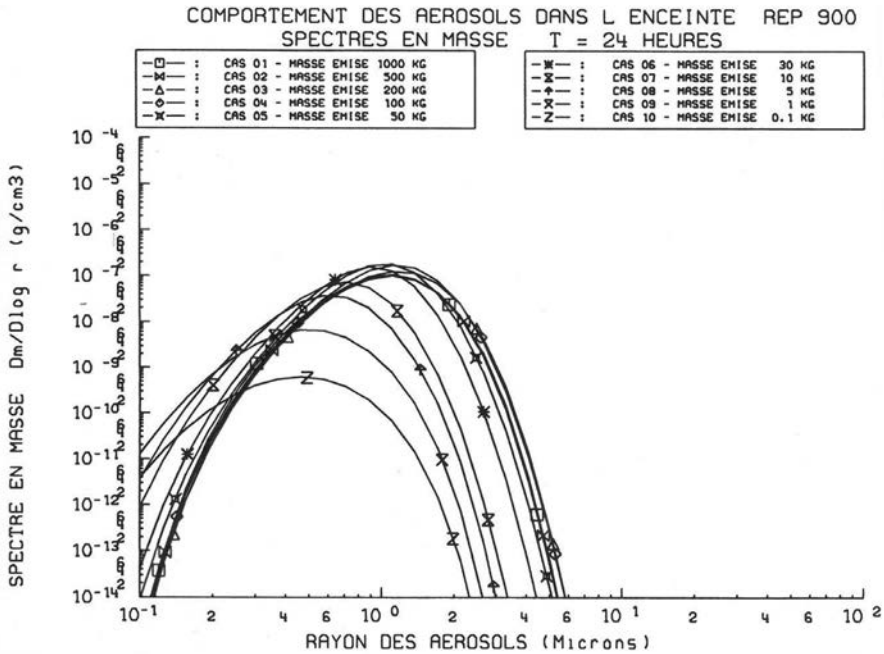


Figure 1.4. Concentration en masse en fonction de la granulométrie des aérosols pour différentes masses émises dans l'enceinte de confinement d'un REP 900 en situation accidentelle (Lhiaubet, 1990).

Lors d'un accident grave sur les unités du cycle du combustible, divers produits de fission et produits d'activation pourraient aussi être émis dans l'atmosphère sous forme de gaz et d'aérosols (Maro *et al.*, 2002a ; [48]).

1.1.4.2 Cas de rejets en milieu liquide puis transferts entre l'eau et l'atmosphère

Les océans, les mers, les estuaires et les fleuves constituent un vaste puits pour de nombreuses substances d'origine anthropique. À l'interface eau-atmosphère se concentrent les polluants issus de l'atmosphère, directement rejetés dans l'eau ou désorbés des sédiments. Un enrichissement en métaux stables (Pattenden *et al.*, 1981a), et en radionucléides (Pattenden *et al.*, 1981b) y est, entre autres, observé.

Le retour vers le continent de radionucléides artificiels rejetés en mer, grâce au transport par les aérosols marins, a été démontré par Fraizier *et al.*, (1977), Martin *et al.*,

(1981) et McKay et Pattenden (1989) en mesurant l'activité des radionucléides artificiels (^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{106}Ru) dans des bioindicateurs terrestres (lichens, herbe...). La figure 1.5 présente l'évolution des concentrations, normalisées à la concentration à la côte, de différents radionucléides et de sodium dans des lichens prélevés dans la région de La Hague. Les bruits de fond des radionucléides et du sodium ont été pris en compte.

L'évolution du cobalt 60 (^{60}Co) suit celle du sodium qui sont tous les deux émis, du milieu marin, sous forme particulaire.

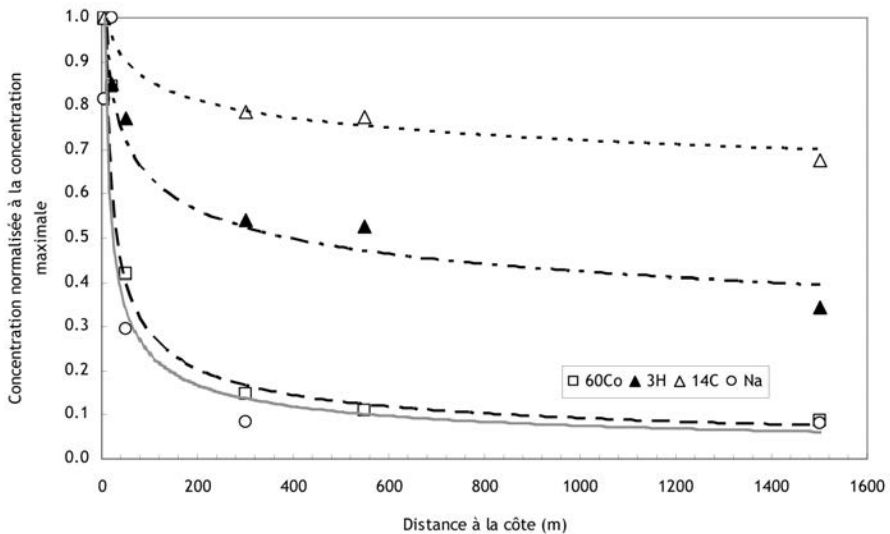


Figure 1.5. Concentration normalisée à la concentration maximale à la côte en fonction de la distance à la côte pour différents radionucléides et le sodium dans le lichen *Ramalina sp.*

Parallèlement au transfert par les particules marines, le dégazage du dioxyde de carbone (CO_2) (Abril, 1999 ; Frankignoule et Borges, 2001) peut entraîner vers l'atmosphère du carbone 14 (^{14}C) rejeté en milieu liquide par l'industrie nucléaire (Abril *et al.*, 2004 ; Fontugne *et al.*, 2002 ; Fontugne *et al.*, 2004 ; Maro *et al.*, 2004 ; [9] ; [10] ; [11]). Le tritium (^3H) rejeté en milieu liquide va principalement suivre l'évaporation de l'eau, et être entraîné vers l'atmosphère (Maro *et al.*, 2005 ; [7]). La figure 1.5 montre les différences entre les processus d'émission du ^3H et du ^{14}C . Le transfert du ^{14}C dépend des paramètres physiques du milieu mais aussi de facteurs biologiques comme la photosynthèse, la respiration ou la dégradation de la matière organique (Abril *et al.*, 1999). Le transfert du ^3H est principalement influencé par les différences de température entre l'eau et l'air et par la vitesse du vent. Il faut noter que dans le cadre

d'une étude menée sur les transferts gazeux du ^3H entre l'eau et l'atmosphère, du matériel spécifique a été développé pour permettre la mesure du ^3H dans l'air à très bas niveau ($< 2 \text{ Bq.L}^{-1}$ de vapeur d'eau de l'air) (Maro *et al.*, 2005 ; [7]). Le matériel développé, le système PREVAIR (figure 1.6), a conduit à un brevet Baron et Maro (2006) [68] et une commercialisation du système en 2011 (Brevet 0606065) par la société SDEC France.



Figure 1.6. Procédé de prélèvement automatique du tritium dans la vapeur d'eau de l'air : PREVAIR ou, de son nom commercial, H3R7000 (Brevet Baron et Maro, 2006).

1.1.5 Une approche expérimentale complémentaire de la modélisation

Prévoir l'impact des rejets d'une installation nucléaire sous-entend détenir et activer des modèles simplifiés dont l'utilisation requiert peu de données d'entrée et dont les résultats doivent estimer, de mieux en mieux, la réalité afin de fournir aux décideurs les meilleures informations dans un délai contraint. Une bonne estimation de la réalité implique de détenir des modèles validés à partir d'expérimentations de référence réalisées au niveau national ou international. Depuis une vingtaine d'année, un grand nombre de modèles plus ou moins simplifiés ont été développés, dans le monde, par de nombreuses équipes (cf. Congrès *HARMOnization within atmospheric dispersion for regulatory purpose* (HARMO) et *International Aerosol Conference*, IAC). Leur valida-

tion est fondée sur d'anciennes expérimentations souvent réalisées dans des configurations simplifiées tant d'un point de vue de la dispersion atmosphérique que des échanges aux interfaces. En effet, le développement de ces nombreux modèles n'a pas été associé au développement de nouvelles expérimentations bien que les matériels expérimentaux progressaient aussi. C'est pourquoi, nous avons décidé, depuis une quinzaine d'années, de développer des méthodologies expérimentales originales pour caractériser la dispersion atmosphérique et les échanges aux interfaces des gaz et des aérosols, plus en rapport avec la réalité du terrain (topographie complexe, milieu urbain). Cette nouvelle méthodologie expérimentale permet, et permettra, une meilleure compréhension des processus mis en jeu contribuant ainsi à l'amélioration des modèles opérationnels.

1.1.6 Structure du mémoire

La suite de ce mémoire est composée de quatre parties qui traitent de la dispersion atmosphérique et des échanges aux interfaces des radionucléides sous forme de gaz et d'aérosols.

Une première partie (chapitre 1.2) fait un rappel sur les processus physiques mis en jeu lors de la dispersion atmosphérique d'un gaz passif et lors du dépôt (sec, humide) des aérosols. De plus, une revue des principaux modèles opérationnels est proposée.

Une deuxième partie (chapitre 1.3) traite de nos études sur la dispersion atmosphérique en milieu complexe. Elle regroupe l'étude de la dispersion atmosphérique du krypton 85 (^{85}Kr) rejeté par l'usine de retraitement des combustibles usés AREVA NC La Hague et l'étude de la dispersion d'un gaz traceur réalisée dans la périphérie de Toulouse (projet CAPITOU). Elle présente les développements expérimentaux réalisés et les résultats originaux obtenus en les confrontant aux modèles opérationnels de type gaussien.

Une troisième partie (chapitre 1.4) regroupe les études sur le dépôt sec et le dépôt humide des aérosols. Sur le dépôt sec, deux études ont été menées : (1) étude de la vitesse de dépôt sec en milieu rural et sa paramétrisation en fonction de la granulométrie des particules et des conditions de turbulence atmosphérique ; (2) étude de la vitesse de dépôt sec sur des substrats urbains et influence du type de substrat, de sa température et de la vitesse de frottement sur la vitesse de dépôt des aérosols. L'étude liée au dépôt humide traite de la détermination du coefficient de rabattement des aérosols par la pluie et sa paramétrisation en fonction de la granulométrie des aérosols et de la pluviométrie. Comme dans le cadre des études sur la dispersion

atmosphérique, cette partie montre les développements expérimentaux réalisés et les résultats originaux obtenus en les confrontant aux modèles opérationnels.

Dans la dernière partie (chapitre 2), un bilan est réalisé en mettant en exergue les avancées scientifiques liés à nos études et en proposant un projet de recherche pour l'avenir, afin d'améliorer les connaissances et les modèles de transferts de radionucléides en milieu complexe (topographie, milieu urbain).

1.1.7 Publications et communications significatives

- Marang L., Siclet F., Luck M., Maro D., Tenailleau L., Jean-Baptiste P., Fourré E. and Fontugne M. (2011). Modelling tritium flux from water to atmosphere: application to the Loire River. *Journal of Environmental Radioactivity*, 102, 3, 244-251.
- Connan O., Tessier E., Maro D., Amouroux D., Hébert D., Rozet M., Voiseux C. and Solier L. (2008). Water to atmosphere fluxes of ^{131}I in relation with alkyl-iodide compounds from the Seine Estuary (France). *Journal of Environmental Radioactivity*, 99, 1102-1110.
- Maro D., Tenailleau L., Fontugne M., Germain P., Hébert D. and Rozet M. (2005). Tritium transfer between sea and atmosphere in the English Channel (North Contentin and Bay of Seine). *Radioprotection*, 40, 1, 589-594.
- Fontugne M., Maro D., Baron Y., Hatté C., Hébert D. and Douville E. (2004). ^{14}C sources and distribution in the vicinity of La Hague nuclear reprocessing plant: part I Terrestrial environment. *Radiocarbon*, 46, 2, 827-830.
- Maro D., Fontugne M., Hatté C., Hébert D. and Rozet M. (2004). ^{14}C sources and distribution in the vicinity of La Hague nuclear reprocessing plant: part II Marine environment, *Radiocarbon*, 46, 2, 831-839.
- Abril G., Commarieu M.V., Maro D., Fontugne M., Guérin F. and Etcheber H. (2004). A massive dissolved inorganic carbon release at spring tide in a highly turbid estuary. *Geophysical Research Letters*, 31, L09316, doi:10.1029/2004GL019714.
- Baron Y. et Maro D. (2006). Procédé de prélèvement automatique du tritium dans la vapeur d'eau de l'air (PREVAIR). Brevet 0606065.

1.2 Comportement des polluants dans l'atmosphère : rappel sur les processus et la modélisation opérationnelle associée

Dans ce chapitre est, tout d'abord, fait un rappel des processus liés à la dispersion atmosphérique d'un gaz « passif » et aux échanges aux interfaces (dépôts secs et humides) des aérosols en mettant en exergue l'importance de la turbulence de l'atmosphère dans les échanges verticaux et horizontaux. Un gaz passif est un gaz qui n'apporte aucune perturbation mécanique à l'écoulement atmosphérique et se disperse du fait de la seule action du fluide porteur, l'air. C'est le cas du gaz en trace (très faibles concentrations) ou de masse volumique très proche de celle de l'air. Un rejet de gaz radioactif comme le krypton 85 émis dans l'atmosphère par l'usine de retraitement des combustibles usés AREVA NC de La Hague peut être assimilé à un gaz passif. Un aérosol est un ensemble de particules, solide ou liquide, en suspension dans un gaz présentant une vitesse de chute très faible, c'est-à-dire qui permet un temps d'observation long. En pratique, on peut fixer la limite supérieure à 100 μm , qui correspond à une vitesse de chute de 25 $\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ pour une goutte d'eau. Minérales ou organiques, composées de matières vivantes (pollens...) ou non, grosses ou fines, les particules en suspension constituent un ensemble extrêmement hétérogène dont la taille varie de quelques nanomètres à une centaine de micromètres. Lors de rejets chroniques ou accidentels de radionucléides dans l'atmosphère sous forme particulaire, ceux-ci sont directement soumis à la dynamique des écoulements atmosphériques, ou se fixe sur l'aérosol atmosphérique soumis à la dynamique des écoulements atmosphériques.

Enfin les modèles opérationnels les plus couramment utilisés sont présentés en mettant l'accent sur les hypothèses simplificatrices dont ils découlent.

1.2.1 Dispersion atmosphérique

1.2.1.1 Description des processus de dispersion atmosphérique

1.2.1.1.1 Transport et diffusion

Les éléments radioactifs rejetés dans l'atmosphère sont entraînés dans la direction du vent et dispersés dans la masse d'air sous l'action des phénomènes naturels de brassage atmosphérique : le transport et la diffusion. Ces deux phénomènes sont englobés dans le terme de « dispersion atmosphérique » qui caractérise le devenir dans le temps et dans l'espace d'un ensemble de substances (gaz, aérosols) rejetées

dans l'atmosphère. Le transport se rapporte au déplacement du centre de masse du nuage entre deux instants, tandis que la diffusion correspond au déplacement relatif des volumes élémentaires (bouffées) constituant le nuage par rapport à leur centre de gravité (Crabot, 1996 ; Doury, 1976, 1981 ; Pasquill, 1961, 1974).

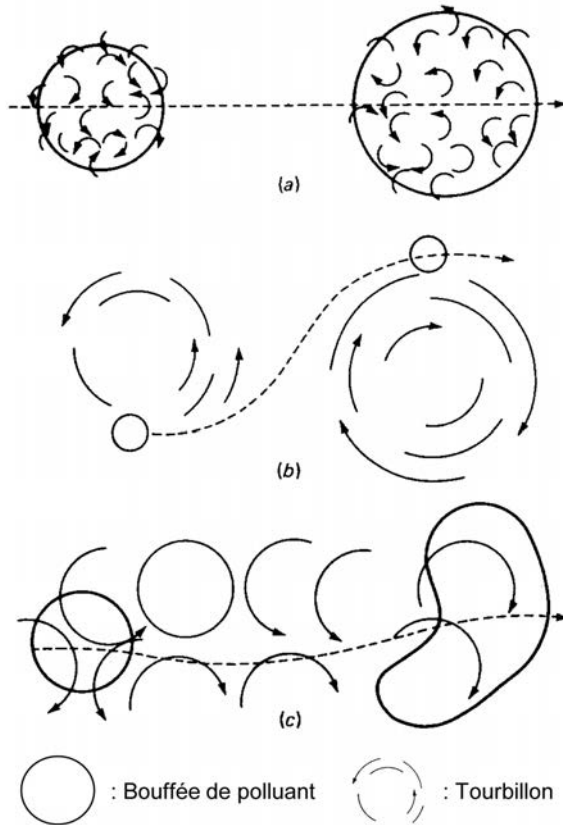


Figure 1.7. Représentation schématique de la dispersion de bouffées de polluant sous l'influence de diverses tailles de tourbillons : (a) : diffusion par petits tourbillons, (b) : transport par grands tourbillons (c) : transport et diffusion par des tourbillons de taille identique à la bouffée (Pal Arya, 2001).

Ces deux processus sont liés aux mouvements atmosphériques dans lesquels on distingue, de façon un peu arbitraire, le vent moyen et la turbulence.

Le premier processus, le transport, est le résultat de la combinaison de la vitesse du vent et des caractéristiques propres du polluant à la sortie de l'émissaire (vitesse, température, densité).

Le second processus, la diffusion, est le résultat des turbulences existantes dans le milieu où évolue le polluant. Ces turbulences ont deux origines : la turbulence pouvant naître à la sortie de l'émissaire et la turbulence de l'atmosphère. Par exemple, des structures turbulentes peuvent être créées par la rupture d'une canalisation de gaz naturel sous pression. Le gaz sort par la brèche à grande vitesse dans l'atmosphère. Le gradient de vitesse régnant à l'interface entre le jet gazeux et l'air ambiant engendre des turbulences extrêmement fortes qui vont, tant que le gaz conserve une forte énergie cinétique, agir sur la diffusion du gaz dans l'air, de façon beaucoup plus efficace que la turbulence de l'atmosphère (Crabot, 1996).

La figure 1.7 donne une représentation schématique de la dispersion d'un polluant sous l'influence de tourbillons de différentes tailles, plus petits, plus larges, et de même taille que la bouffée (Pal Arya, 2001).

Dans l'atmosphère, des tourbillons de toutes tailles coexistent. Des petits tourbillons par rapport à la bouffée provoquent son grossissement par diffusion alors que de gros tourbillons provoquent son transport. Pour des tourbillons de même taille que la bouffée, il y aura la coexistence du transport et de la diffusion.

1.2.1.1.2 Turbulence atmosphérique

1.2.1.1.2.1 *Turbulence et ses échelles*

La turbulence de l'atmosphère est d'une importance fondamentale dans l'étude de la dispersion atmosphérique des polluants (Randerson, 1984). La turbulence atmosphérique peut, par exemple, être illustrée par les fluctuations de la vitesse et de la direction du vent dans l'atmosphère. La turbulence est constituée de mouvements aléatoires dans le temps, que l'on peut caractériser de façon statistique par la représentation spectrale de leur énergie, c'est-à-dire, par la distinction de l'apport d'énergie au mouvement global de chacune des fréquences qui la constituent.

La figure 1.8 montre la représentation spectrale de l'énergie associée aux mouvements horizontaux de l'atmosphère (Van der 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.

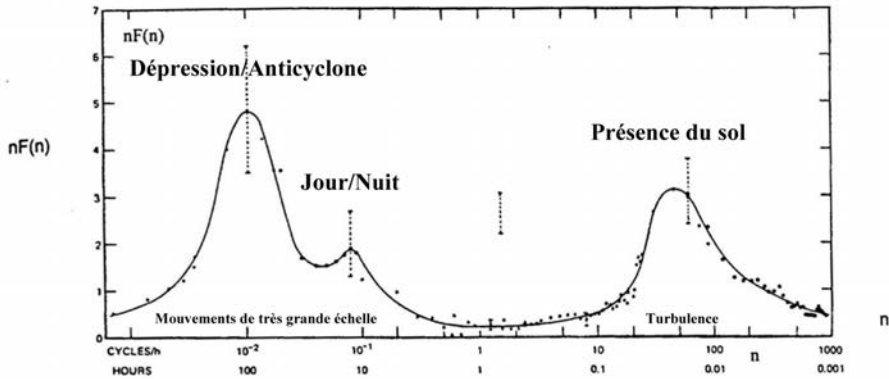


Figure 1.8. Représentation spectrale de la turbulence : spectre typique de la vitesse à l'altitude de 100 m selon Van der Hoven (1957 cité par De Moor, 1996).

La turbulence atmosphérique est engendrée par les forces de flottabilité et le frottement du vent sur le sol (Mestayer, 2007).

La turbulence est une notion permettant de comprendre les échanges verticaux d'énergie ou de constituants, plus communément appelés flux turbulents. Qu'il s'agisse d'émission ou de dépôt de polluant, les processus d'échange biosphère-atmosphère sont essentiellement contraints par la turbulence. 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). Le vent synoptique est l'écoulement d'air généré à grande échelle par une différence de pression de l'atmosphère.

Suivant le postulat de Reynolds une variable atmosphérique X peut être décomposée en une valeur moyenne \overline{X} et une fluctuation turbulente X' :

$$X = \overline{X} + X' \quad 1.1$$

Les trois composantes du vent (u , v , et w) et d'autres grandeurs scalaires telles que la température (T) ou la concentration d'aérosols (C) par exemple peuvent être

décrites par l'équation 1.2. Les outils statistiques tels que la variance et la covariance permettent de quantifier la turbulence.

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

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

L'intensité de la turbulence (I) dans une direction est un indicateur de l'agitation turbulente par rapport au champ cinématique moyen.

$$I = \frac{(\overline{u'^2})^{1/2}}{\overline{U}} \quad 1.3$$

La covariance, qui est le lien entre deux variables X et Y , permet de calculer les flux turbulent (F) :

$$F = CoVar(XY) = \overline{X'Y'} \quad 1.4$$

Le spectre des fluctuations de la vitesse du vent étant illimité mais présentant un « trou d'énergie » aux échelles voisines de 1 heure, c'est cette donnée sur laquelle est généralement définie l'opérateur de moyenne permettant de définir un « vent moyen » dans le processus de dispersion. Le vent moyen peut varier à l'échelle du cycle diurne.

1.2.1.1.2.2 Couche limite et stabilité atmosphérique

La turbulence de petite échelle existe dans une zone située près du sol caractérisée par l'existence de gradients verticaux de vitesse importants. Cette zone est appelée « couche limite atmosphérique » (CLA) par analogie avec celle existant dans l'écoulement d'une soufflerie. Son épaisseur est variable de l'ordre de quelques centaines de mètres à quelques kilomètres (figure 1.9).

De nombreuses définitions de la couche limite ont été proposées selon les aspects, dynamiques, thermodynamiques ou microphysiques, qui étaient privilégiés, d'autant que la frontière entre la CLA et la troposphère libre n'est pas toujours physiquement qualifiable ou observable. On rapproche généralement cette frontière de la (ou les) transition(s) dans le profil vertical de la température, de la vitesse du vent ou de la composante verticale de ses fluctuations. Mais les différences majeures entre la couche limite et l'atmosphère libre sont d'une part la présence de turbulence dans la CLA et d'autre part, les échelles de temps de réaction au forçage terrestre. Alors

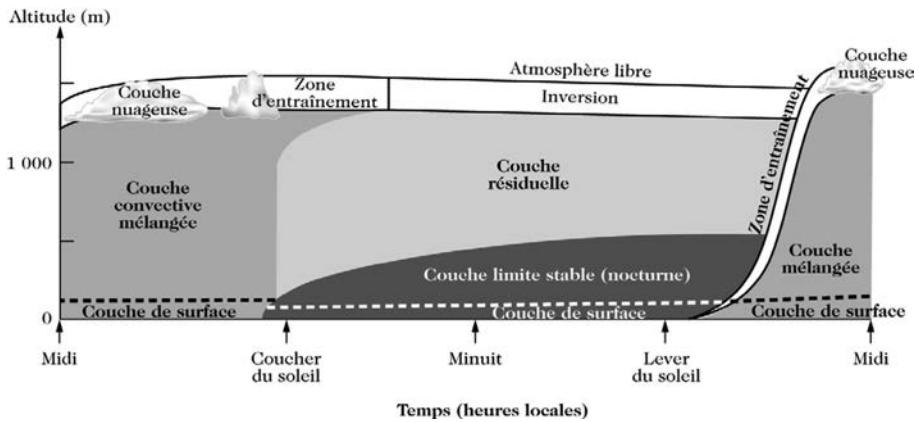


Figure 1.9. Couches d'air composant la couche limite (Stull, 1988 cité par Delmas et al., 2005).

qu'on observe de fortes variations de la température dans la CLA aux échelles du cycle diurne et aux échelles inférieures, on n'observe que de faibles variations diurnes dans la troposphère libre. On peut donc suivre la définition proposée par Stull (1988) : la couche limite est cette partie de la troposphère qui est directement influencée par la présence de la surface terrestre et qui répond aux forçages de la surface à des échelles de temps de l'ordre de l'heure.

Dans la CLA, 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 : 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 $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$). La surface terrestre est alors 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 appelée alors couche convective mélangée.

Lorsque le vent augmente ainsi que la nébulosité, l'atmosphère est en condition de stabilité neutre. 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 conditions stables (ou stratifiées) 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. De nuit, le sol est plus froid 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). La figure 1.9 schématise l'évolution de l'altitude des différentes couches d'air composant la CLA pendant 24 heures ; on remarque notamment une couche stable nocturne. Le développement de la couche limite atmosphérique dépend alors de la stabilité atmosphérique.

1.2.1.1.2.3 Couche de surface ou couche à flux constant

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 et Dutton, 1984), comme on peut le voir sur la figure 1.9.

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 et 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.

Le profil vertical des composantes horizontales de vitesse du vent 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. En condition neutre, le profil vertical du vent horizontal suit une loi logarithmique qui dépend de la rugosité de la surface :

$$U(z) = \frac{u_*}{\kappa} \ln \left[\frac{z-d}{z_0} \right] \quad 1.5$$

avec :

- $U(z)$: vitesse du vent horizontal à l'altitude z (m.s^{-1}) ;
- κ : constante de Von Karman ($\sim 0,4$) ;
- u_* : vitesse de frottement du vent (m.s^{-1}) ;
- d : hauteur de déplacement (m) ;
- z_0 : longueur de rugosité (m).

La vitesse du vent s'annule théoriquement à l'altitude $z = z_0 + d$. Dans les cas de couvert de quelques centimètres de hauteur, on prend généralement d égal à 0. 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 (1954).

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 entre g l'accélération de la pesanteur ($m.s^{-2}$) et la température de référence T_0 (K), et la masse volumique de l'air (ρ). Pour adimensionner les grandeurs, on définit les échelles de vitesse, de température (ou de scalaire) et de longueur :

- L'échelle de vitesse, u_* ou vitesse de frottement du vent, qui est directement reliée au flux de quantité de mouvement à la surface et à la contrainte de cisaillement turbulent τ_0 , avec :

$$u_* = \left[\frac{\tau_0}{\rho} \right]^{\frac{1}{2}} = \left[\frac{\rho \overline{u'w'}}{\rho} \right]^{\frac{1}{2}} = \sqrt{-\overline{u'w'}} \quad 1.6$$

où u' et w' correspondent aux fluctuations turbulentes des composantes horizontale et verticale 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_0) :

$$T_* = -\frac{H_0}{\rho C_p u_*} \quad \text{avec} \quad H_0 = \rho C_p \overline{w'T'} \quad 1.7$$

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, 1996). L s'exprime de la façon suivante :

$$L = \frac{u_*^2}{\kappa \left(\frac{g}{T_0} \right) T_*} = \frac{-u_*^3}{\kappa \left(\frac{g}{T_0} \right) \overline{w'T'}} \quad 1.8$$

avec $\frac{g}{T_0}$ paramètre de flottabilité.

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

Pour $H_0 = 0$ (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 1.10 représente la relation entre la Longueur de Monin-Obukhov et la longueur de rugosité pour différentes classes de Pasquill (Myrup et Ranzieri, 1976 cité par Seinfeld et Pandis, 1998).

Pasquill (cf. chapitre 1.2.1.2) 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.

D'autres échelles peuvent être définies lorsque d'autres scalaires (C) sont étudiés, comme les concentrations de gaz (CO_2 , ozone...) ou d'aérosols :

$$C_* = -\frac{\overline{w'C'}}{u_*} \quad 1.9$$

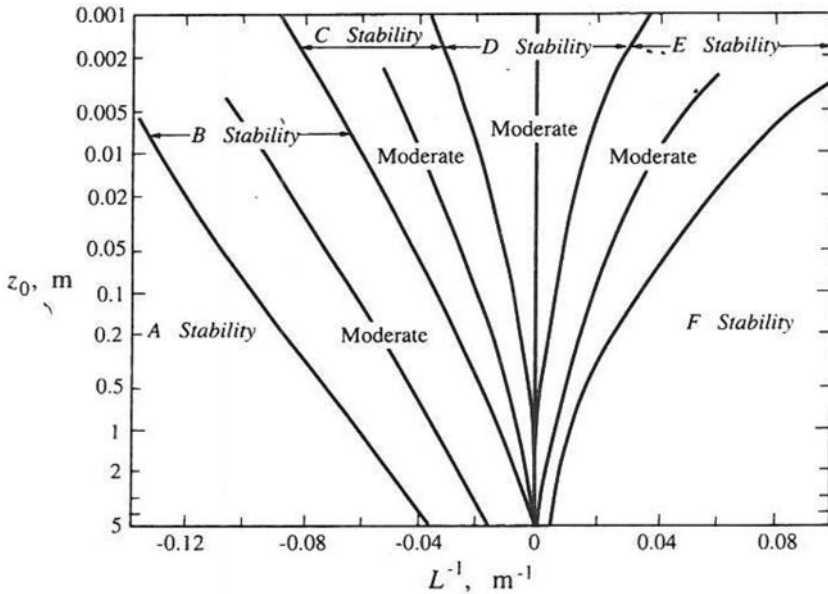


Figure 1.10. Longueur de rugosité en fonction de l'inverse de la Longueur de Monin-Obukhov pour différentes classes de Pasquill (Myrup et Ranzieri, 1976 cité par Seinfeld et Pandis, 1998).

La turbulence induit un mélange, donc un transfert de matière ou de propriété transportable d'une zone plus concentrée vers une zone moins concentrée. De ce fait, Boussinesq (1877 cité par Mestayer, 2007), s'est appuyé sur l'analogie entre l'agitation turbulente et l'agitation moléculaire pour proposer une hypothèse de proportionnalité entre les flux et les gradients moyens en faisant apparaître des coefficients d'échange turbulent pour la quantité de mouvement K_m et la chaleur K_h . Il en va de même pour l'humidité de l'air (flux d'humidité, échelle de longueur de rugosité pour l'humidité) mais nous n'avons pas utilisé cette notion dans la suite de ce document. L'hypothèse sera étendue au scalaire K_c :

$$\overline{u'w'} = -K_m \frac{\partial U}{\partial z} \quad 1.10$$

$$\overline{w'T'} = -K_h \frac{\partial T}{\partial z} \quad 1.11$$

$$\overline{w'c'} = -K_c \frac{\partial C}{\partial z} \quad 1.12$$

D'après Monin et Obukhov, les gradients adimensionnés sont des fonctions du paramètre $\zeta = z/L$. Les gradients adimensionnés de la vitesse horizontale du vent, de la température et de tout autre scalaire passif C s'écrivent de façon générale :

$$\varphi_m(\zeta) = \frac{\kappa(z-d)}{u_*} \frac{\partial U}{\partial z} \quad 1.13$$

$$\varphi_h(\zeta) = \frac{\kappa(z-d)}{T_*} \frac{\partial T}{\partial z} \quad 1.14$$

$$\varphi_c(\zeta) = \frac{\kappa(z-d)}{C_*} \frac{\partial C}{\partial z} \quad 1.15$$

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 (Dyer, 1974 ; Kaimal et Finnigan, 1994).

Par exemple, l'intégration de ces relations entre z_0 (longueur de rugosité) et z permet d'obtenir les profils verticaux de la vitesse ou de la température :

$$U(z) = \frac{u_*}{\kappa} \left[\ln \left[\frac{z-d}{z_0} \right] - \psi_m(\zeta) \right] \quad 1.16$$

$$T(z) - T(z_0) = \frac{\alpha T_*}{\kappa} \left[\ln \left[\frac{z-d}{z_0} \right] - \psi_h(\zeta) \right] \quad 1.17$$

où α est une constante comprise entre 0,9 et 1.

Il en va de même pour les profils scalaires (C) comme l'humidité (q).

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 1.11) : le domaine de production de l'énergie (faibles et moyennes fréquences) ; le sous-domaine inertiel, qui correspond à un transfert d'énergie vers les hautes fréquences ; le domaine dissipatif où l'agitation turbulente se dissipe en agitation moléculaire.

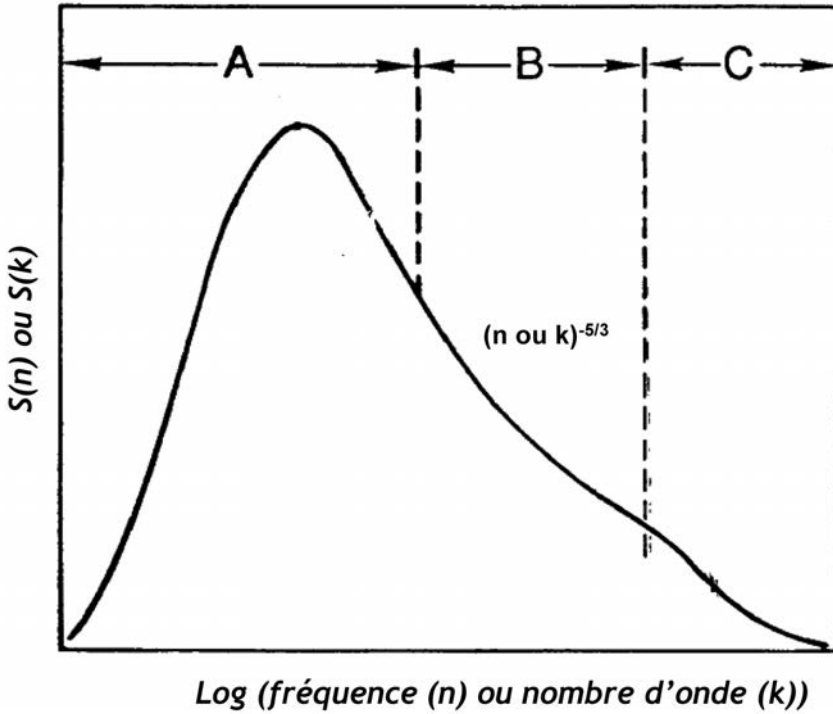


Figure 1.11. Spectre d'énergie de la turbulence atmosphérique indiquant le domaine de production d'énergie A, le sous domaine inertiel B et le domaine de dissipation C en fonction de la fréquence n ou du nombre d'onde $k = 2\pi n/U$ (Kaimal et Finnigan, 1994).

La zone inertielle 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 $-5/3$ (Kolmogorov, 1942 ; Kaimal et Finnigan, 1994). La représentation du spectre d'énergie couramment utilisée est de la forme $\log(nS(n))$ en fonction de $\log(n)$, le domaine inertiel étant alors représenté par une droite de pente $-2/3$. En effet, cette représentation présente l'avantage de faire apparaître plus nettement la limite inférieure de la zone inertielle puisqu'elle correspond alors au maximum de la courbe. 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 *et al.*, 1982) :

$$f = \frac{n(z-d)}{U} \quad 1.18$$

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 1.12 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 et Finnigan (1994).

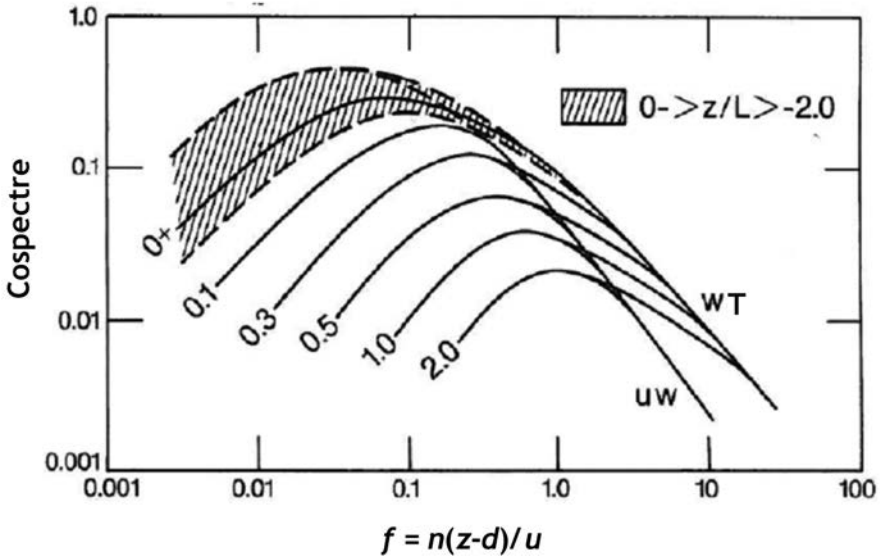


Figure 1.12. Cospectres théoriques de la quantité de mouvement et du flux de chaleur sensible dans la couche de surface en fonction de la fréquence adimensionnée atmosphérique (Kaimal et Finnigan, 1994).

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

Si nous notons $Co_{wc}(n)$ le cospectre de la vitesse verticale du vent et de la quantité scalaire, le flux peut être écrit sous la forme :

$$F = \overline{w'c'} = \int_{n_0}^{n_f} Co_{wc}(n) dn \quad 1.19$$

où n_0 est la fréquence la plus faible pouvant être mesurée sur un échantillonnage d'une durée t . Généralement la durée d'échantillonnage est d'une demi-heure, n_0 est donc d'environ 10^{-3} Hz. De même n_f correspond au seuil de réponse spectrale des appareils de mesure. Ce seuil doit être au minimum de 10 Hz pour être compatible avec l'échelle de la turbulence atmosphérique. Si l'on porte dans un diagramme le terme $nCo_{wc}(n)$ en fonction du logarithme de la fréquence n , la covariance $\overline{w'c'}$ est représentée par la surface comprise sous la courbe (équation 1.20).

$$F = \int_{\log(n_0)}^{\log(n_f)} nCo_{wc}(n)d(\log(n)) \quad 1.20$$

1.2.1.2 Modélisation opérationnelle gaussienne de la dispersion atmosphérique

1.2.1.2.1 Bases de la formulation gaussienne

Plusieurs types de modèles de dispersion atmosphérique ont été développés parmi lesquels les modèles opérationnels de type gaussiens (figure 1.13). Il ne sera traité ici que des performances des modèles statistiques car ils ont été utilisés dans ce document, contrairement aux modèles déterministes.

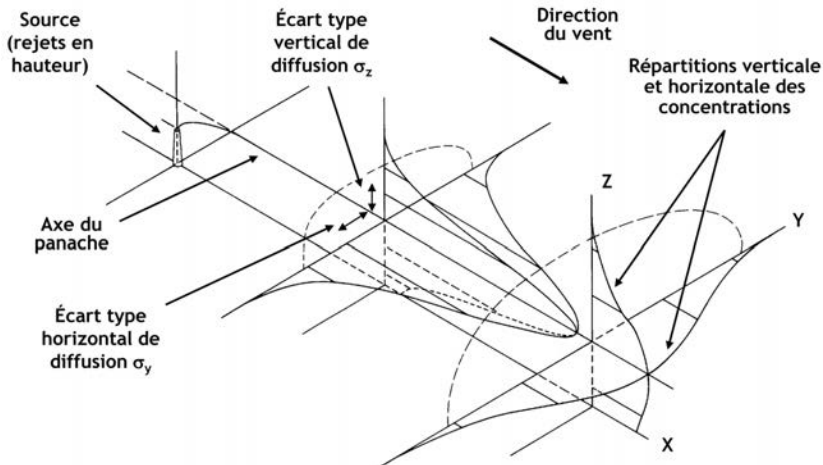


Figure 1.13. Schématisation de la dispersion d'un polluant à l'aide d'un panache gaussien.

Les principaux modèles gaussiens existant sont basés sur les écarts types de Pasquill (1974) et de Briggs (1973), fonction de la distance à la source, ou de Doury (1976),

fonction du temps de transit du panache. Néanmoins, des modèles dits de seconde génération existent comme le modèle ADMS 4.0 (CERC, 2009). Ce modèle utilise un préprocesseur permettant de calculer précisément les paramètres météorologiques de la couche limite atmosphérique.

Les modèles gaussiens de dispersion sont basés sur la résolution, selon certaines hypothèses, de l'équation générale du transport diffusion d'un gaz passif en milieu turbulent. Ce gaz suit, sans les influencer, les mouvements de l'air environnant. C'est le cas, par exemple, du ^{85}Kr rejeté par l'usine de retraitement des combustibles irradiés de La Hague (cf. chapitre 1.3.2).

L'équation générale de transport diffusion d'un gaz passif en milieu turbulent est la suivante (Crabot, 1996 ; Mestayer, 2007 ; Seinfeld et Pandis, 1998) :

$$\frac{\partial \bar{C}}{\partial t} = - \frac{\partial \bar{C} \bar{U}_i}{\partial x_i} + \frac{\partial \overline{(-c' u_i')}}{\partial x_i} + S \quad 1.21$$

avec :

- \bar{C} : concentration volumique moyenne à l'instant t et au point de coordonnées x_i ($i = x, y, z$) ;
- \bar{U}_i : vitesse moyenne dans la direction i ;
- c' : fluctuation de la concentration ;
- u_i' : fluctuation de la vitesse ;
- S : terme source ou puits présent dans le volume élémentaire de dimension ∂x_i .

Cette équation exprime le fait que la variation de concentration $\partial \bar{C}$ pendant un intervalle de temps ∂t est égale à la différence entre les flux moyens et les flux turbulents entrant et sortant dans un volume élémentaire, plus l'apport ou le retrait éventuel par des sources ou des puits dans le même volume.

Cette équation admet une solution analytique dans les conditions suivantes :

- les vitesses \bar{U}_i sont uniformes dans l'espace (en pratique l'axe des x est pris parallèle à la direction du vent moyen et la seule composante \bar{U}_x n'est pas nulle) ;
- la diffusion dans la direction i est proportionnelle au gradient de concentration dans la même direction ; soit $\overline{(-c' u_i')} = K_i \frac{\partial \bar{C}}{\partial x_i}$ et le coefficient d'échange turbulent K_i est indépendant du point considéré dans l'espace (turbulence homogène).

Avec ces hypothèses la solution analytique sera de type gaussien.

1.2.1.2.2 Cas d'une émission instantanée

Dans le cas d'une émission instantanée d'une quantité Q , la solution de l'équation est la suivante :

$$C(x, y, z, t) = \frac{QF_a}{(2\pi)^{3/2} \sigma_x \sigma_y \sigma_z} \times \exp \left[-\frac{(x - x_0 - \bar{U}t)^2}{2\sigma_x^2} - \frac{(y - y_0)^2}{2\sigma_y^2} - \frac{(z - z_0)^2}{2\sigma_z^2} \right] \quad 1.22$$

avec :

- Q : quantité totale de polluant libérée ;
- x, y, z : coordonnées du point d'observation (x pris dans le sens du vent moyen y transversalement et z verticalement) ;
- x_0, y_0, z_0 : coordonnées du point de rejet ;
- \bar{U} : vitesse moyenne du vent ;
- t : temps écoulé depuis l'émission.
- $\sigma_x, \sigma_y, \sigma_z$: écarts types de la distribution gaussienne de la quantité Q par rapport à sa localisation moyenne à l'instant t . Ces écarts types sont liés aux coefficients d'échange turbulent \hat{K}_i , par la relation d'Einstein $\sigma_i^2 = 2\hat{K}_i t$ avec $\hat{K}_i = \frac{1}{t} \int_0^t K_i dt$. Le fait que le coefficient d'échange turbulent dépende du temps de transfert traduit le fait que ce ne sont pas les mêmes turbulences qui, à chaque instant, agissent de façon efficace sur le diffusion du nuage (cf. chapitre 1.2.1.1.1).
- Si \hat{K}_i atteint une valeur constante, cela signifie que les plus gros tourbillons existants participent au processus de diffusion (Crabol, 1996). Dans l'atmosphère un tel fait n'arrive qu'au bout d'un temps de transfert extrêmement long en direction horizontale et très largement supérieur aux durées considérées, on admet alors que $\sigma_x = \sigma_y = \sigma_z$;
- F_a : terme d'appauvrissement de la concentration dans l'air (dépôts secs et humides, décroissance radioactive, réactivité chimique...).

Les écarts types de la diffusion ont la dimension d'une longueur. Selon la loi de Gauss, ils donnent l'écart en distance par rapport au centre de masse du point où la concentration est environ 0,6 fois la valeur maximale du centre de masse. Les principales formulations des écarts types de la diffusion atmosphérique utilisés sont ceux de Doury en France et de Pasquill/Briggs dans le monde anglo-saxon. La principale différence entre ces deux formulations est que les écarts types de Doury dépendent du temps écoulé depuis l'émission et les écarts types de Pasquill dépendent de la distance à la source.

Pasquill (1961) a proposé six classes de stabilité correspondant à autant de formulations des coefficients de dispersion. Ces classes sont déterminées à partir de deux observations généralement disponibles dans les stations météorologiques pour la journée et pour la nuit : la vitesse du vent à 10 m de hauteur, et la couverture nuageuse exprimée en octants. Le tableau 1.2 définit les six classes notées de A stratification très instable, forte dispersion à F stratification très stable, faible dispersion.

Tableau 1.2. Classes de Pasquill en fonction de la vitesse du vent à 10 m et de la couverture nuageuse.

	Jour	Jour	Jour	Nuit	Nuit
Vent à 10 m (m/s)	Insolation forte	Insolation modérée	Insolation faible	Nébulosité > 4 octa	Nébulosité ≤ 3 octa
< 2	A	A-B	B	F	F
2-3	A-B	B	C	E	F
3-5	B	B-C	C	D	E
5-6	C	C-D	D	D	D
> 6	C	D	D	D	D

1.2.1.2.3 Cas d'une émission prolongée

Une émission prolongée, quelques heures, peut être assimilée à une suite d'émissions ponctuelles instantanées (cf. chapitre 1.2.1.2.2). Ce rejet se traduit par une série de bouffées successives dont les effets s'ajoutent en chaque point de l'espace. La concentration C_j , à l'instant t au point de coordonnées x, y, z , de la bouffée j a pour expression :

$$C_j(x, y, z, t) = \frac{Q_j F_a}{(2\pi)^{3/2} \sigma_h^2 \sigma_z} \times \exp \left[-\frac{(x - x_0 - \overline{U}\theta_j)^2}{2\sigma_h^2} - \frac{(y - y_0)^2}{2\sigma_h^2} - \frac{(z - z_0)^2}{2\sigma_z^2} \right] \quad 1.23$$

avec :

- Q_j : quantité de polluant contenue dans la bouffée de rang j ;
- θ_j : temps de transit de la bouffée j (date de l'observation – date de la naissance).

La quantité totale Q de polluant émis étant $\sum_j Q_j$, la concentration au point d'observation (x, y, z) est :

$$C(x, y, z, t) = \sum_j C_j \quad 1.24$$

Cette méthode est dite à « bouffées gaussiennes ».

Si la concentration ne dépend pas du temps ($\frac{\partial C}{\partial t} = 0$) et si le flux de polluant transporté par le vent est grand devant le flux turbulent dans la même direction ($\overline{C\overline{U}} \gg \overline{c'u_x'}$), en pratique, vitesse supérieure ou égale à 2 m.s⁻¹, on obtient dans ce cas la solution dite de « panache gaussien » :

$$C(x, y, z) = \frac{q}{(2\pi)\overline{U}\sigma_h\sigma_z} \exp\left[-\frac{(y-y_0)^2}{2\sigma_h^2} - \frac{(z-z_0)^2}{2\sigma_z^2}\right] \quad 1.25$$

où q est le débit de rejet.

À l'aide de cette équation, le « coefficient de transfert atmosphérique » (CTA) peut s'exprimer de la façon suivante :

$$CTA(x, y, z, x_0, y_0, z_0, \text{météo}) = \frac{\int_0^{\infty} C dt}{Q} = \frac{1}{(2\pi)\overline{U}\sigma_h\sigma_z} \times \exp\left[-\frac{(y-y_0)^2}{2\sigma_h^2} - \frac{(z-z_0)^2}{2\sigma_z^2}\right] \quad 1.26$$

En règle générale, cette équation, dite panache gaussien, est applicable pour des vitesses de vent supérieures ou égales à 2 m.s⁻¹ convergent ainsi avec l'équation dite à bouffées gaussiennes.

