



HAL
open science

Etude du dépôt de radionucléides par les gouttelettes de brouillards et de nuages sur les végétaux à partir d'expérimentations in situ

Jackie Tav

► To cite this version:

Jackie Tav. Etude du dépôt de radionucléides par les gouttelettes de brouillards et de nuages sur les végétaux à partir d'expérimentations in situ. Sciences de la Terre. Institut National Polytechnique de Toulouse - INPT, 2017. Français. NNT : 2017INPT0082 . tel-04228133

HAL Id: tel-04228133

<https://theses.hal.science/tel-04228133>

Submitted on 4 Oct 2023

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

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



Université
de Toulouse

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Institut National Polytechnique de Toulouse (INP Toulouse)

Discipline ou spécialité :

Océan, atmosphère, climat

Présentée et soutenue par :

Mme JACKIE TAV

le jeudi 12 octobre 2017

Titre :

ETUDE DU DEPOT DE RADIONUCLEIDES PAR LES GOUTTELETTES
DE BROUILLARDS ET DE NUAGES SUR LES VEGETAUX A PARTIR
D'EXPERIMENTATIONS IN SITU

Ecole doctorale :

Sciences de l'Univers de l'Environnement et de l'Espace (SDUEE)

Unité de recherche :

Groupe d'étude de l'Atmosphère Météorologique (CNRM-GAME)

Directeur(s) de Thèse :

M. LAURENT POURCELOT

M. FREDERIC BURNET

Rapporteurs :

M. MARTIAL HAEFFELIN, ECOLE POLYTECHNIQUE PALAISEAU

M. MAURICE MILLET, UNIVERSITE STRASBOURG

M. YVES NOACK, CEREGE

Membre(s) du jury :

M. JEAN-LUC PROBST, INP TOULOUSE, Président

M. OLIVIER MASSON, IRSN, Membre

REMERCIEMENTS

Je tiens tout d'abord à remercier le Centre National de Recherches Météorologiques (CNRM) et l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) pour avoir financé mes travaux de recherche. Je souhaite également remercier le SESURE dirigé par Guillaume Magnificat puis Michel Baudry. Enfin, je remercie le SEREN dirigé par Christophe Serres.

J'adresse aussi mes sincères remerciements à Christelle Antonelli et Grégory Mathieu, chefs successifs du laboratoire LERCM (devenu le LEREN) qui m'ont accueilli. De plus, je remercie Laurent Pourcelot, directeur de ma thèse, pour la relecture de mon manuscrit ainsi que pour ses conseils et ses remarques pertinentes.

Je remercie également mes rapporteurs, Martial Haeffelin, Maurice Millet et Yves Noack pour avoir pris le temps de relire mon manuscrit et pour leurs judicieuses remarques.

J'adresse mes remerciements à Catherine Gally, Sébastien Conil, Maxime Simon et Laurent Langrène de l'ANDRA d'avoir permis et faciliter notre installation sur le site atmosphérique de l'OPE.

Je remercie tout particulièrement Olivier Masson pour son encadrement, ses conseils et plus **généralement sa présence dans toutes les étapes de ce travail de thèse. J'ai énormément appris d'un point de vue technique et scientifique, et pas seulement.** Je te remercie pour tous les bons moments passés ensemble durant cette thèse, que ce soit en manips, en congrès ou au labo ! Je ne pense pas avoir été la thésarde la plus « facile » à encadrer mais tu as toujours su me remotiver et me guider **dans mes moments de doute. J'ajouterais que tu étais l'une des premières personnes à me laisser conduire donc je pense que nous pouvons tous saluer ton courage.** Bref si un(e) futur(e) thésard(e) **motivé(e) lit ce petit paragraphe n'hésitez pas à faire** une thèse avec Olivier, vous serez entre de bonnes mains !

Avant de partir du côté du CNRM, je voudrais adresser mes remerciements à Pascal Paulat, LE **technicien atmosphérique number one de l'IRSN, qui a effectué toutes les installations de matériel durant la thèse.** Comme pour Olivier, je pense qu'il n'y aurait pas de thèse sans toi. Grâce à toi, j'ai **appris à mettre des colliers électriques partout pour « faire propre » et encore un tas d'autres choses très utiles.** Jusqu'à l'envoi de mon manuscrit, tu as toujours trouvé le temps pour me dépanner ou écouter mes déboires.

Un grand merci aussi à Frédéric Burnet qui a participé à presque toutes les missions réalisées durant **cette thèse. Je crois encore n'avoir jamais rencontré quelqu'un d'aussi dédié à ses manips. J'ai également énormément appris à tes côtés. J'en profite également pour remercier Thierry Bourriane pour sa gentillesse et son aide. D'ailleurs, je tiens à remercier tous les gens du MNCPA que j'ai pu croiser.**

Je remercie bien évidemment toute l'équipe du LEREN et du LRTA. Mais je tiens à adresser des remerciements particuliers à certains vu que je sais que la plupart des gens ne lisent que les **remerciements... Tout d'abord un énorme merci à Sabrina Giner, la meilleure secrétaire de tout l'univers ! Tu trouves une solution à tout et tu fais preuve d'une gentillesse infinie envers tout le monde.** Merci aussi à toutes les personnes qui ont participé aux campagnes de mesure à Bure : Olivier, Pascal, Gilles Salaün et Julien Faramond. Heureusement que vous veniez me rendre visite à Bure de temps en temps !

Maintenant un petit mot pour les « djeuns » des labos : Julien, Thomas Chaudet et Marion Ropert ainsi que **Loïc Ducros, Thomas Ferracci et Hugo Lepage ; merci d'avoir été là pour moi. Je vais quand même adresser des remerciements spéciaux à Julien et Loïc qui m'ont supportée pendant 3 ans et qui ont toujours été là quand j'en avais besoin.** En parlant de ça, je tiens à remercier mes compagnons de «

Mud Day » Franck Giner et David Mourier pour leur gentillesse et leurs conseils avisés, sans oublier leur humour. Un autre merci tout particulier à Laetitia Theureau. Tu fais preuve d'une compassion rare et d'une sensibilité touchante envers les autres. On me dit souvent que le monde est pourri mais s'il y a encore quelques autres Laetitia, je pense qu'on s'en sortira. Je pense avoir oublié des personnes et j'en suis désolée, il ne s'agit pas d'une liste exhaustive, je pense sincèrement que chaque personne du labo m'a apporté/appris quelque chose durant ces trois années.

Je remercie aussi mes amies Clarisse et Estelle qui m'ont bien aidée dans mes coups de mou et qui ont passé de longues heures à me remonter le moral quand ça n'allait pas. C'est d'ailleurs aussi pour cela que je remercie Anthony, pour ton soutien et tes conseils d'ex-thésard. Merci de m'avoir supportée durant toute cette thèse, j'espère que tu me supporteras encore longtemps.

Enfin pour finir, je n'ai pas de mots pour remercier mes parents qui me soutiennent depuis maintenant 28 ans et qui ont toujours tout fait pour mon frère et moi. Je tiens d'ailleurs à m'excuser auprès d'eux pour ne pas toujours avoir été là quand il le fallait.

TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS.....	2
TABLE DES MATIÈRES.....	5
TABLE DES ILLUSTRATIONS.....	8
CHAPITRE 1 INTRODUCTION.....	12
1.1 Avant-Propos	14
1.2 Contexte et justification de l'étude	14
1.3 Objectif et plan de l'étude	17
CHAPITRE 2 ETAT DES CONNAISSANCES	19
2.1 Le brouillard un nuage pas comme les autres	21
2.2 Différents types de brouillards.....	21
2.3 Interactions entre les aérosols et les hydrométéores.....	24
2.3.1 Mécanisme de lessivage (sous le nuage).....	24
2.3.2 Mécanisme de lavage (dans le nuage)	24
2.4 Caractérisation microphysique du brouillard	26
2.4.1 Contenu en eau liquide ou LWC.....	26
2.4.2 Distribution granulométrique des gouttelettes	27
2.5 Caractérisation chimique de l'eau de brouillard	28
2.6 Méthodes de collecte de l'eau de nuage et de brouillard	30
2.6.1 Collecteurs de nuages/brouillards.....	30
2.6.2 Impacteur à jet droit du Desert Research Institute (DRI)	30
2.6.3 Collecteurs à fils Teflon.....	31
2.7 Dépôt des gouttelettes nuage et de brouillard	35
2.7.1 Vitesse de dépôt des gouttelettes.....	35
2.7.2 Coefficient de lavage	35
2.8 Dépôt sur les végétaux	37
2.8.1 Caractérisation des végétaux : définition de l'index foliaire	37
2.8.2 Méthodes de détermination du LAI.....	37
2.9 Mesure du dépôt par les nuages/brouillards	38
2.9.1 Méthode de mesure par ruissellement.....	38
2.9.2 Méthode par « eddy covariance »	39
2.9.3 Méthode de mesure de masse.....	40
2.10 Bilan de l'étude bibliographique	41
CHAPITRE 3 SITES D'OBSERVATION ET MOYENS DE MESURE	43
3.1 Choix des sites	45
3.1.1 Site d'observation du Puy de Dôme (OPGC/LaMP)	45
3.1.2 Site d'observation du Sirta	45
3.1.3 Station atmosphérique d'Houdelaincourt (OPE-ANDRA)	46
3.2 Instrumentation du site d'Houdelaincourt	48
3.2.1 Instruments de mesures optiques.....	48
3.2.2 Balances de précision.....	50
3.2.3 Collecteurs de brouillard.....	51
3.3 Validation des données du FM-120	52
3.4 Mise en place du protocole expérimental	57
3.4.1 Méthode de pesée test	58

3.4.2	Méthode de pesée	59
CHAPITRE 4	ANALYSE DES DONNEES DES CAMPAGNES BURE 2015 ET 2016 .	63
4.1	Dépôt par les gouttelettes de brouillard de la campagne 2015.....	65
4.2	Dépôt par les gouttelettes de brouillard de la campagne 2016.....	91
4.2.1	Comparaison des épisodes de brouillard à partir des paramètres microphysiques.	91
4.2.2	Etude du dépôt des gouttelettes de brouillards des épisodes de la campagne 2016.....	97
CHAPITRE 5	EFFET DE LA TURBULENCE SUR LE DEPOT ET VITESSE DE DEPOT	118
5.1	Effets de la turbulence sur la masse d'eau déposée par les gouttelettes de brouillard	120
5.1.1	Episodes de brouillard à l'origine d'un dépôt important	121
5.1.2	Episodes de brouillard présentant un dépôt faible	122
5.2	Vitesses de dépôt	124
5.2.1	Calcul de la vitesse de dépôt des gouttelettes	124
5.2.2	Vitesses de dépôts pour la campagne 2015 et 2016.....	126
5.2.3	Détermination du LAI pour les surfaces végétales étudiées	129
5.2.4	Comparaison des vitesses de dépôt avec des données existantes	134
CHAPITRE 6	DEPOT OCCULTE DE RADIONUCLEIDES	140
6.1	Concentration en radionucléide de l'eau de brouillard	142
6.1.1	Les traceurs des dépôts de brouillard	142
6.1.2	Activités mesurées durant les différentes campagnes de mesures menées à Houdelaincourt.....	142
6.2	Contribution du brouillard au dépôt	145
6.3	Le dépôt par les gouttelettes de brouillard en cas de rejet accidentel de Cesium-137	151
CHAPITRE 7	CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES	154
7.1	Conclusion générale	156
7.2	Perspectives	157
	RÉFÉRENCES	159
	ABSTRACT	166
	RESUME	166

TABLE DES ILLUSTRATIONS

Figure 1.1 - Carte de France du nombre de jours de brouillard (meteo-express.com) et implantations des CNPE.	15
Figure 2.1 - Algorithme permettant la classification des différents types de brouillard, tiré de l'étude de Tardif et Rasmussen (2007). RAD = brouillard radiatif, ADV = brouillard advectif, PCP = brouillard précipitant, EVP = brouillard d'évaporation et CBL = affaissement de stratus	22
Figure 2.2 - Représentation schématique des processus affectant la composition de l'eau de nuage et des pluies (Wallace and Hobbs, 2006).	24
Figure 2.3- Sursaturation (en %) à l'équilibre au-dessus d'une gouttelette d'eau pure (trait pointillé) et au-dessus de gouttelettes de solution contenant des masses d'eau croissantes de matière soluble (traits plein) en fonction du rayon de la gouttelette hydratée. <i>r_s</i> étant le rayon de l'aérosol sec (ici du sulfate d'ammonium) (Boucher, 2011).	25
Figure 2.4 - Moyens de mesure de l'aérosol et des particules nuageuses (CNRM-GAME).	27
Figure 2.5 - Schéma en coupe de l'impacteur à jet droit du Desert Research Institute. (DeFelice et Saxena, 1990).	31
Figure 2.6 - Schémas du collecteur à fils fixes de l'Atmospheric Science Research Center (ASRC) et du collecteur à fils tournants du California Institute of Technology (Caltech).	32
Figure 2.7 - Courbes d'efficacité pour les collecteurs CASCC, CHRCC et CASCC2 (Demoz et al., 1996).	34
Figure 2.8 : système de mesure du dépôt par le brouillard sur des épicéas de petite taille	40
Figure 2.9 : Dépôt de rosée et d'eau de brouillard sur l'épicéa durant 3 événements de brouillards radiatifs (Trautner and Eiden, 1988)	41
Figure 3.1 - Site expérimental de l'OPGC au Puy de Dôme (a), du Sirta à Palaiseau (b) et de l'OPE à Houdelaincourt (c).	47
Figure 3.2 - Visibilimètre installé sur site d'Houdelaincourt.	48
Figure 3.3 - PVM et FM-120 (pompe située dans la caisse grise) installés sur le site d'Houdelaincourt.	49
Figure 3.4 - Vue schématique des différentes étapes conduisant à la mesure des gouttelettes de nuages avec en rouge la lumière diffusée par les gouttelettes (Spiegel et al., 2012)..	50
Figure 3.5 - Balance de précision et afficheur	51
Figure 3.6 - Collecteurs de brouillards : copie du CASCC (a) et collecteur tube (b).	51
Figure 3.7 - Collecteur de brouillard grand débit et une de ses surfaces d'impaction.	52
Figure 3.8 - Fog Monitor 100 et sa pompe (CNRM-GMEI/MNCPA).	53
Figure 3.9 - Intercomparaison du PSA mesuré par le FM-100, le FM-120 et le PWD pour cinq épisodes de brouillard de la campagne 2016	56
Figure 3.10 - Dispositif comprenant les balances, les plantes et le grillage(a) et le dispositif lors des pesées avec les protections plastiques.	58
Figure 3.11 - Les différentes surfaces de plantes de la campagne 2015-2016 : (a) les cyprès, (b) les graminées, (c) les choux, (d) le sol nu.	60
Figure 3.12 - Tente dans laquelle sont placées la balance de précision et la chambre de protection représentée ici avec le panneau avant enlevé permettant ainsi de déposer le bac à peser sur le plateau de la balance situé sous la plaque de polystyrène en partie basse.	60
Figure 3.13 - Module de chantier dans lequel sont réalisées les pesées durant campagne 2016.	61

