

MESURES DES VITESSES DE DÉPÔT SEC POUR LES PARTICULES ATMOSPHÉRIQUES DE 1,5 nm À 1,2 µm : LA COURBE EN "V"

G. Pellerin (1,2), E. Gehin (2), D. Maro (1), P. Laguionie (1), D. Hébert (1), O. Connan (1) et L. Solier (1)
(1) Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-Octeville (LRC), Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN), 50130 Cherbourg-Octeville

(2) Centre d'Etudes et de Recherches en Thermique Environnement et Systèmes (CERTES), EA 3481, Université Paris-Est Créteil Val de Marne (UPEC), 94010 Créteil

TITLE:

Dry deposition velocities measurements for atmospheric particles between 1.5 nm and 1.2 µm: the "V" curve

RESUME

Pour évaluer l'impact d'un rejet accidentel ou chronique sous forme de particules dans l'atmosphère, il est important d'étudier leur dépôt sec en milieu prairial. En effet, les produits issus de ce milieu sont une composante de la chaîne alimentaire de l'homme via l'élevage. Pour les particules de moins de 1 µm, il y a un manque de données expérimentales, ce qui entraîne une incertitude sur les résultats des modèles, qui peuvent atteindre jusqu'à deux ordres de grandeur. En outre, il n'existe pas de données de mesure de la vitesse de dépôt *in situ* disponibles pour les particules inférieures à 10 nm. Ces particules sont issues de réaction gaz/particules (nucléation) et peuvent concerner certains radionucléides tels que l'iode (^{129,131}I). L'objectif de cette étude est de mesurer et de modéliser la vitesse de dépôt sec pour les particules avec une granulométrie comprise entre 1,5 nm et 1,2 µm, particulièrement la taille de particules inférieures à 10 nm. À cette fin, trois différentes méthodes expérimentales *in situ* ont été mises au point et utilisées durant 4 campagnes expérimentales au-dessus d'une prairie.

ABSTRACT

To assess the impact of an accidental or chronic radionuclide release in form of aerosol particles in the atmosphere, it is important to study their dry deposition above a grassland. Indeed, products derived from this environment are a component of the human food chain via livestock. For particles of less than 1 µm, there is a lack of experimental data in this regard, leading to uncertainty in terms of the results of models, which can reach up to two orders of magnitude. Moreover, there is no *in situ* deposition velocity measurement data available for particles that are smaller than 10 nm. These particles were formed by gas/particles reaction (nucleation) and may affect different radionuclides like iodine (^{129,131}I). The objective of this study is to measure and analyse the dry deposition velocity for aerosol particles with a particle size of between 1.5 nm and 1.2 µm, with particular focus on the particle size less than 10 nm. To this end, three different methods during 4 experimental campaigns were used above a grassland.

KEYWORDS: dry deposition velocities, nanometric particles, eddy correlation, fluorescein / **MOTS-CLÉS :** vitesses de dépôt sec, particules nanométriques, corrélations turbulentes, fluorescéine

1. CONTEXTE ET OBJECTIFS

Les installations nucléaires sont susceptibles de rejeter dans l'atmosphère différents types de radionucléides sous forme de gaz et d'aérosols lors de rejets chroniques ou accidentels. Ces particules principalement de la gamme submicronique, peuvent être soumises à la dispersion atmosphérique, au dépôt par temps sec et par temps humide.

Les flux verticaux par temps sec sont caractérisés par la vitesse de transfert vertical, qui est le rapport entre le flux de particules et la concentration atmosphérique de l'aérosol au voisinage de la surface. Lorsque cette vitesse est positive, c'est une vitesse de dépôt sec (V_d en $m.s^{-1}$) et inversement, lorsqu'elle est négative, c'est une vitesse d'émission.

Dans la gamme submicronique le dépôt des particules est conditionné par la turbulence de l'atmosphère. La vitesse de dépôt sec dépend de nombreux paramètres : la topographie du terrain, le type de substrat, les conditions micrométéorologiques, les caractéristiques des aérosols (granulométrie). Le manque de données de vitesse de dépôt sec, insuffisamment renseignées principalement en termes de granulométrie et de micrométéorologie, entraîne des incertitudes de 1 à 2 ordres de grandeurs de différence entre les modèles de calcul de vitesse de dépôt existants (Petroff *et al.*, 2008). Dans ce contexte, l'objectif de l'étude est de quantifier la vitesse de dépôt sec en fonction de la taille des particules et des principaux paramètres micrométéorologique (flux de chaleur sensible H et vitesse de frottement du vent U^*) dans la gamme 1,5 nm – 1,2 µm.