Son intérêt est qu'elle est beaucoup plus simple à mettre en œuvre puisqu'elle ne nécessite aucune intégration (Crabot, 1996 ; Mestayer, 2007 ; Seinfeld et Pandis, 1998).

Un exemple de calcul d'évolution du CTA en fonction de la distance à la source pour des situations convectives, neutres et stables est donné figure 1.14 en milieu rural (Briggs, 1973).

Les CTA sont environ un ordre de grandeur plus grand en classe F qu'en classe D, eux-mêmes, un ordre de grandeur plus grand qu'en classe A.

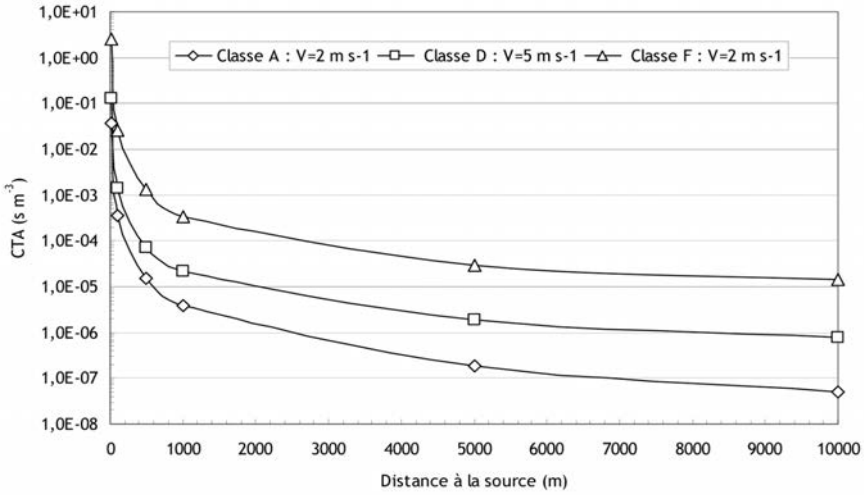


Figure 1.14. CTA en fonction de la distance à la source pour des situations convectives, neutres et stables.

1.2.1.2.4 Prise en compte de phénomènes particuliers

1.2.1.2.4.1 Réflexion sur le sol et la couche de mélange

La diffusion verticale du polluant est confinée à l'intérieur d'une couche, dite couche de mélange, limitée en bas par le sol et en haut par la base de l'inversion de température d'altitude (altitude à partir de laquelle s'observe une augmentation verticale du gradient vertical de température). Il est admis classiquement que ces deux limites jouent, en absence de dépôt au sol, le rôle de miroirs parfaits qui réfléchissent entièrement la pollution à l'intérieur de la couche de mélange (Crabot, 1996). Dans le cas de nos études de dispersion en champ proche d'une installation (cf. chapitre 1.3), il n'est pas nécessaire de calculer la réflexion sur la couche de mélange car pour des temps de transfert assez faibles, inférieurs à l'heure, le panache n'a pas le temps d'atteindre cette couche. Par contre, il est important de prendre en compte la présence du sol, en supposant que le sol joue le rôle d'un miroir parfait : on ajoute alors une source virtuelle à la source réelle, symétrique de celle-ci par rapport à la surface du sol :

$$CTA(x, y, z, x_0, y_0, z_0, \text{météo}) = \left\{ \frac{1}{(2\pi) \overline{U} \sigma_h \sigma_z} \exp\left[-\frac{(y-y_0)^2}{2\sigma_h^2}\right] \right\} \times \left\{ \exp\left[-\frac{(z-z_0)^2}{2\sigma_z^2}\right] + \exp\left[-\frac{(z+z_0)^2}{2\sigma_z^2}\right] \right\} \quad 1.27$$

1.2.1.2.4.2 Dépôt sec et dépôt humide

Le dépôt sec en absence de précipitation, et le dépôt humide par les précipitations conduisent à un appauvrissement du panache au cours du temps. La fraction restante F_a au bout d'un temps t , différence entre la quantité émise dans l'atmosphère et la quantité déposée rapportée à la quantité émise, est donnée par (Crabot, 1996 ; Doury, 1981) :

$$F_a = \exp\left(-V_d \sqrt{\frac{2}{\pi}} \int_0^t \frac{1}{\sigma_z(t)} \exp\left[-\frac{z_0^2}{2\sigma_z^2(t)}\right] dt\right) + \exp(-\Lambda t) \quad 1.28$$

Dans cette équation, le premier terme correspond au terme d'appauvrissement dû au dépôt sec et le second à l'appauvrissement dû au dépôt humide. Le dépôt sec est représenté par sa vitesse de dépôt V_d (m.s^{-1}) et le dépôt humide par son coefficient de rabattement Λ (s^{-1}). Une description précise de ces paramètres sera donnée au chapitre 1.2.2.1.

1.2.1.2.5 Modèles gaussiens utilisés dans le cadre de nos études

1.2.1.2.5.1 Modèle de Briggs

Les écarts types de Briggs (1973) sont issus d'une synthèse de trois formulations, Pasquill-Gifford, Tennessee Valley Authority (TVA) et Brookhaven (BNL), déduites de campagnes expérimentales menées sur des zones rurales en terrains plats ou légèrement vallonnés (Barad, 1958 ; Carpenter *et al.*, 1971 ; Singer et Smith, 1966), présentant des différences importantes en termes de hauteur et de température de rejet, de temps d'échantillonnage, de distance de mesure et de caractérisation des conditions de stabilité.

Ses travaux ont abouti à de nouvelles formulations des écarts types caractéristiques de terrains quasi plats et dégagés, notées Briggs-rural. Les écarts types sont de la forme :

$$\sigma_{y,z} = ax(1 + bx)^c \quad 1.29$$

avec x la distance au rejet et a , b , et c des coefficients qui dépendent des conditions de stabilité selon la classification de Pasquill (tableau 1.3 et figure 1.15).

Pour les distances inférieures à 10 000 m, les travaux de Briggs se réfèrent aux courbes de Pasquill-Gifford sauf dans le calcul de σ_z pour les classes de stabilité A et B, où ils se réfèrent aux courbes de BNL (Griffiths, 1994).

D'après Gifford (1976), les équations de Briggs sont les formules d'interpolation les plus simples qui donnent les approximations les plus raisonnables pour évaluer le maximum de concentration au sol lors de rejet en hauteur et en terrain plat.

Tableau 1.3. Formulations de Briggs des écarts types de dispersion en milieu rural (Briggs-rural) pour des distances comprises entre 100 et 10 000 m.

Classe de Pasquill	σ_y (m)	σ_z (m)
A	$0,22 x (1 + 0,0001 x)^{-0,5}$	$0,20 x$
B	$0,16 x (1 + 0,0001 x)^{-0,5}$	$0,12 x$
C	$0,11 x (1 + 0,0001 x)^{-0,5}$	$0,08 x (1 + 0,0002 x)^{-0,5}$
D	$0,08 x (1 + 0,0001 x)^{-0,5}$	$0,06 x (1 + 0,0015 x)^{-0,5}$
E	$0,06 x (1 + 0,0001 x)^{-0,5}$	$0,03 x (1 + 0,0003 x)^{-1}$
F	$0,04 x (1 + 0,0001 x)^{-0,5}$	$0,016 x (1 + 0,0003 x)^{-1}$

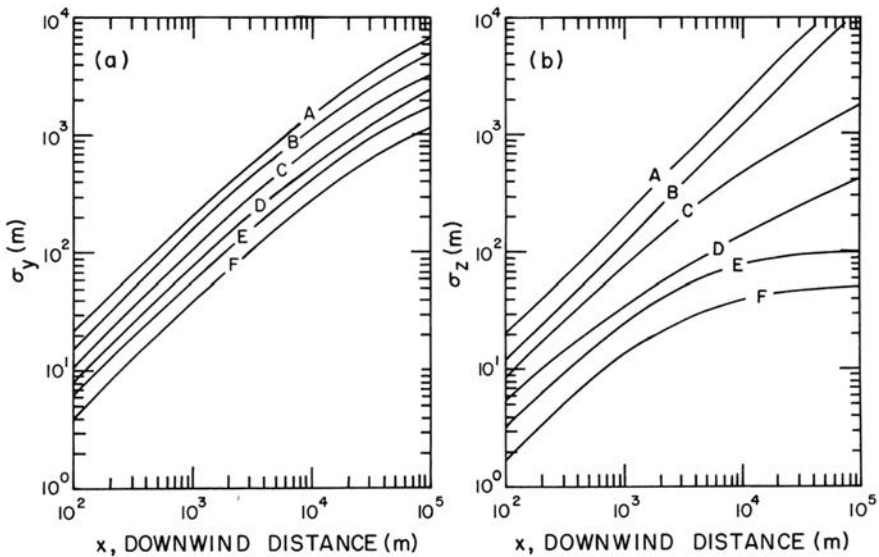


Figure 1.15. Écarts types de dispersion horizontale établis par Briggs pour un milieu rural (Briggs-rural) en fonction de la stabilité selon les classes de Pasquill (Gifford, 1976).

Dans le cas du milieu urbain, Briggs (1973) a proposé des interpolations similaires pour la détermination des écarts types horizontaux et verticaux basés sur les travaux de McElroy et Pooler's (1968) issus des expérimentations menées dans la ville de Saint-Louis (tableau 1.4 et figure 1.16) (USA). Cette paramétrisation est notée Briggs-urbain.

Tableau 1.4. Formulations de Briggs des écarts types de dispersion en milieu urbain (Briggs-urbain) pour des distances comprises entre 100 et 10 000 m.

Classe de Pasquill	σ_y (m)	σ_z (m)
A-B	$0,32 x (1 + 0,0004 x)^{-0,5}$	$0,24 x (1 + 0,001 x)^{0,5}$
C	$0,22 x (1 + 0,0004 x)^{-0,5}$	$0,20 x$
D	$0,16 x (1 + 0,0004 x)^{-0,5}$	$0,14 x (1 + 0,0003 x)^{-0,5}$
E-F	$0,11 x (1 + 0,0004 x)^{-0,5}$	$0,08 x (1 + 0,0015 x)^{-0,5}$

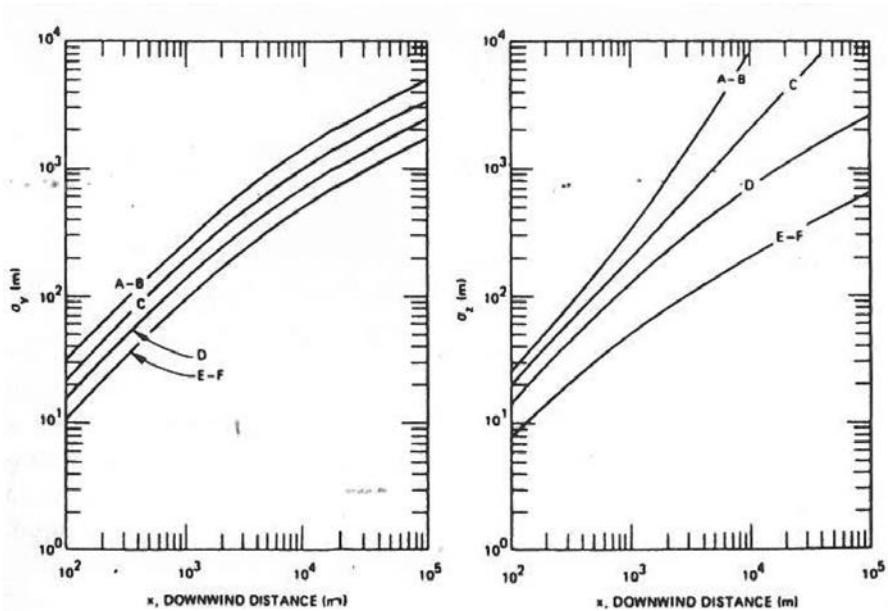


Figure 1.16. Écart types de dispersion horizontale établis par Briggs pour le milieu urbain (Briggs-urbain) en fonction de la stabilité selon les classes de Pasquill (Gifford, 1976).

1.2.1.2.5.2 Modèle de Doury

Les formulations de Doury (1976) ont été établies à partir de résultats de plusieurs campagnes de mesure (Hage *et al.*, 1966 ; Le Quinio et Hugon, 1963 ; Le Quinio 1964 ; Bovard *et al.*, 1968 ; Doury, 1976 ; Facy *et al.*, 1962). Les écarts types de Doury sont fonctions du temps de transfert et de la stabilité atmosphérique (figure 1.17) (Doury, 1976 ; Doury, 1981).

Il n'y a que deux classes de stabilité : la diffusion normale et la diffusion faible, définies respectivement par un gradient vertical de température inférieur ou égal à $-0,5$ °C/100 m et supérieur à $-0,5$ °C/100 m. La diffusion normale correspond à

des conditions atmosphériques dites neutres ou instables et la diffusion faible est équivalente à des conditions de forte stabilité atmosphérique (classes E et F selon Pasquill).

Les écarts types sont de la forme :

$$\sigma_y = (A_h t)^{K_h} \quad 1.30$$

$$\sigma_z = (A_z t)^{K_z} \quad 1.31$$

avec A_h et A_z les paramètres de diffusion horizontale et verticale, et K_h et K_z les exposants de diffusion horizontale et verticale. Les valeurs de A_h , A_z , K_h et K_z sont données en fonction du temps de transfert de la masse d'air pour la diffusion normale (tableau 1.5) et la diffusion faible (tableau 1.6).

Seule la distribution verticale est affectée par la stabilité atmosphérique (Doury, 1981).

Tableau 1.5. Coefficients relatifs aux écarts types de dispersion en condition de diffusion normale.

Temps de transfert (s)	A_h ($m^{1/k}.s^{-1}$)	A_z ($m^{1/k}.s^{-1}$)	K_h (sans dim.)	K_z (sans dim.)
$0 < t < 240$	0,405	0,42	0,859	0,814
$240 < t < 3\ 280$	0,135	1,00	1,130	0,685
$3\ 280 < t < 97\ 000$	0,135	20,0	1,130	0,500
$97\ 000 < t < 508\ 000$	0,463	20,0	1,000	0,500
$508\ 000 < t < 1\ 300\ 000$	6,50	20,0	0,824	0,500
$t > 1\ 300\ 000$	$2,10^5$	20,0	0,500	0,500

Tableau 1.6. Coefficients relatifs aux écarts types de dispersion en condition de diffusion faible.

Temps de transfert (s)	A_h ($m^{1/k}.s^{-1}$)	A_z ($m^{1/k}.s^{-1}$)	K_h (sans dim.)	K_z (sans dim.)
$0 < t < 240$	0,405	0,20	0,859	0,500
$240 < t < 97\ 000$	0,135	0,20	1,130	0,500
$97\ 000 < t < 508\ 000$	0,463	0,20	1,000	0,500
$508\ 000 < t < 1\ 300\ 000$	6,50	0,20	0,824	0,500
$t > 1\ 300\ 000$	$2,10^5$	0,20	0,500	0,500

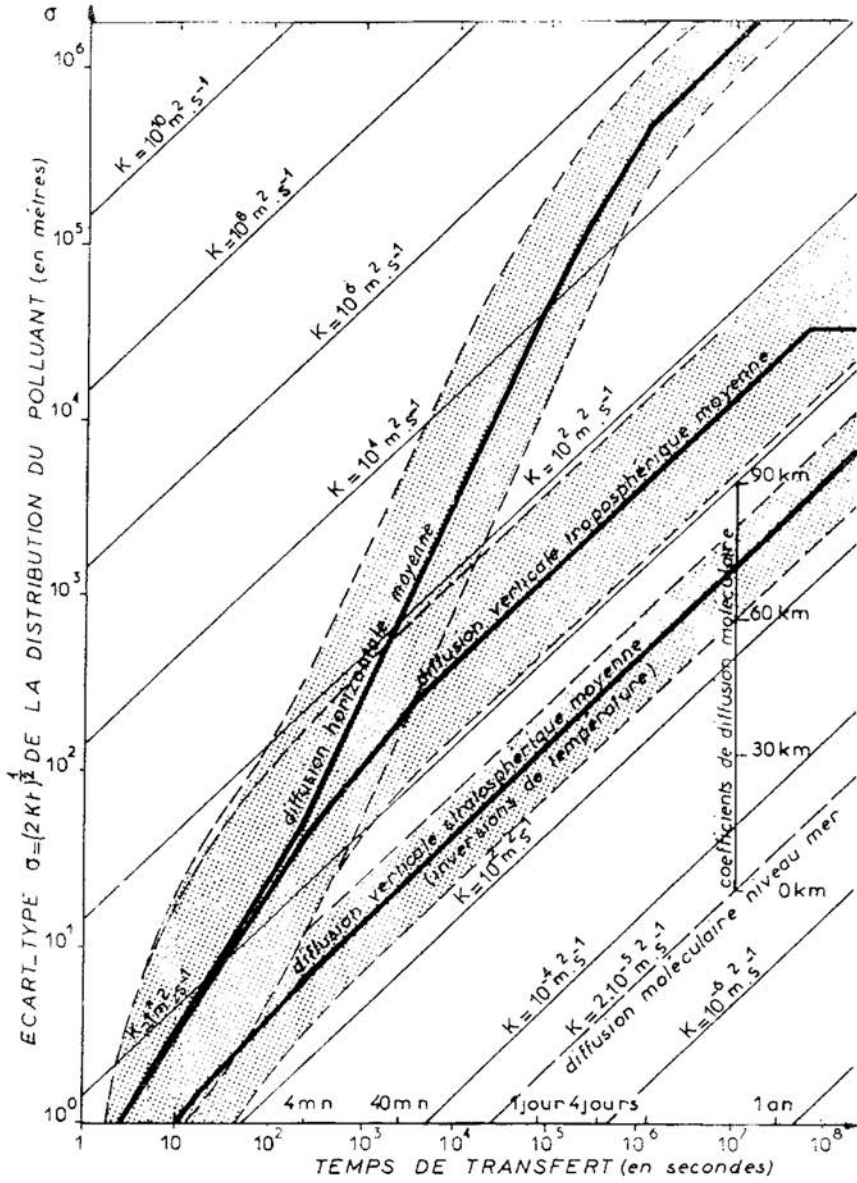


Figure 1.17. Écarts types de dispersion horizontale et verticale établis par Doury (1976).

1.2.1.2.5.3 Modèle ADMS 4.0

ADMS 4.0 est un modèle de dispersion gaussienne développé par le Cambridge Environmental Research Center (CERC), capable de déterminer la dispersion dans

l'atmosphère de rejets industriels ou faire des prévisions de la qualité de l'air (Carruthers *et al.*, 1994). Le modèle utilise un pré-processeur météorologique permettant de calculer les paramètres de la couche limite atmosphérique : hauteur (h) et longueur de Monin-Obukhov (L) (CERC, 2009). Ces paramètres sont utilisés pour définir les profils verticaux de vent et de turbulence selon la stabilité atmosphérique. ADMS 4.0 utilise une distribution gaussienne de concentration pour calculer la dispersion des rejets en condition stable et neutre (Hunt, 1985 ; Weil, 1985) et une distribution oblique dans le cas de conditions convectives (Carruthers *et al.*, 2009a ; Lamb, 1982). Par ailleurs, il possède plusieurs modules permettant de prendre en considération l'effet du bâti, de la topographie et de l'occupation du sol sur la dispersion et/ou la trajectoire du panache (Carruthers *et al.*, 2009b ; Jackson et Hunt, 1975).

Les écarts types de dispersion dépendent de la turbulence atmosphérique, de la hauteur de rejet, z_0 , et du temps de transfert, t , depuis la source :

$$\sigma_z = \sigma_w t \left[\frac{1}{b^2} + \frac{N^2 t^2}{1 + 2Nt} \right]^{-1/2} \quad 1.32$$

avec σ_w l'écart type de la vitesse verticale, b un paramètre fonction du rapport z_0/h et de la vitesse de friction u_* et N la fréquence de Brunt Vaisala :

$$N = \left[\frac{g}{\theta} \frac{\partial \theta}{\partial z} \right]^{-1/2} \quad 1.33$$

où θ est la température potentielle et g l'accélération de la pesanteur. La fréquence de Brunt Vaisala correspond à l'oscillation verticale d'une parcelle d'air dans l'atmosphère stratifiée.

Le paramètre de dispersion horizontale est calculé selon :

$$\sigma_y^2 = \sigma_{yt}^2 + \sigma_{yw}^2 \quad 1.34$$

avec :

$$\sigma_{yt} = \sigma_v t \left[1 + 2,5 \frac{u_* t}{h} \right]^{-1/2} \quad 1.35$$

et

$$\sigma_{yw} = \sigma_{\theta} x \quad 1.36$$

où σ_v est l'écart type horizontal de la direction moyenne du vent et σ_{θ} est l'écart type vertical de la direction moyenne du vent qui est soit défini en entrée parmi les paramètres météorologiques, soit calculée par le pré-processeur météorologique selon :

$$\sigma_{\theta} = \frac{\sigma_w}{u_{10}} = 0,065 \sqrt{\frac{7T}{u_{10}}} \quad 1.37$$

où T est le temps d'intégration en heure et u_{10} , la vitesse moyenne du vent à 10 m (Weil, 1985 ; Hunt 1985).

En condition instable, ADMS applique une distribution de la concentration oblique et non gaussienne. L'algorithme de calcul utilisé dans ce cas a été développé à partir des travaux de Briggs (1985) et de Lamb (1982).

Dans une couche limite convective, la hauteur à laquelle la concentration est maximale dans le panache diminue pendant le transport du panache alors que l'épaisseur moyenne du panache augmente. Une fois que la concentration maximale a atteint le sol, sa hauteur augmente à nouveau. Les travaux de Willis et Deardoff, menés en chambre de simulation (1976, 1978, 1981) illustrent la distribution de panaches de polluants atmosphériques dans des conditions convectives (figure 1.18).

La dispersion horizontale est la somme des contributions des processus de convection thermique (σ_{yc}), de turbulence mécanique (σ_{yn}) et de variation de la direction du vent ($\sigma_{yw} = \sigma_{\theta} x$) :

$$\sigma_y^2 = \sigma_{yc}^2 + \sigma_{yn}^2 + \sigma_{yw}^2 \quad 1.38$$

avec :

$$\sigma_{yc} = \sigma_{vc} t \left[1 + \frac{t}{h} \sqrt[3]{0,75 w_*} \right]^{-1/2} \quad 1.39$$

$$\sigma_{yn} = \sigma_{vn} t \left[1 + \frac{t}{h} \sqrt[3]{15,6 u_*} \right]^{-1/2} \quad 1.40$$

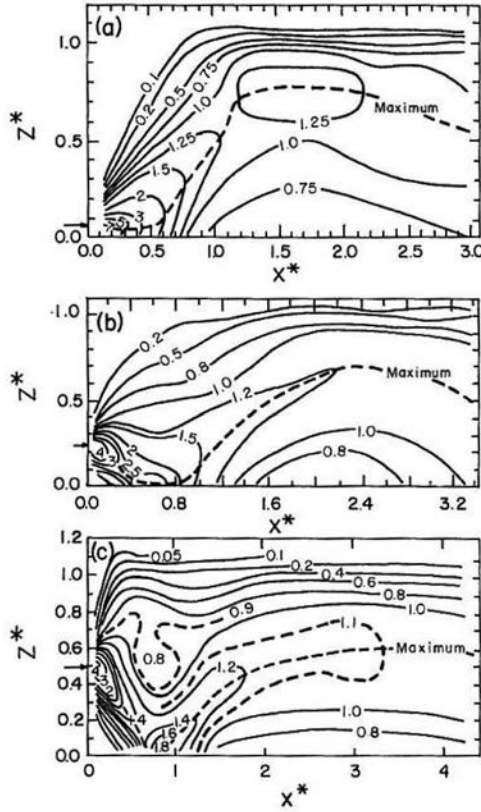


Figure 1.18. Contours de la concentration intégrée dans la direction perpendiculaire au vent en fonction des distances sans dimension $X^* = \frac{w_* x}{uh}$ et $Z^* = \frac{z}{h}$ pour des rejets non turbulents caractérisés par a) $H^* = 0,067$, b) $H^* = 0,24$, c) $H^* = 0,49$, avec H^* le rapport entre la hauteur de rejet et la profondeur de la couche limite ($H^* = H/h$) (Willis et Deardoff, 1976, 1978, 1981).

où σ_{vc} et σ_{vm} sont les écarts types de la vitesse horizontale générés par la turbulence thermique et mécanique. w_* est l'échelle de vitesse convective :

$$w_* = \sqrt[3]{\frac{hu_*^3}{\kappa|L|}} \quad 1.41$$

Pour le paramètre de dispersion verticale σ_z , la nature oblique de la trajectoire du panache conduit à définir des écarts-types de vitesses verticale turbulente d'ascendance et de subsidence : σ_{w_+} et σ_{w_-} . On définit alors un écart type de dispersion verticale positif et un autre négatif (Carruthers *et al.*, 2009a) :

$$\sigma_{z_+} = \sigma_{w_+} t \left[1 + \frac{t}{2T_L} \right]^{-1/2} \quad 1.42$$

$$\sigma_{z_-} = \sigma_{w_-} t \left[1 + \frac{t}{2T_L} \right]^{-1/2} \quad 1.43$$

avec T_L l'échelle de temps intégrale lagrangienne.

1.2.2 Échanges aux interfaces

Dans ce chapitre, nous évoquerons principalement les deux principaux phénomènes qui conduisent à l'appauvrissement du panache de particules, le dépôt sec et le dépôt humide. En effet, nos travaux se sont principalement focalisés sur les dépôts secs et humides des aérosols. Un aérosol est, ici défini comme, une particule solide ou liquide en suspension dans un gaz avec une vitesse de chute faible, typiquement de diamètre inférieur à 100 μm (Renoux et Boulaud, 1998).

Le transfert de l'aérosol atmosphérique vers les couverts ruraux ou urbains peut se faire selon deux voies :

- en l'absence de précipitations, les particules amenées par l'écoulement atmosphérique à proximité de la surface terrestre peuvent s'y déposer sous l'action conjuguée de plusieurs mécanismes physiques, comme la diffusion brownienne, l'interception, l'impaction ou la sédimentation (Seinfeld et Pandis, 1998). Dans ce cas, le terme de dépôt sec est employé.
- en présence de précipitations, les particules peuvent être incorporées dans les gouttes d'eau nuageuses et précipiter (*rainout*). Elles peuvent être aussi rabattues par les gouttes de pluie (*washout*). L'appellation de dépôt humide est employée pour décrire cette dernière voie (Seinfeld et Pandis, 1998).

Les principaux phénomènes physiques jouant sur le dépôt sec et le dépôt humide sont de même nature (diffusion brownienne, interception, impaction, phénomènes phorétiques). Dans le premier cas, il s'agit de l'interaction entre une particule et un substrat (rural ou urbain) considéré comme statique alors que pour le second cas il s'agit de l'interaction entre une particule et une goutte en mouvement.

1.2.2.1 Description des processus de dépôt sec et de dépôt humide des aérosols

Lors de sa dispersion dans l'atmosphère, le panache s'appauvrit en ses constituants gazeux et particuliers par interaction avec les surfaces, telles que bâtiment, végétaux et sol. Un composé radioactif gazeux comme le carbone 14 ($^{14}\text{CO}_2$) émis dans l'atmosphère est incorporé dans les matrices vivantes par le processus de photosynthèse alors qu'un aérosol se dépose selon sa taille par diffusion brownienne, l'interception, l'impaction ou la sédimentation (Renoux et Boulaud, 1998 ; Seinfeld et Pandis, 1998).

En général, dans le cas de rejets chroniques ou accidentels, l'ensemble des constituants sous forme de particules suit la dispersion du panache, excepté pour les particules de diamètres supérieurs à 100 μm dont la sédimentation gravitationnelle est importante. Les particules pourront aussi réagir avec l'aérosol atmosphérique et être transportées sur de longues distances.

L'origine de l'aérosol atmosphérique peut être naturelle (embruns, feux de brousse, activité volcanique) ou anthropogène (combustion de fuel, incinération d'ordures).

Classiquement deux domaines granulométriques sont distingués dans l'aérosol atmosphérique (figure 1.19). L'un, « grossié », correspond à des diamètres supérieurs à 2 microns environ et à une origine mécanique (érosion éolienne, formation d'embruns, activité volcanique). L'autre, « fin », correspond à des diamètres inférieurs à 2 microns. La fraction fine est elle même séparée en deux domaines. Le premier domaine, dite des noyaux d'Aitken (ou mode nucléation), correspond à des diamètres typiquement inférieurs à 0,08 microns. Il est composé de particules primaires de condensation et de noyaux provenant de la nucléation. Le second, appelé gamme d'accumulation et correspondant à des diamètres entre 0,08 et 2 microns, est constituée de particules qui proviennent soit du grossissement des noyaux par condensation, soit de leur coagulation (Renoux et Boulaud, 1998). La figure 1.19 représente les différentes voies de formation de l'aérosol atmosphérique (Whitby and Sverdrup, 1980 cité dans Renoux et Boulaud, 1998).

La radioactivité atmosphérique peut être d'origine naturelle (dégagement gazeux de radon et de thoron à partir du sol et des roches) ou anthropique (essais militaires atmosphériques ou rejets chroniques ou accidentels). Le devenir de la radioactivité atmosphérique est intimement lié à la dynamique de l'aérosol. En effet, les radionucléides naturels, comme le radon et le thoron, sont émis sous forme gazeuse

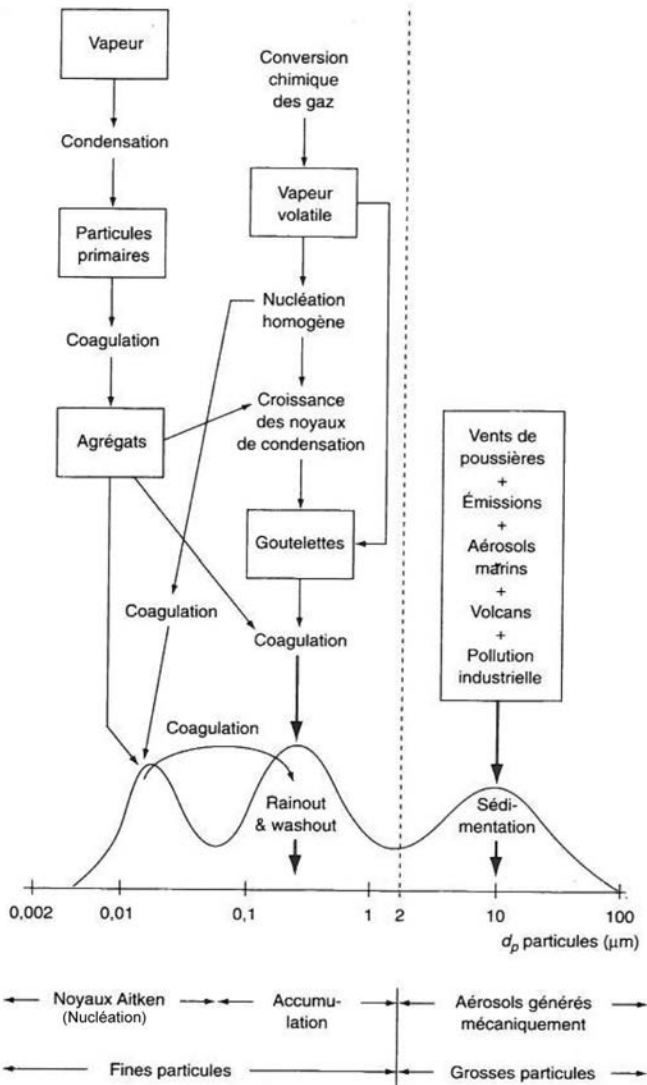


Figure 1.19. Formation de l'aérosol atmosphérique (Whitby and Sverdrup, 1980 cité dans Renoux et Boulaud, 1998).

et se fixent rapidement sur l'aérosol atmosphérique. 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). Les polluants particulaires radioactifs sont donc principalement régis par la même dynamique que l'aérosol atmosphérique.

1.2.2.1.1 Dépôt sec des aérosols

Le transport et la diffusion turbulente provoquent, lorsque les aérosols sont proches des obstacles, une interaction des particules avec les couverts ruraux ou urbains.

De façon simple, le flux F ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) au dessus d'un couvert est relié au gradient de concentration moyenne dans l'air \overline{C} ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$) par l'intermédiaire du coefficient de diffusivité turbulente D_t ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$). Le flux vertical au-dessus du couvert s'écrit alors :

$$F = -D_t \frac{\partial \overline{C}}{\partial z} - V_s \overline{C} \quad 1.44$$

où V_s est la vitesse de sédimentation de l'aérosol ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$). Son expression sera donnée dans la suite du document. Le flux qui est dirigé de l'atmosphère vers le couvert est de signe négatif.

En prenant en compte, la vitesse verticale du vent et sa composante turbulente, le flux peut aussi être présenté de la façon suivante :

$$F = \overline{w'c'} + \overline{w} \overline{C} - V_s \overline{C} \quad 1.45$$

Le premier terme $\overline{w'c'}$ représente le flux turbulent et le second terme le transport par les mouvements verticaux. Au-dessus d'une surface horizontale où la turbulence est homogène et $\overline{w} = 0$ cette expression peut être simplifiée de la façon suivante :

$$F \cong \overline{w'c'} - V_s \overline{C} \quad 1.46$$

La vitesse de dépôt sec des aérosols V_d ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) est alors obtenue en divisant le flux de dépôt par la concentration de l'aérosol mesurée dans l'air C ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$) (Chamberlain, 1953) :

$$V_d = \frac{-F}{C} \cong -\frac{\overline{w'c'}}{C} + V_s \quad 1.47$$

Comme la concentration C est fonction de la hauteur z de mesure au-dessus du couvert, V_d est donc aussi fonction de z .

Dans le cas où la quantité scalaire peut se déposer ou être émise d'une surface, la notion de vitesse de transfert est plus appropriée (Pal Arya, 1999) :

$$V_t = \frac{-F}{C - C_0} \quad 1.48$$

où $\overline{C_0}$ est la concentration sur la surface.

Si le scalaire qui se dépose disparaît rapidement de la surface la vitesse de transfert est égale à la vitesse de dépôt.

Selon leur taille et leur masse volumique, les particules sont soumises à différents mécanismes de dépôt. Les particules proches d'une surface se déposent sous l'action conjuguée de plusieurs mécanismes physiques comme la diffusion brownienne, l'interception, l'impaction et la sédimentation (figure 1.20) (Renoux et Boulaud, 1998). Comme nous le verrons au chapitre 1.4.2.2, certains matériaux présents dans le milieu urbain peuvent induire des phénomènes phorétiques (thermophorèse, diffusiophorèse) sur les particules.

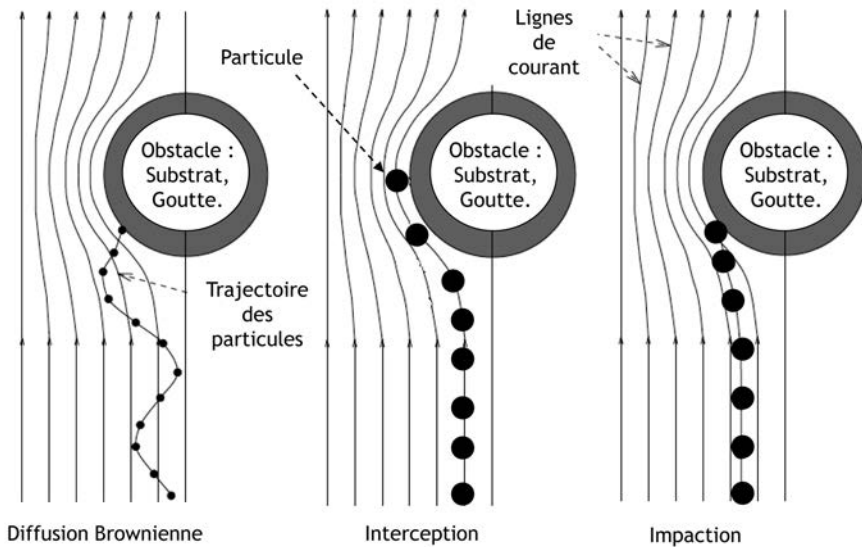


Figure 1.20. Mécanismes dynamiques liés aux dépôts secs et humides des aérosols au voisinage d'un obstacle (Hinds, 1999).

1.2.2.1.2 Dépôt humide des aérosols

Les gouttes de pluie lors de leur chute par gravité interagissent avec les aérosols et provoquent leur rabattement vers le sol.

De façon simple, si l'on considère que l'atmosphère est homogène, sans source ou puits, l'évolution de la concentration C ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$) des aérosols atmosphériques

en fonction du temps au cours d'un épisode pluvieux peut s'exprimer de la façon suivante :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\Lambda C \quad 1.49$$

où Λ (s^{-1}) est le coefficient de rabatement des aérosols.

Si le coefficient de rabatement (Pruppacher et Klett, 1978) est indépendant du temps, la concentration est alors :

$$C(t) = C_0 \exp(-\Lambda t) \quad 1.50$$

avec :

- $C(t)$: concentration des particules en fonction du temps ;
- C_0 : concentration des particules à l'instant initial (début de la pluie) ;
- Λ : coefficient de rabatement des aérosols de diamètre d_p .

Il existe trois processus distincts de collections des aérosols par les gouttes de pluie :

- la collecte par effets mécaniques (diffusion brownienne, interception, impaction...) qui est liée aux champs de vitesse de l'écoulement autour de la goutte et aux vitesses de glissement des aérosols par rapport au fluide (figure 1.20) ;
- la collecte par effets phorétiques qui résulte de vitesses de dérive provoquée par un gradient de concentration (diffusiophorèse) ou un gradient de température (thermophorèse) ;
- la collecte par effets électrostatiques liés à la charge des aérosols et des gouttes de pluie.

1.2.2.1.3 Principaux phénomènes physiques impliqués dans le dépôt sec et le dépôt humide

1.2.2.1.3.1 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 1.21).

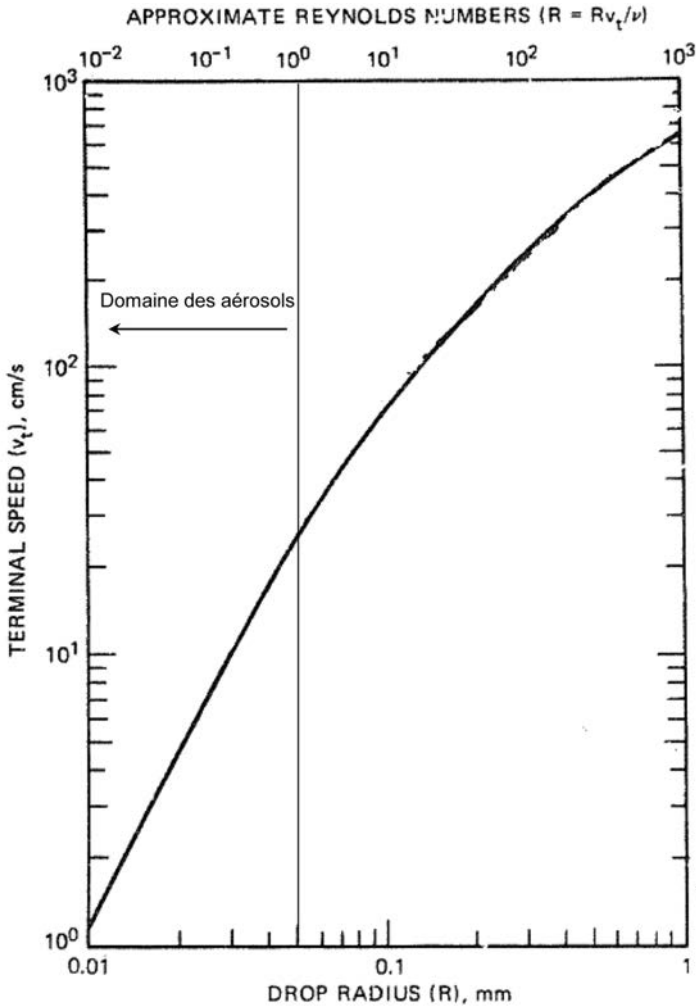


Figure 1.21. Vitesse de sédimentation en fonction de la taille des particules (Randerson, 1984).

La force F_s de trainée due à la viscosité est une fonction de la vitesse relative de la particule par rapport au fluide porteur. Son expression est donnée par la loi de Stokes :

$$F_s = 3\pi\eta d_p V_s \quad 1.51$$

avec :

- η : viscosité dynamique (Pa s) ;
- d_p : diamètre des particules (m) ;
- V_s : vitesse de la particule par rapport au fluide ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$).

La loi de Stokes est applicable pour des vitesses de particules très faibles ($< 1 \text{ m.s}^{-1}$) et pour un écoulement laminaire.

Une particule de diamètre d_p tombant sous le seul effet de son poids et de vitesse initiale nulle, attend sa vitesse limite de chute V_s lorsque F_s s'équilibre avec la force de pesanteur, soit en tenant compte de la poussée d'Archimède quand :

$$3\pi\eta d_p V_s = \frac{1}{6}\pi d_p^3 g(\rho_p - \rho_a) \quad 1.52$$

où ρ_p et ρ_a (kg.m^3) sont les masses spécifiques de la particule et de l'air.

Dans le cas de l'air, $\rho_p \gg \rho_a$, la vitesse limite de chute est appelée vitesse de Stokes :

$$V_s = \frac{1}{18}d_p^2 g \frac{\rho_p}{\eta} \quad 1.53$$

Lorsque le diamètre de la particule d_p (m) diminue pour devenir de l'ordre de grandeur du libre parcours moyen λ (m) des molécules de gaz porteur, la loi de Stokes n'est plus applicable. Le milieu ne peut plus être considéré comme continu. On utilise alors la correction de Cunningham C_U pour accroître le domaine de validité de la loi de Stokes :

$$C_U = 1 + \frac{2\lambda}{d_p} \left(1,257 + 0,400e^{-1,1\frac{d_p}{2\lambda}}\right) \quad 1.54$$

On obtient alors la vitesse de sédimentation V_s dans le cas général :

$$V_s = \frac{d_p^2 \rho_p g C_U}{18\eta} = g\tau_p \quad 1.55$$

où g est l'accélération de la pesanteur (m.s^{-2}) et τ_p (s^{-1}) le temps de relaxation de la particule.

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

$$\tau_p = \frac{\rho_p C_U}{18\eta} d_p^2 \quad 1.56$$

1.2.2.1.3.2 Diffusion brownienne

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 1.20) qui fait que les particules proches des obstacles y migrent. Ce phénomène est surtout important pour les particules très fines (typiquement des particules de taille inférieure au dixième de micromètre).

Le dépôt par diffusion est fonction de l'inverse du nombre de Peclet, Pe , qui décrit le rapport entre le transfert par convection et celui par diffusion moléculaire (équation 1.57) (Renoux et Boulaud, 1998 ; Rimberg et Peng, 1977).

$$Pe = ReSc = \frac{UL}{2D_B} \quad 1.57$$

avec :

- Re : nombre de Reynolds ;
- Sc : nombre de Schmidt ;
- U : vitesse relative de l'écoulement par rapport à l'obstacle ($m.s^{-1}$) ;
- L : longueur caractéristique de l'obstacle (m) ;
- D_B : coefficient de diffusivité brownienne des particules ($m^2.s^{-1}$).

Il est rappelé que les nombre de Reynolds et de Schmidt ont les formulations suivantes :

$$Re = \frac{UL}{2\nu_a} \quad 1.58$$

$$Sc = \frac{\nu_a}{D_B} \quad 1.59$$

et D_B :

$$D_B = \frac{C_U k_b T}{3\pi\eta d_p} \quad 1.60$$

avec :

- ν_a : viscosité cinématique de l'air ;
- k_b : constante de Boltzmann ($k_b = 1,38 \cdot 10^{-23}$ U.S.I) ;
- T : température de l'air ;
- η : est la viscosité dynamique de l'air.

Plus le nombre de Peclet est grand, plus l'efficacité de captation est petite (Rimberg et Peng, 1977).

1.2.2.1.3.3 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 1.20). L'importance de l'interception est liée au rapport de la taille de la particule à la taille de l'obstacle ou de la goutte.

Le paramètre caractéristique de ce mécanisme est le nombre d'interception, K , rapport du diamètre des particules et du diamètre de l'obstacle ou de la goutte (équation 1.61).

$$K = \frac{d_p}{D_0} \quad 1.61$$

avec D_0 : diamètre de l'obstacle (m).

Plus le nombre d'interception est grand, plus l'efficacité de captation est grande.

1.2.2.1.3.4 Impaction

Un aérosol, transporté par un écoulement qui se dirige vers un obstacle peut, lorsque son inertie est grande, ne pas suivre les changements de direction de l'écoulement à proximité de l'obstacle et ainsi l'impacter (figure 1.20). L'influence de l'inertie de la particule se fait sentir lorsque la taille des aérosols est proche du 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 et Burson, 1993). Le paramètre caractéristique de ce mécanisme est le nombre de Stokes, St , rapport de la distance d'arrêt d'une particule à la longueur caractéristique de l'obstacle (équation 1.62) :

$$St = \frac{\rho_p U C_U d_p^2}{18\eta L} = \frac{\tau_p U}{L} \quad 1.62$$

Plus le nombre de stokes est grand, plus l'efficacité de captation est grande. Ou, plus la distance d'arrêt de la particule $\tau_p U$ est grande par rapport à la longueur caractéristique de l'obstacle L (nombre de stokes grand), plus l'efficacité de captation est grande.

1.2.2.1.3.5 Thermophorèse

La thermophorèse est un mécanisme qui résulte d'un gradient thermique au sein du gaz entourant la particule.

Les chocs des molécules de gaz sur l'aérosol étant asymétriques, une force, dite de thermophorèse F_{th} , s'exerce sur la particule qui est repoussée par le gradient thermique (figure 1.22).

Les trajectoires des particules sont influencées par le mouvement brownien des molécules de gaz dont l'intensité croît avec la température du gaz : lorsqu'il existe un gradient thermique, les particules subissent une force dans la direction des températures décroissantes les entraînant de la zone chaude vers la zone froide.

Les aspects théoriques de la thermophorèse (Brock, 1962) sont développés notamment dans la thèse de Montassier (1990).

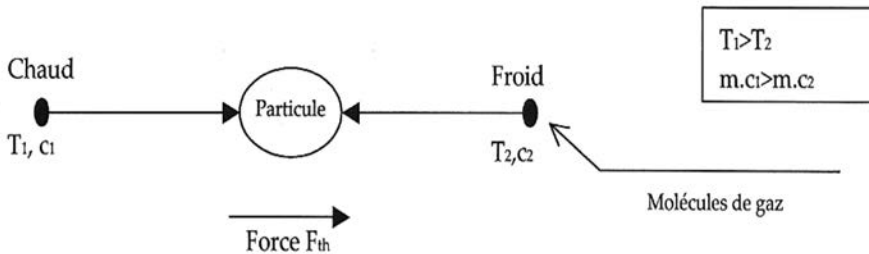


Figure 1.22. Schéma de principe de la thermophorèse (Hinds, 1999).

avec :

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

1.2.2.1.3.6 Diffusiophorèse

Les gradients de concentration des espèces chimiques dans un mélange isotherme de gaz mais de constitution inhomogène sont connus pour induire un mouvement des particules d'aérosols (figure 1.23).

Du fait de cette différence entre les masses moléculaires et les gradients de concentration, l'impulsion transférée à l'aérosol par les molécules du gaz n'est pas homogène sur toute la surface de l'aérosol.

Le mouvement des particules se nomme mécanisme de diffusiophorèse et la force produisant le mouvement est connue en tant que force de diffusiophorèse F_{diffph} (Lemaitre *et al.*, 2009).

Cette force est dirigée dans le sens des concentrations décroissantes de l'espèce chimique (figure 1.23).

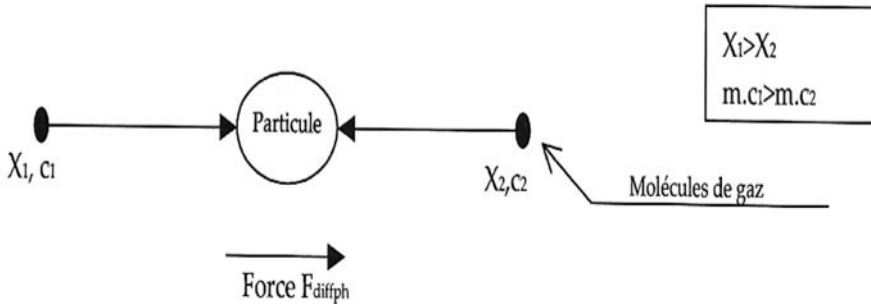


Figure 1.23. Schéma de principe de la diffusiophorèse (Hinds, 1999).

avec :

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

1.2.2.1.3.7 Effets électrostatiques

Les aérosols atmosphériques acquièrent des charges électriques du fait du dépôt d'ion par diffusion brownienne.

Ces ions sont de diverses origines, naturelles ou anthropiques, la majeure partie du temps ionisés 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, 1955), la capture sélective d'ions (Wilson, 1929), l'effet thermoélectrique (Reynold *et al.*, 1957) et la charge par induction (Elster et Geitel, 1913).