Figure 4.1 - Masse d'eau moyenne déposée sur le sol nu ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction du LWC moyen (g.m^{-3}) de chaque épisode de brouillard de la campagne 2016.	93
Figure 4.2 - Distribution des LWC durant les épisodes de brouillard de la campagne 2016.	94
Figure 4.3 - Masse d'eau moyenne déposée sur sol nu ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction du MVD moyen (μm) pour chaque épisode de brouillard de la campagne 2016.	95
Figure 4.4 - Distribution des MVD durant les épisodes de brouillard de la campagne 2016.	95
Figure 4.5 - Masse d'eau moyenne déposée sur le sol nu ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction de la concentration moyenne en gouttelettes (cm^{-3}) pour chaque épisode de brouillard de la campagne 2016.	96
Figure 4.6 - Evolution temporelle de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les végétaux et le sol nu/terre durant l'épisode de brouillard du 04/10/16.	97
Figure 4.7 - Evolution temporelle du contenu en eau liquide dans l'air ou LWC (g.m^{-3}) (a) et de la concentration en particules (cm^{-3}) (b) du 04/10/16.	98
Figure 4.8 - Masse d'eau déposée sur les cyprès ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction du LWC (g.m^{-3}) de l'épisode du 04/10/16.	99
Figure 4.9 - Masse d'eau déposée sur les cyprès ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction de la concentration des gouttelettes de 20 à 50 μm (cm^{-3}) pour l'épisode du 04/10/16.	100
Figure 4.10 - Evolution de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les végétaux et le sol nu/terre durant l'épisode de brouillard du 27/10/16 (a) et (b).	101
Figure 4.11 - Evolution temporelle du contenu en eau liquide dans l'air ou LWC (g.m^{-3}) (a) et de la concentration en particules (cm^{-3}) (b) du 27/10/16.	102
Figure 4.12 - Masse d'eau déposée sur les cyprès ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction du LWC (g.m^{-3}) pour l'épisode du 27/10/16.	103
Figure 4.13 - Masse d'eau déposée sur les cyprès ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction de la concentration des gouttelettes de 20 à 50 μm (cm^{-3}) pour l'épisode du 27/10/16.	103
Figure 4.14 - Evolution de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les végétaux et le sol nu/terre durant l'épisode de brouillard du 01-02/11/16.	104
Figure 4.15 - Evolution temporelle du contenu en eau liquide dans l'air ou LWC (g.m^{-3}) (a) et de la concentration en particules (cm^{-3}) (b) du 01-02/11/16.	105
Figure 4.16 - Masse d'eau déposée sur les cyprès ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction du LWC (g.m^{-3}) de l'épisode du 01-02/11/16.	106
Figure 4.17 - Masse d'eau déposée sur les cyprès ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction de la concentration des gouttelettes de 20 à 50 μm (cm^{-3}) de l'épisode du 01-02/11/16.	106
Figure 4.18 - Evolution de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les végétaux (6 cyprès, choux, herbes) et le sol nu (a) durant l'épisode de brouillard du 28/10/16 ; évolution de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les cyprès (6, 4, 3 et 1) durant l'épisode de brouillard du 28/10/16 (b).	107
Figure 4.19 - Evolution temporelle du contenu en eau liquide dans l'air ou LWC (g.m^{-3}) (a) et de la concentration en particules (cm^{-3}) (b) du 28/10/16.	108
Figure 4.20 - Masse d'eau déposée sur les cyprès ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction du LWC (g.m^{-3}) de l'épisode du 28/10/16.	109
Figure 4.21 - Masse d'eau déposée sur les cyprès ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction de la concentration des gouttelettes de 20 à 50 μm (cm^{-3}) pour l'épisode du 28/10/16.	109
Figure 4.22 - Evolution de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les végétaux (6 cyprès, choux, herbes) et le sol nu/terre (a) durant l'épisode de brouillard du 17-18/10/16 ; évolution de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les cyprès (6, 4, 3 et 1) durant l'épisode de brouillard du 17-18/10/16 (b).	110

Figure 4.23 - Evolution temporelle du contenu en eau liquide dans l'air ou LWC (g.m^{-3}) (a) et de la concentration en particules (cm^{-3}) (b) du 17 au 18/10/16.	111
Figure 4.24 - Contenu en eau liquide dans l'air ou LWC (g.m^{-3}) en fonction de de la concentration totale de gouttelettes.	112
Figure 4.25 - Masse d'eau déposée sur les cyprès ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction du LWC (g.m^{-3}) de l'épisode du 17-18/10/16.	112
Figure 4.26 - Evolution de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les végétaux et le sol nu/terre durant l'épisode de brouillard du 02/12/16.	113
Figure 4.27 - Evolution temporelle du contenu en eau liquide dans l'air ou LWC (g.m^{-3}) (a) et de la concentration en particules (cm^{-3}) (b) du 17-18/10/16.	114
Figure 4.28 - Masse d'eau déposée sur les cyprès ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction du LWC (g.m^{-3}) pour l'épisode du 02/12/16.	115
Figure 4.29 - Masse d'eau déposée sur les cyprès ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction de la concentration des gouttelettes de 20 à 50 μm (cm^{-3}) de l'épisode du 02/12/16.	115
Figure 5.1 - Évolution temporelle de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les cyprès et de la TKE ($\text{m}^2.\text{s}^{-2}$) durant l'épisode de brouillard du 04/10/16.	121
Figure 5.2 - Evolution temporelle de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les cyprès et de la TKE ($\text{m}^2.\text{s}^{-2}$) durant l'épisode de brouillard du 27/10/16.	121
Figure 5.3 - Evolution de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les cyprès et de la TKE ($\text{m}^2.\text{s}^{-2}$) durant l'épisode de brouillard du 01-02/11/16.	122
Figure 5.4 - Evolution temporelle de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les cyprès et de la TKE ($\text{m}^2.\text{s}^{-2}$) durant l'épisode de brouillard du 17-18/10/16.	123
Figure 5.5 - Evolution temporelle de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les cyprès et de la TKE ($\text{m}^2.\text{s}^{-2}$) durant l'épisode de brouillard du 28/10/16.	123
Figure 5.6 - Evolution temporelle de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les cyprès et de la TKE ($\text{m}^2.\text{s}^{-2}$) durant l'épisode de brouillard du 02/12/16.	124
Figure 5.7 - Facteur de Cunningham en fonction du diamètre de la particule (Mailliat, 2012).	126
Figure 5.8 - Vitesse moyenne de dépôt des épisodes de brouillard étudiés durant les campagnes 2015 et 2016 et vitesse théorique en fonction de la taille des particules (20, 30 et 50 μm).	128
Figure 5.9 - Distribution des valeurs maximales de LAI ($\text{m}^2.\text{m}^{-2}$) pour des cultures de choux, (Colle and Madoz-Escande, 2007).	130
Figure 5.10 - Surface de dépôt des choux.	130
Figure 5.11 - Distribution des valeurs maximales de LAI ($\text{m}^2.\text{m}^{-2}$) correspondant à des surfaces en herbe (Colle and Madoz-Escande, 2007).	131
Figure 5.12 - Surface de dépôt « herbe ».	131
Figure 5.13 - Classement des branches de cyprès en fonction de leur taille pour comptage.	132
Figure 5.14 - Surface composée de neuf cyprès avant (à gauche) et après exposition (à droite) à la peinture en bombe.	133
Figure 5.15 - Cartographie des cyprès exposés au dépôt de peinture rouge - rapport de la surface de dépôt sur la surface foliaire totale de chacun des douze cyprès.	133
Figure 6.1 : Activité en ^{137}Cs dans l'eau de brouillard durant l'automne-hiver 2014-2015.	143
Figure 6.2 : Activité en ^{137}Cs dans l'eau de brouillard durant l'automne 2015, (en rouge valeur inférieure au seuil de détection)	144
Figure 6.3 : Activité en ^{137}Cs dans l'eau de brouillard durant l'automne 2016, (en rouge valeur inférieure au seuil de détection).	144

CHAPITRE 1

INTRODUCTION

CHAPITRE 1	INTRODUCTION	12
1.1	Avant-Propos	14
1.2	Contexte et justification de l'étude	14
1.3	Objectif et plan de l'étude	17

Cette page est volontairement laissée blanche pour une impression recto-verso

1.1 AVANT-PROPOS

Au cours d'un accident nucléaire, de grandes quantités de radionucléides sont rejetées sous formes **de gaz et d'aérosol dans l'atmosphère. Ce fut le cas notamment** pendant l'accident de Fukushima en mars 2011 où des produits de fission tels que ^{133}Xe , ^{131}I , ^{132}Te , $^{129\text{m}}\text{Te}$, ^{134}Cs et ^{137}Cs provenant des réacteurs de la centrale nucléaire de Fukushima Dai-ichi se sont dispersés dans la troposphère. Du fait de la mobilité **des masses d'air contenant les aérosols, il a été possible d'observer des niveaux élevés de radioactivité dans l'atmosphère à distance de la zone accidentée. Les masses d'air contaminées provenant de Fukushima se sont en effet déplacées du nord-est du Japon et de l'Océan Pacifique, vers l'Océan Arctique pour ensuite traverser le continent nord-américain et l'Océan Atlantique, puis l'Islande avant d'atteindre le continent européen (IRSN, 2011). Afin d'évaluer au mieux les niveaux de contamination en radionucléide, il est nécessaire de quantifier les dépôts au sol comme termes d'entrée dans les modèles de transfert de la radioactivité dans l'environnement terrestre. Les mécanismes de dépôt de ces radionucléides atmosphériques particuliers sont de deux types : le dépôt par temps sec qui dépend de la taille des aérosols et du type de surfaces sur lesquelles il se déposent et le dépôt humide qui résulte de deux mécanismes, le lavage des aérosols dans le nuage et le lessivage des aérosols sous la base des nuages. Dans le premier cas, les particules constituent des supports à la formation de gouttelettes d'eau ou peuvent être entraînées (cas de l'aérosol interstitiel) par des aérosols déjà activés en gouttelettes. Dans le second cas, les particules sont capturées par les gouttes de pluie lors de leur chute. A noter que les deux mécanismes peuvent aussi se combiner lorsque de la pluie traverse un nuage bas ou un brouillard. Le terme anglais désignant cette combinaison est « seeder-feeder » (Choularton et al., 1988). Le mécanisme de lavage est le processus à l'origine du dépôt de polluants atmosphériques par temps de nuage et de brouillard. Il peut représenter une part importante du dépôt humide selon la zone géographique considérée, jusqu'à 50% dans les zones de forêts montagneuses (Cape, 1993; Saxena et al., 1989). Dans le cas de radionucléides naturels tels le ^7Be et le ^{210}Pb en milieu urbain, le dépôt par lavage est prépondérant ; le dépôt sec est le second contributeur de dépôt au sol et le mécanisme de lessivage représente la contribution la plus faible (Laguionie et al., 2014). Après l'accident de Tchernobyl, une grande hétérogénéité des dépôts au sol a été constatée et a pu s'expliquer en grande partie par l'hétérogénéité des précipitations à différentes échelles spatiales (Renaud & Louvat, 2003). Cependant, seul le cas des dépôts humides sous forme de pluie a été étudié en mettant en évidence une corrélation entre hauteur de précipitation et niveau de contamination. Nous souhaitons donc nous intéresser plus particulièrement au potentiel de dépôt humide lié à la présence de brouillard et de nuage sur des végétaux présentant des surfaces différentes en termes d'impaction ou de captation des gouttelettes en suspension.**

1.2 CONTEXTE ET JUSTIFICATION DE L'ETUDE

Suite à l'accident de Fukushima, Hososhima and Kaneyasu (2015) ont mesuré le débit de dose gamma ambiant dans la région montagneuse (Nikko) au nord de la plaine du Kanto. Les résultats ont mis en évidence des niveaux maximum entre 960 et 1480 m au-dessus du niveau de la mer. Des données météorologiques indiquent que ces altitudes correspondaient au niveau de la couche nuageuse. Cette **région n'a connu des évènements pluvieux qu'à partir du 15 mars 2011, 23h00 (heure locale). Dans l'après-midi du 15 mars, un visibilimètre a enregistré une faible visibilité ce qui laisse à penser que la contamination radioactive présente à cette altitude proviendrait du dépôt de radionucléides associés aux aérosols servant de noyaux de condensation aux gouttelettes d'eau des nuages. Ces dépôts par le brouillard ou les nuages sont qualifiés "d'occultes" car les instruments servant à quantifier les cumuls**

d'eau comme les pluviomètres ou même les radars « pluie » ne sont pas assez sensibles pour les identifier et donc les quantifier.