2. MATÉRIEL ET MÉTHODES

Notre travail a consisté à mettre au point puis à quantifier la vitesse de dépôt sec des aérosols (1,5 nm -1,2 µm) au-dessus d'un couvert prairial. En effet, les produits issus de ce milieu sont une composante de la chaîne alimentaire de l'homme via l'élevage. Dans la gamme de taille étudiée (trois ordres de grandeur,

différents phénomènes physiques), il n'est pas possible d'utiliser une méthode unique pour obtenir des vitesses de dépôt sec. Trois méthodes ont été développées et mises en œuvre :

- (1) Méthode du gradient pour la fraction libre des descendants du ^{222}Rn : particules de 1,5 nm ;
- (2) Méthode des corrélations turbulentes pour l'aérosol atmosphérique :
 - a. Via un couplage de deux Compteurs à Noyaux Condensation (CNC 3788 et CNC 3788 avec une grille de diffusion, TSI Inc.) : particules de 6 nm ;
 - b. Via un Electrical Low Pressure Impactor (ELPI, Dekati Inc.) : particules de 14 nm à 1,2 μm ;
- (3) Méthode de dépôt direct de particules de fluorescéine : particules de 0,6 μm .

2.1. Méthode du gradient en utilisant la fraction libre des descendants du ^{222}Rn : particules de 1,5 nm

2.1.1 Principe de la méthode du gradient

La méthode du gradient repose sur la théorie du gradient de diffusion (Fuentes *et al.*, 1996; Meredith *et al.*, 2014) (Équation 1) et consiste à mesurer les activités des particules atmosphériques en ^{214}Po à deux hauteurs différentes.

$$F_d = -D_T \frac{\partial C}{\partial z} \quad \text{Équation 1}$$

Avec F_d le flux de dépôt sec des particules atmosphériques ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$), D_T est le coefficient diffusion turbulente ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$), et C l'activité en ^{214}Po dans l'atmosphère ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) et z est l'altitude (m).

2.1.2 Mesure de la concentration en fraction libre des descendants du ^{222}Rn

Après la désintégration radioactive du Rn (gaz) en particule, les radionucléides qui en résultent (Figure 1) réagissent très rapidement (<1s) avec les gaz en trace et les composants de l'air, formant ainsi des clusters qui ont une taille de l'ordre du nanomètre. Ces clusters sont alors appelés la fraction libre ou non attachée des descendants du radon. Étant donné les différentes demi-vies relativement courtes (par rapport à un prélèvement de 30 min) des premiers émetteurs alpha (Figure 1), descendants du ^{222}Rn , le choix de mesurer le ^{214}Po est le plus approprié. À l'instar de Schery *et al.* (1998), il a été utilisé une grille de diffusion (TSI ; modèle 376060) à un débit de 200 $\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$ permettant d'échantillonner les particules ayant un diamètre de 1,3 nm. L'activité en ^{214}Po sur la grille de diffusion est ensuite mesurée par spectrométrie alpha.

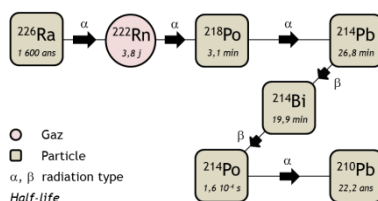


Figure 1: Dispositifs utilisés pour la mesure de vitesse de dépôt sec par la méthode des corrélations turbulentes.

2.2. Méthode des corrélations turbulentes : particules de 6 nm à 1,2 μm

2.2.1 Principe de la méthode des corrélations turbulentes

La méthode des corrélations turbulentes permet de déterminer le flux vertical des particules par une analyse de covariance entre la vitesse verticale du vent w (obtenu avec un anémomètre à ultrasons) et la concentration des particules (méthode de corrélation turbulente). Cette méthode requiert un échantillonnage rapide de l'aérosol, c'est-à-dire supérieur à une fréquence de 10 Hz (Businger, 1986) pour être compatible avec l'échelle de la turbulence atmosphérique. Cependant, peu de systèmes mesurant la concentration dans les particules submicroniques dans l'environnement peuvent effectuer des échantillonnages à une fréquence aussi élevée, ce qui entraîne une sous-estimation du flux. En tant que tel, pour évaluer cette sous-estimation du flux de particules, une méthode de correction reposant sur la similitude spectrale a été utilisée durant cette étude (Damay *et al.*, 2009 ; Pellerin *et al.*, 2017)

$$\overline{w'X'} = \int_{n_0}^{n_f} Co_{w'C'}(n) dn \quad \text{Équation 2}$$

Où n_0 est la fréquence la plus basse qui peut être mesurée sur un échantillon au cours du temps t . Dans cet exemple, le temps passé à traiter les échantillons est d'une demi-heure, n_0 est donc d'environ 10^{-3} Hz. n_f correspond au seuil de réponse spectrale des dispositifs de mesure.