1.2.2.2 Modélisation opérationnelle du dépôt sec et du dépôt humide des aérosols

1.2.2.2.1 Modèles de dépôt sec des aérosols utilisés dans le cadre de nos études

Le dépôt sec se produit lorsque le panache touche le sol ou lorsque les particules ont une masse suffisante pour se dissocier des mouvements atmosphériques et atteindre le sol par gravité. Le dépôt sec au sol X_{ds} (kg.m^{-2}) à l'instant t , au point de coordonnée (x,y) est calculé de la façon suivante (Crabot, 1996) :

$$X_{ds} = V_d \int_0^t C(x,y,0,t) dt \quad 1.63$$

où $C(x,y,0,t)$ est la concentration atmosphérique au niveau du sol (kg.m^{-3}).

V_d (m.s^{-1}) est appelée vitesse de dépôt sec. Elle dépend du diamètre des particules, de paramètres turbulents et de la rugosité de la surface. À l'heure actuelle, dans le cadre de ses études d'impact des installations nucléaires, l'IRSN prend une vitesse de dépôt sec constante de $5.10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$ quel que soit le substrat. D'autres paramétrisations existent qui prennent en compte la granulométrie des aérosols. La figure 1.24 représente la variation de la vitesse de dépôt sec en fonction de la taille des aérosols selon Slinn (1982) cité par Hewitt et Jackson (2003).

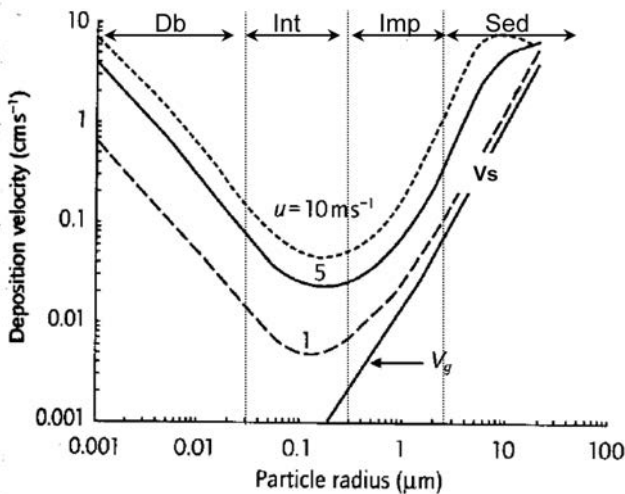


Figure 1.24. Vitesse de dépôt sec des aérosols en fonction du rayon de la particule (*Db* : diffusion brownienne, *Int* : Interception, *Imp* : impaction, *Sed* : sédimentation ; V_s : vitesse de sédimentation gravitationnelle) (d'après Slinn, 1982).

On observe que la vitesse de dépôt suit une évolution en forme de « V » qui traduit l'influence de la diffusion brownienne, de l'interception, de l'impaction et de la sédimentation, fonction du diamètre des particules.

En effet, dans le domaine diffusionnel, la vitesse de dépôt diminue lorsque la taille de la particule augmente pour atteindre un minimum à partir duquel le phénomène d'interception commence à prendre de l'importance. Ensuite, la vitesse de dépôt ne cessera de croître avec la taille des particules due aux phénomènes de dépôt par impaction et par sédimentation.

1.2.2.2.1.1 Substrat de type rural

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 1.25) 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.

La vitesse de dépôt est exprimée en termes de « résistances », la première aérodynamique ou turbulente notée r_a ($s.m^{-1}$), la seconde laminaire ou diffusive r_b ($s.m^{-1}$) et la dernière, la résistance de couvert ou stomatique r_c ($s.m^{-1}$). La vitesse de dépôt est alors :

$$V_d^{-1} = r_t = r_a + r_b + r_c \quad 1.64$$

où r_t est la résistance totale.

Pour les particules, on considère que la résistance de couvert r_c est nulle (pas de résistance stomatique) mais qu'il faut prendre en compte la vitesse de sédimentation gravitationnelle V_s .

Comme nous l'avons vu (cf. chapitre 1.2.2.1.1), le flux F ($kg.m^{-2}.s^{-1}$) au-dessus d'un couvert est relié au gradient de concentration moyenne dans l'air \bar{C} ($kg.m^{-3}$) par l'intermédiaire du coefficient de diffusivité turbulente D_t ($m^2.s^{-1}$), on peut alors écrire :

$$F = -D_t \frac{\partial \bar{C}}{\partial z} - V_s \bar{C} = \frac{C_3 - C_2}{r_a} + C_3 V_s = \frac{C_2 - C_1}{r_b} + C_2 V_s = \frac{C_3}{r_t} \quad 1.65$$

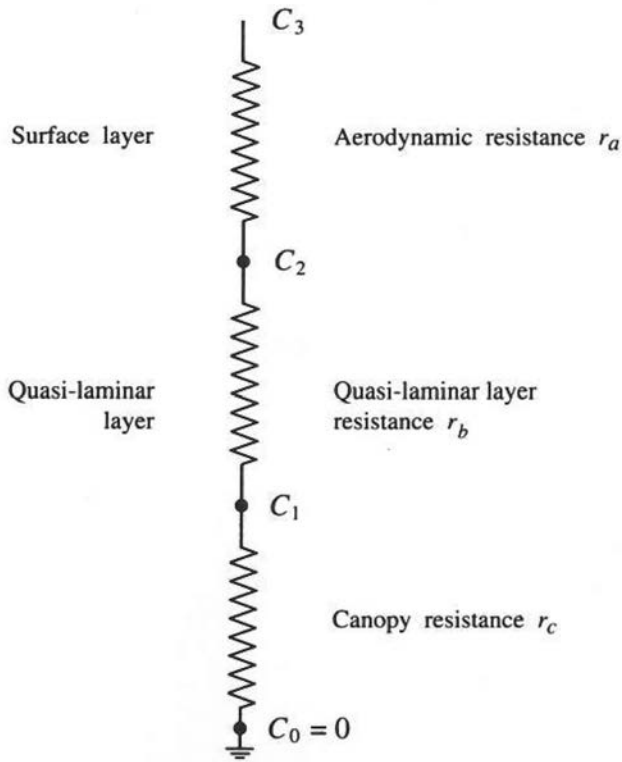


Figure 1.25. Modèle résistif pour la vitesse de dépôt sec : C_3 , C_2 , C_1 et C_0 concentrations à différentes hauteurs (Seinfeld et Pandis, 1998).

La résolution de l'équation , en éliminant C_2 puis C_3 donne :

$$V_d = \frac{1}{r_i} = \frac{1}{r_a + r_s + r_a r_b V_s} + V_s \quad 1.66$$

Modèle de Slinn (1982)

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

$$r_a = \frac{U_r - U_h}{u_*^2} \quad 1.67$$

avec :

- U_r : vitesse du vent (m.s^{-1}) à la hauteur de référence ;
- U_h : vitesse du vent (m.s^{-1}) à la hauteur du couvert ;
- 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_* :

$$r_b = \frac{U_h}{u_*^2} \left[\frac{1 - \varepsilon}{\varepsilon + \sqrt{\varepsilon} \tanh(\alpha \sqrt{\varepsilon})} \right] \quad 1.68$$

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. ε est fonction du coefficient de rebond R et des efficacités de dépôt par diffusion brownienne, par interception et par impaction inertielle, respectivement notées E_{Bro} , E_{Int} et E_{Imp} :

$$\varepsilon = R(E_{Bro} + E_{Int} + E_{Imp}) \quad 1.69$$

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

Modèle de Zang et al. (2001)

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

$$r_a = \frac{Ln\left(\frac{z_r}{z_0}\right) - \psi_m}{\kappa u_*} \quad 1.70$$

avec :

- z_r : auteur de référence (m) ;
- ψ_m : fonction universelle de la quantité de mouvement dans la couche de surface.

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_b a été simplifiée :

$$r_b = \frac{1}{\varepsilon_0 u_* R(E_{Bro} + E_{Int} + E_{Imp})} \quad 1.71$$

où ε_0 est un coefficient empirique.

Les valeurs des paramètres E_{Bro} , E_{Int} et E_{Imp} sont différentes de celles du modèle de Slinn.

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

Ces deux modèles ont été comparés aux résultats de nos campagnes expérimentales de mesure du dépôt sec en milieu rural (cf. chapitre 1.4.2.1.5).

1.2.2.2.1.2 Substrat de type urbain

Dans le cas d'un substrat de type urbain (verre, zinc, ardoise, tuile, bitume...), très peu de modèles existent pour évaluer la vitesse de dépôt des aérosols. Le plus utilisé, adapté à des substrats lisses comme le verre, est le modèle de Lai et Nazaroff (2000). Pour des substrats en position verticale, la vitesse de dépôt des aérosols V_{dv} (m.s^{-1}) est donnée par la formule suivante :

$$V_{dv} = \frac{u_*}{I} \quad 1.72$$

Pour les substrats en position horizontale, la vitesse de dépôt V_{du} (m.s^{-1}) est :

$$V_{du} = \frac{V_s}{1 - \exp\left(-\frac{V_s I}{u_*}\right)} \quad 1.73$$

où I est un paramètre qui dépend des conditions de l'écoulement et du diamètre des particules.

Ce modèle a été validé lors d'expérimentation en soufflerie (Lai et Nazaroff, 2000). Il sera évalué à l'aide des résultats de nos campagnes expérimentales de mesure du dépôt sec en milieu urbain (cf. chapitre 1.4.2.1.5).

1.2.2.2.2 Modèles de dépôt humide des aérosols utilisés dans le cadre de nos études

Le dépôt humide se produit lorsque les gouttes de pluie traversent le nuage d'aérosols, lavent ce nuage et emportent une fraction de son contenu vers le sol. Si l'on admet que le dépôt au sol résulte de l'intégration sur toute la verticale de l'interaction entre les gouttes de pluie et les particules, le dépôt humide X_{dh} (kg.m^{-2}) au sol s'écrit :

$$X_{dh} = \Lambda \int_0^t \int_0^\infty C(x, y, z, t) dz dt \quad 1.74$$

où $C(x, y, z, t)$ est la concentration atmosphérique (kg.m^{-3}).

Le coefficient de rabattement Λ (s^{-1}) des aérosols par la pluie, permet de caractériser la façon dont sont collectées les particules d'aérosols par les gouttes de pluie (*washout*), lors d'un épisode pluvieux. Ce coefficient s'exprime en s^{-1} .

À l'heure actuelle, dans le cadre des études d'impact des installations nucléaires l'IRSN adopte un coefficient de rabattement constant de $10^{-4} s^{-1}$.

D'autres paramétrisations existent qui prennent en compte la granulométrie des aérosols. Par exemple, la figure 1.26 représente l'évolution du coefficient de rabattement en fonction de la taille des aérosols obtenu par Garcia Niento *et al.* (1994) cité dans Hewitt et Jackson (2003). On observe, depuis les plus faibles jusqu'aux plus forts diamètres, l'influence de la diffusion brownienne, de l'interception et de l'impaction sur le coefficient de rabattement. En effet, dans la zone où la diffusion brownienne est prépondérante, le coefficient de rabattement diminue lorsque le diamètre de la particule augmente pour atteindre un minimum vers $0,6 \mu m$; au-delà le phénomène d'interception commence à devenir important. Ensuite, le coefficient de rabattement augmente légèrement avec le phénomène d'interception jusqu'à $1,2 \mu m$, puis augmente brutalement du fait du phénomène d'impaction.

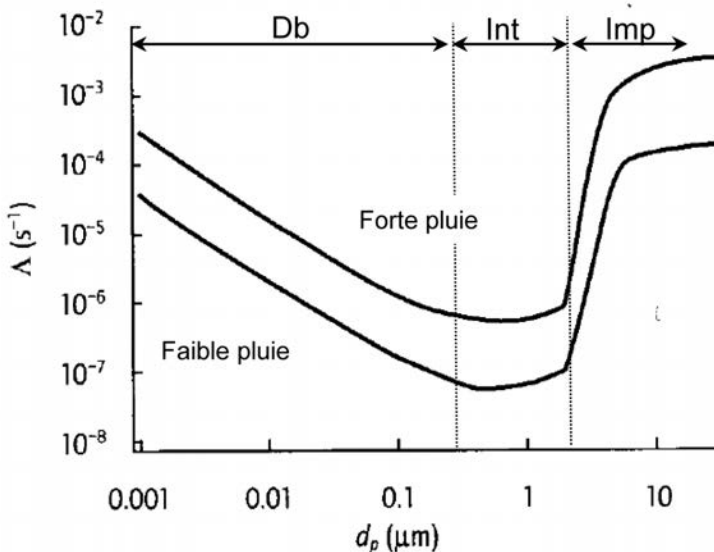


Figure 1.26. Coefficient de rabattement des aérosols en fonction du diamètre des particules pour différents types de pluie (Db : diffusion brownienne, Int : Interception, Imp : impaction) (Garcia Niento *et al.*, 1994).

Pruppacher et Klett (1978) expriment que ce coefficient de rabatement s'exprime selon l'équation (équation 1.75).

$$\Lambda(d_p) = \int_0^{\infty} \frac{\pi}{4} D_d^2 V_g(D_d) E(D_d, d_p) n(D_d) d(D_d) \quad 1.75$$

avec :

- D_d : diamètre des gouttes de pluie (m) ;
- d_p : diamètre des aérosols (m) ;
- V_g : vitesse de chute des gouttes de pluie (m.s⁻¹) ;
- E : efficacité de collecte d'une goutte de pluie ;
- n : distribution granulométrique des gouttes de pluie (m⁻³).

L'efficacité de collecte est définie comme le rapport de la masse d'aérosols piégés par une goutte sur la masse d'aérosols présents dans le volume balayé au cours de sa chute. Les efficacités de collecte des aérosols par les gouttes sont calculées en fonction de la hauteur de chute à partir des caractéristiques des gouttes, de celles des aérosols et des différents mécanismes de collecte. Elles s'expriment à l'aide de lois de corrélation construites sur la base de nombres adimensionnels caractéristiques de chaque mécanisme. Une valeur de $E = 1$ impliquerait donc que toutes les particules dans le volume géométrique balayé par la goutte soient collectées. La plupart du temps, $E \ll 1$.

En général, l'efficacité totale de collecte des aérosols par une goutte est définie comme la somme des efficacités élémentaires relatives aux différents phénomènes contribuant à la collecte des aérosols :

$$E = \varepsilon_{imp} + \varepsilon_{in} + \varepsilon_{db} + \varepsilon_{diffph} + \varepsilon_{thermo} \quad 1.76$$

avec :

- ε_{imp} : impaction ;
- ε_{in} : interception ;
- ε_{db} : diffusion Brownienne ;
- ε_{diffph} : diffusiophorèse ;
- ε_{thermo} : thermophorèse.

L'hypothèse communément utilisée pour la collecte des particules par les gouttes de pluie est de négliger tous les autres effets devant les effets mécaniques. Ainsi l'efficacité de collecte devient :

$$E \cong \varepsilon_{imp} + \varepsilon_{in} + \varepsilon_{db} \quad 1.77$$

Les particules peuvent être collectées par diffusion brownienne ; en effet, le déplacement aléatoire des particules amène certaines d'entre elles au contact de la goutte. Comme la diffusion brownienne des particules décroît rapidement quand la taille des particules augmente, ce mécanisme de diffusion est prépondérant pour les petites particules ($d_p < 0,1 \mu\text{m}$) (Pruppacher et Klett, 1978).

Le phénomène de collecte peut aussi se faire par impaction inertielle. L'efficacité de cette dernière augmente énormément avec la taille des aérosols et devient prépondérante à partir d'un diamètre d'aérosol de $1 \mu\text{m}$. Ainsi, en considérant la variation des efficacités de collecte pour les petites et grosses particules, il existe un minimum d'efficacité pour les particules dont la taille est comprise entre $0,1$ et $1 \mu\text{m}$. Pour des particules dont la taille avoisine $1 \mu\text{m}$, le phénomène d'interception entre en jeu.

Pour prendre en considération tous ces phénomènes, Slinn (1983) a utilisé l'analyse dimensionnelle et l'a couplée avec des données expérimentales. Ainsi, grâce aux nombres adimensionnels de Reynolds Re de la goutte, de Schmidt Sc de la particule, de Stokes St de la particule, le rapport des diamètres ($d_p/D_d = \Phi$) et le rapport de viscosités ($\nu_e/\nu_a = \omega$), Slinn (1983) a proposé la corrélation suivante (équation 1.78) pour l'efficacité totale de collecte par une goutte d'eau :

$$E = \frac{4}{ReSc} \left[1 + 0,4Re^{\frac{1}{2}}Sc^{\frac{1}{3}} + 0,16Re^{\frac{1}{2}}Sc^{\frac{1}{2}} \right] + 4\Phi \left[\omega^{-1} + (1 + 2Re^{\frac{1}{2}})\Phi \right] + \left[\frac{St - S^*}{St - S^* + \frac{2}{3}} \right]^{\frac{3}{2}} \quad 1.78$$

avec :

$$S^* = \frac{1,2 + \frac{1}{12} \ln(1 + Re)}{1 + \ln(1 + Re)} \quad 1.79$$

Dans le modèle de Slinn (équation 1.78), le premier terme correspond à la contribution de la diffusion brownienne, le second est dû à l'interception et le dernier à l'impaction.

Outre l'efficacité de collecte, la littérature propose des modélisations pour la vitesse de chute V_g des gouttes de pluie et la distribution en taille des gouttes, permettant ainsi l'intégration de l'équation 1.75 amenant aux modèles de coefficients de rabattement.

La principale difficulté dans l'établissement de la relation entre la taille d'une goutte et sa vitesse terminale de chute est liée au fait que pour les gouttes de diamètre supérieur à 280 μm , la goutte se déforme sous l'effet des forces aérodynamiques (Lemaitre *et al.*, 2009). De ce fait, la formule de Stokes ne peut être appliquée. Différentes formulations semi-empiriques sont alors proposées dans la littérature par exemple (Sportisse, 2007) :

$$V_g = \sqrt{\frac{4gd_g C_U \rho_e}{3C_D \rho_a}} \quad 1.80$$

où C_U est le facteur de Cunningham, C_D le coefficient de traînée, ρ_e et ρ_a les masses volumiques de l'eau et de l'air.

Celle qui est souvent utilisée est celle de Kessler (Andronache, 2003) :

$$V_g = 130\sqrt{d_g} \quad 1.81$$

Les modèles de distribution en taille des gouttes de pluie sont issus d'observations expérimentales. Il existe de nombreuses paramétrisations de type loi Gamma, Lognormale ou autre pour modéliser cette distribution en fonction de la pluviométrie (Sportisse, 2007).

L'expression la plus couramment utilisée est une loi de type Gamma établie par Marshall-Palmer (1948) qui donne le nombre de gouttes de pluie $n(d_g)$ ($\text{m}^{-3} \cdot \text{mm}^{-1}$) pour un diamètre donné en fonction de la pluviométrie p_0 ($\text{mm} \cdot \text{h}^{-1}$) :

$$n(d_g) = 8000 \exp(-4,1 p_0^{-0,21} d_g) \quad 1.82$$

Des nombreuses expressions des différents paramètres qui influencent le coefficient de rabattement, et de l'intégration de l'équation 1.75, il en ressort des formulations beaucoup plus simples pour évaluer le coefficient de rabattement Λ (Andronache, 2003), souvent validées de façon empirique (Sportisse, 2007) :

$$\Lambda = A p_0^B \quad 1.83$$

où A et B sont des constantes dépendant des modèles.

C'est ce type de modèle qui sera utilisé pour réaliser des comparaisons entre modèles et mesures (cf. chapitre 1.4.3.3)

1.3 *Dispersion atmosphérique : synthèse des études réalisées*

Ce chapitre traite des études sur la dispersion atmosphérique en milieu complexe. Il regroupe l'étude de la dispersion atmosphérique du krypton 85 (^{85}Kr) rejeté par l'usine de retraitement des combustibles usés AREVA NC La Hague et l'étude de la dispersion d'un gaz traceur réalisée dans la périphérie de Toulouse (projet CAPITOUL).

Il présente les développements expérimentaux réalisés et les résultats originaux obtenus en les confrontant aux modèles opérationnels de type gaussien. Sur cette thématique, les perspectives de recherches sont présentées au chapitre 2.

1.3.1 Contexte

Les développements expérimentaux liés à la dispersion atmosphérique des gaz ont débuté au laboratoire au début des années 2000, par la réalisation de deux projets sur la thématique de la dispersion des gaz dans des milieux complexes qui font l'objet de ce chapitre.

La première étude concerne la dispersion du ^{85}Kr rejeté par l'usine de retraitement des combustibles usés AREVA NC La Hague (Leroy *et al.*, 2010 ; [2]). En effet, AREVA NC utilisait pour ses études d'impact un modèle gaussien avec les écarts types de Doury (1976), et souhaitait valider ce choix à partir de campagnes expérimentales de terrain. Afin de répondre à leur demande, nous avons eu l'idée d'utiliser le ^{85}Kr émis par l'usine comme traceur du panache. À cette fin, il a été développé et utilisé des systèmes de prélèvement et de mesure spécifiques à cette problématique. Comme nous le verrons, les écarts entre les résultats des mesures et les résultats du modèle étant importants (supérieurs à un ordre de grandeur) dans cette zone de topographie complexe, cette étude a conduit à faire évoluer le modèle pour que les écarts avec les mesures soient inférieurs à un facteur 3 (GRNC, 2000).

La seconde étude traite de la dispersion atmosphérique en milieu urbain (Lac *et al.*, 2008, [5]). Cette étude a été réalisée dans le cadre du projet CAPITOUL (*CA*nopy and *P*articles *I*nteraction in *T*Oulouse *U*rban *L*ayer). Ce projet visait à étudier l'influence de la « couche limite urbaine » (CLU) sur la pollution atmosphérique par les gaz et les aérosols (caractéristiques physico-chimiques des aérosols, transformation selon les conditions météorologiques...). Ce programme a été initié et organisé par Météo-France, dans la région Midi-Pyrénées. À cette fin, nous avons développé et appliqué une technique de traçage utilisant le gaz SF_6 comme traceur du panache.

Ces résultats ont été utilisés pour valider le modèle Lagrangien PERLE de Météo-France (Lac *et al.*, 2008).

Enfin, les résultats des mesures réalisées lors de ces études ont été comparés aux résultats des modèles opérationnels afin d'évaluer les plus pertinents à utiliser.

1.3.2 Dispersion en milieu de topographie complexe : étude de la dispersion atmosphérique du krypton 85 rejeté par l'usine de retraitement des combustibles nucléaires usés AREVA NC La Hague

1.3.2.1 Contexte et objectif

L'amélioration des connaissances sur les mécanismes de dispersion sur des terrains de topographie complexe passe par la réalisation d'expérimentations fortement documentées tant du point de vue du traceur du panache que de la micro-météorologie, principalement la turbulence atmosphérique (Pal Arya, 2001). C'est dans ce but que nous avons conduit, entre 2000 et 2002, une série de campagnes expérimentales, au sol et en altitude, autour de l'usine de retraitement de combustibles nucléaires usés de La Hague (Cotentin, France). La dispersion des rejets de l'usine, émis par deux cheminées de 100 m de hauteur, a été caractérisée par des mesures de krypton 85 (^{85}Kr) jusqu'à une distance de 3,3 km autour du point de rejet. Le ^{85}Kr est un radionucléide chimiquement inerte d'une demi-vie de 10,71 ans, émetteur radioactif β^- ($Q_\beta = 687,4$ keV) avec un faible rapport d'embranchement γ (514 keV à 0,43 %). Ce composé est présent à l'état naturel (Ternon, 1990) mais est aussi produit dans les réacteurs nucléaires (Lagoutine *et al.*, 1983 ; Pannetier, 1968). Sa source principale dans l'atmosphère est liée à l'activité des usines de retraitement des combustibles nucléaires usés.

Les résultats des campagnes expérimentales réalisées au sol ont permis une confrontation aux modèles opérationnels de type gaussien utilisés, entre autres, à l'IRSN (Maro *et al.*, 2002b ; Maro *et al.*, 2005 ; Rennesson *et al.*, 2005 ; [6] [7] [12]). Par leur simplicité d'utilisation et leur rapidité de calcul, les modèles gaussiens sont des outils parfaitement adaptés à la prévision de rejets atmosphériques radioactifs en situation de fonctionnement normal ou accidentel. Le modèle gaussien est une solution simplifiée de l'équation de transport-diffusion qui décrit l'évolution spatiale de la concentration d'un polluant dans le cas d'un rejet à débit constant et dans des conditions météorologiques homogènes (cf. chapitre 1.2.1.2). L'utilisation du modèle gaussien nécessite la détermination des écarts types de dispersion. Pour les modèles gaussiens dits de première génération, tels que les modèles de Pasquill (1961), Briggs (1985) et Doury (1981), les écarts types de dispersion ont été établis à partir de

campagnes expérimentales et sont valables dans les conditions expérimentales dans lesquelles ils ont été déterminés, principalement à partir de rejets au sol et sur des terrains plats ou légèrement vallonnés (Barad, 1958 ; Carpenter *et al.*, 1971 ; Doury, 1976 ; Singer et Smith, 1966). Les modèles gaussiens de nouvelle génération, tel ADMS 4.0 développé par le CERC (2009), permettent de déterminer la dispersion de rejets industriels dans l'atmosphère en fonction des caractéristiques de la couche limite atmosphérique et des caractéristiques du site : bâtiments, relief...

De plus, afin de documenter la dispersion du panache en altitude, nous avons développé un système utilisant un ballon captif doté d'une nacelle instrumentée d'un capteur de mesure de la concentration de ^{85}Kr en temps réel et d'une station météorologique. En effet, les campagnes de caractérisation de la dispersion réalisées de part le monde incluent très rarement des mesures de profils verticaux de concentration, pourtant très utiles pour tester les modèles.

L'objectif de ce travail est de quantifier la dispersion du ^{85}Kr et de comparer les mesures expérimentales aux calculs de dispersion menés avec les modèles gaussiens de première et de nouvelle génération, Doury, Briggs (Briggs-rural) et ADMS 4.0 (cf. chapitre 1.2.1.2.5). Le modèle ADMS 4.0 est évalué selon deux configurations de modélisation. Dans la première, on considère l'effet de l'occupation des sols sur la dispersion du panache et, dans la seconde, on ajoute l'effet de la zone industrielle sous la forme d'un bâtiment enveloppe. La comparaison entre les résultats des modèles et les mesures est réalisée selon deux approches, l'une phénoménologique et l'autre statistique (Leroy *et al.*, 2010 ; [2]).

1.3.2.2 Campagnes expérimentales dans la région de La Hague

1.3.2.2.1 Caractéristiques de la zone d'étude

L'usine de retraitement des combustibles nucléaires usés AREVA NC La Hague est située au nord-ouest de la France, sur la presqu'île de La Hague, une péninsule étroite (5 km de large) légèrement vallonnée, caractérisée par des falaises abruptes au sud du site. Le couvert végétal est principalement composé de landes et de bocages. L'usine culmine à 180 m au-dessus du niveau de la mer et se trouve à 1,2 km du littoral au sud-ouest et à 3,5 km au nord-est, directions des vents dominants (figure 1.27).



Figure 1.27. Zone expérimentale des campagnes de dispersion, au centre l'usine de traitement des combustibles nucléaires usés AREVA NC (les cercles blancs correspondent aux campagnes au sol et les cercles jaunes aux campagnes en altitude).

1.3.2.2.2 Émission de krypton 85

Le site industriel est long de 2 km pour 500 m de large et se caractérise par un enchevêtrement dense de bâtiments. Il comprend deux unités de production (nommées UP 3 et UP 2 800) pourvues chacune d'une cheminée de 100 m de hauteur et distantes de 200 m. Lors du retraitement du combustible nucléaire, le ^{85}Kr est libéré et émis dans l'environnement par cycles de 30 à 45 minutes par les cheminées de l'usine.

1.3.2.2.3 Prélèvements et mesures au sol

Quinze rejets de ^{85}Kr ont été étudiés entre le 21/05/2001 et le 21/05/2002 à des distances comprises entre 360 et 3 260 m du rejet (IPSN, 2002 ; IRSN, 2003). Les prélèvements atmosphériques sont effectués dans des sacs en Tedlar® de 15 L à l'aide de 15 DIAPEG (« dispositif autonome de prélèvement d'échantillons de gaz »), placés sur des « transects » perpendiculaires à la direction moyenne du vent et espacés de 2 à 3°, permettant ainsi d'obtenir une information sur l'écart type de la distribution

du panache et sur la concentration de ^{85}Kr au sol (figure 1.28). La concentration de ^{85}Kr est exprimée en $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$. Le Bq exprime le nombre de désintégrations par seconde pour un radionucléide. La demi-vie ou période radioactive de ^{85}Kr étant très longue (10,4 ans) par rapport à la durée de la mesure, sa radioactivité reste proportionnelle à la concentration sans fonction d'atténuation.

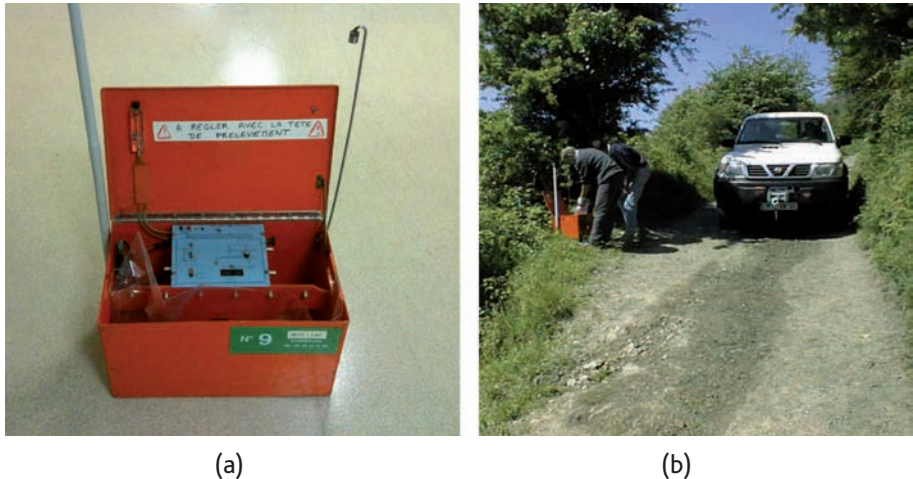


Figure 1.28. Système de prélèvement par DIAPEG (a) et son positionnement dans la région de La Hague (b).

Le prélèvement d'une durée de 30 minutes est déclenché lorsque le passage du panache est détecté en temps réel (une mesure par minute) par un compteur proportionnel (LB111-Berthold) situé dans un camion laboratoire placé dans l'axe moyen du vent. Ces mesures en temps réel dans l'environnement font apparaître des concentrations moyennes de l'ordre de $50\,000\ \text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ pour des rejets de $10^{10}\ \text{Bq}\cdot\text{s}^{-1}$ pendant la durée du rejet (figure 1.29), c'est-à-dire environ 30 minutes. Les 15 échantillons d'air prélevés dans un seul sac pendant 30 minutes par les DIAPEG sont ensuite transférés au laboratoire puis comprimés dans des géométries de 3 L, à 5 bars, et analysés par spectrométrie gamma. La spectrométrie gamma est calibrée à l'aide d'une source de ^{85}Kr , mise au point spécifiquement pour ces campagnes de mesures (Gurriaran *et al.*, 2004 ; [8]).

Les mesures de concentration de ^{85}Kr ont permis la détermination de l'écart type de dispersion horizontale du panache σ_h (m) ainsi que les « coefficients de transfert atmosphérique » CTA ($\text{s}\cdot\text{m}^{-3}$) associés. Le CTA est obtenu expérimentalement à l'aide de la relation :

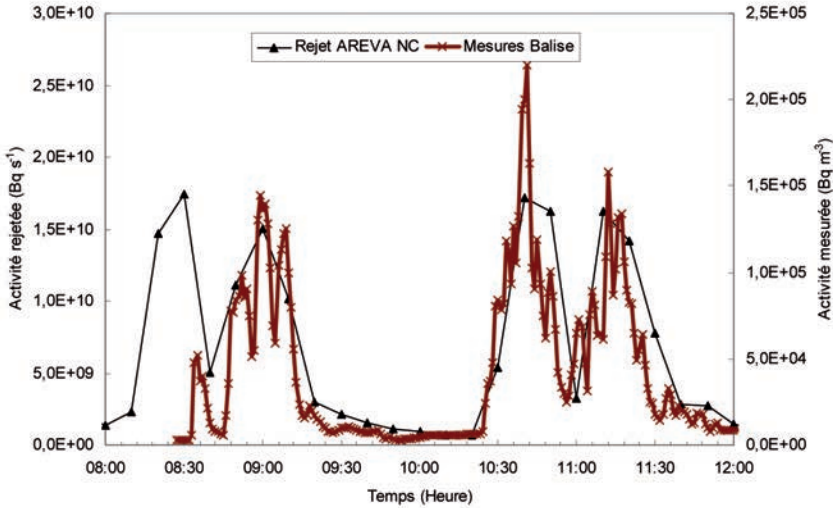


Figure 1.29. Exemple de mesures de concentration de ^{85}Kr réalisées au sol dans le camion laboratoire.

$$CTA = \frac{\int_{t_0}^{t_1} C(m, t) dt}{\int_{t'_0}^{t'_1} q(t) dt} \quad 1.84$$

avec $C(m, t)$ la concentration (Bq.m^{-3}) au point de mesure m à l'instant t , $q(t)$, le débit d'activité de la source (Bq.s^{-1}), t_0 et t_1 les instants du début et de fin de la mesure et t'_0 et t'_1 les instants du début et de fin d'émission de la source.

Le CTA dépendant du temps de prélèvement, les conditions expérimentales sont rigoureusement les mêmes d'une campagne à l'autre avec des temps de prélèvement de 30 minutes.

1.3.2.2.4 Mesures en altitude

Douze vols ont été réalisés depuis la fin de l'année 1999, allant de la mise au point du matériel aux campagnes de mesures du ^{85}Kr en altitude. Sur l'ensemble, sept campagnes de mesures en altitude ont été conduites entre le 15/06/00 et le 23/08/01 pour des distances par rapport au point de rejet allant de 300 à 1 800 m. Les zones géographiques concernées se répartissent entre le nord et le sud sud-ouest de l'usine, avec une campagne réalisée à l'ouest du site.

Le dispositif mis en place lors de ces campagnes se compose d'un ballon captif et d'un camion laboratoire avec une instrumentation spécifique (figure 1.30).

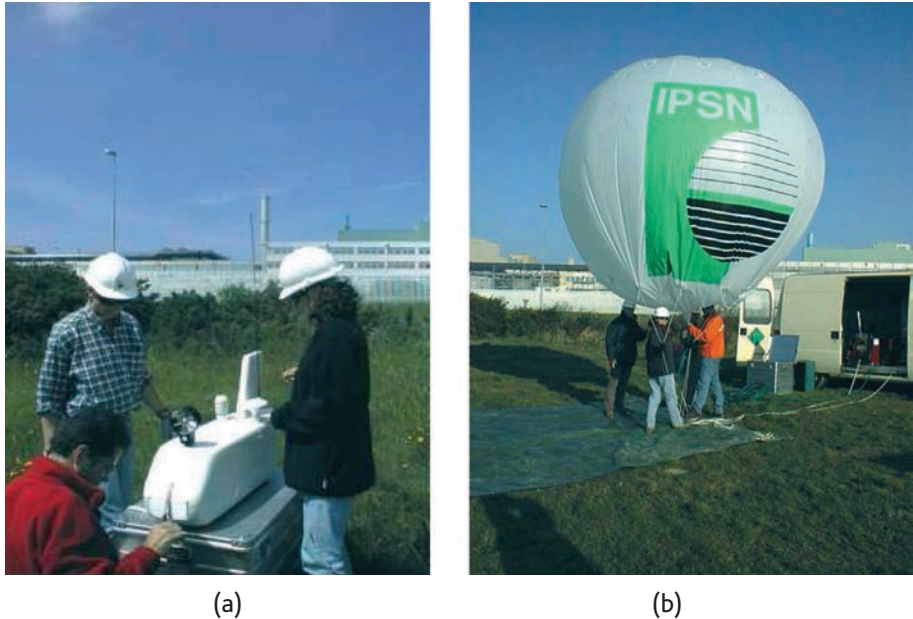


Figure 1.30. Nacelle instrumentée du ballon captif (a) et le ballon captif (b).

Le ballon captif instrumenté est la solution originale retenue pour réaliser des mesures de ^{85}Kr ainsi que des mesures météorologiques jusqu'à 500 m d'altitude. Une nacelle fixée sous le ballon est constituée d'un détecteur nucléaire pour la mesure du ^{85}Kr (LB123, Berthold), de capteurs météorologiques (température de l'air, pression atmosphérique, humidité relative) et d'un GPS différentiel (*Global Positioning System*). Une carte (CPU) connectée aux capteurs par liaison RS232 traite une première fois l'ensemble des données pour les envoyer au sol par un émetteur radio en temps réel (fréquence de 1 Hz). Un deuxième traitement des données est réalisé au sol (camion laboratoire) avec des applications développées sous le logiciel LabVIEW, (*Laboratory Virtual Instrument Engineering Workbench*). Les programmes développés permettent la visualisation, l'analyse et le stockage des données sous forme de fichiers excel, en temps réel.

Ces mesures en temps réel dans l'environnement font parfois apparaître des concentrations moyennes dix à cent fois plus importantes que les concentrations au sol (figure 1.31).

Parallèlement aux mesures réalisées dans la nacelle sous le ballon, des mesures du même type sont réalisées dans le camion laboratoire (mesures nucléaires, mesures météorologiques et mesures du positionnement).

Les positionnements du ballon et du camion laboratoire sont guidés par les informations météorologiques (principalement la direction du vent à 100 m d'altitude) transmises en temps réel par le service environnement de l'usine AREVA NC La Hague.

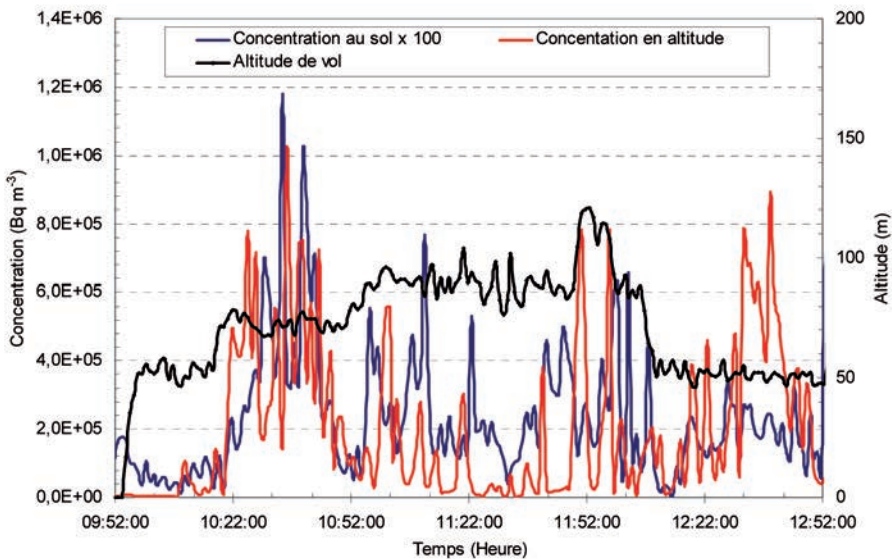


Figure 1.31. Exemple de mesures de ^{85}Kr réalisées en altitude à l'aide du ballon captif.

Comme ce système n'est composé que d'un détecteur permettant d'évaluer la concentration de ^{85}Kr , il n'est pas possible de calculer des largeurs de panache qui nécessiteraient des prélèvements ou des mesures simultanées à plusieurs niveaux. Un tel système permet seulement d'évaluer les CTA pour différentes altitudes (équation 1.84).

1.3.2.2.5 Paramètres météorologiques

Les profils verticaux de la direction et de la vitesse horizontale du vent ont été acquis au moyen d'un SODAR (Metek) jusqu'à une hauteur de 200 m et par pas de 25 m. La direction et la vitesse du vent horizontal ont été mesurées à 10 m de hauteur par un anémomètre ultrasonique, et la température et l'humidité relative ont été mesurées à 1,5 m et à 10 m. L'ensemble de ces données météorologiques ont été acquises sur

ce site par pas de 10 minutes. La stabilité atmosphérique a été déterminée selon la classification de Pasquill à partir de la mesure de la vitesse du vent et de l'observation de la couverture nuageuse.

1.3.2.3 Évaluation des modèles gaussiens

1.3.2.3.1 Modèles gaussiens utilisés

Nous avons confrontés les résultats obtenus avec les modèles gaussiens de première et de nouvelle génération, Doury, Briggs (Briggs-rural) et ADMS 4.0.

L'utilisation des modèles gaussiens de première génération nécessite le choix d'une formulation adaptée des écarts types de dispersion. Ces formulations ont été déterminées à partir de campagnes expérimentales et sont spécifiques aux conditions dans lesquelles elles ont été élaborées : site et hauteur de rejet. Dans notre cas, la température du rejet étant de 30°C et la vitesse d'éjection des gaz faible ($3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$), nous n'avons pas pris en compte de surélévation du panache.

Avec ADMS 4.0, nous avons utilisé en données d'entrée des moyennes de 30 minutes pour les paramètres météorologiques classiques : vent à 100 m, température et couverture nuageuse. Deux configurations de calcul ont été testées. Dans la première, notée ADMS_S1, on prend en compte l'influence de l'occupation du sol, en définissant la longueur de rugosité z_0 sur une grille de résolution spatiale de 100 m. Dans la seconde, notée ADMS_S2, on ajoute l'influence de la zone industrielle simulée par un bâtiment enveloppe de dimensions $L = 1\,000 \text{ m}$, $l = 500 \text{ m}$ et $H = 40 \text{ m}$. Les effets de la topographie n'ont pas été intégrés aux simulations ; un test préliminaire a montré que l'utilisation des données de topographie ne donnait pas de résultats plus proche des mesures pour ce site et à ces distances du rejet que pour une configuration de terrain plat (Leroy *et al.*, 2010 ; [2]).

1.3.2.3.2 Méthode d'évaluation

1.3.2.3.2.1 Mesures au sol

La comparaison modèles/mesures a été réalisée selon deux méthodes complémentaires pour les mesures au sol car elles sont les plus complètes.

La première méthode consiste à confronter les valeurs expérimentales des écarts types de la dispersion horizontale et les CTA au centre du panache ou CTA_{max} , avec les

calculs issus des modèles gaussiens, en fonction de la distance à la source. La comparaison des écarts types de dispersion permet d'apprécier la capacité des modèles à évaluer la zone d'impact des panaches.

La seconde méthode concerne une évaluation statistique selon la méthode de Hanna *et al.* (1993) appliquée uniquement aux valeurs des CTA.

Les paramètres statistiques utilisés sont les suivants :

Le biais fractionnel :

$$FB = \frac{(\overline{C}_0 - \overline{C}_p)}{0,5(\overline{C}_0 + \overline{C}_p)} \quad 1.85$$

où \overline{C}_0 et \overline{C}_p sont respectivement les concentrations moyennes observées et calculées par les modèles.

Le biais géométrique moyen :

$$MG = \exp(\overline{\ln C}_0 - \overline{\ln C}_p) \quad 1.86$$

L'erreur quadratique moyenne normalisée :

$$NMSE = \frac{\overline{(C_0 - C_p)^2}}{C_0 C_p} \quad 1.87$$

La variance géométrique :

$$VG = \exp[\overline{(\ln C_0 - \ln C_p)^2}] \quad 1.88$$

Les facteurs *FAC2* et *FAC5*, correspondant aux fractions des données calculées et observées comprises respectivement dans un facteur 2 et un facteur 5 :

$$FAC2 : \frac{1}{2} \leq \frac{C_p}{C_0} \leq 2 \quad 1.89$$

$$FAC5 : \frac{1}{5} \leq \frac{C_p}{C_0} \leq 5 \quad 1.90$$

Dans cette étude, on applique en fait ces formules non aux concentrations mais aux CTA calculés à l'aide des modèles gaussiens (CTA_{calc}) et mesurés (CTA_{mes}).

Le biais fractionnel FB et le biais géométrique MG estiment le biais moyen et rendent compte de l'erreur globale commise. Ces deux paramètres renseignent sur la tendance du modèle à surestimer ($FB < 0$ et $MG < 1$) ou au contraire sous-estimer ($FB > 0$ et $MG > 1$) les valeurs observées.

La dispersion relative, c'est-à-dire l'écart moyen entre les observations et les calculs, est estimée à partir de l'erreur quadratique moyenne normalisée $NMSE$ et de la variance géométrique VG . Plus ces paramètres ont une valeur proche de zéro, plus les quantités simulées par le modèle se rapprochent des observations.

Les paramètres linéaires FB et $NMSE$ sont fortement influencés par les concentrations mesurées ou calculées très élevées, tandis que les paramètres logarithmiques MG et VG donnent plus de poids aux valeurs faibles mais ils sont indéfinis pour les valeurs nulles. Afin de conserver la représentativité statistique des paramètres MG et VG , il est conseillé d'établir un seuil minimum sur les concentrations observées et calculées. Dans cette étude, la limite de détection des appareils de mesures a été choisie comme valeur seuil.

$FAC2$ et $FAC5$, sont les paramètres les plus simples à interpréter car ils ne sont pas influencés par les valeurs extrêmes.

Un modèle parfait vérifie $FB = NMSE = 0$ et $MG = VG = FAC2 = FAC5 = 1$. Chang et Hanna (2004) considèrent qu'un modèle reproduit correctement les mesures si les paramètres statistiques vérifient $-0,3 < FB < 0,3$, $0,7 < MG < 1,3$, $NMSE < 1,5$, $VG < 4$ et $FAC2 > 0,5$.

1.3.2.3.2.2 Mesures en altitude

Avec les mesures en altitude, il n'a été réalisé qu'une comparaison directe entre les CTA mesurés et les CTA calculés avec les modèles de Briggs (Briggs-rural) et de Doury. L'incertitude majeure dans ce type de comparaison est le positionnement du ballon par rapport à l'axe central du panache. La comparaison est faite sous la forme statistique.

1.3.2.4 Résultats

1.3.2.4.1 Caractérisation des campagnes de mesures au sol

Entre 2001 et 2002, quinze campagnes de mesures (IPSN, 2002 ; IRSN, 2003) ont

eu lieu de jour entre 9 h 00 et 14 h 00 TU et pour des conditions de vent à 100 m variant entre 5,1 et 16,3 m.s⁻¹. D'après la classification de Pasquill, 13 des périodes de mesures se trouvaient en condition neutre (classe D) et 2 en condition légèrement instable (classe C) (tableau 1.7).

Tableau 1.7. Paramètres micro-météorologiques des campagnes de mesure du ⁸⁵Kr au sol.

Distance à la source (m)	Vitesse horizontale à 100 m (m.s ⁻¹)	Stabilité atmosphérique	Longueur de rugosité (m)
360 - 3 260	5,1 - 16,3	C - D	~ 0,15

Dans la majorité des cas, les résultats obtenus font apparaître des distributions horizontales très proches de la distribution gaussienne (figure 1.32).

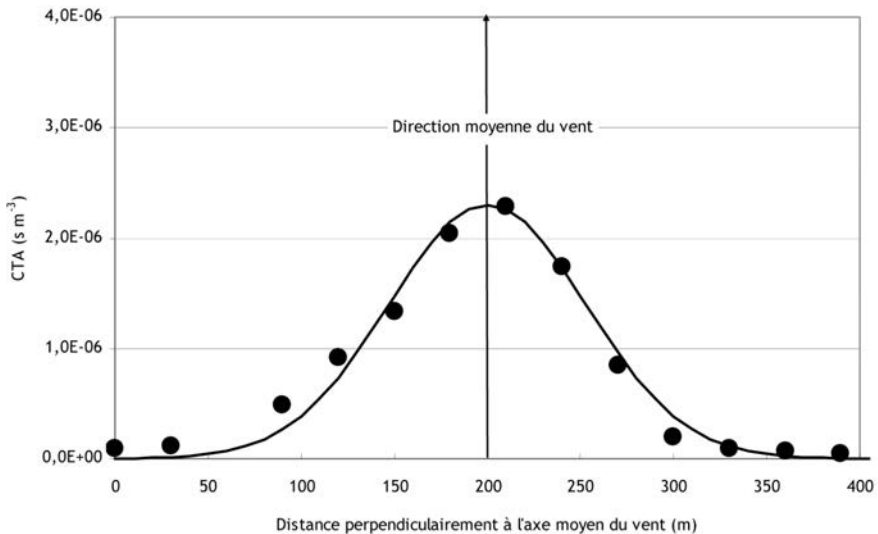


Figure 1.32. Exemple de distributions horizontales obtenue à partir des mesures de ⁸⁵Kr (Points : mesures, trait : ajustement gaussien).