Actuellement, aucune étude de terrain n'a considéré explicitement les processus de dépôts de radionucléides par les nuages et les brouillards. Après **l'accident de Tchernobyl, aucune interaction directe entre le panache radioactif et la surface du sol n'a été répertoriée** pour ce type de situation. Dans le cas de Fukushima, le Japon est couvert aux deux-tiers par des forêts principalement localisées dans **des régions montagneuses où l'occurrence de brouillards et de nuages sur les reliefs est importante**, notamment au printemps (Dupuy, 2003). **L'évaluation des dépôts de radionucléides engendrés par les gouttelettes de brouillard sur le couvert végétal présente donc un intérêt particulier dans le cas du Japon.** Récemment, (Katata, 2014) a incorporé un schéma simple de dépôt par le brouillard dans un modèle de transport/dispersion en lien avec les rejets accidentels de Fukushima. Il a ainsi pu reproduire, **a minima et de manière qualitative, le dépôt de césium 137 dans les régions montagneuses de l'Est du Japon.** Ces résultats ont mis en évidence le fait que la prise en compte de ce processus de dépôt est essentielle pour améliorer la qualification des retombées radioactives sur des terrains complexes en présence de nuages ou de brouillards. **Dans d'autres régions du monde notamment en Allemagne, Thalmann, Burkard, Wrzesinsky, Eugster, and Klemm (2002), en étudiant les flux d'ions en milieu forestier et agricole, ont observé que dans le cas de canopées forestières fréquemment exposées au brouillard, les apports de nutriments par dépôts humides pouvaient être doublés par rapport à une zone non-forestière.**

Pour les besoins de refroidissement des réacteurs nucléaires, les Centres Nucléaires de Production d'Électricité (CNPE) présents sur le territoire national (Fig. 1.1) sont situés à proximité de cours d'eau ou sur le littoral et donc dans des zones sujettes à la formation de brouillards, principalement durant **l'automne et l'hiver.** **Dans d'autres portions du territoire,** les massifs montagneux sont régulièrement impactés par des formations nuageuses. Le sommet du Puy de Dôme, par exemple, est dans les nuages 45% du temps en moyenne. Dans plusieurs régions françaises, le nombre de jours avec présence de brouillard dépasse 50% entre septembre et décembre (Fig.1.1). Ces proportions relativement élevées **justifient l'intérêt d'une étude des dépôts qui pourraient se produire par temps de brouillard ou de nuage au contact d'un relief,** en lien avec un rejet accidentel provenant d'un CNPE.

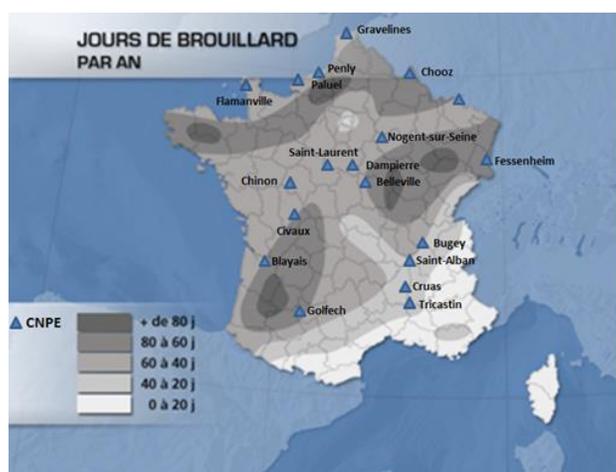


Figure 1.1 - Carte de France du nombre de jours de brouillard (meteo-express.com) et implantations des CNPE.

Dès les années 80, le cas du dépôt humide lié à la présence de brouillard et de nuage a fait l'objet d'études en lien avec la problématique des pluies acides et le dépérissement des forêts de conifères (Barker & Ashenden, 1992; Cape, 1993; Pandis, Seinfeld, & Pilinis, 1990; Schemenauer, 1986). Durant cette période, de nombreux travaux sur la composition chimique des nuages et des brouillards sont parus (Aleksic et al., 2009; Barrie & Schemenauer, 1986; Collett Jr et al., 2002; Herckes, Valsaraj, & Collett Jr; Igawa, Tsutsumi, Mori, & Okochi, 1998; Lange, Matschullat, Zimmermann, Sterzik, & Wienhaus, 2003; Li et al.; Hikari Shimadera, Kondo, Shrestha, Kaga, & Inoue, 2011). **A l'inverse, la présence de radionucléides à l'état de trace dans les eaux de nuages ont fait l'objet de peu d'études jusqu'à maintenant** (Bourcier et al., 2014; Masson et al., 2015).

Parallèlement au développement des études sur la composition chimique des brouillards, différentes méthodes de collecte et de mesure du dépôt des gouttelettes de brouillard sur les surfaces des végétaux ont été développées.

Le dépôt foliaire est un sujet particulièrement important dans le cas des dépôts qu'ils soient secs ou humides du fait des effets directs sur les végétaux mais aussi parce qu'il s'agit de surfaces complexes (structure 3D, rugosités de surface) qui peut modifier des paramètres physiques tels que la vitesse de dépôt. De plus, nombre de ces végétaux **peuvent être consommés directement par l'homme ou intégrer** la chaîne alimentaire ou encore être utilisés comme combustible ou matériaux de construction et, par **voie de conséquence, ils contribuent à l'exposition des populations, à la suite d'un rejet accidentel s'accompagnant d'une contamination de l'atmosphère** et des écosystèmes.

Dans le cadre d'une situation accidentelle comme celle évoquée précédemment, divers radionucléides sont rejetés dans l'atmosphère : l'iode 131 (^{131}I), l'iode 132 (^{132}I), le césium 137 (^{137}Cs), le césium 134 (^{134}Cs), le tellure 132 (^{132}Te), des isotopes du strontium, du plutonium, en constituent les principaux et sont les plus surveillés. Dans le cadre de cette étude, nous cherchons un radionucléide artificiel de longue période radioactive, donc pouvant être mesuré en routine dans le cadre de nos expérimentations des **dépôts. Bien qu'ayant été rejeté pendant l'accident de Fukushima, l'iode 131 n'est pas un radionucléide** fréquemment étudié dans les milieux terrestres et marins du fait de sa courte demi-vie ($t_{1/2}=8,02$ jours) ; de même pour le tellure 132 ($t_{1/2}=3,2$ jours) et l'iode 132 ($t_{1/2}=140$ minutes). Quant au césium 134, il possède un temps de demi-vie de 2 ans, et les émissions provenant de Fukushima ne peuvent plus être mesurées actuellement, en Europe. Bien que possédant des périodes radioactives « longues », les isotopes **du plutonium et du strontium sont eux en concentrations trop faibles pour être mesurés dans l'atmosphère** ou dans les hydrométéores, sur des durées de prélèvement du même ordre de grandeur que celles des épisodes de dépôt.

Le radionucléide le plus pertinent à mesurer dans le cadre de nos études reste le césium 137 car il a été **rejeté en quantité importante à l'époque des tirs atmosphériques d'armes nucléaires** (essentiellement dans les années 50-60, et jusque **dans les années 80**) et de **l'accident de Tchernobyl** (1986). Il possède un temps de demi-vie relativement long ($t_{1/2}=30,17$ ans), ce qui explique sa présence **actuelle à l'état de traces dans l'environnement et notamment dans l'air** (de l'ordre de quelques dixièmes de $\mu\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ d'air en France). La remise en suspension des particules du sol, les feux de biomasse et les épisodes de poussières sahariennes sont les principales sources de ^{137}Cs **dans l'air**. Ce produit de fission **est considéré comme le radionucléide ayant le plus d'impact radiologique à long terme du fait de sa** demi-vie, de sa biodisponibilité et de sa **capacité à s'accumuler dans les tissus de certains organismes**. La source dominante de césium **137 dans l'atmosphère, la biosphère et les océans sont les retombées d'origine atmosphérique des tests d'armes nucléaires dans les années 60** (Povinec, 2013). La remise en suspension de particules provenant d'un sol contaminé représente un des processus expliquant la

présence de césium **137 dans l'air** (Wagenpfeil, Paretzke, Peres, & Tschiersch, 1999). Cela lui confère un rôle de traceur des échanges sol-air et aérosol-**goutte puisqu'il est également soluble dans l'eau.**

1.3 OBJECTIF ET PLAN DE L'ETUDE

L'objectif de cette thèse est de répondre à la question suivante : faut-il tenir compte de la présence des brouillards comme mécanisme additionnel de dépôt de radionucléides en cas d'accident nucléaire ? Afin de répondre à cette question, **la quantité d'eau déposée par les gouttelettes de brouillard ainsi que la concentration en radionucléides de l'eau de brouillard déposée doivent être déterminées.**

Pour cela, une méthode de pesée permettant de mesurer la masse d'eau déposée par les gouttelettes de brouillard sur différents types de végétaux en conditions *in situ* a été mise en place, et en parallèle l'analyse de la concentration en radionucléides dans l'eau de brouillard a été réalisée. L'analyse de l'eau de brouillard a été confiée au Laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans l'Environnement (LMRE) de l'IRSN, spécialisé dans la quantification des radionucléides à l'état de traces dans les matrices environnementales.

Le chapitre 2 dresse un état de l'art portant sur la collecte et l'analyse de l'eau de brouillard ainsi que sur le dépôt par les nuages et les brouillards du point de vue théorique afin de comprendre les processus à l'origine du dépôt ainsi que du point de vue expérimental, avec une description des différentes méthodes de mesure de dépôt « occulte ». Dans le chapitre 3, la description des sites d'expérimentation, des instruments de mesure et de collecte est réalisée. De plus le cheminement conduisant à la méthode de pesée de l'eau de brouillard déposée sur différentes surfaces est également détaillé. Le dépôt des gouttelettes de brouillard dépend de deux processus, le dépôt par les forces gravitationnelles et le dépôt par la turbulence (Dollard & Unsworth, 1983). Grâce à la méthode de pesée, des résultats de mesure de masse d'eau déposée par les brouillards ainsi que l'influence des paramètres microphysiques du brouillard (contenu en eau liquide, taille des gouttelettes et concentration des gouttelettes) sur la quantité d'eau déposée, sont présentés dans le chapitre 4. Les forces gravitationnelles dépendent en effet du diamètre des gouttelettes. Le chapitre 5 est quant à lui, dédié à l'influence de la turbulence sur le dépôt et au calcul des vitesses de dépôts. Une comparaison des vitesses de dépôt obtenues par méthode de pesée avec des valeurs de la littérature est proposée afin d'évaluer la validité de la méthode. La quantité d'eau déposée par les gouttelettes de brouillard étant connue grâce aux pesées, le chapitre 6 est consacré aux résultats de concentration en radionucléides dans l'eau de brouillard qui seront comparés aux concentrations dans l'eau de pluie dans le but d'estimer la contribution du brouillard au dépôt total.

A la fin de ce document, les conclusions générales de cette étude sont exposées ainsi que les perspectives potentielles notamment au niveau des programmes expérimentaux supplémentaires qu'il serait souhaitable de conduire, afin d'élargir le champ d'application de nos conclusions.

CHAPITRE 2

ETAT DES CONNAISSANCES

CHAPITRE 2	ETAT DES CONNAISSANCES	19
2.1	Le brouillard un nuage pas comme les autres	21
2.2	Différents types de brouillards	21
2.3	Interactions entre les aérosols et les hydrométéores	24
2.3.1	Mécanisme de lessivage (sous le nuage)	24
2.3.2	Mécanisme de lavage (dans le nuage)	24
2.4	Caractérisation microphysique du brouillard	26
2.4.1	Contenu en eau liquide ou LWC	26
2.4.2	Distribution granulométrique des gouttelettes	27
2.5	Caractérisation chimique de l'eau de brouillard	28
2.6	Méthodes de collecte de l'eau de nuage et de brouillard	30
2.6.1	Collecteurs de nuages/brouillards	30
2.6.2	Impacteur à jet droit du Desert Research Institute (DRI)	30
2.6.3	Collecteurs à fils Teflon	31
2.6.3.1	Collecteur à fils fixes de l'Atmospheric Science Research Center (ASRC)	31
2.6.3.2	Collecteur du Caltech	32
2.7	Dépôt des gouttelettes nuage et de brouillard	35
2.7.1	Vitesse de dépôt des gouttelettes	35
2.7.2	Coefficient de lavage	35
2.8	Dépôt sur les végétaux	37
2.8.1	Caractérisation des végétaux : définition de l'index foliaire	37
2.8.2	Méthodes de détermination du LAI	37
2.8.2.1	Méthodes directes	37
2.8.2.2	Méthodes indirectes	38
2.9	Mesure du dépôt par les nuages/brouillards	38
2.9.1	Méthode de mesure par ruissellement	38
2.9.2	Méthode par « eddy covariance »	39
2.9.3	Méthode de mesure de masse	40
2.10	Bilan de l'étude bibliographique	41

Cette page est volontairement laissée blanche pour une impression recto-verso

2.1 LE BROUILLARD UN NUAGE PAS COMME LES AUTRES

Par définition un nuage est constitué de gouttelettes d'eau ou de cristaux de glace en suspension dans l'air. Lorsque l'air humide se refroidit, la pression de la vapeur d'eau dans l'air peut dépasser sa pression de vapeur saturante, qui dépend de la température et de la pression. La vapeur d'eau va alors se condenser sur des particules hygroscopiques qui vont croître et former des gouttelettes de nuage ou de brouillard. Ces particules d'aérosols constituent des Noyaux de Condensation Nuageux (ou CCN pour Cloud Condensation Nuclei). Selon les caractéristiques physiques et chimiques des gouttelettes de nuages, les nuages peuvent représenter une source ou un puit pour les composants atmosphériques traces. Les réactions chimiques au sein des nuages sont le fruit de processus complexes contrôlés par la présence d'oxydants comme l'ozone, les radicaux nitrates, le peroxyde d'hydrogène mais aussi le pourcentage de gouttelettes et des autres phases (particules, gaz, glace). Une des difficultés concernant l'étude des nuages est la grande variabilité de la composition des nuages. Cela rend difficile la comparaison des formations nuageuses entre elles.