2.2.2 Mesures de concentrations en particules de 6 nm à 1,2 µm.

Pour mesurer la concentration en particules de 6 nm, la méthode twin CNC (Held & Klemm, 2006) a été utilisée lors des 4 campagnes de 2015 à 2016. Cette méthode de couplage de deux Compteurs à Noyaux de Condensation (CNC) 3788 (TSI, Inc.), qui mesurent les concentrations en particules de 2,5 nm à 3 µm. Afin d'obtenir une concentration pour une gamme granulométrique de 2,5 à 14 nm, une grille de diffusion (TSI ; Model 376060) est placée à l'entrée d'un compteur 3788, fonctionnant avec un débit de $1,5 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$, et permet d'échantillonner les particules au-dessus de 14 nm (Cheng & Yeh, 1980). La gamme de concentration voulue sera donc obtenue ensuite en faisant la différence de mesures de concentration des deux CNC.

Pour les particules de 14 nm à 1,2 µm, un Electrical Low Pressure Impactor (ELPI, Dekati Inc.) a été utilisée (Damay *et al.*, 2009). L'ensemble des appareils pour la mesure par corrélations turbulentes est présenté sur la Figure 2.



Figure 2 : Dispositifs utilisés pour la mesure de vitesse de dépôt sec par la méthode des corrélations turbulentes.

2.3. Méthode par traçage du dépôt en utilisant de la fluorescéine : particules de 0,6 µm

2.3.1 Principe de la méthode de dépôt direct

La technique mise au point au LRC permet de déterminer les vitesses de dépôt sec des aérosols, à partir de fluorescéine (uranine sodée). Ces particules sont émises, par un générateur pneumatique (Figure 3 a)), sous forme d'aérosols secs faiblement polydispersés diamètre aérodynamique médian en masse de $0,6 \mu\text{m}$ ($\sigma=1,6$). Le flux de particules de fluorescéine est calculé via l'Équation 3.

$$F = \frac{C_{\text{déposée sur herbe synthétique}}}{\text{Surface}_{\text{éprouvette d'herbe synthétique}} \times \text{temps}_{\text{prélèvement}}} \quad \text{Équation 3}$$

2.3.2 Mesures de concentrations en particules de fluorescéine de 0,6 µm.

Des éprouvettes d'herbes synthétiques, placés à 50 m environ du générateur de fluorescéine, permettent ainsi d'obtenir le flux de particules de fluorescéine (Figure 3 b)). Des prélèvements sur filtre (Figure 3 b)), sont également effectués afin d'obtenir des vitesses de dépôt sec.

Après mise en solution de la fluorescéine déposée sur l'herbe et sur les filtres avec une solution basique, les concentrations sont mesurées par fluorimétrie.



Figure 3 a) : Générateur pneumatique de fluorescéine déployé sur le terrain. b) : filtres et herbes synthétiques pour la mesure des vitesses de dépôt de fluorescéine.

3. PRINCIPAUX RÉSULTATS ET DISCUSSION

L'évolution de V_d en fonction de U^* pour les particules nanométrique a été tracée sur la Figure 4 a). La première observation que l'on peut faire ici est que la vitesse de dépôt sec pour les particules de 1,5 nm est dépendante de la turbulence mécanique de même que les particules plus grosses (ici de 202 nm). Ainsi pour les particules de 1,5 nm, la vitesse de dépôt est pilotée par le mécanisme de diffusion brownienne et la turbulence mécanique (U^*) indépendamment de la turbulence thermique (H). Pour les plus grosses particules, les mécanismes d'interception et d'impaction pilotent le dépôt sec ainsi que H et U^* . Ces observations sont reportés également Figure 4b) pour des conditions atmosphériques neutres et stables. La courbe de l'évolution de la vitesse de dépôt sec en fonction du diamètre des particules suit la forme "en V" théorique [4] avec, en allant des plus petites tailles vers les plus grosses, les mécanismes de diffusion brownienne, d'interception et d'impaction.

Enfin, la mesure de dépôt sec effectué par la méthode de dépôt direct de particules de fluorescéine de 0,6 μm et celle obtenue par la méthode des corrélations turbulentes sont très proche (écart relatif de 12 %). Cette observation confirme la robustesse des méthodes.