1.3.2.4.2 Caractérisation des campagnes de mesures en altitude

Les vitesses horizontales du vent mesurées à 100 m d'altitude par rapport au plateau de La Hague (IPSN, 2002) ont varié entre 2,6 et 7,7 m.s⁻¹ (tableau 2.8). Les conditions météorologiques de diffusion pendant la durée des mesures étaient du type « diffusion normale » dans la classification de Doury ou du type « neutre ou légèrement instable » dans la classification de Pasquill (classes B, C et D).

Tableau 1.8. Paramètres micro-météorologiques des campagnes de mesure du ^{85}Kr en altitude.

Distance à la source (m)	Vitesse horizontale à 100 m (m.s^{-1})	Stabilité atmosphérique	Longueur de rugosité (m)
300 - 1 800	2,6 - 7,7	D - B	~ 0,15

1.3.2.4.3 Comparaison des résultats des mesures au sol avec les résultats des modèles

1.3.2.4.3.1 Résultats des campagnes

Les résultats présentés sur la figure 1.33 et la figure 1.34 correspondent aux quinze campagnes de mesures.

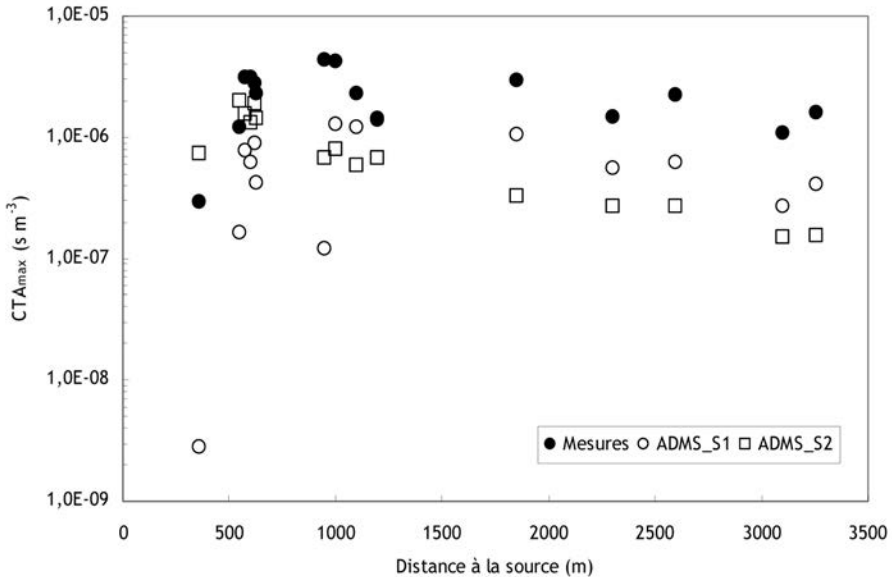


Figure 1.33. CTA_{max} mesuré et calculé en fonction de la distance à la source : comparaison des mesures et des calculs avec les modèles ADMS_S1 (« effet de la rugosité ») et ADMS_S2 (« effet du bâtiment »).

Le $\text{CTA}_{\text{max_mes}}$ est compris entre $2,9 \cdot 10^{-7} \text{ s.m}^{-3}$ et $4,3 \cdot 10^{-6} \text{ s.m}^{-3}$ et l'écart type de dispersion horizontale varie entre 40 et 210 m (figure 1.33 et figure 1.34). Dans ces conditions micro-météorologiques le point de retombée où la concentration au sol est maximale est observé à environ 1 000 m (Leroy *et al.*, 2010 ; [2]).

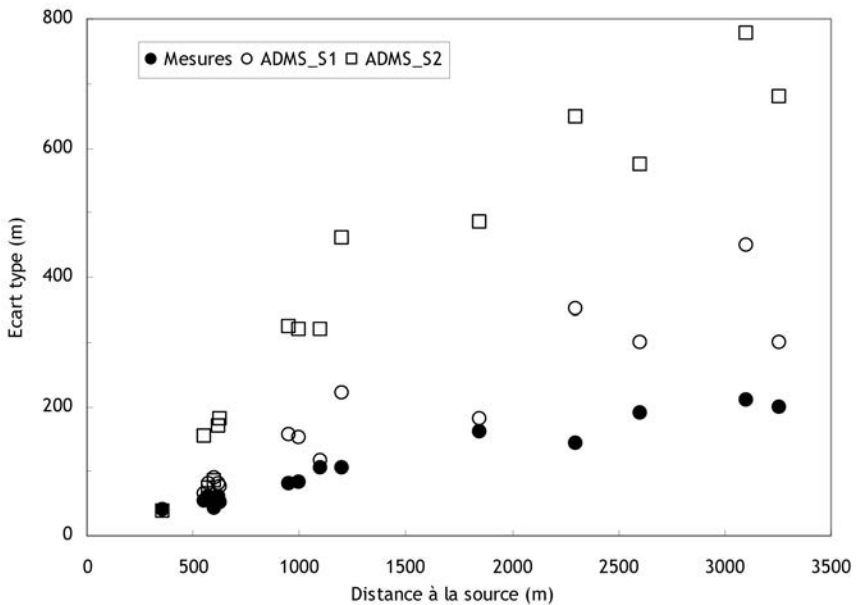


Figure 1.34. Écart type horizontal en fonction de la distance à la source : comparaison des mesures et des calculs avec les modèles ADMS_S1 (« effet de la rugosité ») et ADMS_S2 (« effet du bâtiment »).

1.3.2.4.3.2 Comparaison des mesures avec les modèles de Briggs-rural, Doury et ADMS 4.0

La comparaison modèles-mesures a été réalisée à l'aide d'ADMS 4.0 selon les deux configurations notées ADMS_S1 et ADMS_S2. Cette étape a permis de discriminer le mode de configuration d'ADMS 4.0 le plus adapté au site d'AREVA NC pour le confronter, ensuite, aux calculs des modèles gaussiens de Briggs (rural) et Doury (Leroy *et al.*, 2010 ; [2]).

Les valeurs des CTA_{max} et de σ_y calculées et mesurées sont représentées en fonction de la distance à la source sur la figure 1.33 et la figure 1.34 pour les modèles ADMS_S1, ADMS_S2 et, sur la figure 1.35 et la figure 1.36, pour les modèles de Briggs et Doury.

En terme de coefficient de dispersion horizontale et de CTA_{max} , la configuration ADMS_S1 se rapproche le plus des résultats de mesure quelque soit la distance à la source. En effet, les valeurs médianes des rapports $\sigma_{y_calc}/\sigma_{y_mes}$ et $CTA_{max_calc}/CTA_{max_mes}$ sont respectivement de 1,5 et de 0,3 avec la configuration ADMS_S1 et de 3,0 et 0,3 avec la configuration ADMS_S2. À titre de comparaison, les résultats

du modèle ADMS_S1 ont été intégrés à la figure 1.36 comparant les résultats expérimentaux et les calculs avec les modèles de Briggs et Doury.

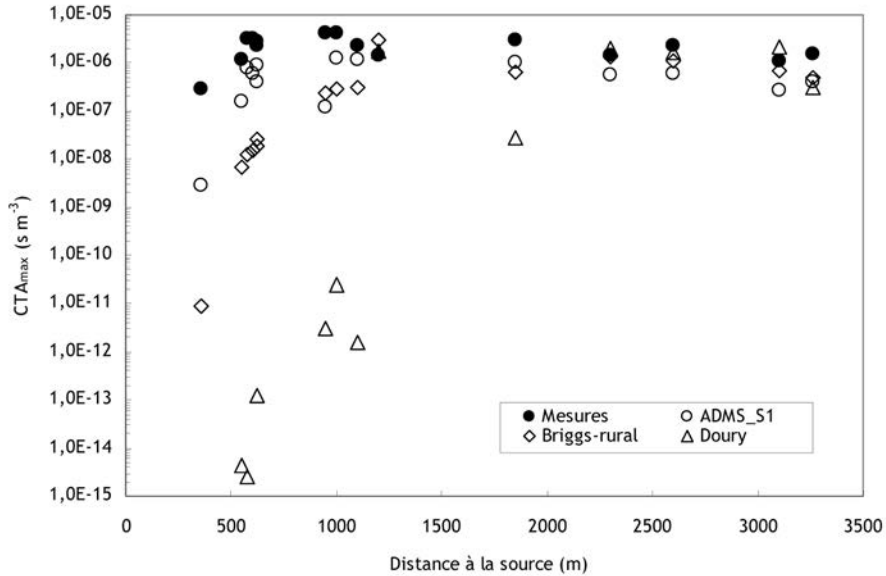


Figure 1.35. CTA_{max} mesuré et calculé en fonction de la distance à la source : comparaison des mesures et des calculs avec les modèles ADMS_S1 (« effet de la rugosité »), Briggs (Briggs-rural) et Doury.

On observe une bonne corrélation entre les σ_y mesurés et calculés à l'aide du modèle de Briggs, avec cependant une sous-estimation de σ_y en-dessous de 600 m n'excédant pas 28 %. Jusqu'à une distance de 950 m du rejet, le modèle sous-estime les CTA jusqu'à un facteur 10^5 . Par contre, lorsque l'on s'éloigne du rejet le CTA_{max_calc} est du même ordre de grandeur que les mesures et pour des distances supérieures à 2 000 m du rejet le rapport $CTA_{max_calc}/CTA_{max_mes}$ est compris entre 0,3 et 0,9.

Le modèle de Doury sous-estime les mesures de σ_y d'un facteur variant de 2 à 5 et sous-estime les CTA_{max} en champ proche de plus d'un ordre de grandeur. Le rapport $CTA_{max_calc}/CTA_{max_mes}$ varie entre 10^{-21} à 360 m du rejet et 10^{-2} à 1 850 m du rejet. Au-delà de 2 000 m, le rapport $CTA_{max_calc}/CTA_{max_mes}$ varie de 0,2 à 2. Bien que les résultats du modèle de Doury soient corrects en terme de CTA_{max} à ces distances, l'écart type de dispersion horizontale, donc la zone d'impact du panache est fortement sous-estimé.

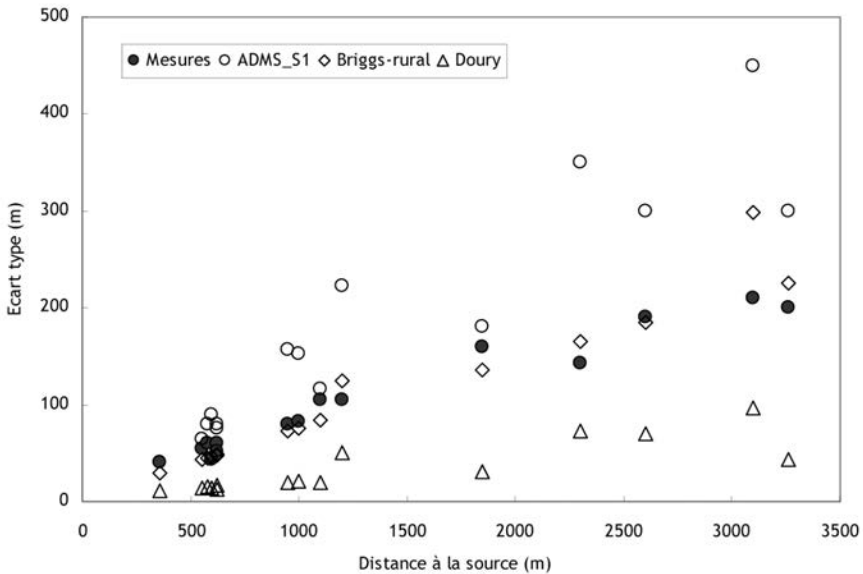


Figure 1.36. Écart type horizontal en fonction de la distance à la source : comparaison des mesures et des calculs avec les modèles ADMS_S1 (« effet de la rugosité »), Briggs (Briggs-rural) et Doury.

Donc, pour ce qui concerne la dispersion du panache (σ_y), seul le modèle de Briggs obtient un bon accord avec les mesures. Le modèle de Doury sous-estime la dispersion horizontale et donc la zone d'impact du panache d'un facteur variant de 2 à 5, tandis que le modèle ADMS 4.0 la surestime d'un facteur 1 à 5 selon la configuration de calcul. L'utilisation de l'option bâtiment (ADMS_S2) accentue cette surestimation. Pour le CTA_{max} , à moins de 2 000 m du point de rejet les simulations menées à l'aide d'ADMS 4.0 présentent le meilleur accord avec les mesures. Jusqu'à 600 m du point de rejet, dans la zone de sillage du bâtiment, il y a un bon accord entre les CTA_{max} mesurées et calculés par le modèle ADMS 4.0 en utilisant l'option bâtiment (ADMS_S2). Au-delà de 600 m du rejet, les calculs de CTA_{max} les plus proches des mesures sont obtenus avec la configuration ADMS_S1 prenant en compte l'effet de la rugosité. Les modèles de Briggs et de Doury décalent le point d'impact du rejet. D'après les résultats des campagnes expérimentales, la valeur maximale du CTA_{max} se situe à 500 m du rejet alors que les modèles de Briggs et de Doury prévoient respectivement cet impact maximal à 1 200 m et à 2 300 m du rejet. Il en résulte, pour des distances comprises entre le point de rejet et le point d'impact maximal du panache, une sous-estimation importante de la valeur du CTA_{max} pour les modèles de Briggs et de Doury. Au-delà de 2 000 m les calculs du CTA_{max} réalisés avec le modèle de Briggs sont les plus proches des mesures.

1.3.2.4.3.3 Analyse statistique

Le tableau 1.9 rassemble les résultats de l'évaluation statistique des modèles de Briggs, Doury, ADMS_S1 et ADMS_S2, appliquée à l'ensemble des couples CTA_{mes}/CTA_{calc} ($N = 143$). Les valeurs positives du FB indiquent la sous-estimation du CTA par l'ensemble des modèles. C'est le modèle ADMS_S2 qui obtient le résultat le plus proche du critère à atteindre avec $FB = 0,56$. Le modèle qui sous-estime le plus les données expérimentales est le modèle de Doury avec $FB = 1,51$.

La sous-estimation importante du calcul du CTA par les modèles en champ proche induit des valeurs élevées de $NMSE$. Dans le cas des simulations menées à l'aide d'ADMS_S1 et ADMS_S2, le nombre de CTA_{mes} calculés compris dans un facteur 2 par rapport aux mesures est de 28 à 35 %. Au regard des critères de Hanna (2004), ces valeurs sont un peu faibles mais restent cependant 2 à 3 fois plus élevées que pour les modèles de Briggs et Doury. Les fortes valeurs des paramètres MG et VG pour les modèles de Briggs et Doury traduisent la forte dispersion des données, liées à une proportion importante de faibles valeurs. On note qu'aucun modèle ne satisfait les critères de bonne performance mais que le modèle ADMS_S2 s'en approche le plus.

Tableau 1.9. Comparaison des indicateurs statistiques de performance appliqués aux modèles de Briggs (rural), Doury et ADMS pour les CTA_{mes} mesurés au sol.

	FB	MG	NMSE	VG	FAC2	FAC5
ADMS_S1	0,82	2,51	2,07	10,90	0,28	0,84
ADMS_S2	0,56	1,48	2,03	6,85	0,35	0,66
Briggs	1,14	23,5	5,53	> 1 000	0,17	0,36
Doury	1,51	> 1 000	12,2	> 1 000	0,11	0,15

1.3.2.4.4 Comparaison des résultats des mesures en altitude avec les résultats des modèles

Le tableau 1.10 rassemble les résultats de l'évaluation statistique des modèles de Briggs et Doury appliquée à l'ensemble des couples CTA_{mes}/CTA_{calc} ($N = 20$). Les valeurs positives de FB indiquent la sous-estimation du CTA par le modèle de Briggs (facteur 1,2) alors qu'une valeur négative indique une légère surestimation de CTA (facteur 1,7) par le modèle de Doury. En effet, le modèle de Doury prévoit un panache plus étroit donc plus concentré.

Tableau 1.10. Comparaison des indicateurs statistiques de performance appliqués aux modèles de Briggs (rural) et Doury pour les CTA_{mes} mesurés en altitude.

	FB	MG	NMSE	VG	FAC2	FAC5
Briggs	0,15	3,59	1,92	> 1 000	0,35	0,90
Doury	- 0,50	28,37	5,40	> 1 000	0,35	0,65

Un $NMSE$ plus faible pour le modèle de Briggs que pour celui Doury indique que c'est celui de Briggs qui représente le mieux la réalité. Des valeurs de VG très élevées, quel que soit le modèle, traduisent que dans certains cas des écarts importants existent entre les mesures et les modèles (forte dispersion des données). En effet, dans certains cas, les modèles sous-estiment très fortement les mesures.

Dans le cas des simulations menées à l'aide des modèles de Briggs et de Doury, le nombre de CTA_{max} calculés compris dans un facteur 2 par rapport aux mesures est de 35 % dans les deux cas. On note que les deux modèles ne satisfont pas aux critères de bonne performance mais que le modèle de Briggs s'en approche le plus.

1.3.3 Dispersion en milieu urbain : étude de la dispersion d'un gaz traceur passif réalisée dans le cadre du projet CAPITOU

1.3.3.1 Contexte et objectif

CAPITOU (*CAnopy and Particles Interaction in TOulouse Urban Layer*) était un projet visant à étudier l'influence de la « couche limite urbaine » (CLU) sur la pollution atmosphérique par les gaz et les aérosols (caractéristiques physico-chimiques des aérosols, transformation selon les conditions météorologiques...). Ce programme a été organisé par Météo-France, dans l'agglomération de Toulouse. Cette étude s'inscrivait dans un cadre d'amélioration de la connaissance de la pollution par les particules atmosphériques au niveau régional autour de Toulouse. Les objectifs expérimentaux de CAPITOU étaient :

- étudier les échanges énergétiques et dynamiques entre la canopée urbaine et l'atmosphère, pour diverses conditions météorologiques ;
- estimer l'impact de la ville sur la couche limite atmosphérique ;
- caractériser la formation et la transformation des aérosols urbains ;
- étudier la dispersion de polluants dans l'atmosphère.

Pour ce dernier point, des études de dispersion atmosphérique ont été menées à l'aide d'un traceur passif, SF_6 , auxquelles nous avons apporté nos compétences

en matière de recherche et d'expertise de terrain. Ces mesures, bien que réalisées dans un contexte « non-nucléaire » intéressent l'IRSN en permettant d'accroître la connaissance sur la phénoménologie de la dispersion atmosphérique en milieu urbain (Connan *et al.*, 2005 ; [23]). En mars et juillet 2004, nous avons procédé à des expériences de dispersion atmosphérique dans la périphérie de Toulouse. Les matériels et méthodes mis en œuvre sont présentés et les résultats expérimentaux obtenus comparés avec les calculs les modèles opérationnels de type gaussien Briggs (1973 ; 1985) et Doury (1976) (Connan *et al.*, 2005a ; Connan *et al.*, 2005b ; Lac *et al.*, 1980 ; [5] [23] [43]).

Comme dans le cadre de l'étude précédente, nous avons réalisé des prélèvements au sol principalement avec les systèmes DIAPEG, mais aussi en altitude à l'aide de l'avion de type Piper Aztec du centre d'aviation météorologique (CAM) devenu SAFIRE.

1.3.3.2 Campagnes expérimentales dans la ville de Toulouse

1.3.3.2.1 Caractéristiques de la zone d'étude

Les campagnes de mesure CAPITOUL ont eu lieu du 9 au 11 mars et du 1 au 4 juillet 2004 à Toulouse (figure 1.37).



Figure 1.37. Zone expérimentale urbanisée des six campagnes de dispersion lors de CAPITOUL, au centre l'aérodrome de Francazal (les cercles blancs correspondent aux campagnes au sol et les cercles jaunes aux campagnes en altitude).

La zone étudiée a été choisie afin de pouvoir effectuer des mesures de SF₆ en altitude, le Piper Aztec étant basé à Toulouse (aérodrome de Francazal), simultanément avec d'autres mesures (aérosols notamment). Les expériences se sont déroulées lors de situations météorologiques anticycloniques, associées à des vents faibles, thermiquement instables. Les mesures ont été réalisées en différents sites de la périphérie urbaine immédiate de la ville de Toulouse.

Dans cette étude de dispersion de gaz traceur une approche macroscopique de la dispersion (prise en compte des bâtiments dans leur globalité) est privilégiée par rapport à une approche microscopique (prise en compte de chaque bâtiment), ce qui permet de généraliser les résultats de cette étude à d'autres sites urbains et périurbains.

Pour chaque journée, plusieurs séries de prélèvements ont été effectuées de part et d'autre de la direction moyenne du vent au sol.

1.3.3.2.2 Émission de traceur SF₆

La dispersion par voie atmosphérique d'un polluant est régie essentiellement par l'effet du mouvement des masses d'air (transport, diffusion). En émettant un gaz traceur simulant une pollution, il est possible d'étudier la dispersion atmosphérique d'un panache. Le SF₆ a été choisi comme gaz traceur pour les études environnementales car il possède de nombreuses qualités le rendant très performant (Connan *et al.*, 2005). En premier lieu, ce gaz est d'origine anthropique exclusivement et son utilisation dans les applications industrielles est extrêmement restreinte. Sa présence dans l'atmosphère à des quantités détectables est très rare et son utilisation comme « traceur de panache atmosphérique » en est donc facilitée. Ce gaz est mesurable à de très faibles niveaux de concentrations (de l'ordre de quelques dizaines de ng.m⁻³) et ce en temps quasi-réel (3 à 5 min) avec un matériel analytique transportable.

Lors d'une expérience de dispersion atmosphérique, le SF₆ est diffusé à un débit massique régulier durant une période déterminée. Le débit de génération est fixé afin d'obtenir une mesure de concentration dans l'environnement comprise entre 0 et 40 ppb environ (1 ppb de SF₆ = 6,5 µg.m⁻³). Le débit de génération dépend du type d'étude, émission à l'intérieur du bâti dense ou non, et de la distance à laquelle les prélèvements sont effectués. Ce débit est ajustable de 1 à 40 L/minute de SF₆ (soit de 0,1 g à 4,4 g par seconde environ).

Le système d'émission utilisé est composé d'une bouteille de SF₆ connectée à un débitmètre massique (SIERRA 820) et à un compteur à gaz de type Gallus®. Une canne d'émission permet de générer le gaz à une hauteur de 4 m environ. Il est impératif de vérifier durant toute la durée d'un rejet que le débit d'émission de SF₆ reste constant. C'est en effet ce débit qui permet de normaliser les mesures de concentration et de calculer les CTA. Le rejet est effectué au niveau du camion laboratoire, afin de disposer d'informations précises sur les conditions météorologiques au point de rejet.

1.3.3.2.3 Prélèvements et mesures au sol

Différents systèmes de prélèvement sont utilisables selon que l'on procède à un prélèvement de type « ponctuel » ou « intégré » par rapport au temps. Les prélèvements dits « ponctuels » sont effectués à l'aide de seringues à gaz de 60 ml. Ils sont surtout utilisés pour procéder à un grand nombre de prélèvements afin de repérer la position du panache et pouvoir ainsi déclencher les prélèvements intégrés dans le temps. Pour des prélèvements « intégrés » dans le temps, des DIAPEG sont utilisés (figure 1.38). Ces systèmes sont déclenchés à distance depuis le camion laboratoire et permettent de remplir successivement jusqu'à 10 sacs sur des durées de 15 minutes. Des systèmes de prélèvement appelés « instruments d'études des transferts interurbains » (IETI) ont été aussi utilisés notamment en milieu urbain. Ils sont d'abord positionnés puis sont ensuite déclenchés manuellement les uns après les autres. Ces systèmes permettent de prélever de l'air sur 15 minutes. Par rapport aux DIAPEG, ils présentent l'avantage d'un encombrement minimum, et d'une mise en place par une seule personne.



(a)



(b)

Figure 1.38. Système DIAPEG utilisé avec 10 sacs de prélèvements (a) et le système IETI (b) développé spécifiquement pour CAPITOUL.

Ces systèmes sont placés sur des « transects » perpendiculaires à la direction moyenne du vent et espacés de 2 à 3°.

Les analyses de SF₆ sont effectuées avec un chromatographe en phase gazeuse à capture d'électrons AUTOTRAC 101 Tracer Gas Monitor (Lagus Applied Technology inc). La limite de détection est de 30 pptv, avec une précision de ± 3 %. Le temps de mesure est de 2 minutes. L'étalonnage est effectué à l'aide d'une bouteille de SF₆ calibré (Tracertech). Le système d'analyse peut être installé dans le camion laboratoire ou, le cas échéant, dans un véhicule léger pour des analyses en temps réel sur divers sites (fonctionnement autonome durant 3 heures sur onduleur dans ce dernier cas).

Le coefficient de transfert atmosphérique (s.m⁻³) est ici le rapport de la concentration de SF₆ mesurée en un point (m³.m⁻³), en conditions stationnaires, divisé par le débit d'émission du traceur (m³.s⁻¹) :

$$CTA = \frac{[SF_6] \times 10^{-9}}{\frac{\text{débit}}{60} \times 10^{-3}} \quad 1.91$$

avec :

- [SF₆] : concentration de SF₆ en ppbv (m³.m⁻³) ;
- débit : débit du rejet de SF₆ (source) en litres/minutes.

Les CTA expérimentaux ont été calculés uniquement lorsque les concentrations en SF₆ étaient supérieures à 0,03 ppbv (30 pptv).

1.3.3.2.4 Prélèvements en altitude

Pour les prélèvements effectués en altitude à partir d'un avion, un rack comprenant 30 seringues à gaz a été spécifiquement développé pour CAPITOU (figure 1.39). Chaque seringue comporte un robinet d'arrêt à son extrémité permettant d'éviter les échanges gazeux après le prélèvement. Ce rack se connecte sur la circulation d'air de l'avion et permet de procéder manuellement à 30 prélèvements. Compte tenu de la vitesse du Piper Aztec, il était possible de procéder à un prélèvement tous les 180 mètres environ.



Figure 1.39. Piper Aztec du centre d'aviation météorologique (a) et système de prélèvements composé d'un rack de seringues (b).

1.3.3.2.5 Mesures météorologiques

Les données météorologiques ont été obtenues à l'aide d'un anémomètre ultrasonique (GILL, Research) installé sur un mât télescopique de 10 m sur le camion laboratoire placé au niveau de la source d'émission du traceur SF_6 . À partir des données mesurées, plusieurs paramètres ont été calculés comme la longueur de Monin-Obukhov (L) et la longueur de rugosité (z_0). Ces deux paramètres permettent de déterminer les classes de stabilité de Pasquill (Golder, 1972).

1.3.3.3 Évaluation des modèles gaussiens

1.3.3.3.1 Modèles gaussien utilisés

Dans cette étude, les modèles gaussiens qui ont été évalués sont le modèle de Briggs (1973) avec les valeurs des écarts types obtenues sur terrain plat (*Open Country* ou Briggs-rural), le modèle urbain de Briggs (1973) avec les écarts types obtenus en milieu urbain (*Urban Areas* ou Briggs-urbain) et le modèle de Doury (1976). Le paramétrage par Briggs des écarts types en milieu urbain est largement basé sur les données de McElroy et Pooler's (1968) déduites des campagnes expérimentales menées dans la ville de Saint-Louis (USA).

1.3.3.3.2 Méthode d'évaluation

La comparaison entre les modèles et les mesures a été réalisée uniquement avec les résultats des mesures réalisées au sol. En effet, le nombre de mesures significatives (au-dessus du bruit de fond de l'appareil de mesure) en altitude a été trop faible pour

réaliser une comparaison pertinente avec les modèles (Connan *et al.*, 2005 ; [23]).

Nous avons confronté les résultats expérimentaux (écarts types de la distribution gaussienne et CTA au centre du panache ou CTA_{max}) avec les résultats des calculs issus des modèles gaussiens en fonction de la distance à la source.

1.3.3.4 Résultats

1.3.3.4.1 Caractérisation des campagnes de prélèvements au sol et en altitude

Lors de CAPITOU, les prélèvements au sol et en altitude ont été réalisés simultanément.

Du 3 au 9 mars 2004, nous avons réalisé 10 « transects » de part et d'autre de l'axe moyen du vent au sol et entre le 1^{er} et le 4 juillet 2004, 6 « transects ».

Les conditions météorologiques de ces six expériences de dispersion correspondaient à la classe B de Pasquill (tableau 1.11), modérément instable. Les paramètres micro-météorologiques étaient très proches lors de ces six périodes, avec un vent faible (entre 1,9 et 3,6 $m.s^{-1}$), de direction principalement ouest à nord, à l'exception du 11 mars avec un vent venant de l'est. Les valeurs de L étaient comprises entre - 72 et - 27 m, caractérisant des conditions convectives (Connan *et al.*, 2005a ; Connan *et al.*, 2005b ; Lac *et al.*, 1980 ; [5] [23] [43]).

Tableau 1.11. Paramètres micro-météorologiques des campagnes de mesure de SF_6 au sol et en altitude.

Distance à la source (m)	Vitesse horizontale à 10 m ($m.s^{-1}$)	Stabilité atmosphérique	Longueur de rugosité (m)
280 - 5 090	1,9 - 3,6	B	0,45 - 1,13

Dans la majorité des cas les résultats obtenus au sol ne font pas apparaître de parfaites distributions gaussiennes (figure 1.40). En effet, dans l'espace urbain même clairsemé, il existe des chemins préférentiels comme les rues qui favorisent les écoulements des traceurs.

Les prélèvements réalisés en altitude sont difficilement exploitables car les mesures significatives sont en nombre extrêmement limité, certainement du fait de l'altitude (100 m) et de la vitesse de l'avion (200 $km.h^{-1}$) (Connan *et al.*, 2005a ; [23]).

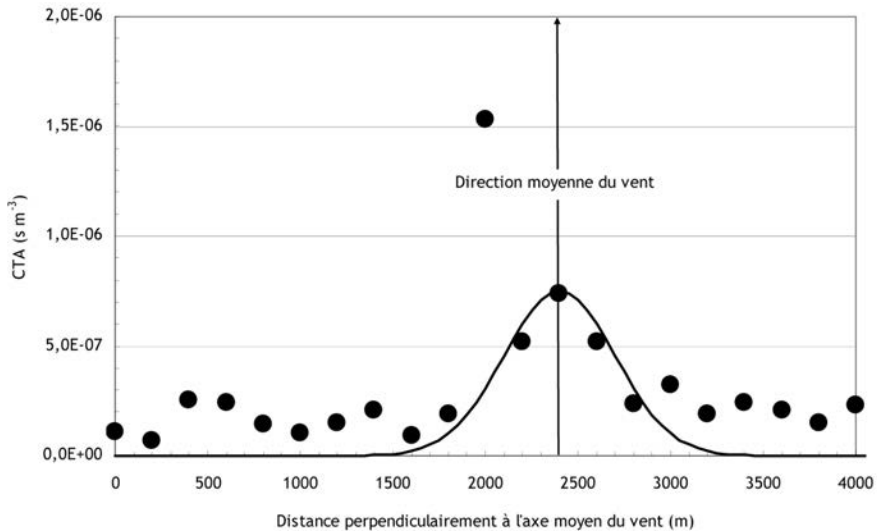


Figure 1.40. Exemple de distribution horizontale obtenue à partir des mesures de SF_6 (Points : mesures, trait : ajustement gaussien).

1.3.3.4.2 Comparaison des résultats des mesures au sol avec les résultats des modèles

Les CTA_{max} mesurés au sol sont regroupés sur la figure 1.41 et la figure 1.42 en fonction de la distance pour les deux séries de mesures de mars et de juillet. On peut observer qu'entre 300 et 1 500 m environ le CTA diminue rapidement de 10^{-4} à 10^{-6} s.m⁻³, alors qu'entre 1 500 et 5 000 m il ne diminue que faiblement de 10^{-6} et 10^{-7} s.m⁻³.

Les campagnes réalisées en mars (figure 1.41) montrent que c'est le modèle Briggs-urbain qui reproduit le mieux le résultat des mesures dans cet environnement périurbain. Les valeurs médianes des rapports $CTA_{max_calc}/CTA_{max_mes}$ sont respectivement de 0,6, 3,7 et 9,8 avec les modèles Briggs-urbain, Briggs-rural et Doury. Par contre, lors des campagnes réalisées en juillet, c'est le modèle de Briggs-rural qui reproduit le mieux les mesures. Les valeurs médianes des rapports $CTA_{max_calc}/CTA_{max_mes}$ sont respectivement de 0,3, 1,7 et 7,4 avec les modèles Briggs-urbain, Briggs-rural et Doury. En effet, les campagnes du mois de mars ont été réalisées dans un environnement périurbain à l'habitat beaucoup plus dense que pour les campagnes du mois de juillet. Bien que les rejets aient eu lieu dans un espace bâti, les directions du vent ont fait que le panache s'est dirigé vers des zones à l'habitat très clairsemé avec de nombreuses surfaces recouvertes d'herbe. Quant au modèle

de Doury, il surestime les mesures d'un facteur 10 pour le mois de mars et d'un facteur 7 pour le mois de juillet.

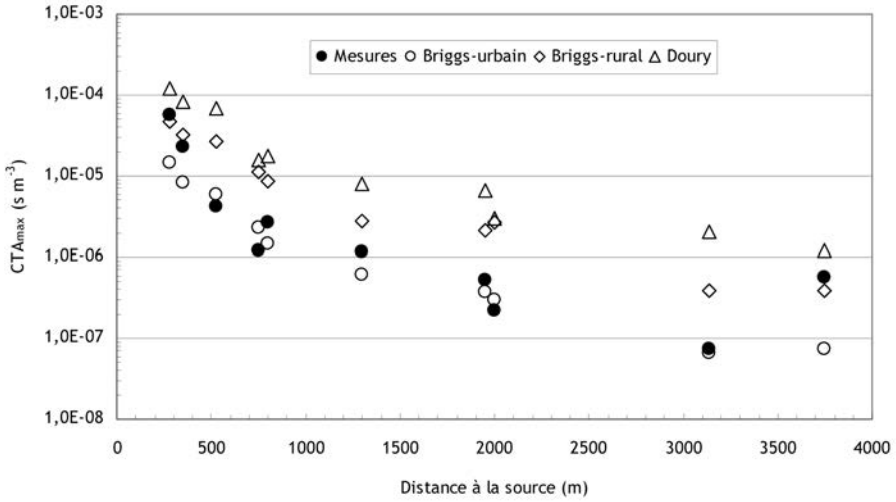


Figure 1.41. CTA_{max} en fonction de la distance à la source (campagne de mars 2004) : comparaison des mesures et des calculs avec les modèles Briggs-urbain, Briggs-rural, Doury.

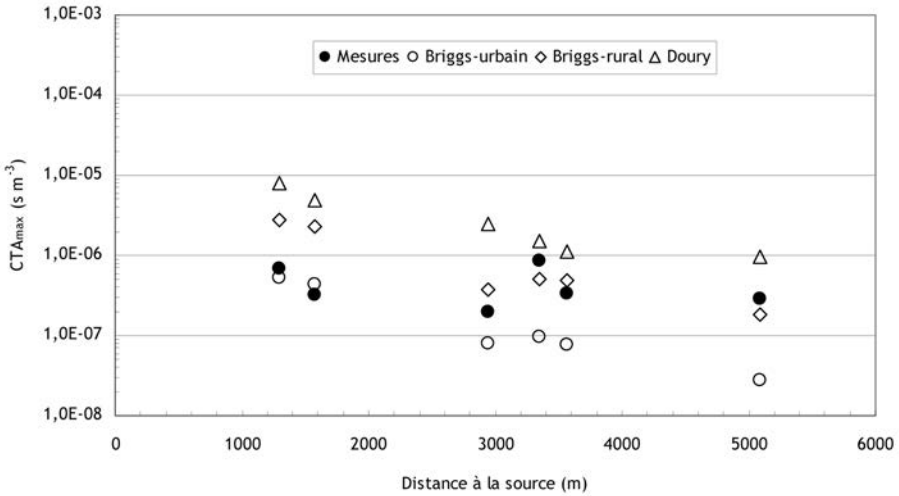


Figure 1.42. CTA_{max} en fonction de la distance à la source (campagne de juillet 2004) : comparaison des mesures et des calculs avec les modèles Briggs-urbain, Briggs-rural, Doury.

Les écarts types de la distribution horizontale du panache (figure 1.43), varient de 100 m à 1 500 m pour des distances au point de rejet variant de 700 m à 4 500 m. C'est le modèle de Briggs-urbain qui reproduit le mieux le résultat des mesures bien que des écarts importants soient observés au-delà de 2 500 m.

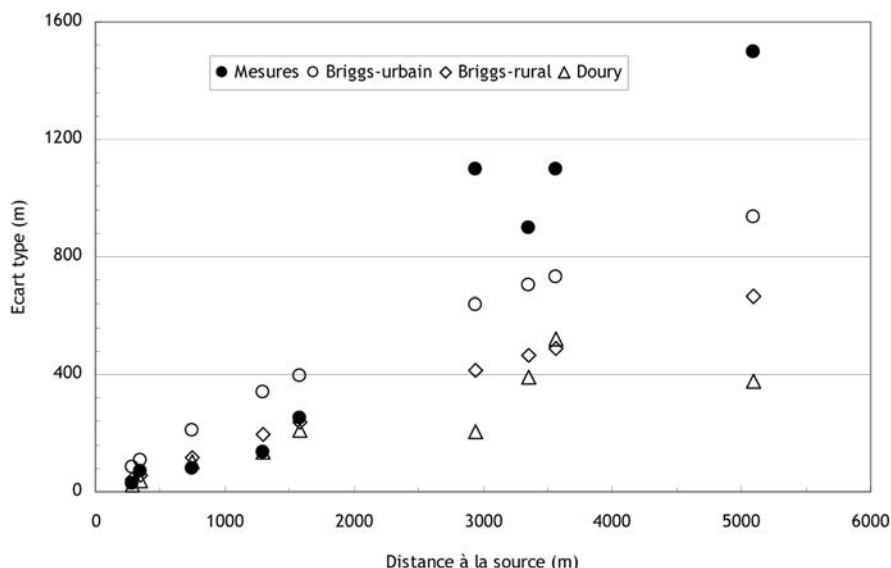


Figure 1.43. Écart type en fonction de la distance à la source : comparaison des mesures et des calculs avec les modèles Briggs-urbain, Briggs-rural, Doury.

Au vu du nombre de résultats très limité et des difficultés à obtenir des distributions gaussiennes (9 gaussiennes pour 16 « transects »), il faudrait vérifier ce résultat par d'autres expériences de traçage. Néanmoins, ce résultat pourrait s'expliquer par une dispersion verticale du panache plus forte que celle prévue par Briggs pour le milieu urbain.

1.3.4 Conclusions

Ces premières études expérimentales réalisées par le laboratoire avec les traceurs ^{85}Kr et SF_6 ont permis de développer une instrumentation originale, unique en France, pour quantifier la dispersion atmosphérique d'un panache en fonction de la distance au point de rejet et des conditions micro-météorologiques. Ce développement a été rendu nécessaire car sur des zones de topographie complexe ou fortement urbanisées, la dispersion d'un polluant est très fortement dépendante du site et il est donc nécessaire que les modèles utilisés en condition de fonctionnement normal ou accidentel disposent d'une large base de validation.

Les mesures de la dispersion atmosphérique du traceur ont été réalisées au sol et en altitude. Les mesures au sol ont permis de déterminer des CTA de part et d'autre de l'axe moyen du vent et d'en déduire des écarts types horizontaux. Les mesures en altitude à l'aide d'un ballon captif et d'un avion ont donné des résultats mitigés. En effet, l'utilisation d'un ballon captif est tout à fait pertinente mais le système doit être amélioré afin de réaliser des prélèvements simultanés du traceur pour en déduire les écarts types verticaux. Par contre, dans le cadre de notre problématique il n'est pas pertinent d'utiliser un petit avion du type Piper Aztec pour des prélèvements en altitude, compte tenu de sa vitesse et de son altitude minimale de vol.

Pour ces deux études, les résultats des mesures au sol ont permis de tester les réponses de modèles opérationnels à base gaussienne ADMS 4.0, Briggs (*open country* ou Briggs-rural), Briggs (*urban areas* ou Briggs-urbain) et Doury.

Les résultats obtenus montrent que ce n'est pas forcément le modèle le plus élaboré avec le plus grand nombre de paramètres qui donne les meilleurs résultats. En effet, dans le cadre de l'étude menée dans la région de La Hague, ADMS 4.0 surestime fortement la largeur du panache (écart type horizontal), quelle que soit la configuration avec effet de la rugosité ou effet du bâti alors que le modèle de Briggs pour le milieu rural donne une meilleure largeur de panache. Néanmoins, c'est ADMS 4.0 en configuration simple sans prise en compte du bâti qui reproduit les meilleures évolutions des CTA en fonction de la distance du point de rejet.

Dans le cas du site urbain de la périphérie de Toulouse, c'est le modèle de Briggs paramétré pour le milieu urbain qui reproduit le mieux l'évolution des CTA en fonction de la distance au rejet sans reproduire, bien sûr, les fortes concentrations que l'on peut observer au niveau des écoulements préférentiels comme les rues.

Enfin, dans ces deux études c'est le modèle de Doury qui diverge le plus de la réalité tant du point de vue du CTA que des écarts types.

1.3.5 Publications et communications significatives

- Leroy C., Maro D., Hébert D., Solier L., Rozet M., Le Cavalier S. and Connan O. (2010). A study of the atmospheric dispersion of a high release of krypton-85 above a complex coastal terrain. comparison with the predictions of Gaussian models (Briggs, Doury, ADMS4), *Journal of Environmental Radioactivity*, 101, 11, 937-944.

- Lac C., Bonnardot F., Connan O., Camail C., Maro D., Hébert D., Rozet M. and Pergaud J. (2008). Evaluation of a mesoscale dispersion modelling tool during the CAPITOUL experiment. *Meteorology and atmospheric physics*, 102, 263-287.
- Rennesson M., Maro D., Fitamant M.L. and Prian E. (2005). Comparison of the local-scale atmospheric dispersion model CEDRAT with ^{85}Kr measurements. *Radioprotection*, 40, 1, 371-377.
- Gurriaran R., Maro D., Bouisset P., Hebert D., Leclerc G., Mekhlouche D., Rozet M. and Solier L. (2004). In situ metrology of ^{85}Kr plumes released by the COGEMA La Hague Nuclear reprocessing plant. *Journal of Environmental Radioactivity*, 72, 137-144.
- Maro D., Crabol B., Germain P., Baron Y., Hebert D. and Bouisset P. (2002). A study of the near field atmospheric dispersion of emission at height: Comparison of Gaussian plume models (Doury, Pasquill-briggs, Caire) with ^{85}Kr measurements taken around La Hague nuclear reprocessing plant. *Radioprotection*, 37, 1, 1277-1282.

1.4 Échanges aux interfaces : synthèse des études réalisées

Ce chapitre regroupe les études sur le dépôt sec et le dépôt humide des aérosols. Sur le dépôt sec, deux études ont été menées. La première concerne l'étude des vitesses de dépôt sec en milieu rural et spécifiquement sa paramétrisation en fonction de la granulométrie des particules et des conditions de turbulence atmosphérique. La seconde concerne le dépôt sec sur des substrats urbains : analyse de l'influence du type de substrat, de sa température et de la vitesse de frottement sur la vitesse de dépôt des aérosols. L'étude liée au dépôt humide traite de la détermination du coefficient de rabatement des aérosols par la pluie et sa paramétrisation en fonction de la granulométrie des aérosols et de la pluviométrie.

Comme dans le cadre des études sur la dispersion atmosphérique, ce chapitre montre les développements expérimentaux réalisés et les résultats originaux obtenus en les confrontant aux modèles opérationnels. Sur cette thématique, les perspectives de recherches sont présentées dans le chapitre 2.

1.4.1 Contexte

Les développements expérimentaux liés au dépôt sec des aérosols ont débuté au laboratoire en 2005, par la réalisation de deux projets sur la thématique du dépôt sec des aérosols en milieu rural et en milieu urbain puis se sont logiquement poursuivis sur la thématique du dépôt humide (Damay *et al.*, 2010 ; Maro *et al.*, 2010 ; [3] [14]).

L'étude du dépôt sec des aérosols en milieu rural a fait suite à la thèse sur la modélisation du dépôt sec réalisée par Petroff (2005). Une des principales conclusions de cette thèse était que les données expérimentales sur la vitesse de dépôt sec des aérosols étaient parcellaires, ce qui engendrait des écarts de plusieurs ordres de grandeur des prédictions des différents modèles. Il a donc été décidé de développer une méthodologie originale basée sur la méthode des corrélations turbulentes pour acquérir des données *in situ* et quantifier la vitesse de dépôt en fonction de la granulométrie des aérosols et des paramètres turbulents (Damay *et al.*, 2008 ; Damay *et al.*, 2009 ; Damay 2010, Maro *et al.*, 2006 ; [15] [16] [37]). Cette étude a été menée en collaboration avec l'unité EPHYSE (Écologie fonctionnelle et physique de l'environnement) de l'INRA de Villenave d'Ornon.

Le dépôt sec en milieu urbain a été étudié dans le cadre du projet SALIFA (2005-2007) financé par le programme PRIMEQUAL-PREDIT (Sacré *et al.*, 2006). Cette étude a été réalisée en collaboration avec le Centre scientifique et technique du bâtiment (CSTB), le Complexe de recherche interprofessionnel en aérothermochimie (CORIA) et le Laboratoire de mécanique de fluides (LMF) de l'École centrale de Nantes (ECN). Comme, il existait extrêmement peu de données sur les dépôts en milieu urbain nous avons développé deux techniques originales utilisant des traceurs pour quantifier la vitesse de dépôt sec des particules (Damay *et al.*, 2010 ; Maro *et al.*, 2010 ; [3] [14]). Pour étudier la phénoménologie du dépôt sur des périodes de l'ordre de l'heure nous utilisons un aérosol sec calibré de fluorescéine. Pour quantifier les dépôts sur des périodes de l'ordre du mois, nous utilisons le radioélément naturel béryllium 7 (^7Be) comme traceur (Maro *et al.*, 2009 ; [34]). Ces techniques ont permis de quantifier la vitesse de dépôt en fonction de la rugosité du substrat, de sa température et de la vitesse de frottement.

De façon complémentaire aux études sur le dépôt sec, une étude interne a été initiée en 2007 afin d'évaluer les incertitudes sur les modèles de calcul de dépôt humide (Vendel, 2007 ; Vendel *et al.*, 2008 ; [18]). Les travaux ont débouché sur la mise au point et l'utilisation d'une méthode couplant un granulomètre avec un pluviomètre pour évaluer le coefficient de lavage des aérosols par la pluie. Cette technique a

permis une quantification du coefficient de rabatement des aérosols par la pluie pour diverses tailles de particules.

Enfin, les résultats des mesures réalisées lors de ces études ont été comparés aux résultats de modèles opérationnels afin d'évaluer les plus pertinents à utiliser.

1.4.2 Dépôt sec des aérosols

1.4.2.1 Milieu rural

1.4.2.1.1 Contexte et objectif

Les substances polluantes émises, ou susceptibles de l'être, dans l'atmosphère peuvent être sous forme gazeuse mais aussi sous forme d'aérosols. Il est estimé que si un accident grave se produisait sur un réacteur nucléaire, certains produits radioactifs comme le ^{137}Cs seraient émis sous forme d'aérosols. Pendant le passage du panache, une fraction des aérosols se déposerait par dépôt sec, en absence de précipitation, ou par dépôt humide dans le cas contraire. À l'heure actuelle, du fait du manque de données expérimentales, les divergences entre les principaux modèles utilisés au niveau international pour évaluer le dépôt sec sont de plus de deux ordres de grandeur (Petroff, 2005), principalement dans le domaine submicronique (figure 1.44).

Pour une même taille d'aérosols, dans le domaine submicronique 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. Afin de diminuer les incertitudes sur le calcul d'impact de rejets accidentels ou chroniques de polluants atmosphériques, il est donc important de connaître la contribution du dépôt sec des aérosols sur différents milieux, en particulier dans le milieu rural. En effet, les produits alimentaires issus de ce milieu peuvent être une composante de la chaîne alimentaire de l'homme. La vitesse de dépôt dépend de nombreux paramètres, par exemple la nature du terrain, le substrat, les conditions micro-météorologiques (turbulence) ou les caractéristiques des aérosols (granulométrie) (Davidson *et al.*, 1985).

Pour combler ce manque de données expérimentales il a donc été décidé de développer une approche *in situ* pour prendre en compte certains paramètres difficilement reproductibles en laboratoire, comme les fortes ou les faibles conditions de stabilité atmosphérique. L'objectif principal du travail réalisé a été de développer une méthode

et de l'appliquer pour quantifier l'influence de la granulométrie, des paramètres de la turbulence et du couvert sur le dépôt sec des aérosols submicroniques. La méthode est basée sur l'analyse des corrélations turbulentes, ou *eddy correlation* entre les fluctuations de la composante verticale de la vitesse du vent et celles de la concentration de l'aérosol atmosphérique mesurée pour différentes tailles granulométriques. Elle a été appliquée pour mesurer la vitesse de dépôt sur trois couverts : maïs, herbe et sol nu dans le sud ouest de la France (juin 2007, octobre 2007, mars 2008 et juin 2008) (Damay *et al.*, 2009 ; [3]).