Un brouillard est défini comme une suspension de gouttelettes d'eau dans l'air, qui réduit la visibilité à une valeur inférieure à 1000 mètres. Entre 1000 et 5000 mètres de visibilité, on parlera de brume. Le cas d'un éventuel dépôt par la brume ne sera pas étudié dans le cadre de cette thèse. Le brouillard peut également être défini comme un nuage en contact avec la surface du sol. Il existe différents mécanismes de refroidissement à l'origine de la formation du brouillard : la convection durant laquelle l'air réchauffé par le sol monte puis se refroidit par détente ; le soulèvement orographique, lorsque la présence d'un relief oblige l'air en mouvement à s'élever et donc à se refroidir ; le soulèvement frontal : lors d'une perturbation, l'air chaud est soulevé par la masse d'air froid la précédant ce qui conduit à rejeter l'air chaud en altitude et le refroidissement par la base lorsque qu'un air doux et humide venant de la mer, par exemple, arrive sur une surface froide.

Le brouillard est un type de nuage qui se forme dans les basses couches de l'atmosphère, où la concentration en particules d'aérosols susceptibles de constituer des CCN est la plus élevée. Miles, Verlinde, and Clothiaux (2000) ont estimé des concentrations en gouttelettes de l'ordre de la centaine de gouttelettes par cm^3 ; il s'agit de valeurs assez élevées pour un nuage. Liu, Yang, Niu, and Li (2011) ont montré que le cycle d'un brouillard était composé de quatre phases : une phase de formation, puis une phase de développement, suivie d'une phase de maturité et enfin, une phase de dissipation. Le contenu en eau liquide de l'air (Liquid Water Content ou LWC) et la concentration du nombre de gouttelettes varient largement d'une phase à l'autre. Le maximum en termes de LWC et de densité des gouttelettes est atteint durant la phase de maturation.

2.2 DIFFERENTS TYPES DE BROUILLARDS

Afin d'identifier le type de brouillard observé, il est nécessaire dans un premier temps de le caractériser. Le classement des brouillards se fait en fonction des conditions et des processus mis en jeu lors de leur formation. Nous nous basons sur une classification établie d'après une étude de 20 ans de données d'épisodes de brouillard dans la région de New-York (Tardif & Rasmussen, 2007). Cinq types de brouillard ont été mis en évidence : précipitants, radiatifs, advectifs, d'affaissement de stratus et d'évaporation. La distinction des différents types de brouillard est basée sur un algorithme développé par les auteurs de cette étude (Fig. 2.1).

Dans le cadre de cette thèse, les études menées sur le brouillard portent principalement sur des brouillards radiatifs, compte tenu des sites choisis pour les expérimentations. C'est pourquoi, les conditions de formation d'un tel brouillard sont plus amplement décrites.

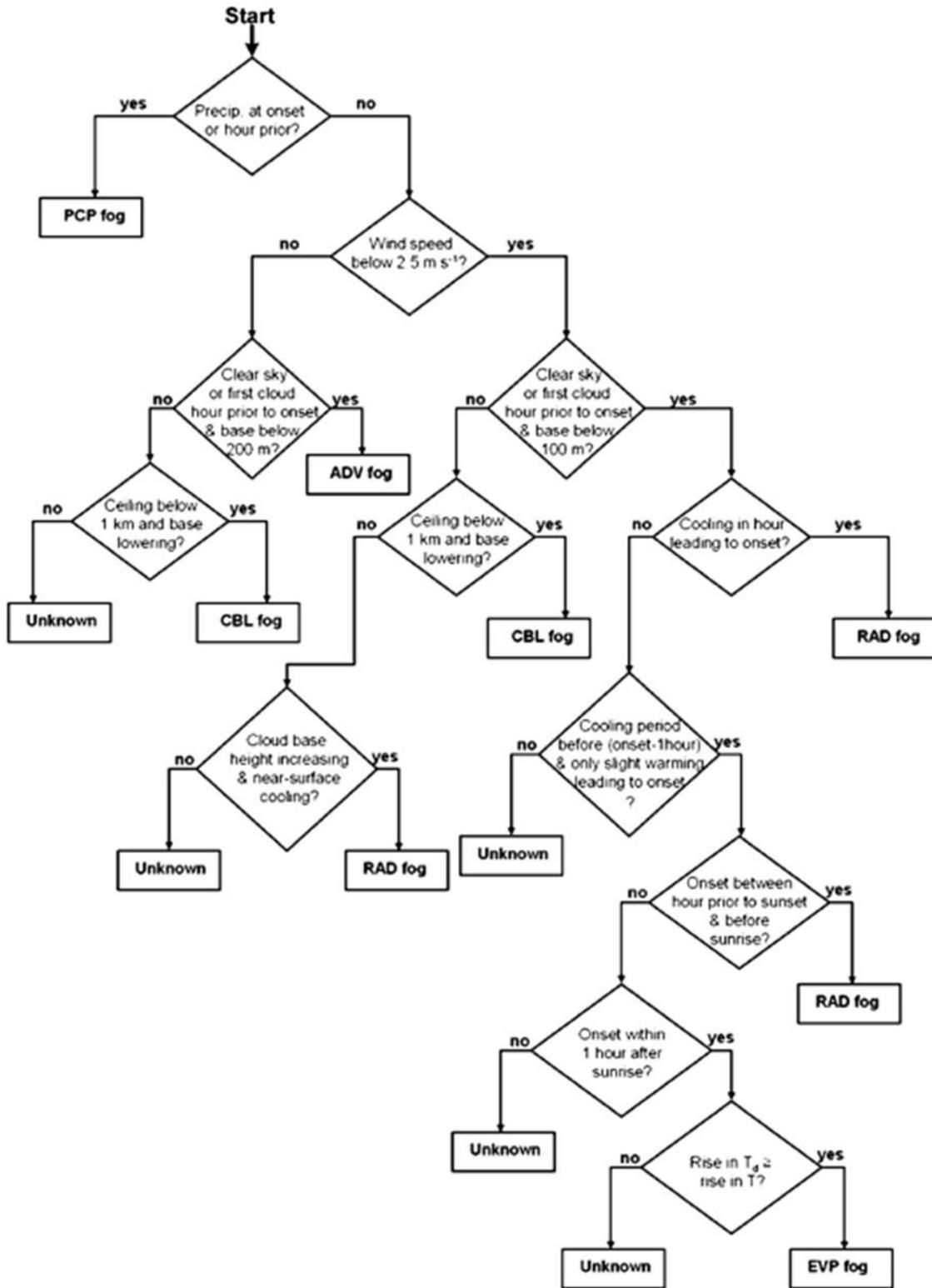


Figure 2.1 - Algorithme permettant la classification des différents types de brouillard, tiré de l'étude de Tardif et Rasmussen (2007). RAD = brouillard radiatif, ADV = brouillard advectif, PCP = brouillard précipitant, EVP = brouillard d'évaporation et CBL = affaissement de stratus

- Formation du brouillard radiatif

Le brouillard radiatif se forme en général la nuit, dans des conditions de ciel clair, de vent faible et sur des surfaces continentales très humides. Le refroidissement radiatif de la surface est le processus **clé à l'origine de la formation de ce type de brouillard** (Rangognio, 2009). Après le coucher du soleil, **la surface se refroidit car elle émet plus de rayonnement infrarouge qu'elle ne reçoit d'énergie de l'atmosphère. L'air directement en contact avec le sol, se refroidit jusqu'à atteindre son point de condensation** permettant la formation de gouttelettes de brouillards. Les conditions de vent ont également un rôle important dans la formation et le développement du brouillard. En effet, un vent très faible ou nul va favoriser le refroidissement de la surface ce qui entraîne une inversion thermique très marquée dans les basses couches (proches du sol). Dans cette situation le phénomène de condensation décrit précédemment ne peut se propager verticalement, seule la formation de rosée voire **d'un brouillard très fin** peuvent être observées. La rosée se produit lorsque la température **d'une surface est plus faible ou égale à la température de rosée de l'air (température à laquelle la vapeur d'eau dans l'air va se condenser en gouttelettes liquides)** (Beysens, 1995). Dans le cas de la rosée, les gouttelettes se forment sur la surface refroidie (**sol, surface végétale...**) **et ne nécessitent pas la présence de noyau de condensation dans l'air. En revanche un brouillard est formé de gouttelettes en suspension dans l'atmosphère** (Agam & Berliner, 2006) issues de la présence de noyau de condensation. **En présence d'un vent faible mais non-nul**, la turbulence dans les basses couches augmente, ce qui diminue le refroidissement du sol et **ne favorise pas la condensation de l'eau. En revanche**, une fois que les gouttelettes sont formées, la présence de vent favorise le développement vertical du brouillard ainsi que son étalement dans le plan horizontal.

Un autre facteur entrant en jeu est la capacité pour le sol à conduire la chaleur, qui dépend de la nature du sol et de son contenu en eau. Un sol sec se refroidira plus facilement car il a peu de capacité à conduire la chaleur, ce qui favorisera la formation de brouillard. Un élément qui, quant à lui, inhibe la formation de brouillard est le dépôt de rosée. Lorsque le dépôt de rosée est important, la masse **d'air au contact direct est asséchée et ne peut atteindre** la saturation.

2.3 INTERACTIONS ENTRE LES AEROSOLS ET LES HYDROMETEORES

2.3.1 Mécanisme de lessivage (sous le nuage)

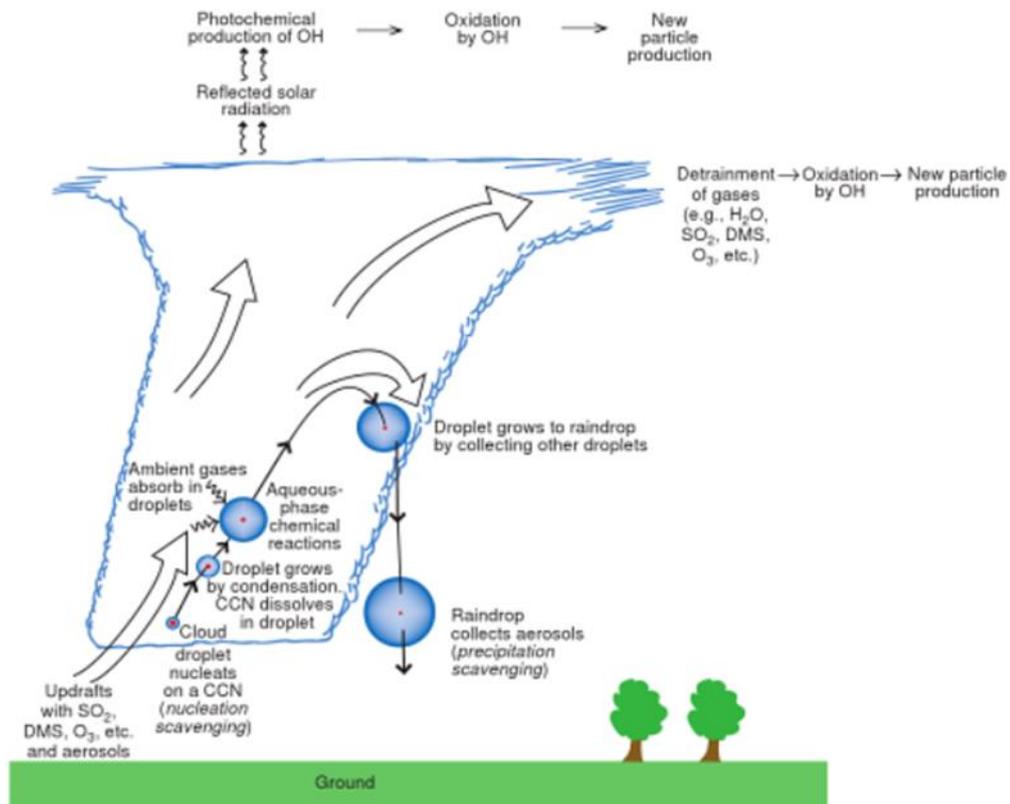


Figure 2.2 - Représentation schématique des processus affectant la composition de l'eau de nuage et des pluies (Wallace & Hobbs, 2006).

Le lessivage désigné sous le terme de « precipitation scavenging » sur la figure 2.2 décrit le phénomène par lequel les gaz et les particules sont capturés par des gouttes de pluie lors de leur chute. On peut aussi employer les termes de rabattement sous le nuage, « below-cloud scavenging » ou « washout ». **Les mécanismes à l'origine de la collecte des particules par les gouttes de pluie sont de trois types, mécaniques (impaction inertielle, interception et diffusion brownienne), phorétiques (diffusiophorèse et thermophorèse) et électrostatiques (ionisation des particules).** Une explication détaillée de ces mécanismes a été réalisée par Depuydt (2013).