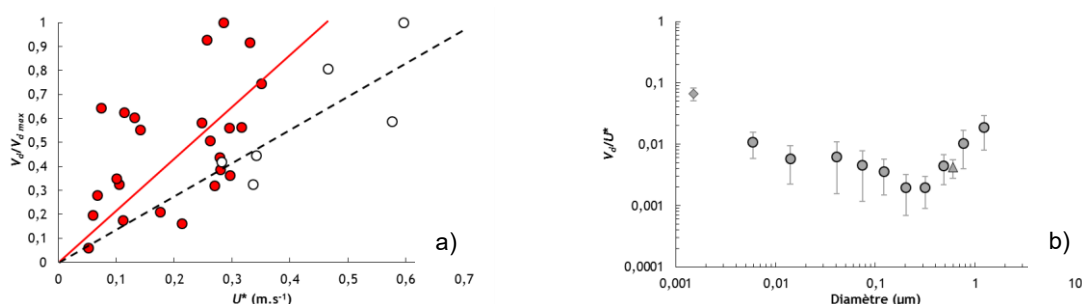


Figure 4 a) : Vitesses de dépôt sec normalisées par la vitesse de dépôt maximum en fonction de la vitesse de frottement du vent pour les particules de 1,5 nm ($V_{d_{max}} = 4,9 \times 10^{-2} \text{ m.s}^{-1}$) et de 202 nm ($V_{d_{max}} = 7 \times 10^{-4} \text{ m.s}^{-1}$). b) : Vitesses de dépôt sec en condition neutre et stable (sans turbulence thermique), valeurs moyennées pour les 4 campagnes DEPECHEMOD, en fonction du diamètre des particules ; losange : méthode du gradient de la fraction libre des descendants du ²²²Rn, cercle : méthode des corrélations turbulentes, triangle : méthode par dépôt direct de particules de fluorescéine.

CONCLUSION

Pour la première fois, les vitesses de dépôt allant du nanomètre au micromètre ont été obtenues (Figure 4 b)). En plus de la variation de la vitesses de dépôts en fonction de la tailles des aérosols, les campagnes expérimentales ont permis d'établir une évolution de la vitesse de dépôt sec en fonction de la vitesse de frottement du vent et du flux de chaleur sensible.

Les données de vitesses de dépôt issues de ce travail sont inédites dans la littérature et pourront être utilisées dans l'optique de réduire les incertitudes concernant l'impact des polluants atmosphériques sur les écosystèmes. En perspective, ces méthodes de calcul des flux pourraient être adaptées pour mesurer les vitesses de dépôt sur des substrats urbains, forestier ou aquatiques, souvent rencontrés autour des sites nucléaires françaises.

4. BIBLIOGRAPHIE

- Businger, J.A. (1986). Evaluation of the Accuracy with Which Dry Deposition Can Be Measured with Current Micrometeorological Techniques. *Journal of Climate and Applied Meteorology*, **25**, 1100-1124.
- Cheng, Y.S., & Yeh, H.C. (1980). Theory of a screen-type diffusion battery. *Journal of Aerosol Science*, **11**, 313-320.
- Damay, Maro, D., Coppalle, A., Lamaud, E., Connan, O., Hébert, D., Talbaut, M., & Irvine, M. (2009). Size-resolved eddy covariance measurements of fine particle vertical fluxes. *Journal of Aerosol Science*, **40**, 1050-1058.
- Fuentes, J.D., Wang, D., Neumann, H.H., Gillespie, T.J., Den Hartog, G., & Dann, T.F. (1996). Ambient biogenic hydrocarbons and isoprene emissions from a mixed deciduous forest. *Journal of Atmospheric Chemistry*, **25**, 67-95.
- Held, A., & Klemm, O. (2006). Direct measurement of turbulent particle exchange with a twin CPC eddy covariance system. *Atmospheric Environment*, **40**, Supplement 1, 92-102.
- Meredith, L.K., Commane, R., Munger, J.W., Dunn, A., Tang, J., Wofsy, S.C., & Prinn, R.G. (2014). Ecosystem fluxes of hydrogen: a comparison of flux-gradient methods. *Atmos. Meas. Tech.*, **7**, 2787-2805.
- Pellerin, G., Maro, D., Damay, P., Gehin, E., Connan, O., Laguionie, P., Hébert, D., Solier, L., Boulaud, D., Lamaud, E., & Charrier, X. (2017). Aerosol particle dry deposition above natural surfaces: quantification according to the particles diameter. *Journal of Aerosol Science*.
- Petroff, Mailliat, A., Amielh, M., & Anselmet, F. (2008). Aerosol dry deposition on vegetative canopies. Part I: Review of present knowledge. *Atmospheric Environment*, **42**, 3625-3653.
- Renoux, A., & Boulaud, D. (1998). *Les aérosols: physique et métrologie*. Tec/Doc-Lavoisier.
- Schery, S.D., Wasiolek, P.T., Nemetz, B.M., Yarger, F.D., & Whittlestone, S. (1998). Relaxed Eddy Accumulator for Flux Measurement of Nanometer-Size Particles. *Aerosol Science and Technology*, **28**, 159-172.