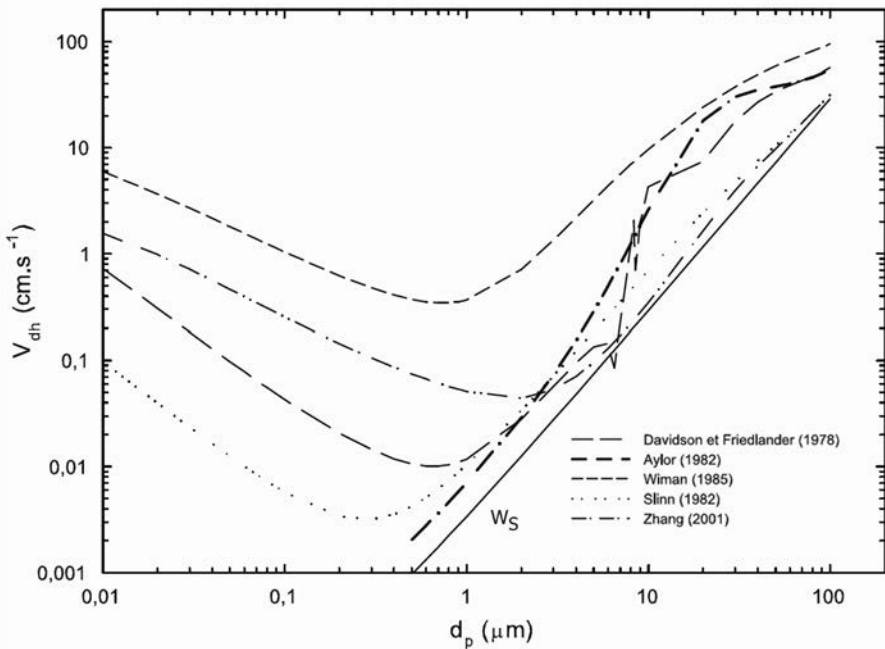


Figure 1.44. Vitesse de dépôt des aérosols en fonction de leur diamètre : comparaison des résultats de cinq modèles sur un champ d'avoine (W_s : vitesse de sédimentation) (Petroff, 2005).

1.4.2.1.2 Méthode de mesure des vitesses de dépôt par corrélation turbulente

1.4.2.1.2.1 Détermination du flux de particules et de la vitesse de dépôt sec

Dans la couche à flux constante le flux de dépôt sec F (particules $m^{-2}.s^{-1}$) est la quantité de particules déposées par unité de surface et de temps. La vitesse de dépôt sec V_d ($m.s^{-1}$) est obtenue en divisant le flux de dépôt par la concentration de l'aérosol mesurée dans l'air C (particules m^{-3}). Par convention, un flux est négatif lorsqu'il est dirigé vers le substrat (Chamberlain, 1953) :

$$V_d = \frac{-F}{C} \quad 1.92$$

En situation stationnaire et si l'homogénéité horizontale est vérifiée, le flux vertical de particules peut être déterminé par la covariance entre la vitesse verticale du vent et la concentration de particules (méthode des corrélations turbulentes).

Si nous notons Co_{wC} le cospectre de la vitesse verticale du vent et de la concentration de particule, le flux peut être mis sous la forme :

$$F = \overline{w'c'} = \int_{n_0}^{n_f} Co_{wC}(n)dn \quad 1.93$$

où n_0 est la fréquence la plus faible pouvant être mesurée sur un échantillonnage d'une durée t . Dans notre cas, la durée des échantillons traités est d'une demi-heure, n_0 est donc d'environ 10^{-3} Hz. n_f correspond au seuil de réponse spectrale des appareils de mesure.

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.

Différents détecteurs sont utilisés, associés à des procédés électriques (Held *et al.*, 2007 ; Lamaud *et al.*, 1994a ; Schmidt et Klemm 2008 ; Wesely *et al.*, 1977) ou optiques (Gallagher *et al.*, 1997 ; Held et Klemm, 2006 ; Neumann et Den Hartog, 1985 ; Sievering, 1983). Les premiers chargent les particules prélevées et les collectent sur une grille ou un plateau pour en mesurer la charge à l'aide d'un électromètre (Renoux et Boulaud, 1998). Le nombre de particules est déterminé à l'aide d'une loi de charge.

Dans le domaine submicronique, les détecteurs optiques sont fondés sur le principe de grossissement des particules par condensation afin d'être dénombrés par un compteur optique (faisceau laser, par exemple ; Renoux et Boulaud, 1998).

Mais aucune méthode existante ne permettait d'obtenir une quantification de la vitesse de dépôt des aérosols en fonction de leur taille dans le domaine submicronique.

Nous avons développé une méthode utilisant un impacteur à basse pression à détection électrique de type ELPI (Electrical Low Pressure Impacter, Dekati Inc.) couplé à un anémomètre ultrasonique (Young 81000, Inc.), pour la mesure du flux vertical de l'aérosol atmosphériques en fonction de sa taille.

Un schéma de principe est donné par la figure 1.45.

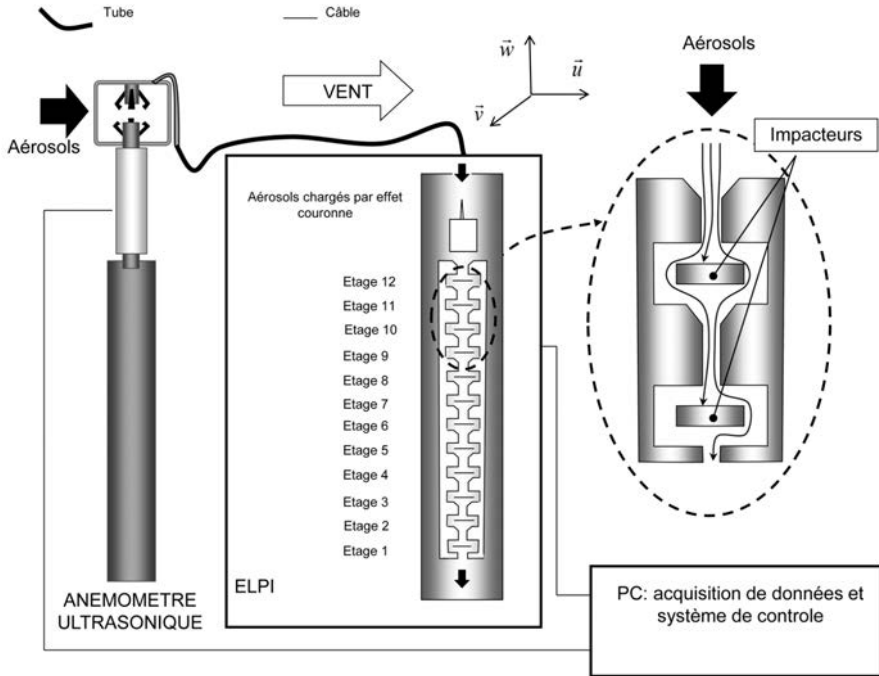


Figure 1.45. Schéma du système de mesure par corrélation turbulente et principe de fonctionnement de l'ELPI (les diamètres correspondent aux diamètres de coupe de chaque plateau).

La correspondance entre les étages et le diamètre de coupe des particules est donné tableau 1.12. Il faut noter que pour des problèmes de disponibilité de matériel des étages différents ont été utilisés lors des mesures sur le maïs, l'herbe ou le sol nu (cf. chapitre 1.4.2.1.3).

Tableau 1.12. Équivalence entre le numéro des étages et le diamètre aérodynamique.

Étage	Diamètre aérodynamique, moyenne géométrique (μm) herbe et sol nu	Diamètre aérodynamique, moyenne géométrique (μm) maïs	Diamètre aérodynamique, moyenne géométrique (μm) pour l'ensemble des couverts
1	0,014	0,014	0,014
2	0,041	0,033	0,038
3	0,074	0,054	0,066
4	0,122	0,092	0,111

Étage	Diamètre aérodynamique, moyenne géométrique (μm) herbe et sol nu	Diamètre aérodynamique, moyenne géométrique (μm) maïs	Diamètre aérodynamique, moyenne géométrique (μm) pour l'ensemble des couverts
5	0,202	0,171	0,191
6	0,316	0,287	0,306
7	0,484	0,456	0,475
8	0,762	0,742	0,755
9	1,230	1,200	1,220
10	1,960	1,900	1,930
11	3,090	3,010	3,050
12	6,310	6,130	6,219

1.4.2.1.2.2 Prise en compte du temps de réponse de l'ELPI dans la détermination du flux

Dans les gammes de concentration de l'aérosol atmosphérique (sensibilité des électromètres de l'ELPI de 100 000 fA), l'ELPI a un temps de réponse de l'ordre de 1,6 s, incompatible avec l'échelle de la turbulence atmosphérique. Cette échelle dépend de la hauteur de mesure, de la vitesse du vent, de la hauteur de déplacement et de la stabilité atmosphérique mais on peut considérer que dans la plupart des configurations un temps de réponse de 0,1 s est suffisant pour réaliser des mesures de flux turbulents (cf. chapitre 1.2.1.1.2.3). Un temps de réponse supérieur à 0,1 s entraîne une sous-estimation du flux due à une atténuation du signal dans les hautes fréquences que l'on peut, plus ou moins, assimiler à une fréquence de coupure. Afin de déterminer cette sous-estimation du flux de particule, une méthode de correction a été établie à partir de la similitude des cospectres dans la couche de surface (Damay *et al.*, 2009; [3]). En effet, dans la couche de surface, les cospectres normalisés par leur intégrale sont identiques quel que soit le scalaire s'ils ont des sources ou des puits semblables. Le cospectre normalisé du flux d'aérosols est donc identique à celui du flux de chaleur sensible aisément mesurable à l'aide de l'anémomètre ultrasonique. Il est alors possible de mettre en place une correction de flux. La perte de flux d'aérosols est calculée, à partir de la partie non-atténuée du cospectre de flux de chaleur, mesuré avec une fréquence suffisante (figure 1.46). Cette méthode a été mise au point en s'inspirant des travaux de Lamaud *et al.* (1994b). Elle est basée sur la minimisation des écarts entre l'intégrale des cospectres normalisés nCo_{wC}/F_{wC} et nCo_{wT}/F_{wT} depuis les basses fréquences vers les hautes fréquences.

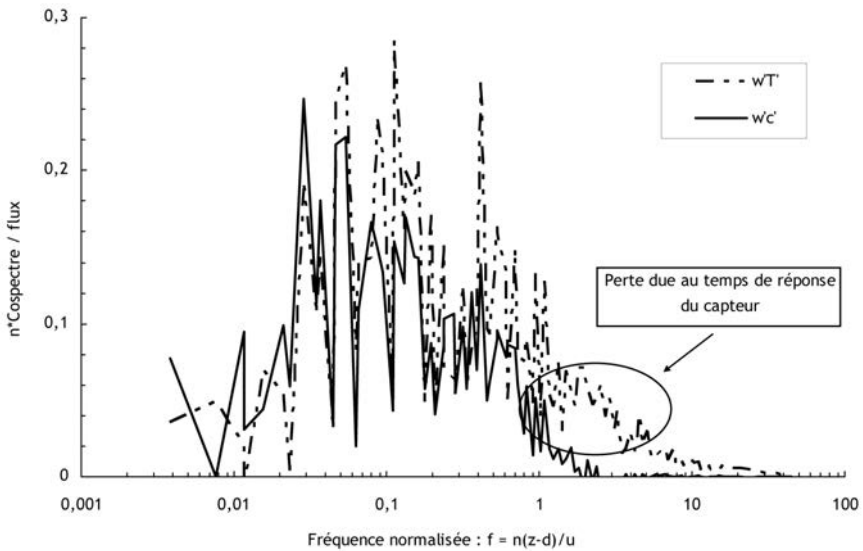


Figure 1.46. Exemple de pertes spectrales pour les hautes fréquences du cospectre du flux vertical d'aérosols.

Cette correction fondée sur l'observation des cospectres permet aussi, dans certains cas, de corriger les perturbations basse fréquence pouvant être dues à des fluctuations importantes aux grandes échelles de turbulence de la concentration des aérosols atmosphériques.

1.4.2.1.2.3 Conditions d'application de la méthode de mesure

L'application du calcul de flux par corrélation turbulente n'est possible que sous certaines hypothèses (Foken et Wichura, 1996) conditionnant le choix du site d'expérimentation :

- une concentration stable sur 30 minutes ;
- une homogénéité horizontale du terrain ;
- des mesures faites dans la couche à flux constant et représentatives des échanges au voisinage du substrat.

1.4.2.1.3 Instrumentation et campagnes de mesures

Quatre campagnes de mesures se sont déroulées sur une exploitation agricole de la commune de Mano (Landes, France), située à 70 km au sud de la ville de Bordeaux. La première campagne, du 13 au 17 juin 2007, a permis la mise au point de la méthode à partir de mesures sur un champ de maïs. Les trois autres campagnes ont

servi à la mesure des vitesses de dépôt sur herbe (16 au 23 octobre 2007), sol nu (4 au 10 mars 2008) et maïs (24 juin au 2 juillet 2008) pour diverses conditions de stabilité atmosphérique.

Le site d'expérimentation a été choisi pour que la méthode de mesure soit applicable :

- peu de sources anthropiques d'aérosols venant perturber les composantes turbulentes des mesures de concentration ;
- plus de 600 m d'un même couvert sur une zone plane dans la direction du vent, favorisant ainsi l'établissement de la turbulence atmosphérique ;
- mesures de concentration d'aérosols et de vitesse de vent à la hauteur de 6 m.

Des tests sur la qualité des mesures ont été effectués pour vérifier l'établissement de la turbulence atmosphérique et la stationnarité des signaux (Held et Klemm, 2006).

1.4.2.1.4 Résultats et discussions

1.4.2.1.4.1 Dépôt et émission des aérosols

Un exemple d'évolution de la vitesse de transfert V_t (cf. chapitre 1.2.2.1.1) des particules qui correspond à un dépôt V_d sur du maïs pour des particules de diamètre 33 nm est donnée figure 1.47. On remarque que la vitesse de dépôt sec des particules suit un cycle journalier avec un maximum vers midi lorsque le flux de chaleur sensible est important.

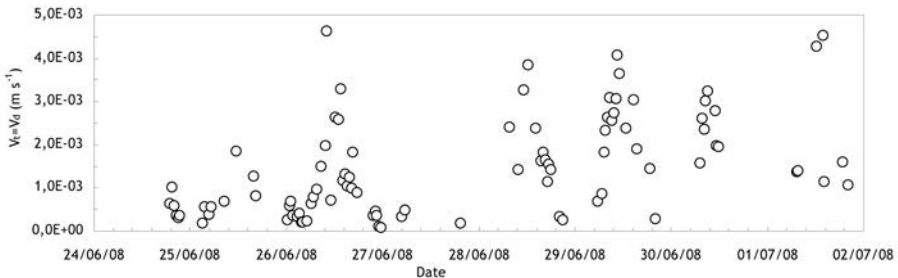


Figure 1.47. Exemple d'évolution journalière de la vitesse de transfert V_t correspondant à un dépôt V_d sur du maïs (étage 2 : diamètre géométrique de 33 nm).

Sur les différents couverts étudiés, il a été mesuré des flux de dépôt mais aussi des flux d'émission d'aérosols. Dans notre méthode, comme chaque cospectre $\overline{w'c'}$ est analysé et comparé au cospectre $\overline{w'T'}$, il est aisé d'identifier les épisodes d'émission de particules par rapport aux épisodes de dépôt de particules. Un exemple de vitesse de transfert sur du maïs correspondant à un flux d'émission pour des particules de

diamètre 456 nm est donné figure 1.48. Pour ce diamètre de particule et pendant cette période de mesure ont observé des cycles journaliers qui correspondent principalement à l'augmentation du flux de chaleur sensible vers midi.

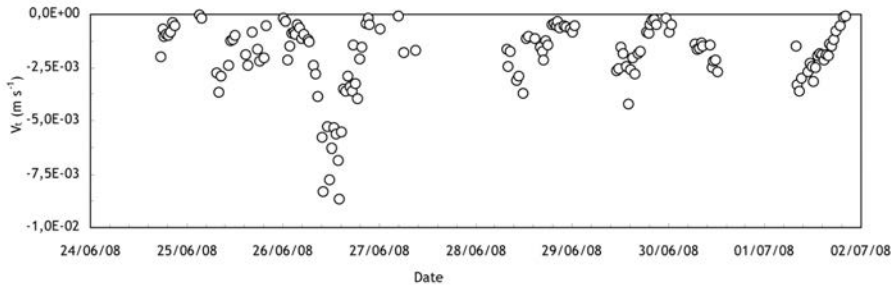


Figure 1.48. Exemple d'évolution journalière de la vitesse de transfert V_t correspondant à une émission sur du maïs (étage 7 : diamètre géométrique de 456 nm).

Pour les quatre campagnes de mesure, la figure 1.49 représente la proportion des mesures des flux de dépôt et d'émission observés sur différents couverts en fonction de la taille des aérosols, les lignes pleines représentent le pourcentage de dépôt et les lignes pointillées les valeurs complémentaires correspondant, donc au pourcentage d'émission par rapport au total.

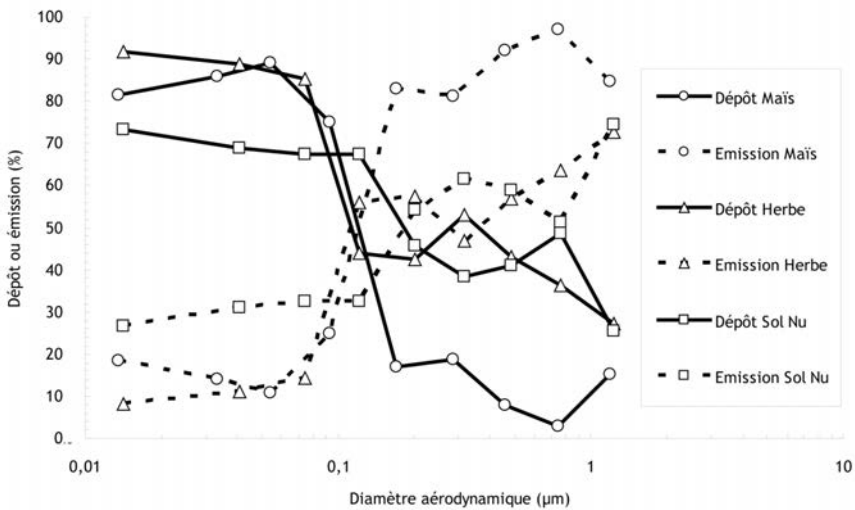


Figure 1.49. Dépôt ou émission des particules en fonction de leur diamètre : proportion des mesures entre le flux de dépôt et d'émission suivant les couverts.

Lors des campagnes, une prédominance des phénomènes d'émission est observée pour les aérosols les plus gros ($> 0,1 \mu\text{m}$), tandis que les flux de dépôt concernent en majorité les aérosols les plus petits ($< 0,1 \mu\text{m}$). Held *et al.* (2007) évoquent la

conversion gaz particules due aux terpènes comme source de flux d'émission, mais leurs mesures étaient réalisées dans un couvert forestier, donc différent du nôtre. Néanmoins, la conversion gaz particules puis le grossissement des particules pourrait se dérouler dans le couvert de la forêt de pins des Landes, entourant à moins d'un kilomètre notre site de mesures ; avec le vent, ce « panache » en se dispersant pourrait être vu dans certains cas comme une émission. En effet, une concentration plus forte au sol qu'en hauteur est identifiée, par la méthode de corrélation turbulente comme une émission. 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. La fertilisation par des dérivés azotés, comme c'est le cas sur notre zone expérimentale, entraîne des phénomènes de conversion des gaz (NH_3 , HNO_3) en particules par condensation dans le couvert qui donne naissance ensuite à des particules de plusieurs centaines de nanomètres de diamètre, et donc à un flux vertical d'émission. Le taux d'émission le plus fort a été observé au-dessus du maïs en juin et juillet, c'est-à-dire lorsque la fertilisation des sols a été la plus forte.

Lamaud *et al.* (1994b) ont aussi identifié l'érosion éolienne comme source des flux d'émission lors de campagnes expérimentales en milieu aride. Les vitesses de vent identifiées lors de ces mesures étaient supérieures à 7 m.s^{-1} , ce qui ne correspond pas aux vitesses de vent rencontrées durant nos mesures. 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 diamètre inférieur à $1,6 \mu\text{m}$. Les tailles mesurées sont donc trop petites pour correspondre à des processus de soulèvement éolien avec des vitesses de vent inférieures à 5 m.s^{-1} (Sehmel, 1984).

La stratégie vis-à-vis des mesures de flux positifs peut différer suivant les approches (Fowler *et al.*, 2009). Certains auteurs (Nemitz *et al.*, 2002) intègrent les flux d'émission à leurs moyennes totales 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 (Lamaud *et al.*, 1994b). Dans ce cas, il faut considérer les résultats comme des vitesses de transfert minimales des aérosols entre le couvert et l'air. Nous avons choisi la deuxième approche dans la mesure où l'analyse cospectrale (cf. chapitre 1.4.2.1.2), nous permet de distinguer les épisodes d'émission des épisodes de dépôt.

1.4.2.1.4.2 Influence des paramètres micro-météorologiques et optimisation du modèle de Wesely et al. (1985) pour différentes tailles de particules

Pour tenir compte de l'évolution journalière de la turbulence atmosphérique, il est nécessaire d'utiliser des indicateurs permettant de distinguer la part thermique et la part mécanique de la turbulence. Le flux de chaleur sensible (H) permet d'évaluer les mouvements d'origine thermique provoqués par le réchauffement de l'air proche du sol (cf. chapitre 1.2.1.1.2.1). La vitesse de frottement (u_*) quantifie la turbulence générée par le frottement du vent sur le couvert (cf. chapitre 1.2.1.1.2.1).

Une augmentation du flux chaleur sensible se traduit par une augmentation de la vitesse de dépôt sec des aérosols (figure 1.50). Plus le flux de chaleur sensible augmente plus les processus convectifs vont être importants favorisant ainsi les échanges entre l'air et le couvert, conduisant à un accroissement de la vitesse de dépôt.

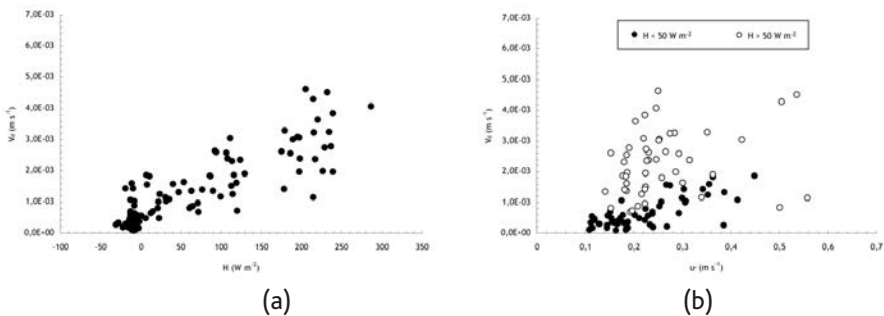


Figure 1.50. Vitesse de dépôt en fonction du flux de chaleur sensible (a) et de la vitesse de frottement (b) (surface : maïs ; diamètre géométrique : 33 nm).

La dispersion des points est due aux incertitudes de mesures mais aussi à la vitesse de frottement du vent sur le couvert, la turbulence thermique et la turbulence mécanique pouvant agir simultanément sur le dépôt.

La vitesse de dépôt augmente aussi avec la vitesse de frottement mais il est observé une plus forte dispersion des points sur la figure 1.50 que pour le flux de chaleur sensible. 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 de façon moins efficace que H . Là encore, il y peut y avoir simultanément des phénomènes thermiques et mécaniques.

Afin de pouvoir mettre en évidence l'importance des 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 1.50. 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 50 W.m^{-2} . La seconde catégorie regroupe les données de vitesses de dépôt mesurées pendant des épisodes de flux de chaleur sensible supérieurs à 50 W.m^{-2} . En effet, l'évolution du flux de chaleur sensible durant 24 h reste globalement inférieure à 50 W.m^{-2} durant la nuit et la dépasse dès que le soleil commence à chauffer le sol.

L'évolution de la vitesse de dépôt 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 inférieur à 50 W.m^{-2} , c'est principalement la vitesse de frottement du vent qui influencera la vitesse de dépôt, on aura alors $V_d/u_* = \text{cte}$.

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. 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 (Lamaud *et al.*, 1994b ; Wesely *et al.*, 1985).

La paramétrisation de Wesely *et al.*, (1985) prend en compte les effets simultanés de la turbulence dynamique et thermique, notamment par l'intermédiaire de L^{-1} , l'inverse de la longueur de Monin-Obukov.

Cette paramétrisation est de la forme suivante :

- Pour des conditions atmosphériques neutres et stables $L^{-1} \geq -0,005 \text{ m}^{-1}$:

$$\frac{V_d}{u_*} = A \quad 1.94$$

- Pour des conditions atmosphériques instables $L^{-1} < -0,005 \text{ m}^{-1}$:

$$\frac{V_d}{u_*} = A \left(1 + \left(\frac{B}{L} \right)^c \right) \quad 1.95$$

A, B et C sont des constantes dont Wesely *et al.*, (1985) ont proposé des valeurs sans prendre en compte la granulométrie des aérosols. Comme nous avons fait des mesures de la vitesse de dépôt des aérosols en fonction de leur taille, nous avons pu déterminer les valeurs de A, B et C pour chaque taille de particule.

La valeur de $L^{-1} = -0,005 \text{ m}^{-1}$ correspond à la transition entre les épisodes instables et neutres pour des faibles rugosité du couvert (figure 1.10).

Un exemple de résultat est donné sur la figure 1.51. Elle représente V_d/u_* en fonction de L^{-1} , pour un diamètre géométrique de 14 nm au-dessus du maïs. Sur les étages statistiquement représentatifs (c'est-à-dire ceux ayant plus d'une vingtaine de mesures validées pour permettre le calcul d'une régression), cette paramétrisation a été appliquée, en ne faisant varier que les paramètres A et B. Le paramètre A représente la moyenne de V_d/u_* dans les cas neutres et stables, tandis que le paramètre B est calculé en minimisant la somme des carrés des écarts entre les données de paramétrisation et les mesures.

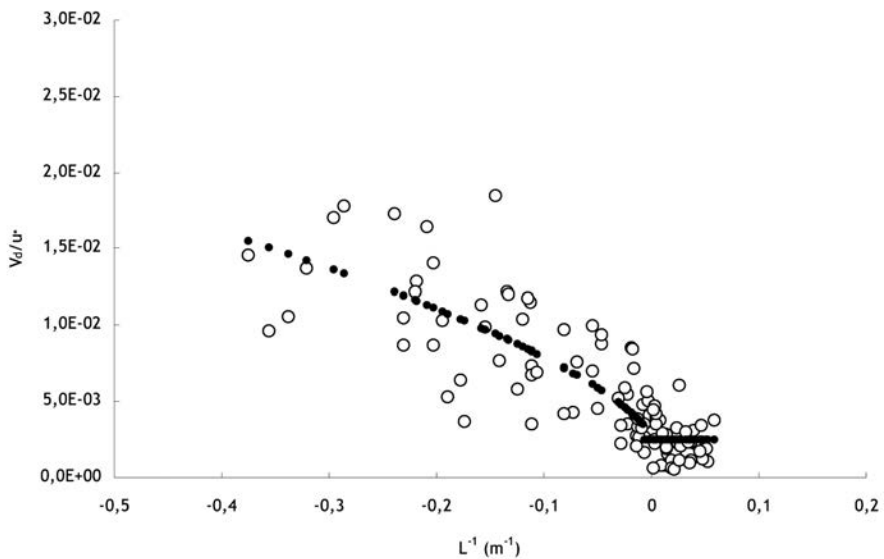


Figure 1.51. V_d/u_* en fonction de L^{-1} , (surface : maïs ; diamètre géométrique : 14 nm).

Les valeurs de V_d/u_* sont faibles et constantes dans les conditions atmosphériques neutres et stables, dans notre exemple autour de 3.10^{-3} , alors qu'elles augmentent d'un facteur 5 pendant les épisodes d'instabilité atmosphérique jusqu'à $1,5.10^{-2}$.

Dans certains cas en conditions instables, par manque de données expérimentales pour certains diamètres et pour certains couverts, il n'a pas été possible de paramétrer V_d/u_* en fonction de l'inverse de la longueur de Monin-Obukhov. Dans ces cas, ce sont les valeurs des paramètres B et C des diamètres adjacents sur le même couvert qui ont été pris en compte.

1.4.2.1.4.3 Influence de la granulométrie et du couvert

La figure 1.52 représente les évolutions de V_d/u_* en fonction de la taille des particules sur les trois types de couverts étudiés (maïs, herbe et sol nu) en conditions atmosphériques neutres et stables. L'écart entre les valeurs mesurées sur les différents couverts est faible comparativement à la dispersion des mesures. Pour une même taille, les incertitudes dues à la dispersion des résultats font que les valeurs de V_d/u_* se regroupent pour les trois couverts. De plus, l'évolution en fonction du diamètre est proche sur les trois couverts.

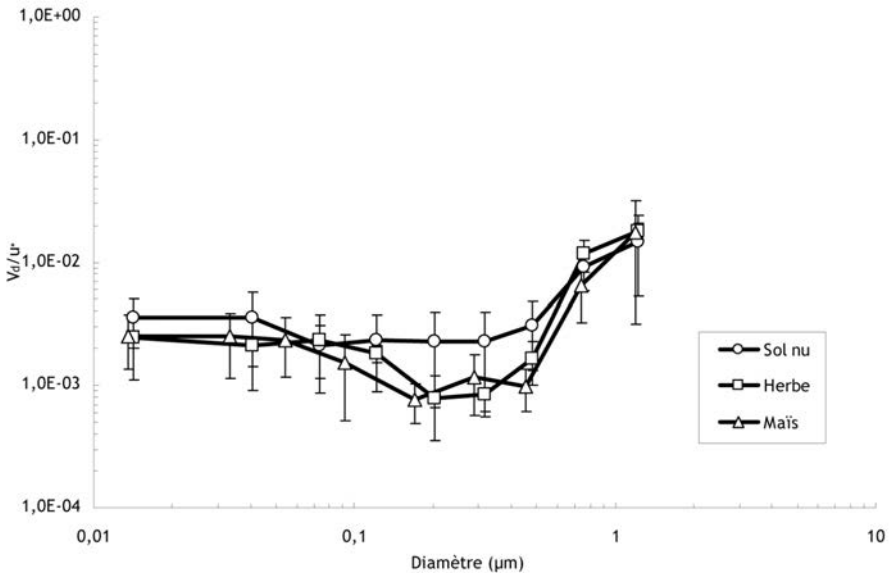


Figure 1.52. V_d/u_* en fonction du diamètre des particules pour différents couverts (conditions atmosphériques neutres et stables).

À titre de comparaison, les valeurs des rapports V_d/u_* pour certaines conditions instables (pour L^{-1} fixé à $-0,2 \text{ m}^{-1}$) ont été regroupées sur la figure 1.53. Les symboles correspondent aux données mesurées, alors que les symboles entourés de pointillés sont les valeurs recalculées (cf. chapitre 1.4.2.1.4.2). Concernant les valeurs mesurées et recalculées, l'évolution du rapport entre la vitesse de dépôt et

la vitesse de frottement du vent est proche de celle observée pour les conditions atmosphériques neutres et stables.

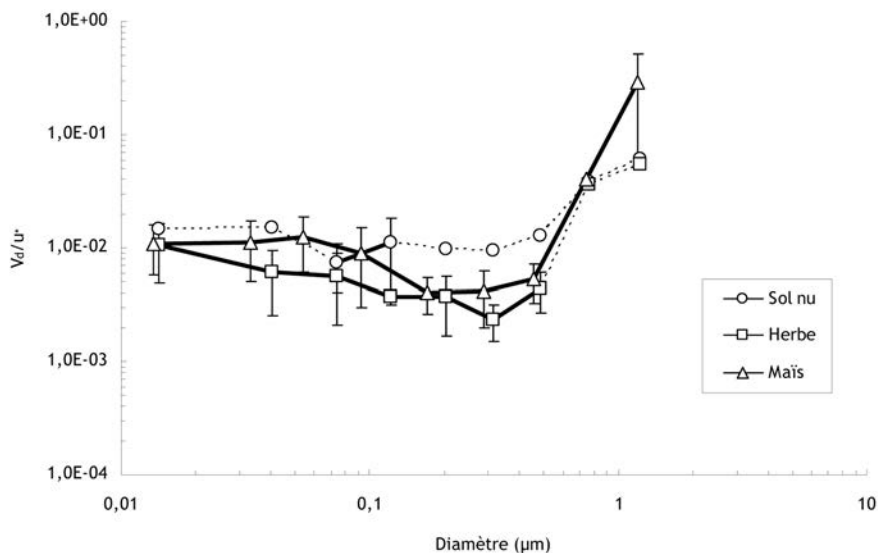


Figure 1.53. V_d/u_* en fonction du diamètre des particules pour différents couverts (conditions atmosphériques convectives $L^{-1} = -0,2 m^{-1}$).

Compte tenu des incertitudes de mesures, nous ne pouvons pas mettre en évidence de différences entre les résultats obtenus sur les différents couverts.

Il est raisonnable de faire l'hypothèse qu'une majeure partie de l'influence du couvert sur le dépôt est contenue dans l'information donnée par la vitesse de frottement.

Les autres paramètres liés au couvert comme l'indice de couverture foliaire (LAI, *Leaf Area Index*) ou des propriétés des surfaces végétales (adhérence, micro-rugosités), auraient un impact de second ordre sur l'ensemble des résultats.

Considérant cette hypothèse, il a été choisi de calculer pour chaque taille une valeur moyenne issue des résultats obtenus sur les trois couverts (figure 1.54 et figure 1.55).

Les diamètres des particules sont les diamètres géométriques correspondant aux mesures sur herbe ou sol nu et au maïs (tableau 1.12).

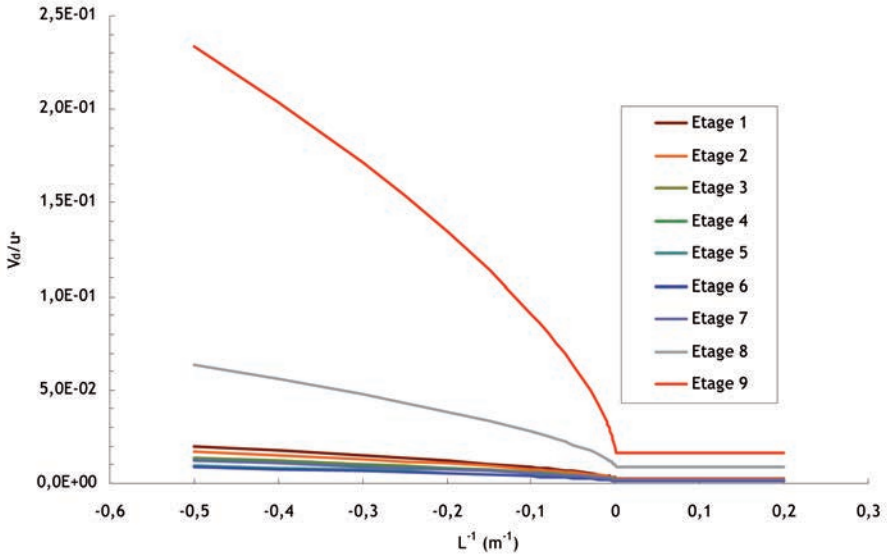


Figure 1.54. V_d/u_* en fonction de L^{-1} pour les différents étages de l'ELPI : principalement les étages 8 et 9 (diamètres géométriques de 0,7 et 1,2 μm).

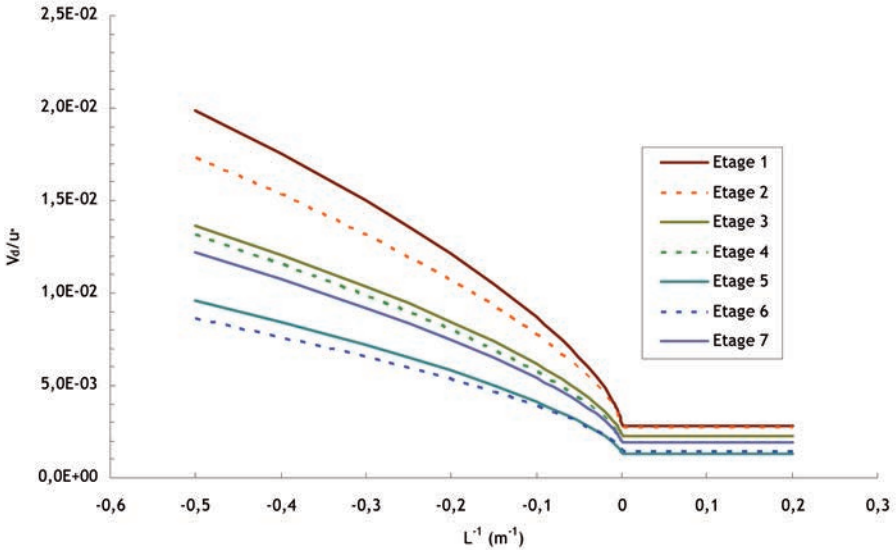


Figure 1.55. V_d/u_* en fonction de L^{-1} pour les étages 1 à 7 de l'ELPI : (diamètres géométriques compris entre 0,014 et 0,48 μm).

Enfin, Les résultats de toutes les campagnes sont présentés en fonction du diamètre des particules figure 1.56. Les cas stables et neutres correspondent aux valeurs de la longueur de Monin-Obukhof positives, tandis que le cas choisi pour les conditions instables correspond à $L^{-1} = -0,2 \text{ m}^{-1}$. Les barres d'incertitudes représentent la dispersion moyennée sur les trois couverts.

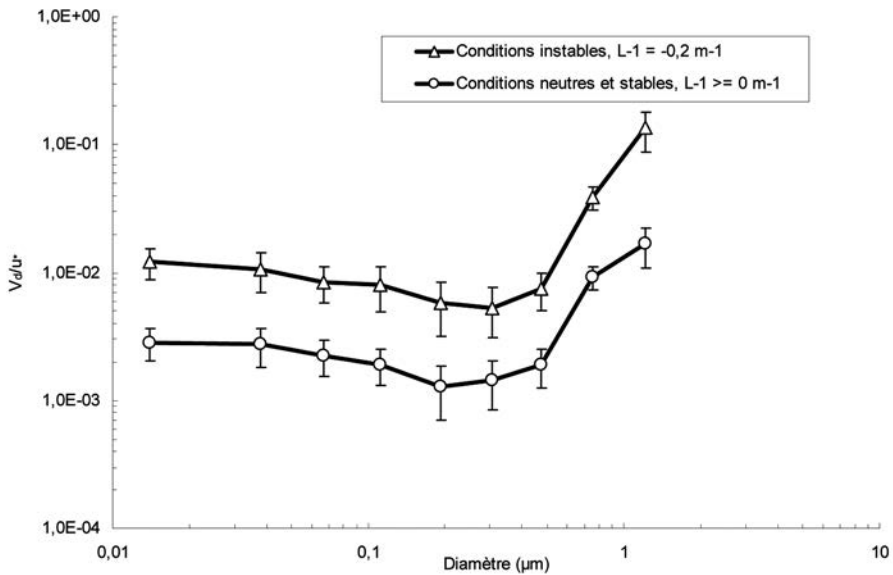


Figure 1.56. V_d/u_* en fonction du diamètre des particules pour différentes conditions de stabilité atmosphérique.

En conditions neutres et stables, les valeurs de V_d/u_* sont toutes proches de $2 \cdot 10^{-3}$ entre 0,01 et 0,1 µm, puis diminuent jusqu'à $1 \cdot 10^{-3}$ à 0,2 µm et augmentent jusqu'à $2 \cdot 10^{-2}$ à 1,2 µm. Suivant chaque taille, les valeurs de V_d/u_* en conditions instables ($L^{-1} = -0,2 \text{ m}^{-1}$) sont supérieures d'un facteur 5 en moyenne à celles mesurées en conditions neutres et stables.

En première approximation, l'évolution observée sur les plus petites tailles s'explique par le fait que le phénomène régissant le dépôt des aérosols est principalement la diffusion brownienne pour les particules d'un diamètre inférieur à 0,2 µm. Entre 0,2 µm et 0,5 µm, l'influence de la diffusion brownienne devient négligeable, l'augmentation observée est due à l'accroissement de l'influence de l'interception puis de l'impaction. Pour ces granulométries, la vitesse de sédimentation reste négligeable (cf. chapitre 1.2.2.2.1).

1.4.2.1.5 Comparaison entre les résultats des mesures et les résultats des modèles

La comparaison entre les résultats des mesures et les résultats des deux principaux modèles opérationnels, Slinn (1982) et Zhang *et al.* (2001), est présentée sur la figure 1.57.

Le modèle de Slinn (1982) est un modèle opérationnel fondé sur la prise en compte des mécanismes de dépôt par diffusion brownienne, par interception, par impaction et par sédimentation (cf. chapitre 1.2.2.2.1). Il a été calé sur les expérimentations réalisées en soufflerie par Chamberlain (1972). Le modèle de Zhang *et al.* (2001) est une évolution du modèle de Slinn, ajusté sur des expérimentations plus récentes (cf. chapitre 1.2.2.2.1).

De plus, il prend en compte la spécificité des couverts et leurs évolutions saisonnières. Comme le modèle de Slinn n'évalue pas le dépôt lors des épisodes convectifs, la comparaison est uniquement réalisée pour les conditions neutres ou stables.

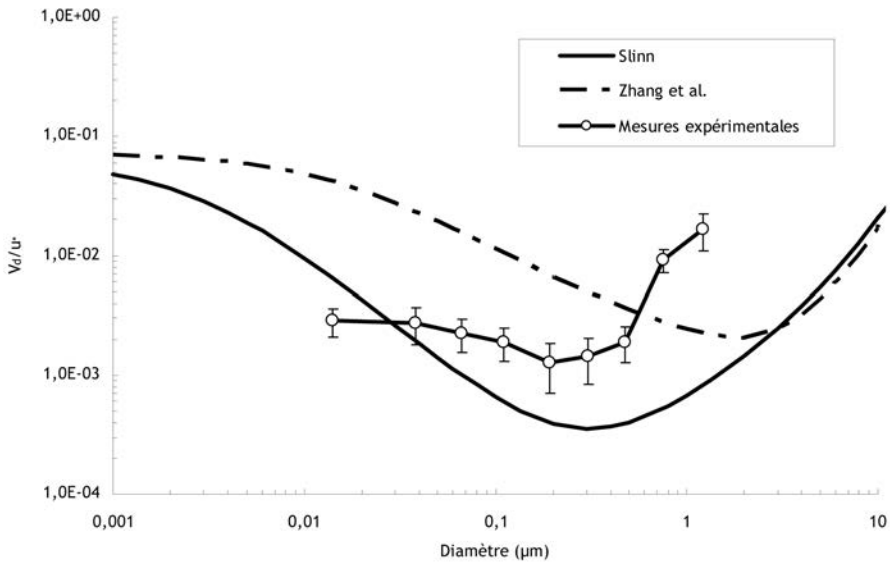


Figure 1.57. V_d/u_* en fonction du diamètre des particules : comparaison entre les mesures et les résultats des modèles de Slinn (1982) et de Zhang *et al.* (2001).

Les résultats obtenus montrent que c'est le modèle de Slinn qui reproduit le mieux nos résultats expérimentaux.

Dans la zone où la diffusion brownienne est prépondérante, le modèle de Slinn est assez proche des mesures par contre le modèle de Zhang *et al.* surestime les mesures d'un ordre de grandeur. Dans la zone intermédiaire où le phénomène d'interception prend de l'importance les mesures se situent entre les deux modèles. Enfin, les phénomènes d'interception puis d'impaction semblent plus importants pour des diamètres supérieurs à 0,5 μm que ce qui est prévu par les deux modèles, induisant ainsi une augmentation rapide de la vitesse de dépôt.

1.4.2.2 Milieu urbain

1.4.2.2.1 Contexte et objectif

L'espace urbain regroupe plus de 70 % de la population dans la plupart des pays développés ; l'étude des conséquences radiologiques d'une contamination de ce milieu constitue aujourd'hui un enjeu majeur de l'évaluation des risques en situation post-accidentelle.

Dans le cas d'un incident, d'un accident ou d'un acte de terrorisme impliquant des radionucléides sous forme de gaz ou d'aérosols en milieu urbain, il est important d'avoir une bonne connaissance des transferts des radionucléides dans l'ensemble de l'écosystème urbain afin d'en prévoir l'impact sur les populations et l'environnement. Contrairement au dépôt sec en milieu rural, le dépôt sec des particules en milieu urbain a été très peu documenté (Fowler *et al.*, 2009).

Nous avons participé, entre 2005 et 2007, au projet SaliFa (Sacré *et al.*, 2006) soutenu par le programme PRIMEQUAL-PREDIT dont l'objectif général était de mieux comprendre les mécanismes physiques à l'origine de l'encrassement des façades de bâtiments. Durant ce projet, les équipes sont intervenues à différents stades : le CSTB a procédé au choix et à la réalisation des éprouvettes de verre et d'enduit testées durant l'étude et a assuré la gestion du site pour la campagne de longue durée ; le LMF a effectué des mesures météorologiques et la simulation numérique de l'étude ; le CORIA a effectué des mesures de flux turbulent au voisinage des parois ; le LRC a réalisé des mesures de vitesse de dépôt sec des aérosols.

L'étude sur le dépôt sec s'articule autour de deux types d'expériences, de courte durée (~ 1 heure) et de longue durée (~ 30 jours), qui ont été mises en œuvre dans la ville de Nantes par l'IRSN (Maro *et al.*, 2006 ; 2010 ; [14] [37]).

Les expérimentations de courte durée ont servi à étudier les différents processus de

dépôt sec en fonction de deux paramètres, la température des substrats et la vitesse de frottement, en utilisant des émissions d'aérosols calibrés de fluorescéine.

Les expérimentations de longue durée ont servi à étudier les phénomènes de dépôt dans leur globalité en utilisant comme traceur le béryllium 7 (^7Be), radionucléide naturellement présent sous forme d'aérosols dans l'air.

Les verres (verre non traité et verre à maintenance réduite avec un dépôt d'oxyde de titane) et les enduits de façade (rugosités respectives 2 mm, 3 mm et 5 mm) sont les substrats urbains qui ont été étudiés.

1.4.2.2.2 Utilisation de la fluorescéine : campagne de courte durée

1.4.2.2.2.1 Principe

La technique mise au point au LRC permet de déterminer les vitesses de dépôt sec des aérosols, à partir de fluorescéine (uranine) émise sous forme d'aérosols secs vers un dispositif expérimental comprenant les différents substrats étudiés et des systèmes de prélèvement des aérosols (figure 1.58).

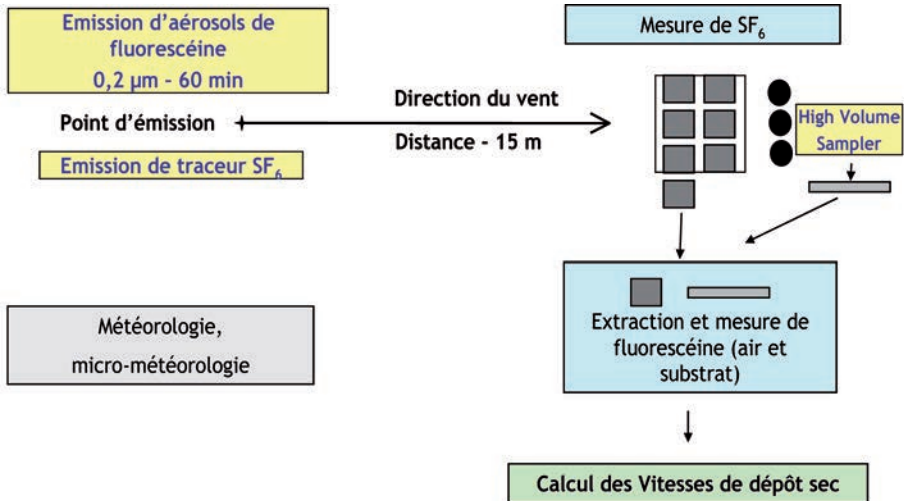


Figure 1.58. Schéma du dispositif expérimental utilisé lors de SALIFA.

Les substrats sont des éprouvettes de $4 \cdot 10^{-2} \text{ m}^2$ (20 cm x 20 cm) qui sont disposées dans le panache de particules de fluorescéine, à 15 m de l'émission.

Après l'émission, les échantillons sont collectés et la fluorescéine est extraite pour mesurage par spectrofluorimétrie.