Le lessivage par la pluie est un phénomène crucial permettant à l'atmosphère d'être « lavée » de ces polluants mais par la même occasion, d'entraîner le dépôt de ces mêmes polluants sur la surface terrestre. En ce qui concerne le dépôt de radionucléides par la pluie, **il s'agit d'un problème majeur après un accident nucléaire et des études ont été menées dans le but d'obtenir des coefficients de lessivage les plus pertinents possibles pour la modélisation de ces dépôts** (Depuydt, 2013; Quérel, 2012).

2.3.2 Mécanisme de lavage (dans le nuage)

Nous allons nous intéresser plus **amplement au mécanisme de lavage des aérosols puisqu'il s'agit du processus à l'origine des dépôts « occultes ».** Le processus de lavage est aussi désigné sous le terme de rabattement dans le nuage ou de « in-cloud scavenging » ou encore de « rainout ». Il peut se décomposer en deux phénomènes : le « nucleation scavenging » qui correspond à la phase de

formation de la gouttelette nuageuse et l'« impaction scavenging » qui désigne les processus de capture des aérosols par des gouttelettes déjà formées.

A l'origine de la formation d'une gouttelette nuageuse se trouve une particule d'aérosol. Pour devenir un noyau de condensation (CCN), celle-ci doit être activée. La théorie de Köhler permet de décrire ce mécanisme d'activation.

Lorsque l'humidité relative d'une masse d'air atteint 100%, cela signifie que cette dernière est saturée en vapeur d'eau par rapport à une surface plane. Or pour la formation d'une gouttelette d'eau cette humidité relative n'est pas suffisante ; cela s'explique par l'effet de courbure de Kelvin ; plus l'effet de courbure sera important plus il est difficile pour des molécules d'eau de se maintenir en phase liquide. La force permettant de maintenir ces molécules d'eau assemblées est appelée tension de surface. Il faudrait ainsi atteindre des valeurs de sursaturation en vapeur d'eau très importantes ($\gg 100\%$), que nous ne rencontrons pas dans l'atmosphère pour former une gouttelette d'eau pure, ce qu'on désigne par nucléation homogène. En réalité, un support de condensation permet d'abaisser la tension de surface nécessaire à la formation de la gouttelette. Cela correspond au phénomène de nucléation hétérogène en présence d'aérosols. De plus, pour un aérosol soluble, la loi de Raoult qui stipule que : « la pression totale d'une solution idéale est égale à la somme des pressions de vapeur saturante de ses constituants pondérés par les fractions molaires de ceux-ci », entraîne une réduction de la pression de vapeur saturante due à la présence de cette partie soluble. Ainsi, même avec une faible sursaturation (de l'ordre de 0,1%), à partir d'une valeur d'humidité relative critique, la gouttelette peut quitter son état d'équilibre et grossir tant que la pression de vapeur reste supérieure à sa pression en surface. Il s'agit du phénomène d'activation régi par l'équation de Köhler (Dupuy, 2003) :

$$S = \frac{e_a}{e_{sat,w}} = \exp \left[\frac{2M_w \sigma_{s,a}}{RTa\rho_w} - \frac{v\Phi_s \varepsilon_v M_w \rho_s r_N^3}{M_s \rho_w (a^3 - r_N^3)} \right], \quad (2.1)$$

où S est le taux de saturation (avec $S-1$ la sursaturation), e_a la pression de vapeur, $e_{sat,w}$ la pression de vapeur à saturation, a le rayon du CCN, r_N le rayon de la gouttelette, ε_v la fraction soluble en volume dans le CCN, v est le nombre d'ions de l'élément soluble, M_s et M_w les masses moléculaires de l'eau et de l'élément soluble, ρ_w et ρ_s les densités de l'eau et de l'élément soluble, Φ_s un coefficient qui représente la façon dont la partie soluble est dissoute (complète dissolution $\Phi_s = 1$), R la constante des gaz parfait, T la température absolue et $\sigma_{s,a}$ la tension de surface.

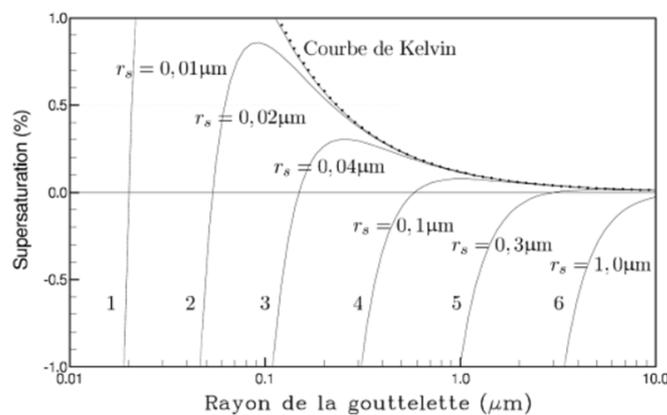


Figure 2.3- Sursaturation (en %) à l'équilibre au-dessus d'une gouttelette d'eau pure (trait pointillé) et au-dessus de gouttelettes de solution contenant des masses d'eau croissantes de matière soluble (traits plein) en fonction du rayon de la gouttelette hydratée. r_s étant le rayon de l'aérosol sec (ici du sulfate d'ammonium) (Boucher, 2011).

Lorsque la pression de vapeur saturante au-dessus de l'aérosol passe par un maximum (Fig. 2.3), cela correspond à un rayon critique. L'aérosol est activé lorsque son rayon a dépassé ce rayon critique, qui dépend de la masse et de la taille de l'aérosol sec. Tant que l'aérosol n'a pas atteint ce maximum, on considère qu'il est hydraté mais non activé. Si l'aérosol est suffisamment gros pour atteindre le rayon critique à une sursaturation donnée, il peut continuer à grossir, il est activé et devient une gouttelette nuageuse. La gouttelette peut également continuer à grossir par coalescence et cela jusqu'à atteindre une taille critique (en fonction de la turbulence et des mouvements verticaux) à partir de laquelle elle sera sujette principalement à la gravité et donc chutera sous forme de précipitations. Ainsi, la taille minimale et le rayon critique de l'aérosol, vont dépendre de la valeur de sursaturation de l'air et de la composition chimique de l'aérosol. En effet, on a vu précédemment que plus la particule est soluble, plus la sursaturation nécessaire sera faible ce qui signifie que pour des grosses particules comportant une part importante d'éléments solubles, l'activation sera facilitée. En revanche, plus les gouttelettes sont grosses et plus il sera difficile pour elle de retrouver un état d'équilibre après un changement d'humidité relative, le transport de la quantité d'eau se condensant ou s'évaporant prendra beaucoup plus de temps. C'est pourquoi, les aérosols secs de tailles moyennes sont activés en premier puis les petites et les plus grosses. La concentration en aérosols conditionne également la proportion d'aérosols qui sera activée et pourra se transformer en noyau de condensation. A saturation, plus la concentration en aérosols est faible et plus cette proportion est grande. L'ensemble des aérosols peut ne pas devenir des CCN, cela va dépendre, comme on l'a vu, de leur taille mais aussi, de leur composition chimique (solubilité, hygroscopicité, tension de surface). Les sels inorganiques comme le chlorure de sodium et le sulfate d'ammonium sont les espèces dominantes de CCN qui se dissolvent rapidement dans l'eau (Rangognio, 2009), mais la grande majorité des particules d'aérosols est composée d'espèces solubles et insolubles. Le phénomène d'activation des aérosols est donc plus complexe que ne le laisse transparaître la forme initiale de la théorie de Köhler puisqu'il est nécessaire de prendre en compte la solubilité et la tension de surface de composés qui ne se dissolvent pas complètement ce qui peut avoir un impact sur la pression de la vapeur d'eau à l'équilibre. Le mécanisme d'activation des particules d'aérosols en gouttelettes nuageuses est un phénomène complexe qui a fait l'objet de nombreuses études, notamment sur la modélisation de cette activation (Cruz & Pandis, 1997; Rangognio, 2009; Sellegri, 2002; Shulman, Jacobson, Carlson, Synovec, & Young, 1996).

2.4 CARACTÉRISATION MICROPHYSIQUE DU BROUILLARD

Afin d'obtenir une description microphysique des nuages et des brouillards, nous allons principalement nous intéresser à des paramètres tels que la distribution en taille des gouttelettes, les constituants et les contenus en eau liquide ou LWC (Liquid Water Content) des nuages. L'ensemble de ces paramètres peut nous renseigner sur le type de nuages observés, les phases de formation du nuage mais aussi sur la capacité de dépôt sur les plantes.

2.4.1 Contenu en eau liquide ou LWC

Le contenu en eau liquide d'un nuage est la quantité d'eau sous forme liquide par volume ($\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) ou masse d'air ($\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$). Le contenu en eau liquide d'un nuage est typiquement compris entre 0,05 et 3 $\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, les diamètres des gouttelettes de nuage variant de 1 à 50 μm avec une majorité de gouttelettes entre 10 et 20 μm (Bourcier, 2009). Le LWC est mesuré dans le cadre de la thèse grâce à un FM-120 (Fog Monitor 120) commercialisé par Droplet Measurement Technologies (DMT) et à un PVM-100 (Particulate Volume Monitor) développé par Gerber Scientific Instruments Inc dont les fonctionnements sont détaillés au paragraphe 3.2.1.

2.4.2 Distribution granulométrique des gouttelettes

La distribution en taille des gouttelettes de nuage ou de brouillard influence les propriétés radiatives du nuage, le temps de vie du nuage mais également sa capacité à précipiter. De plus elle conditionne également la quantité de dépôt occulte générée par le nuage/brouillard.

Elle peut être déterminée de deux manières différentes ; par mesure *in situ* en utilisant des instruments optiques embarqués sur des avions ou au niveau de stations au sol (Spiegel et al., 2012) **et par technique d'inversion à partir de mesures satellitaires** (Kokhanovsky & Rozanov, 2012). La méthode de mesure *in situ* constitue la meilleure approche pour la mesure des gouttelettes de nuages (Miles et al., 2000). De nombreux instruments ont été développés pour ce type de mesure. On citera notamment le « Forward Scattering Spectrometer Probe » (FSSP) pour la mesure des hydrométéores de diamètre compris entre 2 et 50 microns, le « Cloud Droplet Probe » (CDP) pour des mesures dans la même gamme de taille que le FSSP, le « Cloud and Aerosol Spectrometer » (CAS) pour des particules de 0,5 à 50 microns, le « Small Ice Detectors » (SID) pour des particules de 2 à 140 microns et le « Fog Monitor » 100 et 120 (FM-100, FM120) pour les gouttelettes de 2 à 50 microns. Il s'agit d'une liste non exhaustive (Fig. 2.4). On peut distinguer au sein de ces instruments deux grands groupes : les instruments passifs sans système de ventilation principalement destinés à un usage en avion et les **instruments actifs car munis d'un ventilateur**, utilisés au sol ou sur pylône. Par la suite, nous ne détaillons que le fonctionnement du FM120 car il s'agit de l'instrument utilisé au cours de la thèse.

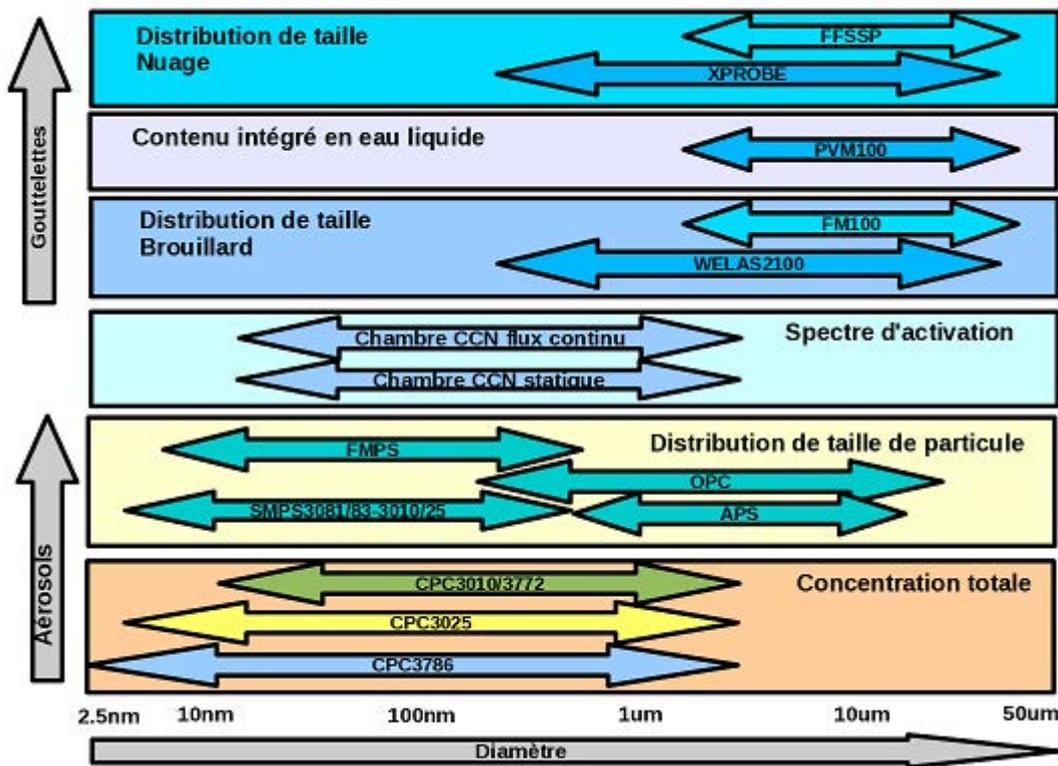


Figure 2.4 - Moyens de mesure de l'aérosol et des particules nuageuses (CNRM-GAME).