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

Simultanément à la fluorescéine, un gaz traceur (hexafluorure de soufre, SF_6) est émis afin d'accéder au coefficient de transfert atmosphérique (CTA), donc à la concentration atmosphérique des aérosols au niveau de chaque substrat.

Le CTA est calculé en faisant le rapport de la concentration de SF_6 intégrée sur la totalité du temps de passage du panache au point d'observation, sur la quantité totale émise correspondante.

Le prélèvement de SF_6 permet des mesures plus ponctuelles que la fluorescéine.

Cette méthode permet de pallier le manque de mesures systématiques de fluorescéine dans l'air, pour laquelle seulement deux mesures sont faites par expérience, et de vérifier l'homogénéité des concentrations au niveau des substrats (figure 1.59).

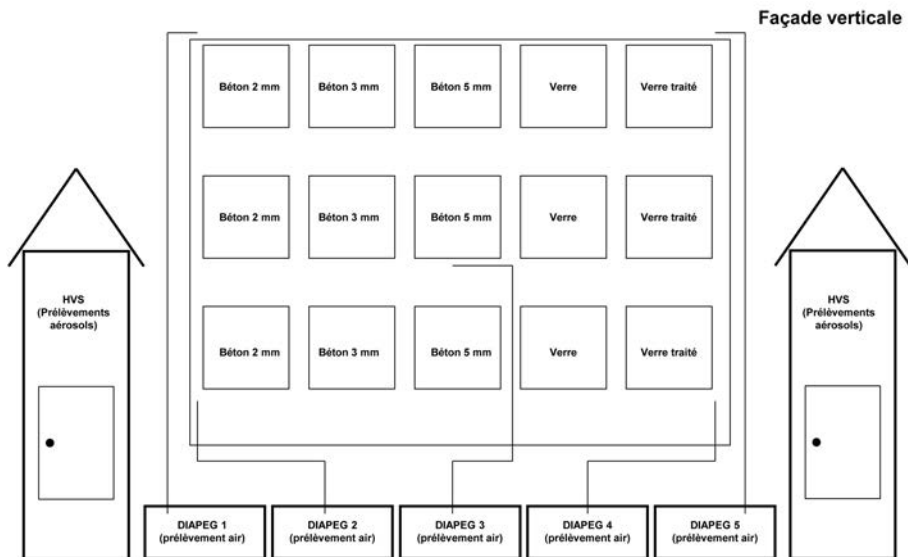


Figure 1.59. Schéma de principe de positionnement des substrats et des systèmes de prélèvement d'aérosols (HVS) et d'air (DIAPEG).

Des mesures micro-météorologiques sont également effectuées sur le site d'expérimentation, près du dispositif de génération des aérosols et près des substrats.

Cette méthodologie a été appliquée lors de deux campagnes expérimentales de terrain. Les campagnes Salifa 1 et 2 ont été réalisées du 28 au 30 juin 2005 au centre ville de Nantes (amphithéâtre de la faculté de médecine) et du 6 au 8 juin 2006 à l'École centrale de Nantes (figure 1.60).

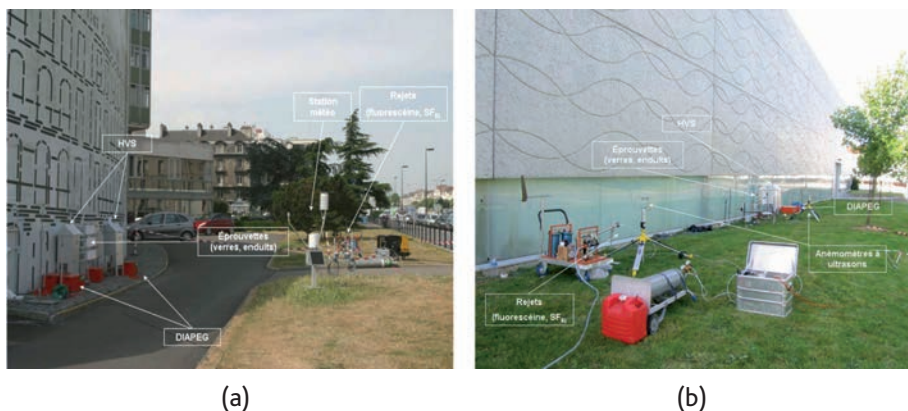


Figure 1.60. Positionnement des substrats et des systèmes de prélèvement près de l'amphithéâtre de la faculté de médecine de Nantes (a) et à l'École centrale de Nantes (b).

1.4.2.2.2.2 Émission des aérosols de fluorescéine et du gaz traceur SF_6

Les aérosols sont émis dans l'air en utilisant un générateur pneumatique de fluorescéine. Les différents modules de pulvérisation d'air, de dilution et de séchage sont réglés afin d'obtenir un diamètre médian en masse des particules générées proche de $0,2 \mu m$ (aérosol sec). Ce diamètre de $0,2 \mu m$ a été choisi car il est proche du diamètre médian en masse du mode accumulation des particules en milieu urbain (Renoux et Boulaud, 1998).

L'appareil a été étalonné (AFNOR NFX 44-011) et le diamètre médian en masse des particules obtenu est de $0,2 \mu m$ (écart type géométrique 1,7). Les aérosols de fluorescéine sont générés avec un débit de $30 mg \cdot h^{-1}$ sur une période de 60 minutes. Le système utilisé pour l'émission du SF_6 est composé d'une bouteille de SF_6 (Messer, France) connectée à un débitmètre massique (Sierra 820). L'émission est effectuée dans la canne d'émission de l'aérosol de fluorescéine. Le débit d'émission du SF_6 est fixé à $0,4 g \cdot s^{-1}$.

1.4.2.2.2.3 Prélèvements des aérosols de fluorescéine et du gaz traceur SF_6

Les aérosols de fluorescéine sont prélevés dans l'air sous le vent de l'émission et sur les supports de verres et d'enduits de façade. Les aérosols présents dans l'air sont collectés sur filtres à l'aide de deux préleveurs d'aérosols (HVS: *High Volume Sampler*) à un débit de $30 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ sur des filtres de type Whatman 40 (Ashless 40-1440917). Pendant l'émission de fluorescéine, trois éprouvettes de chaque type sont fixées sur un support dans le panache de fluorescéine à proximité des HVS utilisés pour les prélèvements des aérosols présents dans l'air. À la fin de chaque émission, les différents échantillons (filtres et éprouvettes) sont protégés de toute contamination par du papier aluminium et stockés jusqu'à l'analyse.

Les prélèvements d'air pour l'analyse de SF_6 sont effectués pendant la durée totale d'émission de la fluorescéine dans des sacs à gaz de 1 L (Tedlar®) à l'aide des DIAPEG (cf. chapitre 1.3.2.2.3). Les prélèvements sont effectués aux quatre coins et au centre du bâti supportant les éprouvettes (figure 1.59).

1.4.2.2.2.4 Mesure de concentration d'aérosols de fluorescéine et de SF_6

Pour la mesure de la concentration des aérosols de fluorescéine dans l'air, les filtres sont découpés puis immergés dans une solution aqueuse d'ammoniaque à un pH de 9 sous agitation mécanique durant 20 minutes. Pour la mesure de la concentration des aérosols déposés sur les substrats, les éprouvettes de verre et d'enduit de façade sont lavées avec une solution d'ammoniaque à pH 9, puis les solutions de lavage sont filtrées à $0,2 \mu\text{m}$ avant la mesure par spectrofluorimétrie.

Les mesures de concentration en fluorescéine sont effectuées à l'aide d'un spectrofluorimètre UV (Horiba Fluoromax-3). La longueur d'onde d'excitation est fixée à 490 nm et la mesure d'émission est effectuée à 512 nm.

Par ailleurs, les analyses des teneurs en SF_6 dans les échantillons d'air prélevés sont effectuées par chromatographie en phase gazeuse (AUTOTRAC, *Lagus Applied technology inc*).

1.4.2.2.2.5 Acquisition de données micro-météorologiques

Les données micro-météorologiques sont obtenues à partir d'anémomètres ultrasoniques (Young 81000) placés à différents endroits du site d'expérimentation. Une station météorologique (PULSONIC) permet de mesurer la vitesse et la

direction du vent, l'hygrométrie, la température et la pression atmosphérique entre le générateur de fluorescéine et le bâti des éprouvettes. De plus, la température de la paroi des substrats était mesurée lors de la campagne SaliFa 2 à l'aide d'un thermomètre infrarouge FX 410 (Jules Richard Instruments).

1.4.2.2.3 Utilisation du béryllium 7 : campagne de longue durée

En complément des expérimentations de courte durée, une campagne expérimentale de longue durée a été menée afin de rendre compte de l'impact du dépôt des aérosols en terme de « salissures » et de quantifier le dépôt sec. Les mêmes types de substrats urbains que ceux utilisés lors des campagnes de courte durée ont été installés sur un mur du centre ville de Nantes entre avril 2005 et août 2006 (figure 1.61), sur la façade nord-est de l'amphithéâtre de la faculté de Médecine, protégés de la pluie battante par un déflecteur d'eau. Périodiquement, des échantillons ont été prélevés pour différentes durées d'exposition à la pollution urbaine et différentes périodes de l'année.

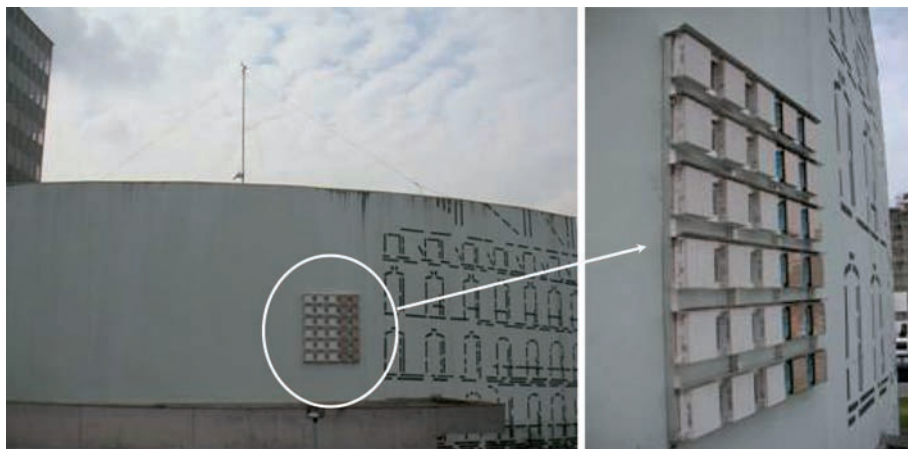


Figure 1.61. Positionnement des substrats sur la façade nord-est de l'amphithéâtre de la faculté de médecine (centre ville de Nantes).

La méthode mise au point consiste à mesurer le ^7Be déposé sur les éprouvettes de verre et d'enduit de façade. Le ^7Be est un radionucléide, de période 53,2 jours, naturellement présent dans l'atmosphère, qui se fixe sur les aérosols atmosphériques dont la granulométrie moyenne est l'ordre de $0,4 \mu\text{m}$. La concentration du ^7Be dans l'air dépendent des échanges de masses d'air entre la troposphère et la stratosphère, et des dépôts secs et humides des aérosols. Ce radionucléide peut être alors utilisé comme traceur du dépôt. Après avoir été retirés du mur, les échantillons sont traités dans les meilleurs délais car la période radioactive est assez courte (53,2 jours).

Les différents échantillons subissent un rinçage à l'eau acidifiée favorisant la lixiviation des particules déposées. L'eau de lixiviation est ensuite mesurée par spectrométrie gamma dans un laboratoire à bas bruit de fond (Laboratoire souterrain de la Marine nationale, IRSN). L'activité en ^7Be déposé sur chaque éprouvette est mesurée et rapportée à l'activité moyenne atmosphérique en ^7Be au moment de l'exposition afin de déterminer la vitesse de dépôt. Le ^7Be n'ayant pas été mesuré dans l'air à Nantes les valeurs mesurées par l'IRSN/DEI/STEME (Laboratoire de métrologie de la radioactivité de l'environnement, LMRE d'Orsay) à Alençon et Bordeaux ont été utilisées.

1.4.2.2.4 Résultats et discussions

1.4.2.2.4.1 Campagnes de courte durée

Les mesures ont été réalisées dans des conditions de vent faible, de 1,0 à 2,2 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. Les vitesses de frottement au sol, u_* , ont varié de 0,1 à 0,6 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. Les vitesses de dépôt obtenues lors des deux campagnes expérimentales de juin 2005 (SaliFa 1) et juin 2006 (SaliFa 2) sont synthétisées dans le tableau 1.13. Les vitesses de dépôt sec ont varié de $1,1\cdot 10^{-5}$ à $3,0\cdot 10^{-5}$ $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour les verres et de $4,2\cdot 10^{-5}$ à $1,2\cdot 10^{-4}$ $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour les enduits de façade. Pour les campagnes de mesures SaliFa 1 et 2, les vitesses moyennes de dépôt sec sont respectivement de $3,0\cdot 10^{-5}$ $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ et $1,5\cdot 10^{-5}$ $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour les verres non traités et de $2,8\cdot 10^{-5}$ et $1,1\cdot 10^{-5}$ $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour les verres à maintenance réduite (tableau 1.13). Compte tenu des incertitudes (inférieures à 58 %) sur la détermination des vitesses de dépôt, nous ne pouvons pas mettre en évidence de différences significatives entre les deux types de verre.

Tableau 1.13. Vitesses moyennes de dépôt sec des aérosols ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) mesurées sur différents substrats lors des campagnes SaliFa 1 et 2 (juin 2005 et juin 2006), campagne de courte durée (incertitude maximale 58 %).

Campagne	Verre non traité	Verre à maintenance réduite	Enduit de rugosité 2 mm	Enduit de rugosité 3 mm	Enduit de rugosité 5 mm
SaliFa 1	$3,0\cdot 10^{-5}$	$2,8\cdot 10^{-5}$	$1,2\cdot 10^{-4}$	$9,6\cdot 10^{-5}$	$1,2\cdot 10^{-4}$
SaliFa 2	$1,5\cdot 10^{-5}$	$1,1\cdot 10^{-5}$	$5,1\cdot 10^{-5}$	$4,2\cdot 10^{-5}$	$4,5\cdot 10^{-5}$
Moyenne	$2,2\cdot 10^{-5}$	$1,9\cdot 10^{-5}$	$8,5\cdot 10^{-5}$	$6,9\cdot 10^{-5}$	$8,2\cdot 10^{-5}$

Pour les deux types de verre, les valeurs des vitesses de dépôt sont systématiquement plus élevées lors de SaliFa 1. Les températures de l'air plus élevées et l'ensoleillement plus fort lors de SaliFa 2 pourraient fortement diminuer les vitesses de dépôt, par le processus de thermophorèse (figure 1.62 et figure 1.63) (cf. chapitre 1.2.2.1.3.5).

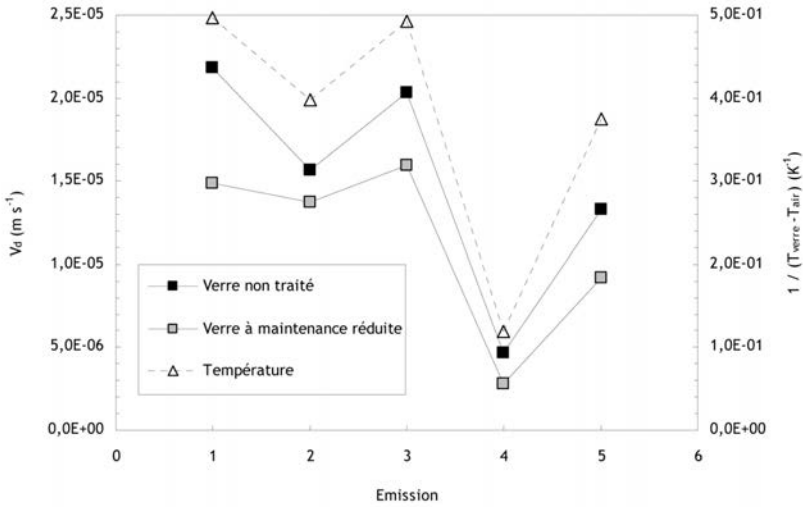


Figure 1.62. Vitesse de dépôt et inverse de l'écart de température entre l'air et le substrat pour différentes émissions.

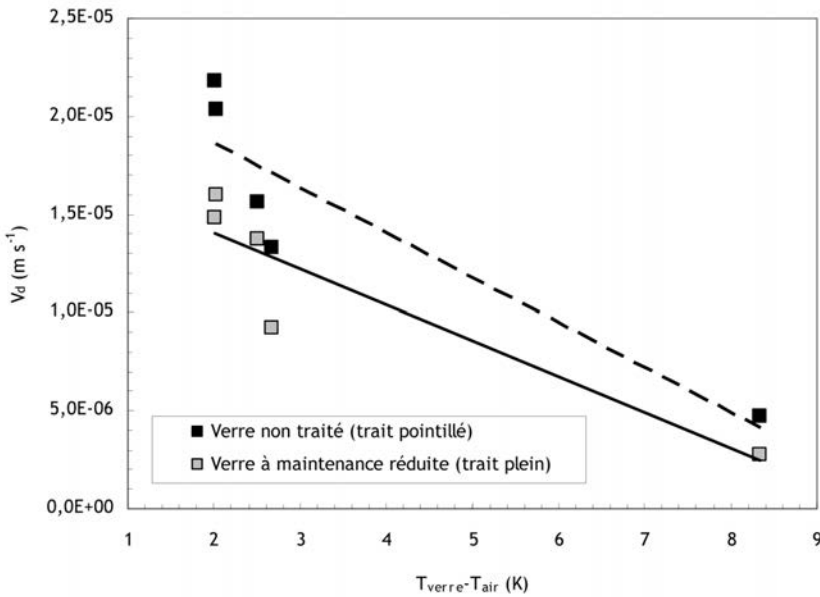


Figure 1.63. Vitesse de dépôt en fonction de l'écart de température entre le substrat et l'air pour le verre non traité et le verre à maintenance réduite.

En effet, lors de Salifa 2, les températures de surface des différentes éprouvettes et de l'air ont été mesurées afin de rendre compte de cette possible influence (Maro *et al.*, 2010 ; [14]).

Ainsi pour le verre, les variations des vitesses de dépôt suivent les variations de l'inverse de l'écart de la température entre l'air et le substrat (figure 1.62). Les vitesses de dépôt diminuent lorsque l'écart de température entre le substrat et l'air augmente (figure 1.63).

Pour les différents enduits de façade les vitesses de dépôt sec sont comprises entre $4,2 \cdot 10^{-5}$ et $1,2 \cdot 10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$, sans différence significative entre les enduits de différentes rugosités (tableau 1.13).

Les écarts de température entre l'air et les enduits étant beaucoup plus faibles, 3 K par rapport à 8 K pour les verres, il n'a pas été observé de corrélation avec la vitesse de dépôt (Connan *et al.*, 2006 ; [41]).

Néanmoins, comme pour les verres, les vitesses de dépôt sont aussi légèrement plus élevées (facteur 2 environ) lors de l'expérience SaliFa 1.

Il faut également noter que les différences entre les vitesses de dépôt pour les verres et pour les enduits sont proches pour chaque campagne. Les rapports des vitesses de dépôt entre les enduits et les verres sont supérieurs d'un facteur 3,8 lors de SaliFa 1 et d'un facteur 3,5 lors de SaliFa 2.

Il est difficile à ce stade d'expliquer ces différences, mais il est probable que les températures de l'air et des surfaces des supports jouent un rôle.

Malheureusement la température de paroi n'a pas été mesurée lors de la campagne SaliFa 1, mais les résultats obtenus lors de SaliFa 2 indiquent que ce paramètre est important à prendre en compte.

Concernant les paramètres micro-météorologiques comme la vitesse de frottement au sol et au mur on peut estimer que lors des deux campagnes les conditions étaient proches.

1.4.2.2.4.2 Campagne de longue durée

Trois séries de mesures ont été réalisées sur des éprouvettes retirées du mur d'exposition en décembre 2005 (8 mois), en avril 2006 (12 mois) et en août 2006 (8 mois).

Les résultats obtenus sont reportés dans le tableau 1.14.

Les vitesses moyennes de dépôt sec varient de $3,2 \cdot 10^{-5}$ à $3,9 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$ pour les verres non traités et de $1,4 \cdot 10^{-5}$ à $3,4 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$ pour les verres à maintenance réduite.

Pour les enduits de façade, les vitesses de dépôt sec varient entre $1,1 \cdot 10^{-4}$ et $3,4 \cdot 10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$. Pour l'ensemble des mesures, l'incertitude sur la vitesse de dépôt ainsi déterminée est inférieure à 54 % (Maro *et al.*, 2009 ; [34]).

Tableau 1.14. Vitesses moyennes de dépôt sec des aérosols (m.s^{-1}) mesurées sur différents substrats lors de la campagne d'exposition de longue durée (- : mesure non significative ; incertitude maximale 54 %).

Période d'exposition	Verre non traité	Verre à maintenance réduite	Enduit de rugosité 2 mm	Enduit de rugosité 3 mm	Enduit de rugosité 5 mm
Avril 05 – décembre 05	$3,9 \cdot 10^{-5}$	$3,4 \cdot 10^{-5}$	$2,3 \cdot 10^{-4}$	$1,5 \cdot 10^{-4}$	$1,1 \cdot 10^{-4}$
Avril 05 – avril 06	-	-	$2,8 \cdot 10^{-4}$	$2,6 \cdot 10^{-4}$	$3,4 \cdot 10^{-4}$
Décembre 05 – août 06	$3,2 \cdot 10^{-5}$	$1,4 \cdot 10^{-5}$	$2,1 \cdot 10^{-4}$	$1,7 \cdot 10^{-4}$	$1,7 \cdot 10^{-4}$
Moyenne	$3,5 \cdot 10^{-5}$	$2,4 \cdot 10^{-5}$	$2,4 \cdot 10^{-4}$	$1,9 \cdot 10^{-4}$	$2,1 \cdot 10^{-4}$

Les vitesses de dépôt sont systématiquement plus faibles pour les verres que pour les enduits, ce qui est cohérent avec les résultats obtenus sur les campagnes expérimentales de courte durée. Comme sur les expérimentations de courte durée, il n'est pas observé de différences significatives entre les différents verres, ni entre les différents enduits.

De plus, les vitesses de dépôt sec mesurées lors des campagnes de courte durée et de longue durée sont du même ordre de grandeur (tableau 1.15) : l'écart est inférieur à un facteur 3.

Tableau 1.15. Comparaison entre les vitesses de dépôt sec des aérosols (m.s^{-1}) obtenues sur les campagnes expérimentales de courte et de longue durée

Campagne	Verre non traité	Verre à maintenance réduite	Enduit de rugosité 2 mm	Enduit de rugosité 3 mm	Enduit de rugosité 5 mm
Courte durée	$2,2 \cdot 10^{-5}$	$1,9 \cdot 10^{-5}$	$8,5 \cdot 10^{-5}$	$6,9 \cdot 10^{-5}$	$8,2 \cdot 10^{-5}$
Longue durée	$3,5 \cdot 10^{-5}$	$2,4 \cdot 10^{-5}$	$2,4 \cdot 10^{-4}$	$1,9 \cdot 10^{-4}$	$2,1 \cdot 10^{-4}$
Rapport longue durée/ courte durée	1,6	1,3	2,8	2,7	2,6

1.4.2.2.4.3 *Comparaison avec les principaux résultats de mesures in situ obtenus par Roed (1983, 1985, 1986, 1987)*

Dans le cas de l'évaluation de vitesses de dépôt sur des substrats urbains, peu de données expérimentales sont disponibles dans la littérature internationale. Les travaux de Roed (1983, 1985, 1986, 1987) permettent cependant de comparer certaines données. Roed a notamment déterminé les vitesses de dépôt sec des aérosols sur différents substrats urbains en utilisant le césium 137 (^{137}Cs) rejeté dans l'atmosphère lors des essais nucléaires atmosphériques avant l'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl puis divers radionucléides émis dans l'atmosphère suite à l'accident de cette centrale. Il a aussi utilisé le béryllium 7 (^7Be) produit naturellement dans l'atmosphère comme traceur du dépôt sec.

Pour les études réalisées avant l'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl, Roed (1983, 1985) indique que la distribution granulométrique du ^{137}Cs issu des essais atmosphériques n'est pas connue avec précision mais qu'elle se rapproche très certainement de la distribution granulométrique du ^7Be qui a un diamètre aérodynamique médian en masse de 0,4 μm . Les valeurs de vitesse de dépôt obtenues lors de cette étude sont très faibles.

Pour les surfaces verticales, les vitesses de dépôt déterminées à partir des mesures de ^{137}Cs sont inférieures à $1.10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$. Avec le ^7Be , les valeurs obtenues sont de l'ordre de $1,6.10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$, donc très proches des valeurs obtenues avec le ^{137}Cs .

Pour les études réalisées après l'accident de la centrale nucléaire de Tchernobyl (tableau 1.16), Roed (1986,1987) a déterminé des vitesses de dépôt sec pour l'iode 131 (^{131}I), le ^{137}Cs , le ruthénium 103 (^{103}Ru), le baryum 140 (^{140}Ba), le cérium 144 (^{144}Ce) et le zirconium 95 (^{95}Zr).

Tableau 1.16. *Comparaison entre les vitesses de dépôt sec obtenues par Roed (1986, 1987), et celles obtenues pendant les campagnes de courte et de longue durée lors de SaliFa.*

Référence	Type aérosols	Diamètre des aérosols (μm)	V_d vitres (m.s^{-1})	V_d murs (m.s^{-1})
Campagne de courte durée : SaliFa 1	fluorescéine	0,2	$2,9.10^{-5}$	$1,1.10^{-4}$
Campagne de courte durée : SaliFa 2	fluorescéine	0,2	$1,3.10^{-5}$	$4,6.10^{-5}$
Campagne de longue durée	^7Be	0,4	$3,0.10^{-5}$	$2,1.10^{-4}$
Roed 1986,1987	^{131}I	0,4	$2,3.10^{-4}$	$3,0.10^{-4}$

Référence	Type aérosols	Diamètre des aérosols (μm)	V_d vitres (m.s^{-1})	V_d murs (m.s^{-1})
Roed 1986,1987	^{137}Cs	0,4	$5,0 \cdot 10^{-6}$	$1,0 \cdot 10^{-5}$
Roed 1986,1987	^{103}Ru	0,4	$1,0 \cdot 10^{-5}$	$4,0 \cdot 10^{-5}$
Roed 1986,1987	^{140}Ba	1 à 4	$2,0 \cdot 10^{-5}$	$4,0 \cdot 10^{-5}$
Roed 1986,1987	^{144}Ce	1 à 4		$9,0 \cdot 10^{-5}$
Roed 1986,1987	^{95}Zr	1 à 4	$1,0 \cdot 10^{-5}$	$1,3 \cdot 10^{-4}$

Il précise que les diamètres aérodynamiques médians en activité seraient de $0,4 \mu\text{m}$ pour l' ^{131}I , le ^{137}Cs et le ^{103}Ru et de $1 \mu\text{m}$ à $4 \mu\text{m}$ pour le ^{140}Ba , le ^{144}Ce et le ^{95}Zr .

Pour les aérosols ayant un diamètre aérodynamique médian en activité de $0,4 \mu\text{m}$ les vitesses de dépôt moyennes sur les surfaces vitrées et les murs seraient respectivement de $8,2 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$ et de $1,2 \cdot 10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$ avec de fortes variations selon le radionucléide (plus d'un ordre de grandeur).

Pour les aérosols ayant un diamètre aérodynamique médian en activité compris entre $1 \mu\text{m}$ et $4 \mu\text{m}$, les vitesses de dépôt moyennes sur les surfaces vitrées et les murs seraient respectivement de $1,5 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$ et de $8,7 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$ (tableau 1.16). Les fortes variations de la vitesse de dépôt observées en fonction du radionucléide sont difficilement explicables car les radionucléides sont principalement transportés par les aérosols naturels, surtout à longue distance.

Les vitesses moyennes de dépôt sec déterminées lors de la campagne SaliFa 1 (verres : $2,9 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$, enduits : $1,1 \cdot 10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$) sont proches des valeurs issues des travaux de Roed (vitres : $8,2 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$, murs : $1,2 \cdot 10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$), notamment pour les vitesses de dépôt sur les murs.

Les vitesses moyennes de dépôt sec déterminées lors de la campagne SaliFa 2 sont plus faibles que lors de SaliFa 1 (verres : $1,3 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$, enduits : $4,6 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$) mais sont encore en bon accord avec les données de Roed.

Les vitesses moyennes de dépôt sec déterminées lors de la campagne de longue durée (verres : $3,0 \cdot 10^{-5} \text{ m.s}^{-1}$, enduits : $2,1 \cdot 10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$) sont aussi proches des valeurs issues des travaux de Roed.

Compte tenu des incertitudes sur les mesures pour les différentes études, on peut estimer que tous ces résultats sont cohérents entre eux.

1.4.2.2.5 Comparaison entre les mesures et les modèles

Il existe très peu de modèles capables de reproduire les dépôts des aérosols sur des substrats urbains, contrairement aux substrats ruraux. Néanmoins, Lai et Nazaroff (2000) ont proposé un modèle permettant de calculer la vitesse de dépôt sur le verre (cf. chapitre 1.2.2.2.1).

L'ensemble des résultats expérimentaux sont comparés aux résultats du modèle sur la figure 1.64.

Le modèle reproduit correctement les résultats des mesures pour les verres et leur évolution compte tenu des incertitudes de mesures de l'ordre de 50 %.

Les écarts entre les mesures et le modèle peuvent venir, entre autres, de l'absence de prise en compte de la thermophorèse dans ce modèle.

Du fait d'un nombre réduit de mesures, ces résultats devront être confirmés. À terme, un apport significatif sera de proposer une variante de ce modèle prenant en compte d'autres substrats et la thermophorèse.

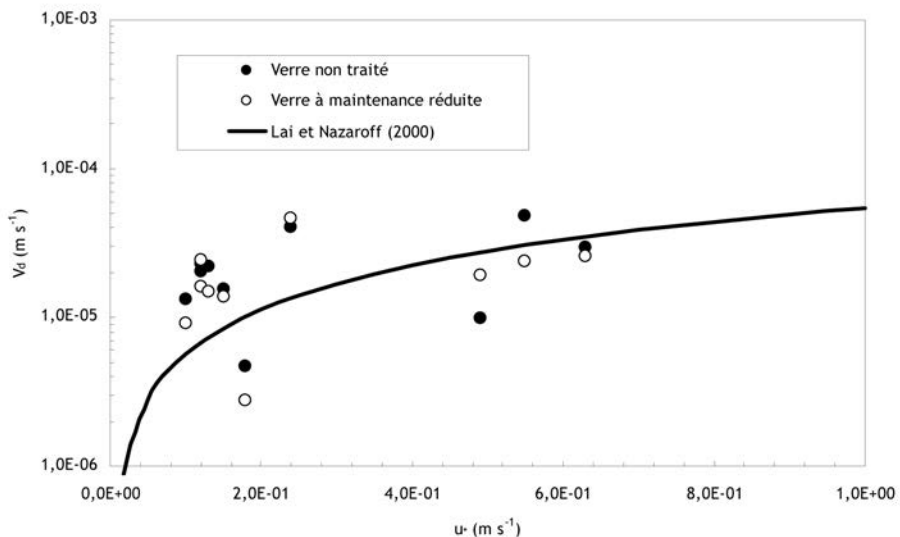


Figure 1.64. Vitesse de dépôt en fonction de la vitesse de frottement : comparaison entre les résultats du modèle de Lai et Nazaroff (2000) et les résultats des mesures.

1.4.3 Dépôt humide des aérosols

1.4.3.1 Contexte et objectif

En complément du dépôt sec, le second mécanisme de transfert des polluants entre l'air et les surfaces est le dépôt humide. Ce dépôt est lié à la collecte des aérosols par les gouttes d'eau, les particules de glace ou les flocons de neige (cf. chapitre 1.2.2.1.2). Ce phénomène réduit très fortement le temps de résidence des aérosols dans l'atmosphère. D'après Jaenicke (1982), le temps de résidence des aérosols atmosphériques serait de 740 jours par temps sec, alors que par temps de pluie il ne serait que de 8 jours, soit 100 fois moins long.

De plus, le rabatement des aérosols atmosphériques par les gouttes de pluie joue un rôle prépondérant dans la qualité de l'air en réduisant fortement les concentrations des particules dans l'atmosphère. Les gouttes de pluie entrent en contact avec les aérosols et les collectent (cf. chapitre 1.2.2.1.2). L'efficacité avec laquelle sont collectées les particules est donnée par le coefficient de rabatement : Λ (s^{-1}). Ce dernier dépend de nombreux facteurs tels que la distribution en taille des aérosols, la granulométrie des gouttes de pluie et les propriétés chimiques des particules (Seinfeld et Pandis, 1998). L'étude du coefficient de rabatement des aérosols par les gouttes de pluie reste un domaine de recherche qui a été peu étudié directement dans l'environnement (Sportisse, 2007). De ce fait, il existe des écarts de plusieurs ordres de grandeurs entre les prévisions de modèles et les mesures dans l'environnement.

Pour des besoins opérationnels de sûreté lors de rejets accidentels ou chroniques, l'IRSN utilise un coefficient de rabatement constant de $10^{-4} s^{-1}$ dans ses modèles de calcul de transferts atmosphériques des aérosols. De plus, des modèles existent dans la littérature qui permettent de déterminer ce coefficient de rabatement en fonction de l'intensité de précipitation et de la taille des particules (cf. chapitre 1.2.2.2.2).

L'objectif du travail était de développer une technique expérimentale de mesure du coefficient de rabatement des aérosols par la pluie et de l'appliquer afin de comparer les résultats obtenus aux modèles (Vendel *et al.*, 2008) [18].

1.4.3.2 Deux processus pour le lessivage des aérosols par voie humide

Le procédé de lessivage par voie humide regroupe la captation à l'intérieur des nuages (*rainout*) ainsi que le rabatement des polluants sous les nuages (*washout*).

Le *rainout* s'explique par le fait que les gouttes de nuage ne peuvent se former par nucléation homogène, c'est-à-dire à partir de l'agglomération de molécules d'eau seules.

La nucléation des gouttes est en réalité effectuée par la nucléation hétérogène (Pruppacher et Klett, 1997) à partir de particules d'aérosols. Quand il y a ascendance de l'air, l'humidité relative augmente et peut entraîner la saturation de l'air puis la sursaturation en vapeur d'eau.

Les particules sont alors recouvertes d'une fine pellicule d'eau, les sels se dissolvent et une petite gouttelette se forme : c'est une particule d'aérosol humide. À partir de ce moment, la croissance de cette particule humide dépend de l'humidité de l'air (Kölher, 1936).

En dessous d'une sursaturation critique, fonction de la composition chimique du noyau sec et de l'état thermodynamique de l'air, les gouttelettes se trouvent en équilibre thermodynamique stable. Si la sursaturation de l'air dépasse la sursaturation critique (Kölher, 1936) la gouttelette continue à grossir même si la sursaturation diminue. Les aérosols humides qui dépassent cette sursaturation critique sont dits activés. Ils continuent à grossir par condensation de vapeur d'eau jusqu'à retomber sous forme de précipitation (Pruppacher et Klett, 1997).

Le *washout* correspond au cas où l'absorption du polluant survient au cours de la chute des gouttes d'eau précipitantes. En effet, quand une goutte de pluie tombe dans l'air, elle entre en collision avec des aérosols et les collecte. Du fait de sa taille, lors de sa chute la goutte génère des turbulences influençant les trajectoires des aérosols.

Divers phénomènes sont à l'origine du *washout* tels que des effets mécaniques (impaction, diffusion brownienne, interception) et des effets phorétiques (diffusiophorèse, thermophorèse). C'est de ce type de processus de dépôt humide qu'est issue la notion de coefficient de rabatement (cf. chapitre 1.2.2.1.2).

1.4.3.3 Méthode de mesure du coefficient de rabatement

1.4.3.3.1 Protocole expérimental

Le protocole expérimental se résume à l'utilisation en parallèle d'un ELPI (*Electrical Low Pressure Impactor* - DEKATI, Finlande) et d'un pluviomètre à bascule (R102

Munro - CAMPBELL, Grande-Bretagne). Le système d'acquisition du pluviomètre a été modifié afin de réaliser des mesures toutes les minutes (figure 1.65).

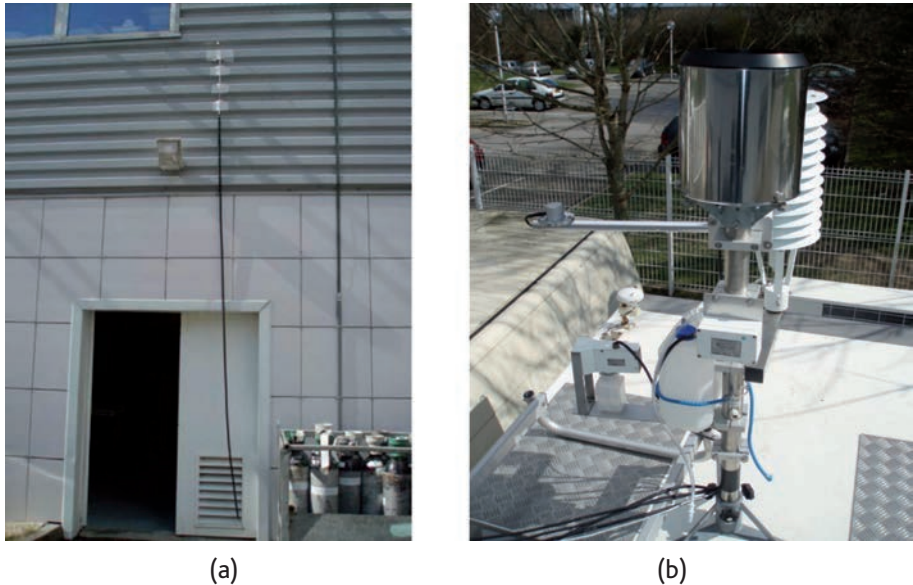


Figure 1.65. Tête de prélèvement de l'ELPI (a) et pluviomètre installés au laboratoire (b).

L'ELPI donne au cours du temps la concentration des particules par gamme granulométrique et son couplage avec le pluviomètre donne l'évolution du nombre de particules durant un épisode pluvieux (figure 1.66).

Ceci permet le calcul du coefficient de rabattement en fonction de la taille des particules et de la pluviométrie à l'aide de l'équation 1.50.

Une campagne de mesure a été menée, entre janvier et juin 2007, afin de déterminer expérimentalement les coefficients de rabattement en fonction de la pluviométrie et les comparer avec les modèles (Vendel *et al.*, 2008 ; [18]).

Ce principe expérimental permet donc l'étude de l'influence de l'intensité de précipitation (mm.h^{-1}) et de la granulométrie des particules sur le coefficient de rabattement.

Le protocole suppose que la répartition verticale des particules dans la colonne d'air est homogène, et que les aérosols ne sont pas advectés pendant l'épisode pluvieux.

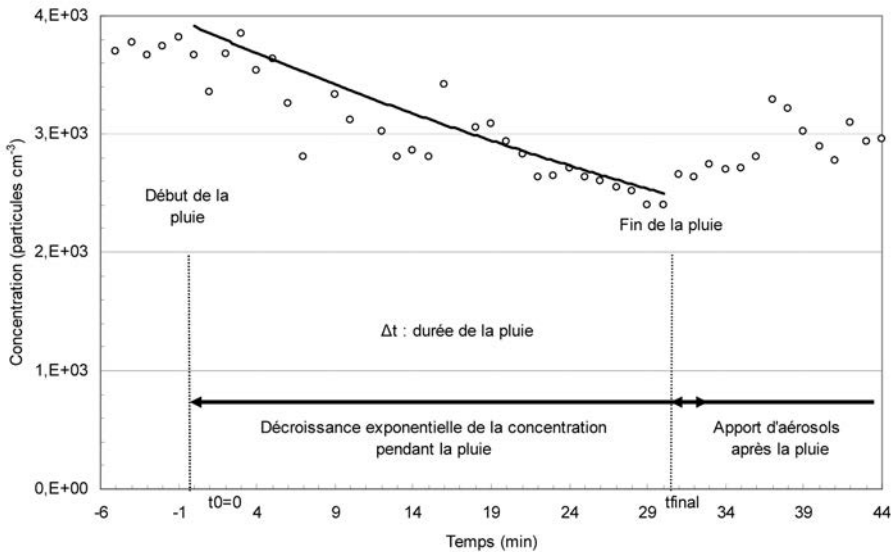


Figure 1.66. Concentration des particules en fonction du temps : exemple de détermination du coefficient de rabattement (intensité de précipitation : 2 mm.h^{-1} ; gamme granulométrique : $7 - 30 \text{ nm}$; $\Lambda = 2,5 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$).

1.4.3.3.2 Résultats obtenus

En milieu urbain, les principales sources d'aérosols sont issues du trafic automobile ou du chauffage des habitations, qui sont plus importantes le jour que la nuit. On observe alors de très fortes variations de la concentration des aérosols le jour et de faibles variations la nuit. De ce fait, les coefficients de rabattement sont issus des mesures des concentrations réalisées la nuit lorsque la concentration des aérosols varie peu.

La figure 1.67 présente les résultats obtenus lors des campagnes de mesures effectuées au LRC. L'évolution observée est une augmentation de la valeur du coefficient de rabattement en fonction de l'intensité de précipitation. Du fait des conditions météorologiques observées sur le site de Cherbourg et de la présence d'un climat tempéré, les principales valeurs des intensités de précipitation se situent entre 0 et 5 mm.h^{-1} . Pour des pluviométries inférieures à 5 mm.h^{-1} , on a observé une très forte variabilité des coefficients de rabattement pouvant aller jusqu'à deux ordres de grandeur. Cette variabilité pourrait venir d'incertitudes dans le calcul du coefficient de rabattement ou d'une variation du coefficient de rabattement des aérosols en fonction de paramètres comme la taille et la charge électrique des gouttes de pluie, la charge des aérosols et la turbulence de l'atmosphère.

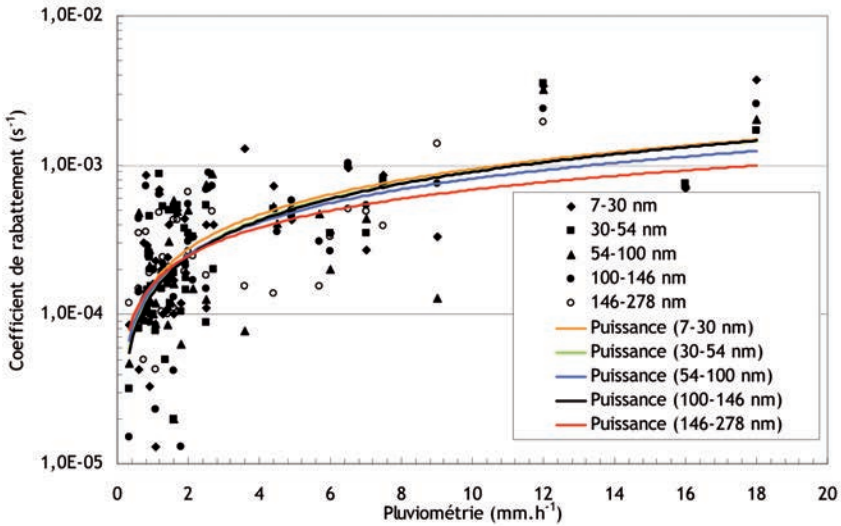


Figure 1.67. Coefficient de rabatement en fonction de la pluviométrie : comparaison pour différentes tailles de particules (les fonctions puissance indiquent un ajustement mathématique des mesures).

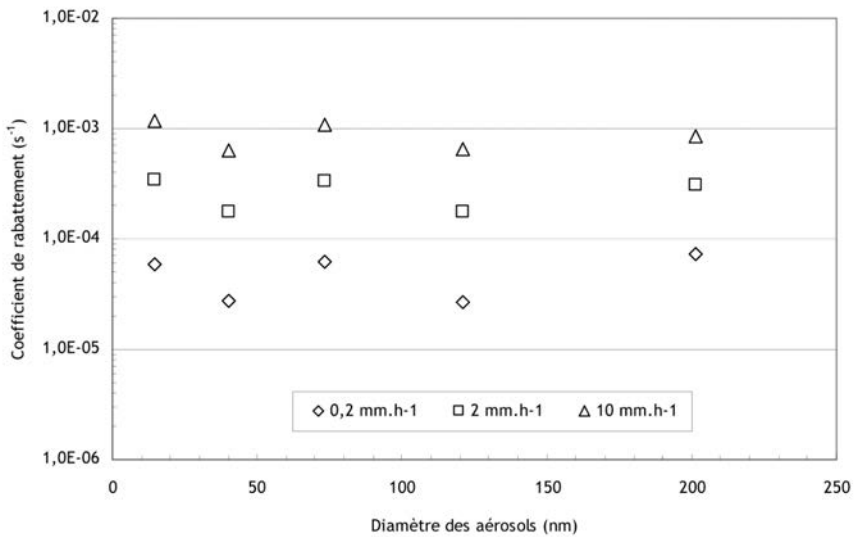


Figure 1.68. Coefficient de rabatement en fonction de la taille des particules : comparaison pour différentes pluviométries.

La croissance du coefficient de rabatement en fonction de l'intensité de précipitation suit une loi en puissance comme prédit par la théorie (ch. chapitre 1.2.2.1.2). Par contre, lors des campagnes il n'a pas été observé d'évolution du coefficient de

rabattement en fonction de la taille des aérosols. Par exemple, pour des aérosols de 30 nm à 200 nm, un coefficient de rabattement relativement constant de 10^{-3} s^{-1} a été obtenu pour une intensité de précipitation de 10 mm.h^{-1} (figure 1.68).

Du fait d'un nombre réduit de mesures, ces résultats devront être confirmés.

1.4.3.3.3 Comparaison entre les mesures et les modèles

Pendant ces campagnes et eu égard aux incertitudes de mesures, on n'a pas été observé d'évolution significative du coefficient de rabattement en fonction de la granulométrie des aérosols. Nous avons donc déterminé un coefficient expérimental moyen fonction uniquement de l'intensité des précipitations à l'aide d'un ajustement de type puissance. Ce résultat est comparé (figure 1.69) aux modèles opérationnels (cf. chapitre 1.2.2.2.2). Le modèle de Sparmacher *et al.* (1993) est proposé pour les aérosols de $0,23 \mu\text{m}$, celui de Jylha (1999) pour les radionucléides ($\sim 0,4 \mu\text{m}$) et celui de Baklanov et Sorensen (2001) pour des aérosols inférieurs à $1,4 \mu\text{m}$.

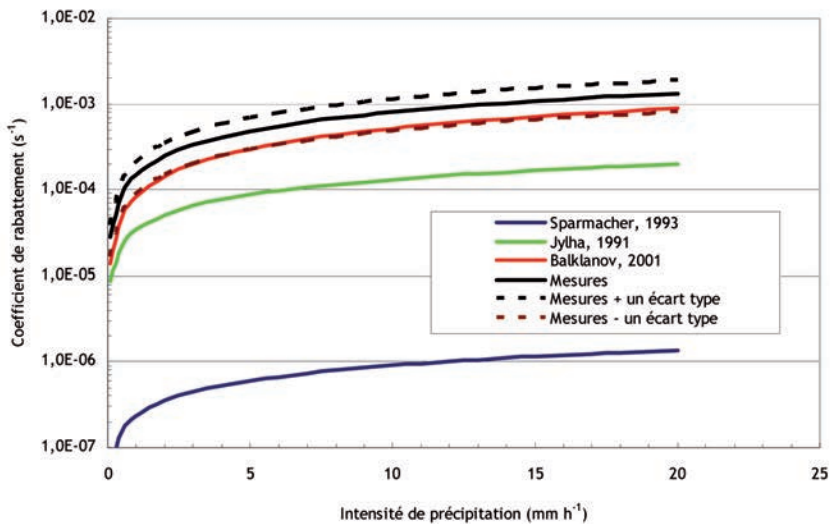


Figure 1.69. Coefficient de rabattement en fonction de la pluviométrie : comparaison entre les résultats des modèles et les mesures.

L'évolution du coefficient de rabattement en fonction de l'intensité de précipitation issue des mesures est très proche de celle prédite par les modèles. Par contre, seul le modèle de Baklanov et Sorensen (2001) est proche des mesures compte tenu de leurs incertitudes. Le modèle de Jylha (1999) sous estime d'un ordre de grandeur les mesures et le modèle de Sparmacher *et al.* (1993) de trois ordres de grandeur.

1.4.4 Conclusions

Comme dans les cas de la dispersion atmosphérique, ces premières études ont permis de développer des méthodes expérimentales originales permettant de mieux comprendre la phénoménologie des dépôts secs et des dépôts humides dans des milieux aussi différents que les milieux ruraux et urbains. Elles ont été appliquées avec succès afin de mieux quantifier les dépôts, et les résultats obtenus ont été confrontés aux principaux modèles opérationnels.

L'étude sur l'évaluation du dépôt sec des aérosols en milieu rural est plus aboutie et elle a permis d'obtenir une bonne quantification de la vitesse de dépôt sec des particules sur différents couverts comme le sol nu, l'herbe ou le maïs en fonction de la granulométrie des aérosols et de la stabilité atmosphérique. Les résultats obtenus pour la quantification de la vitesse de dépôt en fonction de la granulométrie sont une première internationale.

L'étude du dépôt sec en milieu urbain a abouti au développement de techniques de traçage uniques en France utilisant des aérosols de fluorescéine et de béryllium 7. L'application de ces méthodes a permis d'obtenir une ébauche de quantification de la vitesse de dépôt sec sur certains substrats urbains en fonction de leur rugosité et de la vitesse de frottement. De plus, il est probable que sur certains substrats comme le verre, une température de surface élevée par rapport à l'air peut réduire très fortement la vitesse de dépôt. Dans ce cas, c'est le phénomène de thermophorèse qui diminuerait le dépôt. Néanmoins, des expérimentations supplémentaires seraient utiles pour quantifier le dépôt sur d'autres substrats représentatifs du milieu urbain (ardoise, zinc, bitume...) en fonction de la granulométrie des aérosols, de l'écart entre la température de surface et la température de l'air, et de la turbulence atmosphérique.

La mise au point de la méthodologie pour quantifier le dépôt humide et son application ont permis d'acquérir quelques données sur l'évolution du coefficient de rabatement des aérosols par la pluie en fonction de l'intensité de précipitation et de la taille des aérosols. Ces données sont entachées de fortes incertitudes qui proviennent des hypothèses simplificatrices de la méthode employée (cf. chapitre 1.4.3.3.1), mais aussi d'une méconnaissance de la dépendance du coefficient de rabatement vis-à-vis d'autres paramètres comme la charge électrique des aérosols, la charge et la température des gouttes de pluie.

Dans l'ensemble, les comparaisons avec les modèles opérationnels ont mis en évidence de très forts écarts entre les résultats des mesures et ceux des modèles, qui incitent fortement à la poursuite de ce type d'études.

1.4.5 Publications et communications significatives

- Maro D., Connan O., Hébert D., Rozet M., Talbault M., Coppalle A., Sini J.F., Rosant J.M., Mestayer P., Sacré C., Flori J.P., Giraud D., Olive F., Ruot B. and Rroupsard P. (2010). Quantification of the dry deposition of aerosols in an urban environment: towards a new methodology. IAC2010, Helsinki, Finland, august 2010, P212/7G0, support CD 1pp.
- Damay P., Maro D., Coppalle A., Lamaud E., Connan O., Hébert D., Talbaut M. and Irvine M. (2009). Size-resolved eddy covariance measurements of fine particle vertical fluxes, *Journal of aerosol Science*, 40, 12, 1050-1058.
- Damay P., Maro D., Coppalle A., Lamaud E., Connan O., Hébert D., Talbaut M. et Irvine M. (2009). Mesure par corrélation turbulente de la vitesse de dépôt des aérosols submicroniques sur différents couverts naturels. Proceeding du 23^e congrès français des aérosols, ASFERA, Paris, 14-15 janvier 2009, support CD 5pp.
- Damay P., Maro D., Coppalle A., Lamaud E., Connan O., Hébert D. and Talbaut M. (2008). Measuring the dry deposition velocity of sub-micron aerosols in a prairie by eddy correlation using an Electrical Low Pressure Impactor. Proceedings of the 9th International Aerosol Conference, Thessalonique, Grèce, 24-29 august 2008, T04A026P, support CD 1pp.
- Vendel F., Maro D., Hébert D. et Germain P. (2008). Détermination expérimentale du coefficient de rabatement des aérosols par la pluie : comparaison modèles-mesures. Proceeding du 23^e congrès français des aérosols, ASFERA, Paris, 16-17 janvier 2008, support CD 5pp.

CHAPITRE 2

Synthèse des acquis et projet de recherche

Ce chapitre présente le bilan des travaux réalisés en mettant en exergue les avancées scientifiques et en proposant un projet de recherche pour l'avenir sur la thématique des transferts des radionucléides sous forme de gaz et d'aérosols dans les milieux complexes.

2.1 *Avancées scientifiques*

En situation de rejets accidentels ou chroniques, l'atmosphère est la principale voie de transfert des rejets radioactifs d'une installation nucléaire (centrale nucléaire, usine de retraitement des combustibles, par exemple) vers l'environnement et, de ce fait, vers l'Homme. Il est donc nécessaire de disposer d'informations suffisantes sur cette voie de transfert pour estimer les transferts des rejets radioactifs et en évaluer précisément les conséquences radiologiques vers les populations concernées et l'environnement.

L'IRSN développe ses propres outils de dispersion et de transfert atmosphérique (C3X, SYMBIOSE... entre autres), pour ses besoins opérationnels. Le développement de ces outils entre dans le cadre du contrat d'objectifs de l'IRSN pour l'acquisition de meilleures connaissances sur les transferts des radionucléides en situation de fonctionnement normal d'une installation mais surtout en situation accidentelle ou post-accidentelle. À l'heure actuelle, les calculs d'impact en champ proche sont réalisés avec le modèle pX : son module de dispersion est un modèle gaussien fondé sur les écarts types de Doury. La vitesse de dépôt sec des aérosols y est arbitrairement fixée à $5 \cdot 10^{-3} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$, et le coefficient de rabattement des aérosols par la pluie à 10^{-4} s^{-1} .

Ces outils doivent avoir une reconnaissance nationale et internationale notamment au travers de validations scientifiques par rapport à des expériences de référence réalisées au niveau international, au niveau national ou au sein de l'IRSN. Le Laboratoire de radioécologie de Cherbourg-Octeville apporte, et devra continuer à apporter, une contribution importante au rayonnement scientifique de l'Institut dans ce domaine.

Les travaux présentés dans ce mémoire ont contribué au développement ou à l'amélioration de techniques expérimentales dans les domaines de la dispersion atmosphérique et des transferts des radionucléides aux interfaces dans les environnements complexes. Ces techniques expérimentales appliquées lors de campagnes de terrain, ont permis d'acquérir des données nouvelles afin d'avoir une meilleure compréhension des transferts de radionucléides sous forme de gaz et d'aérosols. Ces données nouvelles devront, à terme, être introduites dans les modèles opérationnels de l'IRSN.

2.1.1 Dispersion atmosphérique

À la fin des années 1990, il n'existait plus en France, de laboratoire pouvant mettre en œuvre des techniques expérimentales de traçage d'un panache atmosphérique et très peu à l'étranger alors que parallèlement de nombreux modèles étaient développés. Ces nouveaux modèles fondaient souvent leur validation sur des expériences très anciennes réalisées en terrain peu accidenté. Il a été décidé de développer des nouvelles techniques expérimentales de traçage atmosphérique d'un panache susceptibles de répondre à ces besoins de validation.

Ce développement est fondé sur l'utilisation d'un gaz traceur du panache, inerte chimiquement afin de minimiser les pertes par dépôt sec.

Au début de chaque étude, il est tout d'abord observé si l'émissaire émet un traceur utilisable comme c'est le cas par exemple de l'usine de retraitement des combustibles usés AREVA NC de La Hague qui rejette du ^{85}Kr dans l'atmosphère avec un débit très bien quantifié. Dans le cas contraire, le gaz traceur SF_6 est émis à débit constant dans l'émissaire ou directement dans l'environnement comme cela a été le cas lors des campagnes CAPITOU.

Pour quantifier la dispersion du gaz traceur émis dans l'atmosphère, des prélèvements sont réalisés au sol sous le vent à l'aide de systèmes spécifiques de prélèvement d'air comme les « dispositifs autonomes de prélèvement d'échantillons de gaz » (DIAPEG). Ces systèmes permettent de réaliser des prélèvements dans des sacs spécifiques (TEDLARD®) afin de faire des analyses ultérieures en laboratoire. Ces systèmes de prélèvement sont généralement déclenchés par onde radio lorsque le panache arrive à leur niveau. Une des originalités de cette procédure de prélèvement est la détection en temps réel du panache au niveau d'un camion laboratoire qui permet d'avoir des conditions stationnaires de prélèvement. Dans notre cas, le ^{85}Kr est détecté toutes les secondes et le SF_6 toutes les trois minutes. Ce système de détection en temps réel permet d'avoir une bonne localisation du panache et ainsi de réaliser des campagnes de prélèvements réussies.

Afin d'avoir une meilleure observation de la dispersion atmosphérique d'un panache, il a été décidé de développer des techniques de prélèvement ou de mesure en altitude. Deux techniques différentes ont été employées avec l'utilisation d'un ballon captif dans la région de La Hague et l'utilisation d'un avion de type Piper Aztec dans la ville de Toulouse.

Le ballon captif de grand volume (45 m^3) était équipé d'une nacelle instrumentée de systèmes de mesures de la concentration de ^{85}Kr et des paramètres météorologiques. Ce système très fiable avait l'inconvénient majeur de ne pouvoir réaliser des mesures qu'à une altitude à la fois, ce qui ne permettait pas d'établir précisément la distribution verticale du panache. De plus, son grand volume compliquait son gonflage et son déplacement.

Pour les prélèvements de SF_6 , le dispositif employé dans l'avion Piper Aztec était composé d'un système de prélèvement à l'aide de seringues à déclenchement manuel. L'inconvénient majeur de ce dispositif était lié à la vitesse de transit trop importante de l'avion et, pour des raisons de sécurité, à un plafond de vol trop élevé. De l'utilisation de ces deux systèmes, nous pouvons conclure qu'il est plus intéressant d'utiliser un ballon captif de plus faible volume avec des prélèvements simultanés à différents niveaux.

Lors des campagnes nous avons équipé les zones d'expérimentation d'une instrumentation météorologique (vitesse et direction du vent, température, pression, humidité, rayonnement) et micro-météorologiques (turbulence mécanique et thermique). Cette instrumentation est principalement composée d'anémomètres ultrasoniques pour quantifier la turbulence dans la couche de surface. Cette instrumentation est très efficace pour avoir une bonne connaissance de la turbulence sur un site (z_0 , d) mais ne permet pas de mesurer la vitesse et la direction du vent et la turbulence pour des hauteurs de rejet supérieures à 30 m. En effet, l'utilisation d'anémomètres ultrasoniques nécessite l'utilisation de mâts télescopiques qui sont généralement de hauteur inférieure à 30 m. Dans le cas des rejets de l'usine AREVA NC La Hague, nous avons utilisé l'instrumentation existante composée d'un SODAR donnant la direction et la vitesse du vent à la hauteur du rejet mais pas la turbulence de manière suffisamment fiable.

Ces matériels et techniques expérimentales ont été utilisés avec succès pour réaliser des campagnes de dispersion dans la région de La Hague et dans la périphérie de Toulouse. Ces campagnes ont permis de quantifier la dispersion sur ces deux sites jusqu'à environ 5 000 m du point d'émission et pour plusieurs conditions de stabilité atmosphérique. Les résultats ont été confrontés à quatre modèles et ont permis de déterminer les plus pertinents pour ces conditions de turbulence et sur ces sites. Il en ressort que les modèles les plus adaptés à un site ne sont pas forcément les plus compliqués ou les plus évolués. Pour les sites étudiés et pour les conditions météorologiques rencontrées, le modèle de Briggs-Rural est le plus adapté pour une zone de topographie complexe et le modèle de Briggs-Urbain est le plus adapté au milieu urbain. Un modèle dit de seconde génération comme ADMS 4.0 ne donne pas de meilleurs résultats que les modèles dits de première génération. De plus, c'est dans sa version la plus simple qu'ADMS 4.0 donne les résultats les plus proches de la réalité.

Enfin, il semblerait logique que tous les modèles utilisés dans des situations où les écoulements sont complexes soient validés ou recalés avec des expérimentations de terrain. Pour cela, il serait raisonnable de prévoir une quarantaine d'émissions avec ce type d'instrumentation pour caractériser un site en fonction de la distance, de la direction et de la stabilité atmosphérique.

2.1.2 Échanges aux interfaces

Dans le prolongement de la thématique sur la dispersion atmosphérique d'un panache, nous avons développé des techniques expérimentales liées aux dépôts

sec et humide afin de pouvoir apporter une expertise globale sur les transferts atmosphériques d'effluents radioactifs depuis un rejet jusqu'aux surfaces rurales ou urbaines. Une meilleure connaissance des transferts aux surfaces rurales et urbaines permettra une meilleure estimation des doses respectivement dues aux transferts par la chaîne alimentaire de l'homme et dues aux dépôts sur les surfaces. L'ensemble de ces travaux s'inscrit dans la démarche d'évaluation lors de situations post-accidentelles menée par l'Institut.

Les travaux sur les dépôts secs ont montré un manque de données expérimentales sur la vitesse de dépôt sec en fonction de la granulométrie des aérosols et des conditions de turbulence atmosphérique, surtout en milieu urbain.

Dans le cas d'un couvert rural homogène sur une grande surface, pour quantifier la vitesse de dépôt nous avons développé une méthode originale de mesure par corrélation turbulente en utilisant les aérosols naturellement présents dans l'atmosphère. Cette méthode repose sur le couplage des mesures de vitesse verticale du vent à l'aide d'un anémomètre ultrasonique (81000, YOUNG) avec des mesures de concentration des aérosols atmosphériques à l'aide d'un impacteur à basse pression à détection électrique (ELPI, DEKATI). Ce dispositif a été appliqué avec succès sur des couverts homogènes de maïs, herbe et sol nu dans la région des Landes. Les résultats obtenus ont montré qu'il existe à la fois des flux de dépôt (diamètre $< 0,1 \mu\text{m}$) et des flux d'émission (diamètre $> 0,1 \mu\text{m}$). L'origine des flux d'émission n'a pas pu être identifiée avec certitude mais les pratiques agricoles de fertilisation des sols par des dérivés azotés pourraient en être à l'origine. Il serait important de comprendre et de quantifier ce processus qui pourrait être à l'origine de flux importants d'aérosols dans l'atmosphère, ce qui pourrait remobiliser des aérosols porteurs de polluants bactériologiques, chimiques ou radioactifs. À partir des mesures de vitesse de dépôt, une paramétrisation a été réalisée, permettant le calcul de la vitesse de dépôt sec en fonction de la vitesse de frottement du vent et des conditions de stabilité atmosphérique. Le rapport entre la vitesse de dépôt et la vitesse de frottement du vent est constant en conditions neutres et stables, et est fonction de la longueur de Monin-Obukhov lorsque les conditions sont instables. Compte tenu des incertitudes de mesure, la comparaison des résultats montre que quelles que soient les conditions atmosphériques, il n'est pas observé de différences significatives sur V_d/u_* entre les différents couverts. Néanmoins, des incertitudes subsistent sur la quantification de la vitesse de dépôt, surtout lors des épisodes convectifs. De plus, cette étude a été réalisée sur des couverts homogènes et il serait pertinent de réaliser ce même type d'étude sur des couverts hétérogènes, fréquents autour des centres nucléaires en France.

Dans le cas du milieu urbain, nous avons développé deux méthodes originales de mesure de la vitesse de dépôt sec des aérosols en utilisant la fluorescéine et le ^7Be comme traceurs du dépôt. Les éprouvettes sont exposées à l'aérosol traceur pendant un temps déterminé. Un prélèvement sur filtre est effectué à proximité des éprouvettes, pendant leur exposition. Les mesures des quantités de traceurs déposées et prélevées dans l'air donnent respectivement les flux surfaciques de dépôt et la concentration dans l'air, d'où on déduit la vitesse de dépôt. Les expérimentations de courte durée servent à étudier les différents processus de dépôt sec en fonction de paramètres comme la température des substrats, la turbulence atmosphérique. Pendant ces expérimentations, des aérosols calibrés de fluorescéine sont émis pour quantifier le dépôt sec. Les expérimentations de longue durée servent à étudier les phénomènes de dépôt dans leur globalité en utilisant comme traceur le ^7Be , radionucléide naturellement présent sous forme d'aérosols dans l'air. Des expérimentations ont été réalisées avec succès dans la ville de Nantes lors du projet SALIFA. Des substrats de verre et d'enduit ont été étudiés. Les résultats obtenus n'ont pas permis une quantification précise de la vitesse de dépôt en fonction des paramètres turbulents mais a montré des différences entre les vitesses de dépôt sur des verres et sur des enduits. De plus, on a observé un lien entre la diminution de la vitesse de dépôt et l'augmentation de la température de paroi. Le processus de thermophorèse pourrait être à l'origine de cette observation. Ces différentes observations devront être complétées par d'autres campagnes de mesures.

Les travaux sur les dépôts humides ont mis en exergue le manque de données expérimentales *in situ* sur la quantification du coefficient de rabatement des aérosols en fonction de la pluviométrie et la granulométrie des particules. Dans ce cadre, nous avons mis au point une méthode de quantification du coefficient de rabatement des aérosols par la pluie en couplant un pluviomètre à auget basculant (R102 Munro, CAMPBELL) avec un impacteur à basse pression à détection électrique (ELPI, DEKATI). Le système d'acquisition a été modifié pour permettre des acquisitions toutes les minutes afin de suivre les épisodes pluvieux à assez haute fréquence. Ce dispositif expérimental a été utilisé, avec succès, à Cherbourg pour quantifier le coefficient de rabatement des aérosols. Les résultats obtenus, bien qu'entachés de fortes incertitudes, ont permis une quantification du coefficient de rabatement en fonction de la pluviométrie. Il n'a pas été observé de différences significatives du coefficient de rabatement pour des aérosols dont le diamètre est compris entre 7 nm et 278 nm. Néanmoins, les fortes incertitudes de mesure rendent nécessaires la réalisation de nouvelles expérimentations.

Les observations sur les vitesses de dépôt sec et les coefficients de rabattement ont été comparées aux principaux modèles opérationnels existants. Les résultats obtenus ont montré qu'il existe des écarts importants entre les résultats des modèles, pouvant atteindre plusieurs ordres de grandeur. Les comparaisons ont montré que pour des couverts ruraux, ni le modèle de Slinn (1982), ni celui de Zhang *et al.* (2001) ne sont proches des résultats des mesures. Pour le milieu urbain, le modèle de Lai et Nazaroff (2000) est très cohérent avec nos résultats obtenus sur du verre mais n'est utilisable que pour des substrats peu rugueux. Enfin, concernant le dépôt humide, il semble que seul le modèle de Baklanov et Sorensen (2001) soit cohérent avec nos résultats. Tout ceci montre qu'il existe encore de fortes inconnues sur la quantification des processus physiques mis en jeu lors du dépôt sec des aérosols et du rabattement des aérosols par la pluie.

Ces résultats, bien qu'obtenus dans le cadre de recherches sur le transfert des radionucléides, intéressent toute la communauté scientifique car ils permettent 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 particulaire.

2.2 Perspectives

De l'ensemble des travaux effectués, il ressort que plusieurs méthodes ont été mises au point et appliquées avec succès lors de campagnes expérimentales de terrain. Ces méthodes concernent la dispersion atmosphérique de traceurs passifs, et les dépôts sec et humide des aérosols. Ces succès ouvrent des perspectives importantes pour la quantification des phénomènes physiques mis en jeu lors de la dispersion atmosphérique et des transferts aux interfaces, plus particulièrement des dépôts secs et humides des polluants en milieu de topographie complexe ou en milieu urbain.

2.2.1 Dispersion atmosphérique

2.2.1.1 Cas du champ proche (< 5 km de l'émissaire)

Les futurs travaux devront se concentrer sur la dispersion atmosphérique d'un panache dans des milieux complexes comme le milieu urbain, les zones côtières ou les zones à fort changement de rugosité. En effet, certaines centrales nucléaires peuvent être proches de bourgs ou de villes. Par exemple, la centrale nucléaire de Gravelines est proche de la ville de Dunkerque et l'usine de retraitement des combustibles

nucléaires usés AREVA NC La Hague est proche du bourg de Beaumont. Dans les zones côtières, on trouve les centrales nucléaires du Blayais, de Flamanville, de Paluel, de Penly et de Gravelines, les ports nucléaires militaires de l'île longue, de Brest et de Cherbourg ou l'usine de retraitement des combustibles nucléaires usés AREVA NC La Hague. Dans les zones à fort changement de rugosité, on trouve, par exemple, le centre CEA de Valduc avec alternance de forêt et de landes, ou la centrale de Bugey avec le Rhône, des surfaces rurales et des collines. Dans ces situations, la dispersion des radionucléides émis dans l'atmosphère en situation de rejets chroniques ou accidentels sera fortement influencée par le bâti ou la topographie.

Je pense qu'il serait souhaitable de valider les modèles d'étude d'impact par des expérimentations de terrain en fonction de la direction à la source, de la distance au rejet et des conditions de turbulence atmosphérique. Ces expérimentations devraient permettre de réviser les jeux d'écart types des modèles gaussiens. Pour optimiser le nombre de campagnes expérimentales, une typologie des sites nucléaires français en matière de dispersion atmosphérique et de météorologie pourrait être dressée afin de proposer un regroupement judicieux pour adapter les modèles à chaque groupe de sites.

De plus, comme il existe très peu de données sur la dispersion des polluants en situation de forte stabilité atmosphérique, ces conditions devront être particulièrement étudiées, de façon académique et systématique.

Enfin, comme il subsiste de fortes incertitudes sur la dispersion des effluents rejetés en hauteur, due à la hauteur géométrique de la source ou à la surélévation thermocinétique, je pense que ce type de rejet devra être étudié. Pour ces études, un soin particulier devra être apporté à la caractérisation de la dispersion verticale du panache afin de pouvoir contraindre les modèles horizontalement et verticalement. Par exemple, une caractérisation de la dispersion verticale du panache permet de mettre en évidence l'influence d'ascendances ou de subsidences dues au relief ou au bâti. Pour cela, un ballon captif équipé de capillaires de prélèvement à plusieurs niveaux permettra de quantifier la dispersion verticale du panache.

En complément des prélèvements et des mesures au sol et en altitude, des mesures météorologiques et micro-météorologiques à base d'anémomètres ultrasoniques seront réalisées au point d'émission, dans l'axe moyen du vent au point de prélèvement et sur le parcours du panache. Dans le cas de rejet en altitude, un système de type SODAR ou LIDAR vent est indispensable pour déterminer la direction et la vitesse du vent en altitude et les conditions de turbulence à la hauteur du rejet.

Pour ces études concernant le champ proche d'une installation (< 5 km de l'émissaire), les traceurs du panache utilisables seront soit des radionucléides émis par l'industrie nucléaire (^{85}Kr , HTO, HT...), soit un gaz traceur comme le SF_6 .

2.2.1.2 Cas des échelles méso et synoptiques

Les radionucléides émis par l'industrie nucléaire pourraient être utilisés, après prélèvements et concentration à l'aide de systèmes spécifiques, pour valider les modèles d'évaluation de la dispersion des polluants à méso-échelle ou à échelle synoptique. En effet, très peu de données expérimentales de terrain existent à ces échelles. Les deux principales expérimentations sont celles du programme européen ETEX (*Euporean Tracer EXperiment*, 1994). Je pense que le ^{85}Kr serait un très bon traceur des processus à l'échelle synoptique mais il nécessite un prélèvement de grand volume (10 m^3), une concentration cryogénique et une mesure de très bas niveau par comptage bêta ou spectrométrie gamma. Le ^3H serait plutôt utilisable pour des études à méso-échelle sur quelques centaines de kilomètres. Le système PREVAIR (figure 1.6), d'utilisation simple et ne nécessitant aucune concentration avant la mesure, devrait permettre de répondre à cet objectif.

2.2.2 Échanges aux interfaces

2.2.2.1 Cas des aérosols

2.2.2.1.1 Dépôt sec en milieu rural

Les travaux réalisés ont permis de mettre au point une méthodologie robuste, la corrélation turbulente avec retraitement spectral, pour étudier les dépôts secs des aérosols entre 7 nm et 10 μm . Je pense qu'il faudrait compléter ces travaux par de nouvelles campagnes de mesures sur des couverts homogènes et en situation fortement convective. En effet, les résultats obtenus ont fait apparaître un manque de données dans ce type de conditions.

De plus, il pourrait être intéressant de travailler sur le dépôt sec des nanoparticules. En effet, ce type de particules peut être émis dans l'environnement par l'industrie nucléaire (Maro *et al.*, 2002) lors de situation accidentelle, et est de plus en plus utilisé dans l'industrie. Le couplage de deux « compteurs de noyaux de condensation » (CNC) ayant des diamètres de coupure différents, par exemple 2,5 nm et 15 nm, devrait permettre de répondre à cet objectif.

Je pense qu'il faudrait aussi travailler sur le dépôt sur des couverts hétérogènes qui sont beaucoup plus représentatifs de la réalité environnementale. Dans ce cas, une approche pourrait être de compléter nos observations sur couverts homogènes afin de valider un modèle de dépôt de type résistif, ce qui n'a pas été fait dans les travaux précédents. Ce modèle de dépôt validé pourrait alors être introduit dans un modèle global de type *Large Eddy Simulation* (LES) capable de décrire la turbulence sur des couverts hétérogènes. Enfin, une validation des calculs de dépôt serait réalisée par des mesures de flux de dépôt par corrélation turbulente.

Enfin, le développement d'un système de mesure de la concentration des aérosols avec tri granulométrique fonctionnant à haute fréquence (10 Hz) pourrait être utile pour simplifier le retraitement des données et pour réaliser des mesures proches des surfaces, mais toujours dans la couche à flux constant. Avec ce type de matériel, les mesures par corrélation turbulente seraient applicables à l'évaluation du dépôt sec sur un fleuve de faible largeur. En effet, du fait du *footprint* (surface au vent du capteur influençant la mesure d'un flux) de la mesure, il est nécessaire de se rapprocher de la surface du fleuve.

2.2.2.1.2 Dépôt sec en milieu urbain

Pour quantifier le dépôt sec en milieu urbain, nous avons mis au point des méthodes utilisant un traceur artificiel, la fluorescéine, et un traceur naturel, le ^7Be . Elles ont été appliquées pour quantifier le dépôt sur des substrats comme le verre et les enduits de façade mais il serait souhaitable de poursuivre le travail afin d'obtenir une paramétrisation plus complète de la vitesse de dépôt. Je pense qu'il faudra quantifier l'influence de la vitesse de frottement, du flux de chaleur sensible, du gradient de température entre la paroi et l'air pour différents substrats représentatifs du milieu urbain :

- zinc, tuile et ardoise représentatifs des toits ;
- verre et enduit de façade représentatifs des murs ;
- bitume, béton et herbe représentatifs des sols.

Ce type d'approche, avec une analyse substrat par substrat pour quantifier les vitesses de dépôt, pourrait être complémentaire d'une approche plus globale utilisant la technique des corrélations turbulentes. Un compteur de particules couplé avec un anémomètre à ultrasons pourrait être placé en hauteur, sur une tour ou un mât dans la couche de surface afin de quantifier les vitesses de dépôt sur une zone urbaine étendue.

Enfin, des expérimentations en soufflerie seraient complémentaires de ce type d'étude *in situ*.

2.2.2.1.3 Dépôt humide

De l'étude réalisée sur le dépôt humide ou *washout*, il ressort que la majorité des mécanismes sont bien connus et leurs modélisations ont été validées sur des expériences analytiques (diffusion brownienne, interception, impaction inertielle, diffusiophorèse). Néanmoins, l'application de ces modèles dans le cadre d'expériences environnementales met en évidence une sous-estimation de plusieurs ordres de grandeur des taux de rabattement calculés par rapport à ceux mesurés *in situ*. La méthode de quantification mise au point ici confirme cette analyse. Néanmoins, il faudra améliorer la méthodologie afin de diminuer les incertitudes de mesure provenant de la variation, notamment, des concentrations due à l'advection des particules.

Pour comprendre ces écarts, je pense que les futures études devront mieux quantifier l'influence sur le coefficient de rabattement de paramètres comme :

- la charge électrique des gouttes de pluie et des aérosols ;
- l'hygroscopicité des aérosols ;
- la turbulence de l'atmosphère ;
- la morphologie des aérosols (agrégat, sphère...) ;
- la distribution granulométrique des gouttes de pluie.

L'utilisation d'un *Scanning Mobility Particle Sizer Spectrometer* (SMPS) couplé à un distromètre permettrait d'affiner les résultats obtenus à l'aide de l'ELPI et du pluviomètre à auget basculant. Ce type de matériel permettrait d'avoir une meilleure résolution de la taille des aérosols et de la taille des gouttes de pluie.

Enfin, je pense que des travaux devraient être aussi réalisés dans l'environnement sur les processus de captation des aérosols dans les nuages (*rainout*). Ce mécanisme qui est majoritairement lié aux phénomènes de nucléation est très faiblement documenté par des expériences de terrain. Les radionucléides naturels (^7Be , ^{210}Pb) pourraient être des traceurs intéressants pour mieux quantifier les processus de captation.

2.2.2.2 Cas des gaz et en particulier de l'iode

Les principaux radionucléides émis ou susceptibles d'être émis sous forme de gaz

par l'industrie nucléaire et non chimiquement inertes, sont le tritium (HTO), le carbone 14 ($^{14}\text{CO}_2$) et l'iode ($^{129}\text{I}_2$, $^{131}\text{I}_2$). Pour l'ensemble de ces radionucléides, il existe des désaccords entre les résultats des modèles opérationnels et les mesures environnementales.

Pour évaluer les transferts du ^3H et du ^{14}C au sein d'un écosystème, les modèles opérationnels font l'hypothèse d'un équilibre isotopique constant entre l'air et les végétaux. Pour ce type de radionucléides, il faudrait considérer que le HTO et le $^{14}\text{CO}_2$ suivent majoritairement les cycles de l'eau et du carbone. Concernant l'iode, dont l'isotope 131 est nocif pour l'homme car il se fixe sur la glande thyroïde, il existe encore des incertitudes sur les formes chimiques susceptibles d'être émises dans l'environnement lors d'un accident grave sur un réacteur nucléaire. Néanmoins, si l'on considère la forme chimique la plus réactive, I_2 , et la moins réactive, ICH_3 , les vitesses de dépôt sec et les coefficients de rabattement, qui sont pris comme constants dans des modèles de calcul d'impact demandent à être mieux quantifiés en fonction des paramètres environnementaux.

Pour l'ensemble de ces gaz, des études *in situ* à partir des rejets des industries nucléaires (^3H , ^{14}C) ou de traceurs stables (différentes formes chimiques de l'iode) devraient être menées afin d'affiner la paramétrisation des modèles de transfert.

2.2.2.3 Cas de l'émission de gaz ou d'aérosols

Nous avons montré que sur des couverts comme le maïs, l'herbe ou le sol nu des aérosols sont émis par le couvert. Ce phénomène d'émission était plus probable pour des particules de quelques centaines de nanomètres que pour les particules d'une dizaine de nanomètres. Certaines hypothèses ont été proposées pour expliquer ce phénomène d'émission, qu'il faudrait vérifier. À cette fin, je pense que des expérimentations pourraient être menées en réalisant des mesures de flux d'aérosols conjointement à d'autres scalaires comme certains gaz qui pourraient jouer un rôle sur l'émission des aérosols, par exemple, les terpènes ou les oxydes d'azote.

Afin de caractériser chimiquement les aérosols émis du couvert par rapport aux aérosols qui se déposent sur le couvert, une technique comme la *Relaxed Eddy Accumulation* pourrait être développée. Cette technique de mesure de flux est basée sur des prélèvements conditionnés par la vitesse verticale du vent. Les échantillons sont collectés de manière séparée lorsque la vitesse verticale est positive et lorsque la vitesse verticale est négative puis analysés par des mesures différées. Le flux est alors proportionnel à la différence des concentrations intégrées.

Enfin, je pense que le transfert des gaz et des aérosols radioactifs depuis la mer ou les grands fleuves vers le milieu terrestre devra être abordé. De nombreux modèles existent sur le transfert des gaz et des aérosols entre l'eau et l'atmosphère mais très peu concernent les radionucléides.

2.3 Proposition de priorités

Concernant la dispersion atmosphérique, je pense que la première étape serait de qualifier les modèles opérationnels pour le champ proche d'une installation nucléaire, ou groupe d'installations ayant des caractéristiques communes, à l'aide d'expérimentations de traçage de terrain, le champ proche englobant les milieux de topographie complexe ainsi que le milieu urbain. Une attention particulière devra être apportée à l'étude de la dispersion d'un panache en condition de forte stabilité atmosphérique, car c'est *a priori* la plus contraignante en termes d'impact. Même s'il existe très peu d'études de dispersion atmosphérique aux échelles méso et synoptiques, cette problématique pourra être traitée par la suite car elle est moins contraignante en termes d'impact sur la population et les écosystèmes. Dans ce cadre, il est important de faire perdurer, ou de développer, des coopérations nationales et internationales avec des organismes, sans souci d'exhaustivité, comme l'IRSTV, EPHYSE, le LMF, IFSTTAR, le CSTB, le CORIA, l'IRPHE, Météo-France, l'INSA, le CEREAS, le LEESU, le LPCA, le LTHE, le CESBIO, le LSIIT, l'ISAC et le RPII dont les intitulés complets sont cités ci-après.

Concernant les échanges des gaz et des aérosols aux interfaces, je pense qu'il faudrait tout d'abord compléter nos connaissances et faire évoluer les modèles pour les milieux et les couverts homogènes. Puis aborder les milieux de topographie complexe et le milieu urbain. Enfin, des études devront être engagées sur la remobilisation des gaz et des particules suite aux phénomènes de dispersion et de dépôt. Dans ce cadre, il faudra aussi faire perdurer, ou développer, des coopérations nationales et internationales avec certains des organismes précédemment cités, mais aussi, sans souci d'exhaustivité, avec le LSCE, l'UREP, le LPGP, ITM, CCSN, CEH, le BITOK et le RFNC dont les intitulés complets sont cités ci-après.

Pour ces problématiques, il est fondamental d'avoir une analyse et une quantification précises des mécanismes impliqués dans la dispersion atmosphérique et dans les échanges aux interfaces des polluants en milieux complexes, mais il faudra aussi hiérarchiser les processus selon leur importance afin que les plus importants soient intégrés dans les évolutions des modèles opérationnels.

Enfin, les enseignements recueillis lors de ces recherches devraient aussi permettre de proposer le développement de systèmes performants, autonomes, à consommation faible ou nulle et d'un coût modéré améliorant la surveillance des radionucléides dans l'atmosphère ou déposés.

Organismes nationaux qui ont été précédemment cités :

- CEREAS : Centre d'enseignement et de recherche en environnement atmosphérique de l'École des Ponts Paris Tech et EDF R&D ;
- CESBIO : Centre d'études spatiales et de la biosphère de Toulouse ;
- CORIA : Complexe de recherche interprofessionnel en aérothermochimie de Rouen ;
- CSTB : Centre scientifique et technique du bâtiment de Nantes ;
- EPHYSE : Unité de recherche en écologie fonctionnelle et physique de l'environnement de l'INRA de Villenave d'Ornon ;
- IFSTTAR : Institut français des sciences et technologies des transports, de l'aménagement et des réseaux de Nantes ;
- INSA : Institut national des sciences appliquées de Lyon ;
- IRPHE : Institut de recherche sur les phénomènes hors équilibre de l'université de Marseille ;
- IRSTV : Institut de recherche en sciences et techniques de la Ville de Nantes ;
- LEESU : Laboratoire eau environnement et systèmes urbains de l'École des Ponts Paris Tech ;
- LMF : Laboratoire de mécanique des fluides de l'École centrale de Nantes ;
- LPCA : Laboratoire de physico-chimie de l'atmosphère de l'université de Strasbourg ;
- LPGP : Laboratoire de physique des gaz et des plasmas de l'École supérieure d'électricité ;
- LSCE : Laboratoire des sciences du climat et de l'environnement ;
- LSIIT : Laboratoire des sciences de l'image, de l'informatique et de la télédétection de Strasbourg ;
- LTHE : Laboratoire d'étude des transferts en hydrologie et environnement de Grenoble ;
- Météo-France : Météo-France, Toulouse ;
- UREP : Unité de recherche sur l'écosystème prairial de l'INRA de Clermont Ferrand.

Organismes internationaux qui ont été précédemment cités :

- BITOK : Institut de recherche sur l'écosystème terrestre de l'université de Bayreuth en Allemagne ;
- CCSN : Commission canadienne de sûreté nucléaire à Ottawa ;

- CEH : Centre d'écologie et d'hydrologie d'Edimbourg en Grande Bretagne ;
- ISAC : Institut des sciences de l'atmosphère et du climat de l'université de Lecce (Italie) ;
- ITM : Département des sciences appliquées de l'environnement de l'université de Stockholm (Suède) ;
- RFNC : Centre nucléaire de la Fédération de Russie, Nizhni Novgorod ;
- RPII : Institut de radioprotection d'Irlande.

CHAPITRE 3

Présentation personnelle

3.1 *Curriculum vitae*

Denis Maro

Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN)

Pôle radioprotection-environnement (PRP-ENV)

Service de recherche et d'expertise sur les risques environnementaux (SERIS)

Laboratoire de radioécologie de Cherbourg-Octeville (LRC)

Rue Max-Pol Fouchet

B.P. 10

50130 Cherbourg-Octeville (France)

Tel : +33 (0)2 33 01 41 03

Fax : +33 (0)2 33 01 41 30

denis.maro@irsn.fr

Fonctions actuelles

Adjoint au directeur du laboratoire et chargé de l'animation des recherches sur les transferts atmosphériques.

Parcours professionnel

- Ingénieur d'études et de recherches sur les transferts des radionucléides sous forme de gaz et d'aérosols dans l'environnement terrestre (dispersion atmosphérique, physique des aérosols, comportement de ^{129}I , ^3H , ^{14}C dans l'environnement) : réalisation d'études et gestion de contrats avec des organismes comme l'Agence nationale de la recherche, AREVA NC, l'Agence de l'eau Seine-Normandie, le Ministère de l'écologie et du développement durable, EDF études et recherches et les collectivités locales (1996 – 2010, IRSN Cherbourg-Octeville).
- Ingénieur d'études sur les accidents graves dans les réacteurs à eau pressurisée à l'Institut de protection et de sûreté nucléaire (modélisation du comportement de l'iode et des aérosols, responsable des expériences associées à la validation des modèles, conférences UE, USA, Japon, Canada) : réalisation d'études et expertises sur le comportement de l'iode et des aérosols dans l'enceinte de confinement d'un réacteur nucléaire en situation accidentelle, gestion des expérimentations liées à l'iode et aux produits de fission (1991-1996, IPSN Fontenay-aux-Roses).
- Chef du groupe « instrumentation nucléaire » pour le contrôle nucléaire du procédé de retraitement des combustibles usés (interprétation des mesures nucléaires, organisation et planification d'essais, encadrement de vingt techniciens supérieurs) (1988-1991, Cogéma La Hague).
- Enseignant en physique nucléaire et détection des particules (responsable du Laboratoire de physique nucléaire) (1987-1988, École des applications militaires de l'énergie atomique de la Marine nationale à Cherbourg).

Formation initiale

- Ingénieur en génie atomique de l'Institut national des sciences et techniques nucléaires, option cycle du combustible nucléaire (Saclay-1987).
- Maîtrise de physique des matériaux de l'université de Nantes (Nantes-1985).

Activités d'enseignement et d'encadrement

Enseignement

- Physico-chimie des transferts atmosphériques, cours supérieur de sécurité

nucléaire à l'École des applications militaires de l'énergie atomique dans le cadre d'une formation interarmées (4 heures par an depuis 2003).

- Physico-chimie des transferts atmosphériques, cours à l'université de Caen dans le cadre du Master géosciences, environnement et biodiversité (2 heures, 2004 et 2005).
- Physico-chimie des transferts atmosphériques, cours à l'ENSIAME de Valenciennes dans le cadre de la formation d'ingénieurs 3^e année (2 heures, 2004 et 2005).

Comités de suivi de thèse

- S. Percot (2010 à 2012) : « Caractérisation des dépôts atmosphériques (secs et humides), identification des sources de polluants (locales, régionales...) et évaluation de la contribution atmosphérique à la pollution globale d'un bassin versant », Institut français des sciences et technologies des transports, de l'aménagement et des réseaux (IFSTTAR), université de Nantes. Direction de thèse : V. Ruban et M. Millet.
- V. Rodrigues (2011 à 2013) : « Évaluation des zones de *footprint* en site hétérogène par simulation des grandes échelles des écoulements turbulents et de la dispersion des traceurs passifs dans et au-dessus de la canopée urbaine », École centrale de Nantes, université de Nantes. Direction de thèse : I. Calmet et J.M. Rosant.

Encadrement de thèses

- P. Rounsard (2010 à 2012, soutenue le 21 janvier 2013) : « Quantification du dépôt sec des aérosols et de leur lessivage par la pluie sur différents substrats en milieu urbain », Complexe de recherche interprofessionnel en aérothermochimie (CORIA), université de Rouen. Direction de thèse : A. Coppalle.
- P. Damay (2008 à 2010, soutenue le 7 avril 2010) : « Détermination des vitesses de dépôt sec des aérosols submicroniques dans un écosystème prairial », Complexe de recherche interprofessionnel en aérothermochimie (CORIA), université de Rouen. Direction de thèse : A. Coppalle.

Encadrement et co-encadrement de post-doctorants

1. M. Goriaux (2010) : « Caractérisation expérimentale de la dispersion atmosphérique de polluants au travers de la canopée urbaine à l'échelle d'un quartier, pour une adaptation des modèles de "*footprint*" aux sources urbaines », encadrement à 100 %.
2. C. Leroy (2009 et 2010) : « Étude de la dispersion atmosphérique pour des rejets en hauteur et en terrain de topographie complexe, application aux rejets de krypton 85 de l'usine AREVA NC La Hague », co-encadrement à 50% avec O. Connan.

Encadrement de stages

Diplôme de recherche technologique

- V. Clotilde (1998 à 2000) : « Réalisation d'un ballon captif instrumenté pour étudier la dispersion atmosphérique du krypton 85 en altitude autour de l'usine de retraitement des combustibles nucléaires irradiés de La Hague », université de Caen.

Masters

- F. Vendel (6 mois, 2007) : « Détermination expérimentale du coefficient de rabattement des aérosols atmosphériques par la pluie, comparaison modèles/mesures », université de Valenciennes.
- P. Moricet (6 mois, 2000) : « Étude du transfert du sodium de la mer au continent par les aérosols marins », université de Caen.
- V. Lebourgeois (6 mois, 1997) : « Étude du comportement de l'iode 129 dans les organismes marins », université de Caen.

Ingénieurs

- G. Bacon (Ingénieur en alternance, 2008 à 2011) : « Couplage et validation d'un modèle de dispersion atmosphérique avec un modèle de dispersion en milieu marin afin d'étudier les transferts des polluants de l'atmosphère vers l'hydrosphère », co-encadrement à 50 % avec P. Bailly du Bois, El.CESI, Rouen.
- B. Checiack (6 mois, 2005) : « Contribution à l'étude des transferts atmosphériques autour de l'usine AREVA NC La Hague », ENSIAME Valenciennes.
- D. Delatte (6 mois, 2004) : « Contribution à l'étude de la dispersion atmosphérique d'un polluant à méso-échelle », INSA de Rouen.

Diplômes universitaires de technologie

- C. Poulin (4 mois, 2003) : « Contribution à l'étude du transfert entre l'eau et l'atmosphère des éléments stables et des radioéléments sous forme gazeuse en zone estuarienne », Institut national des sciences et techniques de la mer, Conservatoire national des arts et métiers.
- S. Godefroy (4 mois, 2002) : « Contribution à l'étude du transfert des radioéléments sous forme gazeuse entre l'eau et l'atmosphère », Institut national des sciences et techniques de la mer, Conservatoire national des arts et métiers.
- V. Justome (4 mois, 1999) : « Étude des apports de sodium au continent par les aérosols marins », Institut national des sciences et techniques de la mer, Conservatoire national des arts et métiers.

Autres activités

Participations à des jurys (autres que ceux qui correspondent aux encadrements)

Thèse

- N. Tisnerat (soutenue le 14 juin 2010) : « Variations du $\Delta^{14}\text{C}$ dans l'océan de surface de l'Atlantique Nord-Est au cours des 200 dernières années », Laboratoire des sciences du climat et de l'environnement, université Paris 11.

Diplôme de recherche technologique

- Y. Tauvel (rapporteur, 2009) : « Étude de modèles appliqués à la dispersion atmosphérique d'effluents pour la conception et le redéveloppement d'un outil d'aide à la décision dédié à la gestion de crise à caractère radiologique », université de Clermont-Ferrand.

Diplômes universitaires de technologie

- C. Danzian (2004) : « Mesure de l'activité du carbone 14 dans l'air ». Stage TSR, École des applications militaire de l'énergie atomique de Cherbourg.
- O. Morin (1997) : « Détermination des activités en krypton 85 dans l'environnement du centre de La Hague ». BST en radioprotection, École des applications militaire de l'énergie atomique de Cherbourg.

Participations à des programmes de recherche financés

- Projet de l'Agence nationale de recherche (ANR), « Rôle du végétal dans le développement urbain durable, (VEGDUD) », (2010 à 2013).
- Projet de l'Agence nationale de recherche (ANR) « Innovations pour la gestion durable de l'eau en ville, (INOGEV) », (2010 à 2013).
- Projet du « Programme de recherche interorganisme pour une meilleure qualité de l'air à l'échelle locale (PRIMEQUAL) », SALIFA, Salissures de Façade (2005-2006).
- Projet du programme "Canopy and Aerosol Particles Interactions in TOulouse Urban Layer (CAPITOUL)", CNRM/Météo-France (2004 à 2005).

Participations à des comités scientifiques et à des revues d'articles

- Comité Scientifique du congrès "Harmonisation within Atmospheric Dispersion Modelling for Regulatory Purposes (HARMO)", depuis 2010.
- Revues d'articles pour : *Journal of Aerosol Science*, *Journal of Environmental Radioactivity*, Radioprotection.

3.2 Publications

3.2.1 Revues internationales à comité de lecture

1. Marang L., Siclet F., Luck M., Maro D., Tenailleau L., Jean-Baptiste P., Fourré E. and Fontugne M. (2011). Modelling tritium flux from water to atmosphere: application to the Loire River. *Journal of Environmental Radioactivity*, 102, 3, 244-251.
2. Leroy C., Maro D., Hébert D., Solier L., Rozet M., Le Cavalier S. and Connan O. (2010). A study of the atmospheric dispersion of a high release of krypton-85 above a complex coastal terrain, comparison with the predictions of Gaussian models (Briggs, Doury, ADMS4). *Journal of Environmental Radioactivity*, 101, 11, 937-944.
3. Damay P., Maro D., Coppalle A., Lamaud E., Connan O., Hébert D., Talbaut M. and Irvine M. (2009). Size-resolved eddy covariance measurements of fine particle vertical fluxes. *Journal of aerosol Science*, 40, 12, 1050-1058.
4. Connan O., Tessier E., Maro D., Amouroux D., Hébert D., Rozet M., Voiseux C. and Solier L. (2008). Water to atmosphere fluxes of ^{131}I in relation with alkyl-iodide compounds from the Seine Estuary (France). *Journal of Environmental Radioactivity*, 99, 1102-1110.
5. Lac C., Bonnardot F., Connan O., Camail C., Maro D., Hébert D., Rozet M. and Pergaud J. (2008). Evaluation of a mesoscale dispersion modelling tool during the CAPITOUL experiment. *Meteorology and atmospheric physics*, 102, 263-287.
6. Rennesson M., Maro D., Fitamant M.L. and Prian E. (2005). Comparison of the local-scale atmospheric dispersion model CEDRAT with ^{85}Kr measurements. *Radioprotection*, 40, 1, 371-377.
7. Maro D., Tenailleau L., Fontugne M., Germain P., Hébert D. and Rozet M. (2005). Tritium transfer between sea and atmosphere in the English Channel (North Contentin and Bay of Seine). *Radioprotection*, 40, 1, 589-594.
8. Gurriaran R., Maro D., Bouisset P., Hébert D., Leclerc G., Mekhlouche D., Rozet M. and Solier L. (2004). *In situ* metrology of ^{85}Kr plumes released by the COGEMA La Hague Nuclear reprocessing plant. *Journal of Environmental Radioactivity*, 72, 137-144.

9. Fontugne M., Maro D., Baron Y., Hatté C., Hébert D. and Douville E. (2004). ^{14}C sources and distribution in the vicinity of La Hague nuclear reprocessing plant: part I Terrestrial environment. *Radiocarbon*, 46, 2, 827-830.
10. Maro D., Fontugne M., Hatté C., Hébert D. and Rozet M. (2004). ^{14}C sources and distribution in the vicinity of La Hague nuclear reprocessing plant: part II Marine environment. *Radiocarbon*, 46, 2, 831-839.
11. Abril G., Commarieu M.V., Maro D., Fontugne M., Guérin F. and Etcheber H. (2004). A massive dissolved inorganic carbon release at spring tide in a highly turbid estuary. *Geophysical Research Letters*, 31, L09316, doi: 10.1029/2004GL019714.
12. Maro D., Crabol B., Germain P., Baron Y., Hébert D. and Bouisset P. (2002). A study of the near field atmospheric dispersion of emission at height: Comparison of Gaussian plume models (Doury, Pasquill-briggs, Caire) with 85 krypton measurements taken around La Hague nuclear reprocessing plant. *Radioprotection*, 37, 1, 1277-1282.
13. Maro D., Hébert D., Gandon R. et Solier L. (1999). Dosage par spectrométrie gamma de l'iode 129 dans les échantillons biologiques marins et terrestres. Application à des algues prélevées le long des côtes de la Manche : *Fucus serratus* et *Laminaria digitata*. *Radioprotection*, 34, 1, 13-24.