De manière générale, même si on trouve une grande variabilité au sein des nuages et des brouillards, **la taille des gouttelettes dans un brouillard sera plus faible que dans un nuage du fait d'une saturation plus faible en humidité**. Dans un brouillard, les gouttelettes ont un diamètre moyen de 3 à 10 microns (Liu et al., 2011; Podzimek, 1997). Dans les nuages, **le diamètre moyen est plus élevé, de l'ordre de**

la dizaine de microns (Miles et al., 2000). Une étude de Podzimek (1997) sur 160 prélèvements de **gouttelettes de brouillard/brume a montré qu'à une humidité relative proche de 100%**, la distribution en taille des gouttelettes de brouillard suit une ou deux lois log-normales. A des humidités relatives inférieures à 95% et dans une atmosphère polluée (brume de pollution), la distribution en taille est bimodale **du fait d'une croissance importante des gouttelettes par condensation et coagulation**. La distribution en taille des gouttelettes peut donc également nous donner une indication sur la phase de développement dans laquelle se trouve le nuage/brouillard.

2.5 CARACTERISATION CHIMIQUE DE L'EAU DE BROUILLARD

La composition de l'eau de brouillard est un sujet essentiel de l'étude des brouillards. En effet, le processus de lavage des gaz et des aérosols dans l'atmosphère par les brouillards peut être mis en évidence par la composition ionique de l'eau de brouillard. Afin de comprendre les mécanismes de lavage de l'atmosphère, il est essentiel de connaître la composition chimique de l'eau de brouillard. Par ailleurs, la problématique des dépôts de pluies acides a amené la communauté scientifique à s'intéresser au dépôt de brouillards acides en particulier sur les surfaces végétales. En effet, le temps de contact entre le végétal, notamment les feuilles et les gouttelettes de brouillards peut-être beaucoup plus important que durant une pluie. De plus, l'eau de brouillard peut être nettement plus concentré en polluants que l'eau de pluie du fait de la dilution plus importante des polluants dans les gouttes de pluie par condensation de vapeur d'eau. Enfin, les quantités d'eau précipitées au cours d'une pluie montrent que la concentration va en diminuant entre les premières gouttes de pluie et celles qui vont tomber après plusieurs minutes ou dizaines de minutes. Au bout d'un certain temps après le début de l'évènement pluvieux, l'eau de pluie a un effet lavant sur les surfaces.

La composition chimique de l'eau de nuage et de l'eau de pluie analysée à divers endroits est indiquée dans le tableau 2-1. Lorsque cela est possible, le rapport des concentrations dans les eaux de pluie et dans les eaux de brouillards a été calculé. En très grande majorité, des concentrations nettement supérieures dans l'eau de brouillard sont observées. Ce rapport de concentration peut atteindre des valeurs très importantes. Selon, Weathers et Likens (1997) l'eau de nuage, dans une région au sud du Chili, est 80 fois plus concentrée en ion NH_4^+ que l'eau de pluie. L'étude de la composition chimique de l'eau de brouillard est utile pour savoir ce qui peut être déposée par ce dernier mais peut aussi nous apporter des informations sur la formation ou l'origine du brouillard.

Aikawa, Hiraki, Suzuki, Tamaki, and Kasahara (2007) ont montré que des brouillards avec des fortes valeurs de LWC donnaient de faibles concentrations en composés chimiques dans les eaux de brouillard, ce qui montre que des brouillards denses présentent généralement des concentrations plus faibles dans les eaux de brouillard et donc dans l'eau déposée. De plus, des différences significatives entre les aérosols secs de l'air ambiant et l'eau de brouillard ont été observées pour les ions composant les particules fines, en revanche aucune différence significative pour les grosses particules n'a été mis en évidence (Aikawa, Hiraki, & Tamaki, 2006). Ce qui montre que les grosses particules sont plus facilement rabattues par les gouttelettes de brouillards. En étudiant les flux d'ion en milieu forestier et agricole, Thalmann et al. (2002) ont observé que dans le cas de canopées forestières fréquemment exposées au brouillard, les apports atmosphériques de nutriments par dépôt humide pouvaient être doublés par rapport à une zone non exposée. Bien que la composition chimique de l'eau de brouillard soit très variable d'un site à l'autre, l'ensemble des études sur le sujet s'accordent sur le fait que la concentration en éléments chimiques est beaucoup plus importante dans les eaux de brouillards et de nuages que dans les eaux de pluie. L'un des objectifs de la thèse est donc de déterminer si la concentration en radionucléides est plus importante dans les eaux de nuages que dans l'eau de pluie et de comparer l'importance relative des dépôts associés sur des sites exposés aux brouillards.

Tableau 2-1 : Comparaison des concentrations de différents composés chimiques (micro-équivalent par litre) dans l'eau de brouillard et dans l'eau de pluie.

	H ⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	NH ₄ ⁺	Ca ²⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Na ⁺	Lieu	Auteurs
Eau de pluie	7,9	15,6	26,9	24,5	36,7	7,63	1,8	1,2	9,9	Waldstein, Allemagne	(Thalmann et al., 2002)
Eau de brouillard	123,2	42,63	646,2	437,7	925,5	53,9	12,1	13,2	46,8		
Rapport eau de brouillard/eau de pluie	16	8	24	18	25	7	7	11	5		
Eau de pluie	-	48,7	23,3	28,7	17	16,4	13,5	2,1	58,8	Mont Fuji, Japon	(Watanabe et al., 2006)
Eau de brouillard	-	9,5-68,7	32,8-126,2	52,3-109,8	44,0-231,4	25,0-105,3	2,6-10,7	2,5-15,3	7,9-71,7		
Rapport eau de brouillard/eau de pluie	-	0,1-14	1,4-5,4	1,8-3,8	2,6-13,6	1,5	0,2-0,8	1,2-7,3	0,1-1,2		
Eau de brouillard	22	72	51	123	156	9,9	7,2	13	61	Lac Mashu, Japon	(Yamaguchi et al., 2015)

2.6 METHODES DE COLLECTE DE L'EAU DE NUAGE ET DE BROUILLARD

2.6.1 Collecteurs de nuages/brouillards

Afin de réaliser des analyses chimiques (ou radiologiques dans notre cas) de **l'eau de brouillard/nuage**, il est nécessaire de la collecter. Pour cela, différentes méthodes ont été développées depuis le début des années 80. En effet, à cette période la découverte de la problématique des pluies puis des brouillards acides nécessitait **d'effectuer des études sur la composition chimique des nuages au niveau** des régions impactées. Les objectifs des collecteurs étant de pouvoir collecter de manière efficace des gouttelettes de nuages de diamètre compris entre 1 et 100 microns, de préserver la composition chimique des gouttelettes de nuages durant toutes les étapes de la collecte et de collecter des quantités suffisantes de liquide pour les besoins de différentes analyses chimiques. Une présentation des différents appareils utilisés ainsi que leur méthode de fonctionnement est réalisée. On distinguera les collecteurs passifs (sans système de ventilation) des collecteurs actifs.

2.6.2 Impacteur à jet droit du Desert Research Institute (DRI)

L'impacteur à jet droit (Fig. 2.5) collecte les gouttelettes de nuage en les amenant vers un noyau central autour duquel elles s'accumulent pour se déposer dans un flacon d'échantillonnage. Ce mécanisme est analogue à celui de la croissance par diffusion-condensation des noyaux de condensation activés dans le nuage. La quantité d'eau collectée va dépendre du débit d'air interne amenant les gouttelettes au noyau central qui elle-même est affectée par la vitesse du vent. En théorie, cet instrument est conçu pour que la même quantité d'air entre dans ses trois ouvertures symétriques. Les cylindres d'impaction sont rotatifs grâce à un petit moteur qui transporte l'eau vers la partie centrale du collecteur. Lorsque les gouttelettes ont atteint le centre du dispositif, elles coalescent entre elles. L'eau s'accumule et coule le long du noyau pour atteindre le flacon d'échantillonnage. La masse d'eau collectée, M , est donnée par l'équation 2.2 (DeFelice & Saxena, 1990).

$$M = Em_d N(d) V_{jet} t A_{jet} N_{jet}, \quad (2.2)$$

Ave E l'efficacité de collecte ; m_d la masse des gouttelettes dont le diamètre moyen est d ; $N(d)$ la concentration moyenne de gouttelettes de diamètre d ; t la période de collecte ; A_{jet} l'aire de chaque entrée d'air, et V_{jet} la vitesse au niveau de l'entrée d'air.

La quantité d'eau de nuage collectée par le DRI est dépendante de la vitesse de rotation des cylindres d'impaction, de la vitesse du jet d'air au niveau des trois ouvertures, de la vitesse du vent et de la taille ainsi que de la concentration des gouttelettes dans le nuage.

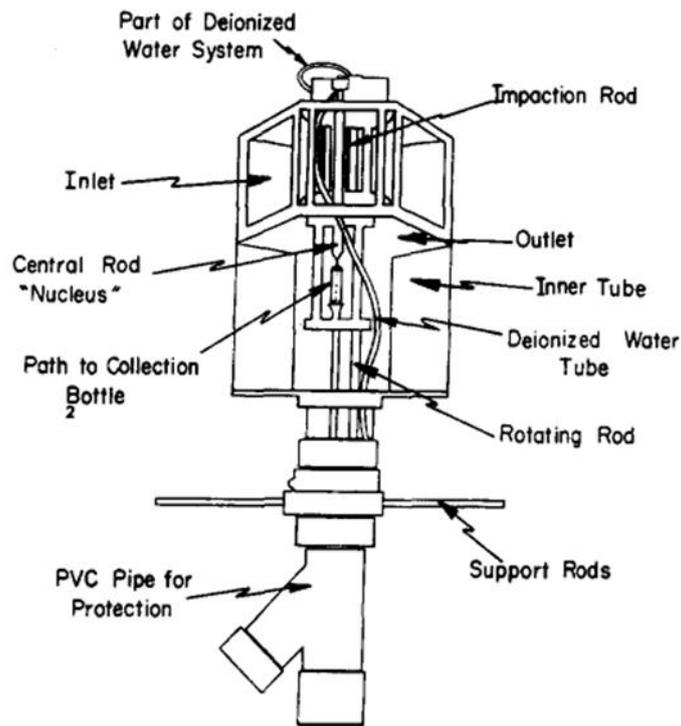


Figure 2.5 - Schéma en coupe de l'impacteur à jet droit du Desert Research Institute. (DeFelice et Saxena, 1990).

2.6.3 Collecteurs à fils Teflon

2.6.3.1 Collecteur à fils fixes de l'Atmospheric Science Research Center (ASRC)

Il s'agit du collecteur à fils tournants du California Institute of Technology (Caltech) et du collecteur à fils fixes de l'Atmospheric Science Research Center (ASRC). Les deux dispositifs fonctionnent sur le principe de collision-coalescence similaire au processus de formation des précipitations. Les gouttes de nuages s'impactent sur les fils des collecteurs, glissent le long de ces derniers et tombent dans le réservoir.

Contrairement à l'impacteur à jet droit, la quantité d'eau collectée par le collecteur à fils fixes de l'ASRC n'est pas bien corrélée à la vitesse du vent. En effet, pour cet appareil l'efficacité d'impaction des gouttelettes augmente avec le temps d'exposition au nuage. Pour comprendre cela il faut s'intéresser à l'équation d'efficacité de collecte (E) 2.3 suivante (DeFelice & Saxena, 1990) :

$$E = \frac{\sqrt{a_0}}{(1 + P)^2}, \quad (2.3)$$

où $P = a_2/a_0$, avec a_0 le rayon des fils d'impaction ; Y_c le paramètre d'impact qui est compris entre -0,045 mm et -0,11 mm pour une gouttelette de $1,5 \mu\text{m}$ et un rayon de fils d'impaction compris entre 0,4 mm et 1,0 mm ; P le pourcentage de gouttelettes de diamètre a_2 sur le fil d'impaction.

Avec le temps au fur et à mesure que les gouttelettes s'impactent sur le fil, le diamètre du fil augmente donc P diminue ce qui fait augmenter l'efficacité de collecte E . Selon DeFelice and Saxena (1990) la quantité d'eau collectée par l'ASRC ne dépend pas du vent, pour des vitesses de vent

comprises entre 2,6 et 12,0 m.s⁻¹. Cependant cela semble dépendre de la taille des gouttelettes de nuages, du diamètre des fils, et, indirectement de la vitesse du vent lorsque le processus de « précipitation » n'a pas commencé, en début de collecte. Ces auteurs en concluent également que les collecteurs à fils Téflon sont les plus représentatifs de l'eau collectée par les forêts de conifères dus à leurs longs et fins fils d'impaction semblables à des aiguilles.