3.2.2 Actes de congrès, rapports techniques, conférences sur invitation, ouvrages

Actes de congrès

14. Maro D., Connan O., Hébert D., Rozet M., Talbault M., Coppalle A., Sini J.F., Rosant J.M., Mestayer P., Sacré C., Flori J.P., Giraud D., Olive F., Ruot B. and Roupsard P. (2010). Quantification of the dry deposition of aerosols in an urban environment: towards a new methodology. IAC2010, Helsinki, Finland, august 2010, P212/7G0, support CD 1 p.
15. Damay P., Maro D., Coppalle A., Lamaud E., Connan O., Hébert D., Talbaut M. et Irvine M. (2009). Mesure par corrélation turbulente de la vitesse de dépôt des aérosols submicroniques sur différents couverts naturels. Proceeding du 23^e congrès français des aérosols, ASFERA, Paris, 14-15 janvier 2009, support CD 5 p.

16. Damay P., Maro D., Coppalle A., Lamaud E., Connan O., Hébert D. and Talbaut M. (2008). Measuring the dry deposition velocity of sub-micron aerosols in a prairie by eddy correlation using an Electrical Low Pressure Impactor. Proceedings of the 9th European Aerosol Conference, Thessalonique, Grèce, 24-29 august 2008, T04A026P, support CD 1 p.
17. Le Roux G., Bourcier L., Connan O., Maro D. et Masson O. (2008). ^{7}Be , excess ^{210}Pb artificial radionuclides as tracers of orographic deposition of aerosols by direct and undirect measurements. 24^e congrès français sur les aérosols ASFERA, Paris 16-17 janvier 2008, support CD 5 p.
18. Vendel F., Maro D., Hébert D. et Germain P. (2008). Détermination expérimentale du coefficient de rabatement des aérosols par la pluie : comparaison modèles-mesures. Proceeding du 23^e congrès français des aérosols, ASFERA, Paris, 16-17 janvier 2008, support CD 5 p.
19. Damay P., Maro D., Coppalle A., Connan O., Hébert D. et Talbaut M. (2008). Contribution à l'étude des vitesses de dépôt sec des aérosols submicroniques dans un écosystème prairial. Proceeding du 23^e congrès français des aérosols, ASFERA, Paris, 16-17 janvier 2008, support CD 5 p.
20. Connan O., Maro D., Hébert D., Rozet M., Checiak B. and Solier L. (2006). Contribution to reducing uncertainties regarding the dry deposition velocities of fine aerosols: Study case of a prairie (description of experimental methods and comparison with models). Proceeding of the fourteenth international conference on modelling, monitoring and management of air Pollution, 22-25 may 2006, New Forest, UK, 555-564.
21. Maro D., Connan O., Hébert D., Rozet M., Vendel J. and Boulaud D. (2006). Experimental methodology for the determination of dry deposition velocities of submicronic aerosols: Application to different rural and urban substrates. Proceedings of the 7th International Aerosol Conference, Saint Paul, USA, 10-15 September 2006, 756-758.
22. Connan O., Maro D., Germain P., Rozet M., Hébert D., Solier L., Boulaud D. et Tenailleau L. (2006). Évaluation des vitesses de dépôt sec des aérosols en milieu urbain : Utilisation de la fluoresceine et du ^{7}Be comme traceur du dépôt. Proceeding du 22^e Congrès français des aérosols, Paris, 29-30 Novembre 2006, 15-20.

23. Connan O., Maro D., Germain P., Hébert D., Rozet M., Lac C., Camail C. and Bonnardot F. (2005). A study of atmospheric dispersion in urban environments through release of SF₆ passive tracer: comparison of the experimental results with 3 Gaussian models (Doury, Pasquill and Pasquill-Urban). Proceeding of the thirteenth international conference on modelling, monitoring and management of air Pollution, Air Pollution XIII, Cordoba, 15-18 May 2005, 369-377.
24. Bonnardot F., Lac C., Camail C., Connan O., Maro D., Hébert D. and Rozet M. (2005). PERLE: An operational meso-scale dispersion modelling system for accidental release. Tenth international conference on harmonisation within atmospheric dispersion modelling for regulatory purpose. Sissi, Crête, 17-20 octobre 2005, 177-181.
25. Rennesson M., Maro D., Devin P., Fitamant M.L. and Bouland P. (2004). Validation of the local-scale atmospheric dispersion model CEDRAT on ground level ⁸⁵Kr measurement campaigns over La Hague (North West of France). Ninth international conference on harmonisation within atmospheric dispersion modelling for regulatory purpose, June 2004, Garmisch-Partenkirchen, Germany, 136-140.
26. Gilbert E. and Maro D. (2004). Near field dispersion simulation and terrain amplification factor: a concrete case study. Ninth international conference on harmonisation within atmospheric dispersion modelling for regulatory purpose, June 2004, Garmisch-Partenkirchen, Germany, 277-281.
27. Maro D., Boulaud D., Coppalle A, Germain P. and Hébert D. (2004). Validation of dry deposition models for submicronic and micronic aerosols. Ninth international conference on harmonisation within atmospheric dispersion modelling for regulatory purpose, June 2004, Garmisch-Partenkirchen, Germany, 89-94.
28. Lac C., Maro D., Hébert D., Bouzon M., Bompay F., Sandu I. and Bonnardot F. (2004). Evaluation of near field dispersion lagrangien modelling with krypton 85 measurements around COGEMA La Hague. Ninth international conference on harmonisation within atmospheric dispersion modelling for regulatory purpose, June 2004, Garmisch-Partenkirchen, Germany, 303-307.
29. Bouzom M., Maro D., Bompay F., Lac C. and Hébert D. (2002). Comparison of Lagrangian atmospheric dispersion models (DIFPAR, SPRAY) with 85Krypton measurements taken around La Hague spend fuel reprocessing plant. Eighth

international conference on harmonisation within atmospheric dispersion modelling for regulatory purpose, October 2002, Sofia, Bulgaria, 205-209.

30. Maro D., Germain P., Hebert D., Solier L., Rozet M., Leclerc G. and Le Cavalier S. (2002). Krypton 85: A tool for investigating near field atmospheric dispersion for elevated emissions around La Hague spent fuel reprocessing plant. Eighth international conference on harmonisation within atmospheric dispersion modelling for regulatory purpose, October 2002, Sofia, Bulgaria, 138-143.
31. Fontugne M., Maro D., Baron Y., Hatte C., Hebert D. and Douville E. (2002). Identification of sources and distribution of radiocarbon in the vicinity of La Hague nuclear reprocessing plant. ECORAD, 3-7 sept 2001, Aix en Provence, France, Radioprotection - Colloques, vol. 37, 1, 271-1276.
32. Bouisset P., Goutelard F., Fournier M., Sharma P., Maro D. et Calmet D. (1999). Mesurage de ^{36}Cl : détermination de l'impact de l'usine de la Hague dans l'environnement terrestre. Proceedings des Journées Techniques de la CETAMA : mesures et analyses dans les matrices environnementales et biologiques. 14-15 septembre 1999 – Cadarache, France. 297-310.

Rapports techniques

33. Maro D., Connan O., Hébert D., Leroy C., Rouspard P. et Rozet M. (2009). Synthèse des résultats des campagnes expérimentales réalisées dans le cadre du projet de validation du modèle de dispersion atmosphérique de VEOLIA Environnement. Rapport IRSN 2009-065, 50 p.
34. Maro D., Connan O., Hébert D. et Rozet M. (2009). Étude du dépôt sec des aérosols en milieu urbain : le projet SaliFa PRIMEQUAL. Rapport scientifique et technique de l'IRSN, 300 p.
35. Maro D., Masson M., Fiévet B., Bailly du Bois P., Connan O., Boust D. et Germain P. (2008). Analyse critique des données disponibles de carbone 14 et de tritium dans le nord cotentin et en manche. Rapport IRSN 2008-006, 55 p.
36. Maro D., Hébert D., Connan O., Rozet M. et Germain P. (2006). Transferts des substances chimiques entre l'eau et l'atmosphère : détermination des flux de CO_2 entre l'eau et l'atmosphère par la méthode "eddy correlation" lors des campagnes en Loire LORA 1, 2 et 3. Rapport IRSN/DEI/SECRE 2007-04, 29 p.

37. Maro D., Gonze M. A., Connan O., Germain P., Hébert D. et Rozet M. (2006). Étude du dépôt sec des aérosols dans l'environnement. Rapport scientifique et technique de l'IRSN, 300 p.
38. Maro D., Hébert D., Solier L. et Vendel J. (2006). Détermination des distributions granulométriques des radionucléides émis sous forme d'aérosols par la cheminée de l'usine UP3 d'AREVA NC La Hague. Rapport IRSN/DEI/SECRE 2006-27, 29 p.
39. Maro D., Connan O., Hébert D., Rozet M., Solier L., Germain P. et Boulaud D. (2006). Détermination des vitesses de dépôt sec des aérosols de granulométries 0,2 μm et 7,8 μm en milieu prairial autour de l'usine AREVA NC La Hague (Projet EVA). Rapport IRSN/DEI/SECRE 2006-42, 19 p.
40. Maro D., Connan O., Hébert D., Rozet M. et Germain P. (2006). Évaluation des vitesses de dépôt sec des aérosols de 0,2 micromètres de diamètre sur différents types de substrats urbains. Rapport DEI/SECRE n°2006-01, 50 p.
41. Connan O., Maro D., Hébert D., Rozet M., Solier L., Boulaud D. et Tenailleau L. (2006). Mesures des vitesses de dépôt sec des aérosols de 0,2 μm sur différents types de substrats urbains, Projet PRIMEQUAL : campagnes SALIFA 2005-2006. Rapport DEI/SECRE n°2006-44, 25 p.
42. Maro D., Hébert D. et Germain P. (2005). Détermination des flux de CO_2 entre l'eau et l'atmosphère par la méthode "eddy correlation" et la méthode de la cloche flottante. Rapport IRSN/DEI/SECRE 2005-18, 16 p.
43. Connan O., Maro D., Hébert D. et Rozet M. (2005). Dispersion atmosphérique d'un gaz traceur en milieu urbain. (Campagne CAPITOUL – mars et juillet 2004). Rapport DEI/SECRE n°2005-12, 72 p.
44. Maro D. (2004). Détermination des distributions granulométriques des radionucléides émis sous forme d'aérosols par la cheminée de l'usine UP2-800 de COGEMA La Hague. Rapport IRSN/DEI/SECRE 2004-57, 52 p.
45. Connan O., Maro D., Germain P., Hébert D., Rozet M., Voiseux C., Solier L., Amouroux D., Tessier E. et Tenailleau L. (2004). Transferts gazeux des éléments stables Hg, Cd, I et des radioéléments ^{14}C , ^3H , ^{131}I dans l'estuaire de la Seine, Projet DIANES. Rapport DEI/SECRE n° 2004-55, 50 p.

46. Maro D., Coppalle A., Hébert D., Germain P., Devin P., Solier L. et Le Cavalier S. (2004). Détermination de la stabilité atmosphérique selon la classification de Pasquill sur le site de l'usine COGEMA La Hague. Rapport IRSN/DEI/SECRE 2004-14, 79 p.
47. Masson M., Germain P., Bailly du Bois P., Boust D., Fiévet B., Maro D. et Gandon R. (2002). Impact radioécologique des effluents radioactifs de l'usine de La Hague. Rapport IPSN/DPRE/SERNAT 02-02, 102 p.
48. Maro D., Boulaud D., Germain P., Hébert D. et Baron Y. (2002). Importance de la coagulation sur l'évolution de la granulométrie des aérosols : application au rejet dans l'environnement de ^{106}Ru -Rh consécutif à l'incident du 18 mai 2001 sur l'établissement COGEMA de La Hague. Rapport IPSN/DPRE/SERNAT 2002-20, 17 p.
49. Masson M., Germain P., Bailly du Bois P., Boust D., Fiévet B., Maro D. et Gandon R. (2001). Impact radioécologique des effluents radioactifs de l'usine de La Hague. Rapport IPSN/DPRE/SERNAT 01-03, 49 p.
50. Crabol B. et Maro D. (2001). Rejet dans l'environnement de ruthénium consécutif à l'incident du 18 mai 2001 sur l'établissement COGEMA de La Hague. Rapport IPRS/SERNAT 2001-36, 15 p.
51. Gurriaran R., Maro D. et Solier L. (2001). Étude de la dispersion atmosphérique en champ proche en cas de rejet en hauteur : étalonnage des appareils de mesures. Rapport IRSN/DPRE/SERNAT 2001-08, 23 p.
52. Maro D., Baron Y., Fontugne M., Hadji K., Hatté C., Germain P., Hébert D. et Solier L. (2000). Évolution de la radioactivité artificielle dans un bioindicateur, l'Ajonc d'Europe, autour de l'usine de retraitement des combustibles irradiés de La Hague : bilan de trois campagnes de mesures réalisées entre 1997 et 1999. Rapport IPSN/DPRE/SERNAT 00-37, 39 p.
53. Maro D., Baron Y., Crabol B., Germain P., Clotilde V., Hébert D. et Solier L. (2000). Comparaison des modèles gaussiens de dispersion atmosphérique de Doury, de Pasquill et CAIRE avec les résultats des mesures du krypton 85 réalisées autour de l'usine de retraitement des combustibles irradiés de La Hague. Rapport IPSN/DPRE/SERNAT/LERFA 00-21, 23 p.

54. Masson M., Germain P., Bailly du Bois P., Boust D., Fiévet B., Maro D. et Gandon R. (2000). Impact radioécologique des effluents radioactifs de l'usine de La Hague. Rapport IPSN/DPRE/SERNAT 00-04, 78 p.
55. Maro D., Baron Y., Crabol B., Germain P., Clotilde V., Hébert D. et Solier L. (2000). Comparaison des modèles gaussiens de dispersion atmosphérique de Doury, de Pasquill et CAIRE avec les résultats des mesures du krypton 85 réalisées autour de l'usine de retraitement des combustibles irradiés de La Hague. Rapport IPSN/DPRE/SERNAT/LERFA 00-21, 21 p.
56. Maro D., Baron Y., Germain P., Hébert D. et Solier L. (1999). Utilisation du krypton 85 rejeté dans l'environnement par l'usine de retraitement de La Hague comme outil d'étude de la dispersion atmosphérique : bilan de 14 campagnes de mesures. Rapport IPSN/DPRE/SERNAT/LERFA 99-14, 18 p.
57. Rommens C. et Maro D. (1999). Apport des embruns à la contamination du milieu terrestre. Note technique IPSN/SEGR/SAER 99-04, 20 p.
58. Masson M., Germain P., Bailly du Bois P., Boust D., Fiévet B., Maro D. et Gandon R. (1999). Impact radioécologique des effluents radioactifs de l'usine de La Hague. Rapport IPSN/SERNAT 99-08, 51 p.
59. Maro D., Germain P., Calmet D. et Fournier M. (1998). Le tritium dans l'environnement proche du site de l'usine de retraitement de La Hague : résultats des campagnes de prélèvements dans l'environnement marin et terrestre pour le district de La Hague. Rapport IPSN/DPRE/SERE 98-029, 17 p.
60. Maro D., Gandon R., Bailly du Bois P. et Germain P. (1998). Modélisation des transferts en milieu marin du carbone 14 émis sous forme liquide par les réacteurs à eau pressurisée en fonctionnement normal : synthèse bibliographique, Rapport IRSN/DPRE/SERE 98-04, 28 p.

Conférences sur invitation

61. « Carbon 14 and tritium transfers in grassland around AREVA La Hague nuclear recycling plant, from the atmosphere to the groundwater », présentation à la "23rd annual Regulatory Information Conference" à Washington, USA (2011).

62. "An innovative methodology to measure the aerosol dry deposition velocities in the environment, application to rural and urban substrates", Workshop sur les échanges de particules aux interfaces à l'université d'Helsinki, Finlande (2010).
63. "An innovative methodology to measure the aerosol dry deposition velocities in the environment, application to rural and urban substrates", université de Lecce, Italie (2010).
64. « Méthodes expérimentales de mesure des vitesses de dépôt sec des aérosols dans l'environnement, application à des substrats ruraux et urbains », Laboratoire interuniversitaire des systèmes atmosphériques (LISA), université Paris 12 (2010).
65. « Étude de la dispersion atmosphérique des polluants (gaz et aérosols) dans un environnement urbain, le projet CAPITOUL », salon POLLUTEC, Paris (2005).

Ouvrages, chapitres d'ouvrages

66. Livre blanc sur le tritium (2010), Eds Autorité de sûreté nucléaire, Paris, 277 p.
67. Toxicologie nucléaire environnementale et humaine (2009), Eds Lavoisier, Paris, chapitre 31, pp. 603-618.

3.2.3 Brevets

68. Co-auteur avec Y. Baron du brevet numéro de dépôt 0606065 : « Procédé de prélèvement automatique du tritium dans la vapeur d'eau de l'air (PREVAIR) ». Le dispositif est commercialisé depuis 2011 par la société SDEC France.
69. Deux autres brevets, un concernant les gaz et un concernant les aérosols sont en cours de rédaction.

Bibliographie

Abril G. (1999). Dynamique du carbone dans les estuaires européens : processus de minéralisation et transfert continent-océan-atmosphère. Thèse de doctorat, université de Bordeaux I, 173-209.

Abril G., Commarieu M.V., Maro D., Fontugne M., Guérin F. and Etcheber H. (2004). A massive dissolved inorganic carbon release at spring tide in a highly turbid estuary. *Geophysical Research Letters*, 31, L09316, doi : 10.1029/2004GL019714.

Affre C. (1997). Méthodologie de la mesure (aéroportée et au sol) des flux turbulents. Application à l'ozone aux échelles locales et régionale. Université Paul Sabatier, Toulouse, 201 p.

AIEA. (1981). Dispersion atmosphérique et choix des sites des centrales nucléaires. N°50-SG-S3, collection sécurité, Vienne, 116 p.

Andronache C. (2003). Estimated variability of below-cloud aerosol removal by rainfall for observed aerosol size distribution, *Atmospheric Chemistry and Physics* 3, 131-143.

Baklanov B. and Sorensen J. H. (2001). Parametrisation of radionuclides deposition in atmospheric long-range transports modelling. *Physics and Chemistry of Earth B* 26 (10), 787-789.

Barad M.L. (1958). Project prairie Grass, a field program in diffusion. *Geophys. Res. Papers*, N° 59 vols I and II, report AFCRC-TR-58-235, U.S. Air Force Cambridge Research Center.

Baron Y. et Maro D. (2006). Procédé de prélèvement automatique du tritium dans la vapeur d'eau de l'air (PREVAIR), Brevet 0606065.

Beychock M. R. (1995). Fundamentals of stack gas dispersion. Newport Beach Eds, 193 pp.

Belot Y. et Gauthier D. (1975). Transport of micronic particles from atmosphere to foliar surfaces. Heat and Mass transfert in the biosphere. Scripta Book, Co., Washington.

Boussinesq J. (1877). Essai sur la théorie des eaux courantes. *Mem. pres. par div. savants à l'Acad. Sci. Paris*, 23, 1-680.

Bovard P., Caput C. et Doury A. (1968). Étude expérimentale en vraie grandeur des transferts atmosphériques en terrain hétérogène accidenté. Congrès international sur la radioprotection du milieu devant le développement des utilisations pacifiques de l'énergie nucléaire, SFRP, Toulouse, Mai 1968, 61-77.

Bricard J. (1977). Physique des aérosols. *Rapport R-4831*. Commissariat à l'énergie atomique, 220 p.

Briggs G. A. (1985). Analytical parametrizations of diffusion—the convective boundary layer, *J. Clim. Appl. Met.* 14, 1167-1186.

Briggs G.A. (1973). Diffusion estimation of small emissions. Contribution No.79. Atmospheric Turbulence and Diffusion Laboratory, Oak Ridge, TN.

Brock J. R. (1962). On the theory of thermal forces acting on aerosol particles. *J. Colloid Sci.*, 17: 768-780.

Businger, J.A. (1986). Evaluation of the accuracy with which dry deposition can be measured with current micrometeorological techniques. *Journal of Climate & Applied Meteorology* 25, 1100-1124.

Carpenter S., Montgomery T.L., Leavitt J.M., Colbaugh W.C. and Thomas F.W. (1971). Principal plume dispersion models : TVA power plants. *J. Air Pollut. Cont. Assoc.*, 21, 491-495.

Carruthers D.J., Holroyd R.J., Hunt J.C.R., Weng W.S., Robins A.G., Thomson D.J. and Smith F.B. (1994). UKADMS, a new approach to modelling dispersion in the earth's atmospheric boundary layer. *Journal of Wind Engineering and Industrial aerodynamics* 52, 139-153.

Carruthers D.J., Weng W.S., Dyster S.J., Singles R. and Higson H. (2009a). Complex terrain module. Tech. rept. ADMS 4.0, P14/010/09. Cambridge Environmental Research Consultants (CERC).

Carruthers D.J., Weng W.S., Hunt J.C.R., Holroyd R.J., McHugh C.A. and Dyster S.J. (2009b). Plume/Puff spread and mean concentration module specifications. Tech.

rept. ADMS 4.0, P10/01V/09, P12/01V/09. Cambridge Environmental Research Consultants (CERC).

CERC. (2009). ADMS 4.0 4 User Guide. Cambridge Environmental Research Consultants (CERC).

Chamberlain A.C. (1953). Aspects of travel and deposition of aerosol and vapour clouds. AERE-HP/R-1261 United Kingdom, 34 p.

Chamberlain A.C. (1967). Transport of lycopodium spores and other small particles to rough surfaces. Proceedings of the Royal Society of London 296, 45-70.

Chamberlain A.C. and Chadwick R.C. (1972). Deposition of spores and other particles on vegetation and soil. *Annals of Applied Biology* 71, 141-158.

Chang J.C. and Hanna S.R. (2004). Air quality model performance evaluation. *Meteor Atmos Phys*, 87, 167-196.

Connan O., Maro D., Germain P., Hébert D., Rozet M., Lac C., Camail C. and Bonnardot F. (2005a). A study of atmospheric dispersion in urban environments through release of SF₆ passive tracer: comparison of the experimental results with 3 Gaussian models (Doury, Pasquill and Pasquill-Urban). Proceeding of the thirteenth international conference on modelling, monitoring and management of air Pollution, Air Pollution XIII, Cordoba, 15-18 may 2005, 369-377.

Connan O., Maro D., Hébert D. et Rozet M. (2005b). Dispersion atmosphérique d'un gaz traceur en milieu urbain. (Campagne CAPITOUL – mars et juillet 2004). *Rapport DEI/SECRE n°2005-12*, 72 p.

Crabot B. (1996). Méthodes d'évaluation de la dispersion des gaz et des aérosols dans l'atmosphère. Cours, 53 p.

Damay P. (2010). Détermination expérimentale de la vitesse de dépôt sec des aérosols submicroniques en milieu naturel : Influence de la granulométrie, des paramètres micrométéorologiques et du couvert. Thèse de doctorat. *Rapport IRSN 2010-134*, 218 p.

Damay P., Maro D., Coppalle A., Lamaud E., Connan O., Hébert D. and Talbaut M. (2008). Measuring the dry deposition velocity of sub-micron aerosols in a prairie by

eddy correlation using an Electrical Low Pressure Impactor. Proceedings of the 9th International Aerosol Conference, Thessalonique, Grèce, 24-29 august 2008, support CD 1 p.

Damay P., Maro D., Coppalle A., Lamaud E., Connan O., Hébert D., Talbaut M. et Irvine M. (2009). Mesure par corrélation turbulente de la vitesse de dépôt des aérosols submicroniques sur différents couverts naturels. Proceeding du 23^e congrès français des aérosols, ASFERA, Paris, 14-15 janvier 2009, support CD 5 p.

Damay P.E., Maro D., Coppalle A., Lamaud E., Connan O., Hébert D., Talbaut M. and Irvine, M. (2009). Size-resolved eddy covariance measurements of fine particle vertical fluxes. *Journal of Aerosol Science* 40, 1050-1058.

Davidson C.I., Cartwright L.G., Landis L.R., Lindberg S.E. and Schmidt J.A. (1985). Dry deposition of sulfate onto surrogate surfaces. *Journal of Geophysical Research*; (United States); Journal Volume: 90:D1, pp. Medium: X; Size: Pages: 2123-2130.

De Moor G. (1996). Les Théories de la turbulence dans la couche limite atmosphérique, Cours et manuels, n°3, École Nationale de la Météorologie, Météo France, Toulouse, France.

Delmas R., Gérard M. et Peuch V.H. (2005). Physique et chimie de l'atmosphère. Édition Belin, Paris.

Devell L., Tovedal H., Bergstrom U., Appelgren A., Chyssler J. and Andersson L. (1986). Initial observations of fallout from the reactor accident at Chernobyl. *Nature* 321, 192-193.

Doury A. (1976). Une méthode de calcul pratique et générale pour la prévision numérique des pollutions véhiculées par l'atmosphère, Commissariat à l'énergie atomique, rapport CEA R 4280 (Rev 1), Saclay, France, 37 p.

Doury A. (1981). Le vadémécum des transferts atmosphériques, rapport n°CEA-DSN-440, CEA.

Dyer A.J. (1974). A review of flux-profile relationships. *Boundary-layer Meteorology* 7, 363-372.

Elster J. and Geitel H. (1913). Zur influenz theorie der niederschlagsele. *Phys. Z.*, Vol. 14, p.1287.

Facy L, Perrin de Brichambaut C., Doury A. et Le Quinio R. (1962). L'utilisation des maquettes aériennes et hydrauliques pour l'étude de la pollution atmosphérique. *Rapport CEA – R2 220 – 1962*.

Foken T. and Wichura B. (1996). Tools for quality assessment of surface-based flux measurements. *Agricultural and Forest Meteorology* 78, 83-105.

Fontugne M., Maro D., Baron Y., Hatté C., Hébert D. and Douville E. (2002). Identification of sources and distribution of radiocarbon in the vicinity of La Hague nuclear reprocessing plant. *Radioprotection, Colloques*, volume 37, C1, pp. 1271-1276.

Fontugne M., Maro D., Baron Y., Hatté C., Hébert D. and Douville E. (2004). 14C sources and distribution in the vicinity of La Hague nuclear reprocessing plant: part I Terrestrial environment. *Radiocarbon*, Vol 46, 2, 827-830.

Fowler D., Pilegaard K., Sutton M.A., Ambus, P., Raivonen M., Duyzer J., Simpson D., Fagerli H., Fuzzi, S., Schjoerring, J.K., Grainer, C., Neftel, A., Isaksen, I.S.A., Laj, P., Maione, M., Monks, P.S., Burkhardt, J., Daemmgen, U., Neiryneck, 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., Røpoulsen, H., Cellier, P., Cape, J.N., Horvath, L., Loreto, F., Niinemets, U., Palmer, P.I., Rinne, J., Misztal, P., Nemitz, E., Nilsson, D., Pryor, S., Gallagher, M.W., Vesala, T., Skiba, U., Brüeggemann, N., Zechmeister-Boltenstern, S., Williams, J., O'Dowd, C., Facchini, M.C., de Leeuw, G., Flossman, A., Chaumerliac, N., Erisman, J.W. (2009). Atmospheric Composition Change: Ecosystems-Atmosphere interactions. *Atmospheric Environment*, 43 (33), 5193-5267.

Fraizier A., Masson M. et Guary J.C. (1977). Recherches préliminaires sur le rôle des aérosols dans le transfert de certains radioéléments du milieu marin au milieu terrestre. *J. Rech. Atmos.*, 11, (1), 49-60.

Frankignoulle M. and Borges A.V. (2001). European continental shelf as a significant sink for atmospheric carbon dioxide. *Global biogeochemical cycles*, 15, (3), 569-576

Fuchs N. (1964). *The Mechanics of Aerosols*, Pergamon Press Oxford.

Gallagher M., Fontan J., Wyers G., Ruijgrok W., Duyzer J., Hummelshoj P., Pilegaard K. and Fowler D. (1997). Atmospheric particles and their interaction with natural surfaces. In: Slanina, S. (Ed.), Biosphere-atmosphere exchange of pollutants and trace substances. Transport of pollutants in the troposphere. Springer-Verlag, Heidelberg, 45-92.

Garcia Niento P.J.G., Garcia B.A., Diaz J.M.F and Brana M.A.R. (1994). Parametric study of selective removal of atmospheric aerosol by below cloud scavenging. *Atmospheric Environment* 28, 2335-42.

Gifford F.A., 1976. Turbulent diffusion-typing Schemes: A review. *Nuclear safety*, Vol 17, 68-85.

Golder D. (1972). Relations among stability parameters in the surface layer. *Boundary-Layer meteorology*, 3, 47-58.

GRNC. (2000). Estimation of exposure to ionizing radiation and associated risks of leukemia for population in the Nord-Cotentin, Nord-Cotentin Radioecologie Group, Synthesis, 357pp. www.irsn.fr/nord-cotentin.

Gurriaran R., Maro D. et Solier L. (2001). Etude de la dispersion atmosphérique en champ proche en cas de rejet en hauteur – étalonnage des appareils de mesure nucléaires. IPSN/Département de protection de l'environnement- *Rapport DPRE/SERNAT/2001-08*. 23 p.

Hage K.D., Arnason G., Bowne N.E., Brown P.S., Entrekin W.D., Lewitz M. and Sekorski J.A. (1966). Particle fallout and dispersion in the Atmosphere, *Final Report*, SC-CR 66 – 2031, Aerospace nuclear Safety, Sandia Corporation.

Hanna S.R., Chang, J.C. and Strimaitis D.G. (1993). Hazardous gas model evaluation with field observations. *Atmospheric environment*, 27A, 2265-2285.

Held A. and Klemm O. (2006). Direct measurement of turbulent particle exchange with a twin CPC eddy covariance system. *Atmospheric Environment* 40, 92-102.

Held A., Niessner R., Bosveld F., Wrzesinsky T. and 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.

Hewitt C.N. and Jackson A. (2003). Handbook of Atmospheric Science, principe and applications. Blackwell Publishing, 633 p.

Hinds W. C. (1999). Aerosol technology. John Wiley and Sons, Inc. 483 p.

Hunt J.C.R. (1985). Turbulent diffusion from sources in complex flows. *Ann. Rev. fluid. Mech.* 17, 447-458.

IPSN. (2002). Étude du comportement des radionucléides rejetés dans l'environnement par l'usine de la Hague. *Rapport contractuel - bilan annuel*. IRSN/DPRE/SERNAT/2002-02, 102 p.

IRSN (2003). Étude du comportement des radionucléides rejetés dans l'environnement par l'usine de la Hague. *Rapport contractuel - bilan annuel*. IRSN/DPRE/SERNAT/2003-01, 15 p.

Jackson P.S. and Hunt J.C.R. (1975). Turbulent wind flow over a low hill. *Q. J. R. Meteorol. Soc.* Vol101, 929-955.

Jaenicke R. (1982). Physical aspects of the atmospheric aerosol, Chemistry of the Unpolluted Troposphere. (Eds) Georgii, H. W. and Jaeschke, W., D. Riedel Publishing, 341-373.

Jost D.T., GaGgeler H.W., Baltensperger U., Zinder B. and Haller P. (1986). Chernobyl fallout in size-fractionated aerosol. *Nature*, 324, 22-23.

Jylha K. (1999). Relationship between the scavenging coefficient for pollutants in precipitation and the radar reflectivity factor, Part I: derivation. *Journal of Applied Meteorology*, 1421-1434.

Kaimal J.C., Eversole R.A., Lenschow D.H., Stankov B.B., Kahn P.H. and Businger J.A. (1982). Spectral characteristics of the convective boundary layer over uneven terrain (Boulder Atmospheric Observatory). *Journal of the Atmospheric Sciences*, 39, 1098-1114.

Kaimal J.C. and Finnigan J.J. (1994). Atmospheric Boundary Layer Flows. Their structure and measurement. Oxford University press, Oxford.

Köhler H. (1936). The nucleus in and the growth of hygroscopic droplets, *Trans.*

Faraday Soc., 32: 1152-1161.

Kolmogorov A.N. (1942). Equation of turbulent motion of an incompressible turbulent fluid. *Izv. Ser. Phys.* VI, 1-2, 56.

Kotroni V. and Lagouvardos K. (1994). Dynamic structure and evolution of the prefrontal boundary layer: Three case studies of FRONTS 87. *Atmospheric Research*, 35, 55-70.

Lac C., Bonnardot F., Connan O., Camail C., Maro D., Hébert D., Rozet M. and Pergaud J. (2008). Evaluation of a mesoscale dispersion modelling tool during the CAPITOUL experiment. *Meteorology and atmospheric physics*, Vol. 102, 263-287.

Lagoutine F., Coursol N. et Legrand J. (1983). Table de radionucléides, volume 1 – Commissariat à l'énergie Atomique – Bureau national de métrologie – Laboratoire de métrologie des rayonnements ionisants – Gif-sur-Yvette, France.

Lai A. C. K. and Nazaroff W. W. (2000). Modeling indoor particle deposition from turbulent flow onto smooth surfaces. *Journal of Aerosol Science* 31, 403-476.

Lamaud E., Brunet Y., Labatut A., Lopez A., Fontan J. and Druilhet A. (1994a). The Landes experiment: biosphere-atmosphere exchanges of ozone and aerosol particles above a pine forest. *Journal of Geophysical Research* 99.

Lamaud E., Chapuis A., Fontan J. and Serie E. (1994b). Measurements and parameterization of aerosol dry deposition in a semi-arid area. *Atmospheric Environment* 28, 2461-2471.

Lamb R.G. (1982). Diffusion in the convective boundary layer; atmospheric turbulence and air pollution modelling, 159-230. Eds F.T.M. Nieuwstadt and H. Van Dop, D. Reidel, Dordrecht.

Le Quinio R. (1964). Abaques pour le calcul de la pollution atmosphérique due aux effluents d'une source ponctuelle. Service de contrôle des radiations et de génie radioactif. Note CEA N° 488.

Le Quinio R. et Hugon J. (1963). Résultat d'expériences de diffusion atmosphérique en vraie grandeur. Colloque internationale sur la pollution radioactive des milieux gazeux, Saclay – novembre 1963. Presses universitaires de France – Paris – 141-148.

Lemaitre P., Nuboer A. et Porcheron E. (2009). Pluie, nuages et aérosol : leurs interactions dans la troposphère. *Rapport IRSN/DSU/SERAC/LECEV/09-18*, 79 p.

Leroy C., Maro D., Hébert D., Solier L., Rozet M., Le Cavalier S. and Connan O. (2010). A study of the atmospheric dispersion of a high release of krypton-85 above a complex coastal terrain, comparison with the predictions of Gaussian models (Briggs, Doury, ADMS4). *Journal of Environmental Radioactivity*, Vol. 101, 11, 937-944.

Lhiaubet G. (1990). Comportement des aérosols dans l'enceinte d'un REP en situation accidentelle. 1^{re} partie. *Note technique SASC N° 90/765*, 24 p.

Marshall J. S. and Palmer W. M. (1948). Distribution of rain drop with size. *Journal of Meteorological Society*, 5, 165-166.

Maro D., Boulaud D., Germain P., Hébert D. et Baron Y. (2002a). Importance de la coagulation sur l'évolution de la granulométrie des aérosols : application au rejet dans l'environnement de ¹⁰⁶Ru-Rh consécutif à l'incident du 18 mai 2001 sur l'établissement COGEMA de La Hague. *Rapport IPSN/DPRE/SERNAT 2002-20*, 17 p.

Maro D., Connan O., Hébert D. et Rozet M. (2009). Étude du dépôt sec des aérosols en milieu urbain : le projet SaliFa PRIMEQUAL. *Rapport scientifique et technique de l'IRSN*, 300 p.

Maro D., Crabol B., Germain P., Baron Y., Hébert D. and Bouisset P. (2002b). A study of the near field atmospheric dispersion of emission at height: Comparison of Gaussian plume models (Doury, Pasquill-briggs, Caire) with 85 krypton measurements taken around La Hague nuclear reprocessing plant. *Radioprotection*, 37, 1, 1277-1282.

Maro D., Fontugne M., Hatté C., Hébert D. and Rozet M. (2004). ¹⁴C sources and distribution in the vicinity of La Hague nuclear reprocessing plant: part II Marine environment. *Radiocarbon*, Vol. 46, 2, 2004, 831-839.

Maro D., Gonze M. A., Connan O., Germain P., Hébert D. et Rozet M. (2006). Étude du dépôt sec des aérosols dans l'environnement. *Rapport scientifique et technique de l'IRSN*, 300 p.

Maro D., Tenailleau L., Fontugne M., Germain P., Hébert D. and Rozet M. (2005). Tritium transfer between sea and atmosphere in the English Channel (North Contentin and Bay of Seine). *Radioprotection*, Vol. 40, 1, 589-594.

Martin J.M., Thomas A.J. and Jeandel C. (1981). Transfert atmosphérique des radionucléides artificiels de la mer vers le continent. *Oceanologica Acta*, 4, (3), 263-266.

McElroy J.L., and Pooler's F. (1968). St Louis dispersion study. US Public Health Service, National Air Pollution Control Administration, *Report AP-53*.

McKay W.A. and Pattenden N.J. (1989). The Transfer of Radionuclides from Sea to Land via the Air: a review. *J. Environ. Radioactivity*, 12, 49-77.

Mestayer P. (2007). L'atmosphère habitée : dynamique, thermodynamique et dispersion des polluants. Cours de l'École centrale de Nantes, 225 p.

Monin A.S. and Obukhov A.M., (1954). Dimensionless characteristics of turbulence in the surface layer. *Akad. SSR. Geofis, Trudy* 24, pp.151-163.

Montassier N. (1990). Etude du dépôt des aérosols par thermophorèse dans un écoulement laminaire. Thèse, université Paris XII, *Rapport CEA R 5533*.

Myrup L.O. and Ranzieri A.J. (1976). A consistent scheme for estimation diffusivity to be used in air quality models. *Report CA-DOT-TL-7169-3-76-32*, California Dep. Of Transportation, Sacramento.

Nemitz E., Gallagher M., Duyzer J. and Fowler D. (2002). Micrometeorological measurements of particle deposition velocities to moorland vegetation. *The 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. and Gallagher M.W. (2004). Gas-particle interactions above a Dutch heathland: II. Concentrations and surface exchange fluxes of atmospheric particles. *Atmos. Chem. Phys., Discuss.* 4, 1519-1565.

Neumann H.H. and Den Hartog G. (1985). Eddy Correlation Measurements of Atmospheric Fluxes of Ozone, Sulphur, and Particulates During the Champaign Intercomparison Study. *Journal of Geophysical Research*, 90.

Obukhov A.M; (1946). Turbulence in an atmosphere heterogeneous with respect to temperature. *Trudy Inst. Theoret. Geophys. Akad. Sci. USSR*, 1.

Ogorodnikov B.I., Budyka A.K. and Skitovitch V.I. (1994). Radioactive aerosols near Chernobyl in 1986-1992. *Journal of Aerosol Science*, 25, 269-270.

Pal Arya S. (2001). Introduction to Micrometeorology Academic Press San Diego.

Pannetier R. (1968). Distribution, transfert atmosphérique et bilan du krypton 85 - Commissariat à l'énergie atomique – *rapport* CEA R 3591 – Saclay, France, 177 p.

Panovsky H.A. and Dutton J.A. (1984). Atmospheric turbulence. Models and methods for engineering applications. John Wiley, New York.

Pasquill F. (1961). Estimation of the dispersion of windborne material. *Meteorol. Mag.*, 90, 33-49.

Pasquill F. (1974). Atmospheric Diffusion, 2nd edition, Ellis Horwood Ed., Londres.

Pattenden N.J., Cambray R.S. and Playford K. (1981a). Trace of major elements in the sea-surface microlayer. *Geochimica Cosmochimica Acta*, 45, 93-100.

Pattenden N.J., Cambray R.S., Playford K., Eakins J.D. and Fisher E.M.R. (1981b). Atmospheric measurements on radionuclides previously discharged to sea. I.A.E.A.-S.M.-248/138, 201-221.

Petroff A. (2005). Étude mécanique du dépôt sec d'aérosols sur couvert végétaux. Université de la Méditerranée AIX-MARSEILLE II, Marseille.

Plumecocq W. (1997). Étude de l'interaction d'un système d'aspersion liquide avec l'atmosphère environnante, université de Provence, Aix-Marseille 1.

Powers D. A. and Burson S. B. (1993). A simplified model of aerosol removal by containment sprays. NUREG, 5966, SAND92-2689, US Nuclear Regulatory Commission.

Pruppacher H. R. and Klett J. D. (1978). Microphysics of Clouds and Precipitations, Kluwer Academic Publishers.

Quinault J.M., Cartier Y. et Boudeau F. (1989). Guide d'évaluation de l'impact de rejets radioactifs atmosphériques. EDF N°3861, 120 p.

Randerson D. (1984). Atmospheric Science and Power Production. Technical Information Center, Office of Scientific and Technical Information Eds., United States Department of Energy, 850 p.

Renneson M., Maro D., Fitamant M.L. and Prian E. (2005). Comparison of the local-scale atmospheric dispersion model CEDRAT with ^{85}Kr measurements. *Radioprotection*, Vol. 40, 1, 371-377.

Renoux A. et Boulaud D. (1998). Les aérosols, Physique et Métrologie, Lavoisier TEC DOC, 291 p.

Reynolds S. E., Brook M. and Gourley M.F. (1957). Thunderstorm charge separation. *J. Meteor. Soc.*, Vol. 14, 426-437.

Rimberg D. and Peng Y (1977). Aerosol collection by falling droplets. Air Pollution Control and Design Handbook, New York, 747-777.

Roed J. (1983). Deposition velocity of caesium-137 on vertical building surfaces, *Atmospheric Environment*, 17, 3.

Roed J. (1985). Run-off from roofs, Riso-M-2471.

Roed J. (1986). Dry deposition in urban areas and reduction in inhalation dose by staying indoors during the Chernobyl accident, paper presented at a meeting 12 June 1986 of the group of experts on accident consequences (GRECA), NEA/OECD, Paris.

Roed J. (1987). Dry deposition on smooth and rough urban surfaces, The post-Chernobyl workshop, Brussels, 3-5 February 1987, NKA/AKTU-245 (87)1.

Sacré C., Flori J. P., Giraud D., Olive F., Ruot B., Sini J.F., Rosant J.M., Mestayer P., Coppalle A., Talbaut M., Maro D., Connan O., Hébert D., Germain P. et Rozet M. (2006) : Salissures de Façade, Programme PRIMEQUAL, *Rapport CSTB EN-CAPE 06.009*, 54 p.

Schmidt A. and Klemm O. (2008). Direct determination of highly size-resolved turbulent particle fluxes with the disjunct eddy covariance method and a 12-stage electrical low pressure impactor. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* 8, 8997-9034.

Sehmel G.A. (1984). Deposition and resuspension. In: Randerson, D. (Ed.), Atmospheric science and power production. Technical information center, office of Scientific and Technical Information, United States Department of Energy., Springfield.

Seinfeld J. H. and Pandis S. N. (1998). Atmospheric chemistry and physics. Wiley-Interscience, New York.

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, 1361-1416.

Singer I.A. and Smith M.E. (1966). Atmospheric dispersion at Brookhaven National Laboratory. *Int. J. Air. Water Pollut.* 10, 125-135.

Slinn W. G. N. (1983). Precipitation scavenging, in Atmospheric Sciences and Power production-1979, Chap. 11. Division of Biomedical Environmental Research, US. Department of Energy.

Slinn W.G.N. (1982). Predictions for particle deposition to vegetative canopies. *Atmospheric Environment*, (1967) 16, 1785-1794.

Sparmacher H., Fülber K. and Bonka H. (1993). Below-cloud scavenging of aerosol particles: particle-bound radionuclides. Experimental. *Atmospheric Environment*, 27A: 605-618.

Sportisse, B. (2007). A review of parametrizations for modelling dry deposition and scavenging of radionuclides. *Atmospheric Environment*, 41, 2683-2698.

Stull R.B. (1988). An introduction to boundary layer meteorology. Kluwer academic publishers, 670 p.

Takahashi T. (1973). Measurement of electric charge of cloud droplets, drizzle and raindrops. *Rev. Geophys, Space Phy*, Vol 11, 903-924.

Ternon J. F. (1990). Mise au point de la mesure du krypton 85 dans des échantillons océaniques par comptage bêta et utilisation du krypton 85 comme traceur en océanographie- thèse de doctorat de l'université Pierre et marie curie – soutenue le 13 décembre 1990 – Paris, France.

Van der Hoven I. (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.

Vendel F. (2007). Détermination expérimentale du coefficient de rabattement des aérosols par la pluie : comparaison modèles/mesures. *Rapport de stage IRSN-ENSIAME*, 200 p.

Vendel F., Maro D., Hébert D. et Germain P. (2008). Détermination expérimentale du coefficient de rabattement des aérosols par la pluie : comparaison modèles-mesures. Proceeding du 23^e congrès français des aérosols, ASFERA, Paris, 16-17 janvier 2008, support CD 5 p.

Vonnegut B. (1955). Possible mechanism for the formation of thunderstorm electricity. *Geophys. Res. Paper*, 42, Proc. Conf. Atmos. Electr., AFCRC-TR-55-222, 15-28.

Waldmann L. and Schmitt K. H. (1966). Thermophoresis and diffusiophoresis of aerosols, C.N. Davies.

Weil J.C., 1985. Updating applied diffusion models. *J. Clim. Appl. Met.*, 24, 1111-1130.

Wesely M.L., Cook D.R., Hart R.L and Speer R.E. (1985). Measurements and Parameterization of Particulate Sulfur Dry Deposition Over Grass. *Journal of Geophysical Research*, 90.

Wesely M.L., Hicks B.B., Dannevik W.P., Frisella S. and Husar R.B. (1977). An eddy-correlation measurement of particulate deposition from the atmosphere. *Atmospheric Environment*, 11, 561-563.

Whitby K.T. and Sverdrup G.M. (1980). California aerosols: their physical and chemical characteristics. *Advances in Environmental Science and Technology* 9, 447-517.

Willis G.E. and Deardoff J.W. (1976). A laboratory model of diffusion from into the convective boundary layer. *Quart. J. Roy. Meteorol. Soc.* 102, 427-445.

Willis G.E. and Deardoff J.W. (1978). A laboratory study of dispersion from an elevated source in a modified convective planetary boundary layer. *Atmos. Environ.* 12, 1305-1311.

Willis G.E. and Deardoff J.W. (1981). A laboratory study of dispersion from a source in the middle of the convective planetary boundary layer. *Atmos. Environ.* 17, 2435-2447.

Wilson C. T. R. (1929). Some thundercloud problem. *Journal of the Franklin Institute*, Vol. 208, 1-12.

Wiman B.L.B. and Ågren G.I. (1985). Aerosol depletion and deposition in forests--A model analysis. *Atmospheric Environment*, 19, 335-347.

Zhang L., Gong S., Padro J. and Barrie L. (2001). A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module. *Atmospheric Environment*, 35, 549-560.

Imprimé sur papier de qualité PEFC par l'Imprimerie de Pithiviers
Avenue du 11 novembre 45300 Pithiviers
Dépôt légal : octobre 2013



Collection HDR

Mémoire d'habilitation à diriger des recherches

Transfert des radionucléides sous forme de gaz et d'aérosols dans les environnements complexes : études expérimentales de dispersion atmosphérique et d'échanges aux interfaces

HDR de l'université des Sciences de Nantes soutenue à Nantes le 2 décembre 2011

Par Denis MARO,
Laboratoire de radioécologie de Cherbourg-Octeville (IRSN/PRP-ENV/SERIS/LRC)

L'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN) est un organisme public d'expertise et de recherche pour la sûreté nucléaire et la radioprotection. Il intervient comme expert en appui aux autorités publiques. Il exerce également des missions de service public qui lui sont confiées par la réglementation. Il contribue notamment à la surveillance radiologique du territoire national et des travailleurs, à la gestion des situations d'urgence et à l'information du public. Il met son expertise à la disposition de partenaires et de clients français ou étrangers.

ISBN : 978-2-9545237-0-5

IRSN
INSTITUT
DE RADIOPROTECTION
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE

Siège social
31, avenue de la Division Leclerc
92260 Fontenay-aux-Roses
RCS Nanterre B 440 546 018
Téléphone +33 (0) 1 58 35 88 88
Courrier
BP 17
92262 Fontenay-aux-Roses Cedex
Site internet www.irsn.fr