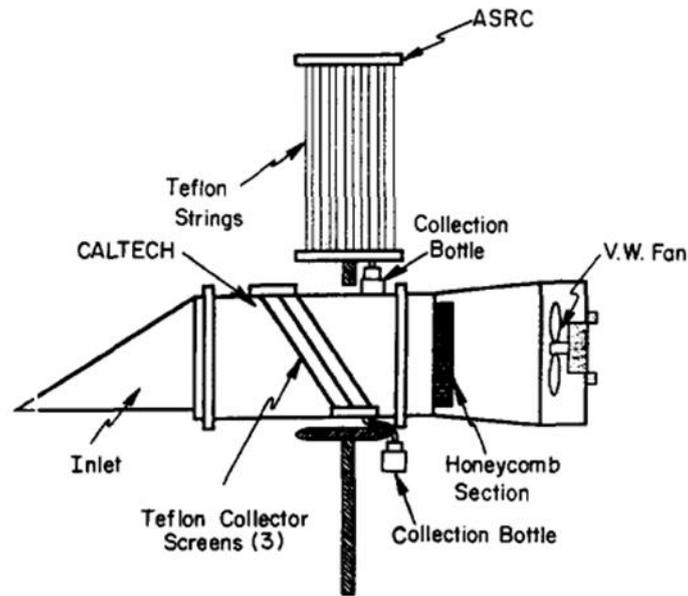


Figure 2.6 - Schémas du collecteur à fils fixes de l'Atmospheric Science Research Center (ASRC) et du collecteur à fils tournants du California Institute of Technology (Caltech).

2.6.3.2 Collecteur du Caltech

Les collecteurs du Caltech ou CASCC (Caltech Active Strand Cloudwater Collector) contrairement au collecteur de l'ASRC disposent d'un ventilateur pour aspirer l'air contenant les gouttelettes de nuages ou de brouillards et forcer leur impaction sur des fils. Ils ont initialement été développés par Daube, Flagan, and Hoffmann (1987). Ils ont par la suite été modifiés pour collecter de l'eau de nuage/brouillard en fonction de deux classes de taille de gouttelettes. Le CASCC2, lui, est une version plus compacte que la version originale et permet de collecter l'eau sans distinction de taille de gouttelettes. Les gouttelettes vont s'impacter sur six rangées de fils de Téflon de 508 μm de diamètre. Le diamètre de coupure (diamètre pour lequel l'efficacité de collecte est de 50%) est de 3,5 μm (Demoz, Collett Jr, & Daube Jr, 1996).

Le « Caltech Heated Rod Cloudwater Collector » (CHRRC) quant à lui n'est autre qu'un CASCC2 qui comprend des surfaces chauffées afin de permettre la collecte des gouttelettes de nuages surfondues. Un filament de nichrome par lequel on fait passer un courant chauffe les fils d'impaction ce qui permet de collecter le givre qui s'accumule au niveau de ces fils. Par la même occasion, cela permet d'éviter de trop grandes variations de l'efficacité de collecte influencée par le diamètre des fils qui grossissent rapidement par accumulation de givre. L'utilisation de la fonction chauffante du collecteur est généralement courte, de l'ordre de quelques secondes, basée sur une observation visuelle du temps nécessaire pour faire fondre l'eau échantillonnée. Le diamètre de coupure théorique est de 9 μm .

Pour un diamètre de fil donné, l'efficacité de collecte du fil d'impaction varie en fonction de la taille des gouttelettes. En effet l'efficacité de collecte peut s'exprimer en fonction du nombre de Stokes (St) définie par l'équation 2.4.

$$St = \frac{\rho U \cos \theta d_p^2}{9 \mu d_c} \quad (2.4)$$

avec ρ la densité volumique de la gouttelette, U la vitesse de l'air, θ l'angle d'inclinaison de la rangée de fil par rapport à la vertical, d_p le diamètre de la gouttelette, μ la viscosité de l'air, et d_c le diamètre du fil. L'équation de Davidson and Friedlander (1978) utilisée pour le dépôt d'aérosols secs peut être utilisée pour calculer l'efficacité de collecte des fils (η_s) :

$$\eta_s = \frac{St^3}{St^3 + 0.753St^2 + 2.796St - 0.202} \quad (2.5)$$

L'efficacité de collecte (η) de l'ensemble de la rangée de fils est obtenue via l'équation 2.6.

$$\eta = 1 - (1 - \eta_s \cdot fr)^r \quad (2.6)$$

où fr est la fraction de couverture par rangée (la surface transversale de la rangée de fil divisée par la section du collecteur), et r le nombre de rangées de fils.

Tableau 2-2 : Caractéristiques techniques du CASCC2, CHRCC et du CASCC (Demoz et al., 1996).

Paramètres	CASCC	CASCC2	CHRCC
Diamètre du cylindre (mm)	0,508	0,508	3,2
Nombre de rangées de fils	6	6	6
Espace entre les fils (mm)	1,8	1,8	7
Débit d'air ($m^3.h^{-1}$)	1470	348	348
Diamètre de coupure (μm)	3,5	3,5	9
Vitesse au niveau des fils ($m.s^{-1}$)	8,5	8,6	8,6

A partir des caractéristiques techniques du tableau 2-2, il est possible de calculer les efficacités de collecte pour les différents collecteurs en fonction du diamètre des gouttelettes de brouillard (Fig. 2.7).

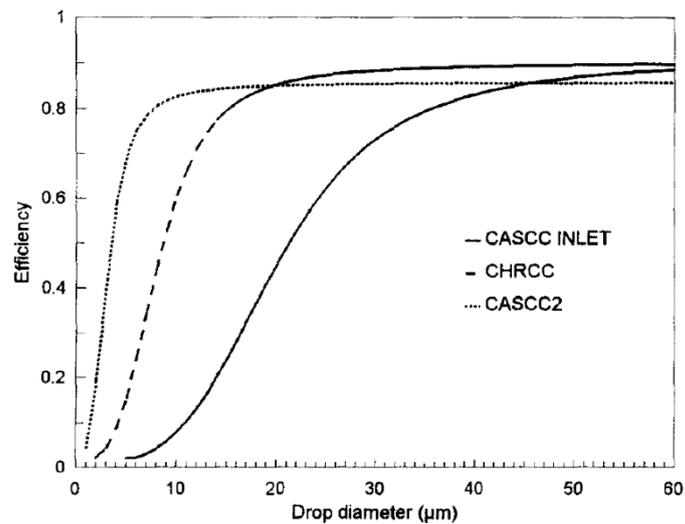


Figure 2.7 - Courbes d'efficacité pour les collecteurs CASCC, CHRCC et CASCC2 (Demoz et al., 1996).

La majorité des gouttelettes de brouillards ont une taille comprise entre 10 et 30 μm de diamètre. Pour cette gamme de taille le collecteur CASCC2 présente une efficacité supérieure à 80%. Même pour les plus petites gouttelettes (de l'ordre du micron), il possède une efficacité supérieure aux deux autres collecteurs. Ainsi, pour une analyse nécessitant une quantité maximale d'eau récoltée indifféremment de la taille des gouttelettes, le CASCC2 semble être le collecteur le plus efficace.

2.7 DEPOT DES GOUTTELETTES NUAGE ET DE BROUILLARD

Le dépôt humide **se décompose en deux processus présentés sur la figure 2.2. Il s'agit des processus de lavage et de lessivage** que nous détaillons.

Une étude de Dollard, Unsworth, and Harve (1983) a montré que les dépôts « occultes » de polluants sur les végétaux étaient conséquents et sous-estimés voire négligés. Dans les régions où la présence de nuages bas est fréquente (régions montagneuses ou côtières), les auteurs estiment que la prise en compte des dépôts occultes peut entraîner une augmentation de 20% des quantités annuelles de **composés chimiques ayant pour origine le dépôt humide. A titre d'exemple, l'eau de nuage contribue entre 50 et 80% au dépôt total de soufre et d'azote au niveau des sites d'altitude et des sites côtiers aux Etats-Unis (Weathers & Likens, 1997).**

2.7.1 Vitesse de dépôt des gouttelettes

La vitesse de dépôt des gouttelettes de nuages/brouillards est bien plus grande que celle des dépôts **secs d'aérosols dans le mode d'accumulation et d'Aitken. En effet le dépôt par brouillard/nuage se fait principalement par des mécanismes d'impaction, d'interception et de sédimentation alors que dans le mode d'accumulation et d'Aitken les aérosols se déposent par diffusion Brownienne.**

La vitesse de dépôt (V_d) est définie comme le flux de dépôt (F) exprimé en $g.m^{-2}.s^{-1}$, divisé par la **concentration atmosphérique de l'élément considéré (C) exprimée en $g.m^{-3}$ à une altitude définie (Eq. 2.7).**

$$V_d = F/C \quad (2.7)$$

La vitesse dépôt des gouttelettes est donc directement déduite du flux de dépôt vertical (F). Le flux vertical des gouttelettes est gouverné par deux processus de transport primaire. Le phénomène **principal est celui de la diffusion turbulente des petites gouttes en suspension dans l'atmosphère qui peuvent ainsi s'impacter sur les éléments présents. L'autre phénomène est celui lié aux forces gravitationnelles qui deviennent d'autant plus importantes que la taille des gouttelettes augmente. L'importance relative des deux processus dans le mécanisme de dépôt des gouttelettes dépend largement de la distribution en tailles des gouttelettes mais aussi de la turbulence de la couche d'air. D'ailleurs la gamme de vitesse des dépôts d'eau de brouillard est assez large, et comprise entre 1 et 100 $cm.s^{-1}$ (Katata, 2014). On notera cependant qu'à des vitesses de vent très faibles ($< 0,5 m.s^{-1}$), les vitesses de dépôt du brouillard sont similaires aux vitesses de dépôt sec.**

En plus de la taille des gouttelettes, de la turbulence de la couche d'air, le support sur lequel se déposent les gouttelettes peut aussi influencer la vitesse de dépôt. De manière générale, les vitesses de dépôt sont plus élevées en milieu forestier qu'en rase campagne, la surface des feuilles des arbres étant beaucoup plus importante que la surface du sol. Au sein d'une canopée forestière, Katata et al. (2008) ont montré, en comparant les vitesses de dépôt de l'eau de brouillard sur deux types de feuilles (feuilles larges et aiguilles) que lorsque la surface de la feuille est petite, elle peut capter une quantité d'eau plus importante que la feuille « aiguille » et cela pour des forêts dont les paramètres (indice foliaire total et hauteur de la canopée) sont similaires. Cette différence au niveau des dépôts sur les végétaux est traitée plus amplement dans le chapitre 5.

2.7.2 Coefficient de lavage

Le coefficient de lavage permet dans le cas du dépôt humide de radionucléides de déterminer **l'activité déposée au sol par unité de surface grâce à l'équation 2.8.**

$$\omega_w = \int_0^\xi \Lambda_H \cdot X dz, \quad (2.8)$$

avec ω_w l'activité au sol ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$), ξ la hauteur du nuage (m), Λ_H le coefficient de lavage (s^{-1}), X l'activité contenue dans l'air ($\text{Bq}\cdot\text{s}\cdot\text{m}^{-3}$).

La plupart des études portant sur la détermination du coefficient de lavage au niveau du sol incluent seulement un paramètre lié au dépôt par la pluie. Dans ces conditions, le dépôt dû au lessivage et celui lié au lavage sont confondus puisque les mesures d'intensité et de cumul de pluie se font au niveau du sol. Il s'agira alors d'un coefficient global. Si l'on se place dans le cas où les mesures vont se faire à une distance éloignée de l'émission, en considérant que la concentration atmosphérique du composé est homogène sur toute la hauteur de la colonne d'air étudiée, le coefficient de lavage peut être défini par l'équation 2.9 (Fournier-Bidoz, 1991) :

$$\Lambda_H = \frac{\varphi_p}{C \cdot \xi}, \quad (2.9)$$

où φ_p est la densité du flux de dépôt au sol dû à la pluie.

En 1997, Gibbs et *al.* ont déterminé des coefficients de lavage pour le brouillard à partir de coefficient de lavage pour la pluie. Le coefficient de lavage est défini comme variant avec l'intensité de la pluie (I) exprimée en $\text{mm}\cdot\text{h}^{-1}$. Il suppose une intensité de précipitation pour le brouillard tel que $1 \text{ mm}\cdot\text{h}^{-1}$ est équivalent à $10 \text{ mm}\cdot\text{h}^{-1}$ de pluie. Pour déterminer des coefficients de lavage (Λ) des aérosols, ils utilisent l'équation 2.10 :

$$\Lambda = 1,2 \cdot 10^{-4} I^{0,5}, \quad (2.10)$$

avec I l'intensité de précipitation de la pluie ($\text{mm}\cdot\text{h}^{-1}$).

Dans le cas du brouillard ou du nuage on va considérer que le phénomène de rabattement ne peut se faire que par lavage.

2.8 DÉPÔT SUR LES VÉGÉTAUX

Le sujet du dépôt par les brouillards a fait l'objet de nombreuses recherches, notamment du fait de la problématique des brouillards acides et de leurs effets délétères sur les forêts (Barker & Ashenden, 1992; Dollard et al., 1983; Igawa, Matsumura, & Okochi, 2002; Kobayashi, Nakagawa, Tamaki, Hiraki, & Aikawa, 2001; Hikari Shimadera et al., 2011; Thalmann et al., 2002; Yamaguchi et al., 2015). En effet, les massifs forestiers en montagne sont particulièrement exposés au brouillard et aux nuages. **C'est à ce niveau là que les composés chimiques et les radionucléides contenus dans l'eau de nuage peuvent être transférés vers l'écosystème végétal.** Eller, Lima, and Oliveira (2013) ont montré que **l'eau de brouillard était absorbée** directement par les cuticules des feuilles, et peut contribuer jusqu'à 42% au contenu total en eau de la feuille.

La majorité des études sur le dépôt occulte au niveau de végétaux citées précédemment se sont concentrées sur une espèce en particulier ou alors sur un ensemble forestier, sans distinction au niveau du type de plantes.

2.8.1 Caractérisation des végétaux : définition de l'index foliaire

Afin de décrire les surfaces foliaires des plantes **et de suivre l'évolution d'un couvert végétal par exemple, l'indice foliaire de la plante (LAI en anglais pour Leaf Area Index) est calculé.** Le LAI est une variable sans dimension et a été défini comme la surface totale sur une face, du tissu photosynthétique par unité de surface de sol. Pour les feuilles larges et plates, la définition est relativement simple car les deux côtés de la feuille ont la même surface. En revanche, pour des structures foliaires plus complexes avec des feuilles non plates, qui **s'enroulent sur elles-mêmes, qui se tordent, ou pour des feuilles de type aiguille, la surface d'une seule face est difficile à définir.** Il faut ainsi prendre en compte un angle de projection pour la surface, le LAI a donc été défini comme la surface foliaire projetée maximale par unité de surface au sol. Cependant d'autres définitions existent selon les techniques de mesures utilisées.

Le LAI d'un couvert végétal va donc dépendre du type d'espèces, du stade de développement et de la saisonnalité des plantes. De plus le LAI est fortement dépendant des conditions de mesure. Tout cela entraîne une très forte variabilité des valeurs de LAI mesurées (Jonckheere et al., 2004). Cependant de manière générale les valeurs les plus importantes sont celles obtenues pour des forêts de conifères.

2.8.2 Méthodes de détermination du LAI

Il existe deux méthodes principales pour estimer le LAI, une méthode directe et une méthode indirecte (Jonckheere et al., 2004). Dans le premier cas, **il s'agit de faire une mesure directe de l'index foliaire et dans le second** de le déterminer à partir de calculs en se basant sur des paramètres plus facilement mesurables.

2.8.2.1 Méthodes directes

La méthode directe **n'est pas la plus** adaptée à des grandes étendues végétalisées. Cette méthode permet de calculer le LAI via une technique planimétrique ou gravimétrique. **L'approche planimétrique repose sur la corrélation qui existe entre la surface d'une feuille et le nombre d'unité de surface couverte par cette feuille dans un plan horizontal.** Un planimètre est ainsi utilisé pour mesurer une feuillure fixée horizontalement sur une surface plane ; sa surface peut être ensuite déduite à partir du périmètre de la feuille à plat. La méthode gravimétrique est basée sur la relation entre la masse sèche des feuilles et la surface des feuilles. La masse foliaire par unité de surface ou le LMA (« Leaf Mass per Area ») est déterminée **à partir d'un échantillon de feuilles que l'on sèche au four entre 75 et 105 degrés Celsius jusqu'à obtenir une masse constante.** La surface des feuilles encore « vertes » est déterminée au préalable par planimétrie. Il faut néanmoins faire attention aux larges

variations spatiales et temporelles de LMA. Il a été montré que le LMA varie en fonction de l'âge de la plante, de son exposition à la lumière et de la hauteur de la canopée (Niinemets & Kull, 1994).

2.8.2.2 Méthodes indirectes

Les méthodes indirectes sont souvent plus rapides, automatisées et permettent donc d'étudier des échantillons beaucoup plus grands. Les méthodes indirectes sont divisées en deux catégories : les mesures de LAI indirectes avec contact et les mesures indirectes sans contact. Il s'agit d'une détermination au sol qui ne nécessite qu'une mesure.

On citera comme méthode avec contact celle du « pic quadrat incliné » développée par Wilson (1963) qui consiste à percer la canopée avec une longue et fine aiguille et de compter le nombre de contacts du « point quadrat » avec les éléments « verts » de la canopée. La détermination du LAI par cette technique est possible en utilisant une équation basée sur un modèle de radiation-pénétration. Une autre méthode avec contact est la méthode allométrique qui repose sur les relations entre la surface foliaire et **une caractéristique de n'importe quel élément de la plante qui rend compte de la biomasse foliaire verte, par exemple le diamètre des bourgeons, la taille de l'arbre, la taille à la base du tronc...**

Les méthodes sans contact nécessitent des instruments de mesure optique dont le principe est basé notamment sur la loi de Beer-Lambert selon laquelle la radiation totale interceptée par la canopée **dépend de l'irradiation incidente, de la structure et des propriétés optiques de la canopée.**

2.9 MESURE DU DEPOT PAR LES NUAGES/BROUILLARDS

Plusieurs modèles ont été développés pour déterminer la quantité d'eau déposée par les brouillards sur les forêts : on citera le modèle à une dimension développé par Lovett (1984), celui mis au point par Katata et al. (2008) qui ont modifié un modèle de surface appelé SOLVEG permettant une meilleure correspondance entre le modèle et les données expérimentales, ainsi que le modèle à deux dimensions de H. Shimadera, Kondo, Kaga, Shrestha, and Inoue (2010).

Dans le domaine expérimental plusieurs techniques ont été utilisées, la méthode de mesure par « ruissellement » ou « throughfall measurement » (Kobayashi et al., 2001) ; la méthode par « eddy covariance » (Klemm & Wrzesinsky, 2007) et la méthode de mesure de masse (Trautner & Eiden, 1988).

2.9.1 Méthode de mesure par ruissellement

Dans le cadre d'une étude sur le dépôt d'eau de nuage au niveau des forêts du mont Rokko à Kobé au Japon, Kobayashi et al. (2001) ont pu estimer, grâce à la technique de mesure par ruissellement la quantité d'eau déposée par les nuages sur la canopée durant un an. A partir du bilan de masse de l'eau d'une canopée forestière, le dépôt d'eau de nuage (W_c) peut être calculée via l'équation (5.6).

$$W_c = W_t + W_s + W_i - W_p, \quad (5.11)$$

avec respectivement W_t, W_s, W_i et W_p l'eau provenant du ruissellement, du flux de vapeur, l'interception par la canopée et les précipitations.

Dans le cas de cette forêt de *Cryptomeria Japonica* (cèdre rouge) au Mont Rokko, il a été supposé que W_s , la quantité d'eau provenant du flux de vapeur pouvait être égale à :

$$W_s = 0,042 \cdot W_t \quad (5.12)$$

d'où
$$W_c = 1,042 \cdot W_t - W_p, \quad (5.13)$$

ce qui permet de calculer la quantité d'eau déposée par les nuages à partir de la quantité totale d'eau récoltée par ruissellement et la quantité d'eau provenant des précipitations.

Afin de valider la méthode, les auteurs ont montré qu'il existait une corrélation entre la quantité d'eau déposée évaluée par mesure du ruissellement et la quantité d'eau récoltée par des collecteurs actifs d'eau de nuage.

2.9.2 Méthode par « eddy covariance »

La méthode eddy-covariance est une technique micrométéorologique employée pour la mesure des flux dans la couche de surface. Elle a été en premier lieu utilisée pour déterminer les transferts de chaleur et de quantité de mouvement pour ensuite, être appliquée à la mesure des flux de gaz. On va considérer **qu'une variable atmosphérique ou scalaire peut être décomposée en une valeur moyenne et une fluctuation turbulente**. Les processus de dépôt ainsi que les processus **d'échange biosphère-atmosphère** sont soumis au transport turbulent (Damay, 2010). Les mouvements turbulents sont généralement liés à des forçages en surface comme le réchauffement radiatif du sol, **le frottement de l'air sur la surface du sol, les gradients de vents**. **C'est pourquoi**, ces mouvements sont représentés par l'intermédiaire de leur spectre d'énergie turbulente.

Dès le début des années 90, la technique a été utilisée comme une méthode directe permettant de **mesurer des flux d'eau déposés par les brouillards et donc d'en déduire le dépôt d'ions au niveau des écosystèmes** (Beswick, Hargreaves, Gallagher, Choularton, & Fowler, 1991; Vong & Kowalski, 1995).

La méthode consiste à calculer la covariance entre les fluctuations de la composante verticale de la vitesse du vent (w') et les fluctuations du contenu en eau liquide dans l'air LWC (L') pour en déduire le flux vertical turbulent d'eau (F_T) (Eq. 5.14).

$$F_T = \overline{w'L'}, \quad (5.14)$$

Le flux total d'eau déposée (F) (Eq. 10) est égal à la somme du flux vertical turbulent (F_T) et du flux gravitationnel (F_G).

$$F = F_T + F_G, \quad (5.15)$$

Pour que la covariance mesurée $\overline{w'L'}$ ait un sens physique, la vitesse verticale du vent et le LWC **doivent être mesurés sur un intervalle de temps plus petit que l'échelle** des mouvements turbulents étudiés. Cela est déterminé par la dimension des instruments de mesure, la stabilité de la couche d'air, la vitesse du vent et la nature de la couche d'air (densité).

La turbulence atmosphérique va être évaluée grâce à un anémomètre ultrasonique avec une haute résolution temporelle, généralement une acquisition à 10 Hz. Compte tenu du théorème de Shannon, l'échantillonnage réalisé à 10 Hz permet de rendre compte au mieux des phénomènes turbulents dont

la fréquence n'est pas supérieure à 5 Hz (phénomène d'aliasing). L'instrument calcule la vitesse du vent grâce à trois paires de capteurs en mesurant le temps que met le signal ultrasonique pour atteindre le capteur de direction opposée à celui générant le signal. Le Fog-Monitor FM-120 va quant à lui mesurer le LWC. Le traitement des données obtenues comprend des tests de qualité permettant de s'assurer que les conditions d'application de la méthode sont bien respectées. Il faut que les fonctions traitées soient stationnaires, sans dérive lente et non linéaires sur la période d'échantillonnage. Les mesures doivent par ailleurs, être faites sur une zone homogène et dégagée dans le plan horizontal. Les flux verticaux de la couche limite de surface ne doivent pas varier de plus de 20% en fonction de la hauteur. Cette technique permet de mesurer de façon directe le flux d'eau déposée par les nuages/brouillards mais elle nécessite des appareils de mesure à haute fréquence idéalement à au moins 10 Hz pour rendre compte des échelles de turbulence de l'atmosphère par temps de brouillard (généralement peu turbulent d'un point de vue qualitatif), et la vérification des conditions d'application très précises en lien avec l'homogénéité de la couche d'air et la stationnarité du LWC ou à défaut des hypothèses fortes sur le respect de ces conditions ; ainsi qu'un traitement du signal élaboré.

2.9.3 Méthode de mesure de masse

Une autre méthode permet de mesurer la masse d'eau déposée par les brouillards directement sur les végétaux. Trautner and Eiden (1988) ont mis au point un système visant à mesurer le dépôt d'eau durant un épisode de brouillard sur des petits épicéas, par pesée.

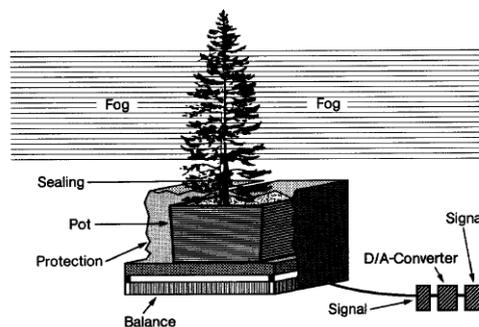


Figure 2.8 : système de mesure du dépôt par le brouillard sur des épicéas de petite taille

L'ensemble de l'installation est représenté sur la figure 2.8, cette dernière se compose d'une balance disposant d'une résolution d'un gramme sur laquelle un épicéa en pot est placé. Les variations de masse mesurées par la balance sont enregistrées sous la forme d'un signal (Trautner & Eiden, 1988).

Les résultats obtenus sont représentés sur la figure 2.9, on observe que pour les 3 événements les courbes sont similaires avec trois phases distinctes. Durant la première phase, Trautner and Eiden (1988) assistent à une augmentation nette de la masse après la formation du brouillard, due selon eux à la formation de rosée. Une deuxième phase se caractérisant par un pic de la masse d'eau mesurée, coïncide avec une diminution de l'humidité relative due à un assèchement relatif de la masse d'air par dépôt (terme puits) et une augmentation de la température. Enfin une troisième phase se distingue par une diminution de la masse d'eau sur l'épicéa due à la coalescence des gouttelettes qui ruissellent de l'arbre. Cette phase correspond également à la dissipation du brouillard qui entraîne une évaporation de l'eau déposée. Pour chaque épisode de brouillard, les valeurs sont comprises entre 41,9 et 60,5 ml.m⁻² de surface d'aiguilles d'épicéa.

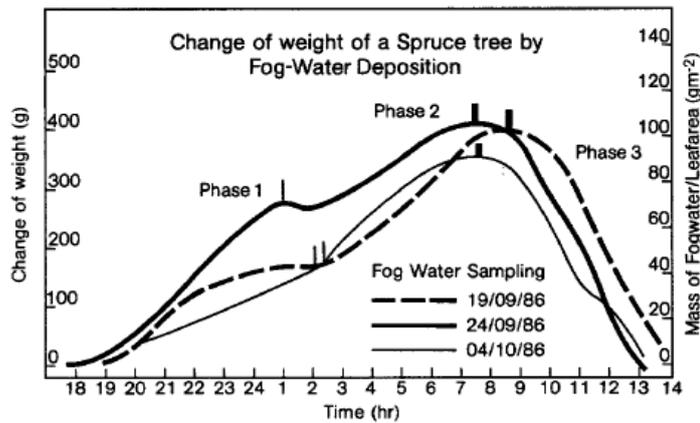


Figure 2.9 : Dépôt de rosée et d'eau de brouillard sur l'épicéa durant 3 événements de brouillards radiatifs (Trautner & Eiden, 1988)

2.10 BILAN DE L'ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

Nous avons vu que les brouillards et les nuages pouvaient représenter une source non négligeable des **dépôts humides, d'ions, de polluants ou de nutriments**, plus importante que dans la pluie. Jusqu'à maintenant cependant, peu d'études ont porté sur la concentration en radionucléides dans les nuages et le brouillard. Lors d'une situation d'accident nucléaire comme celui de la centrale de Fukushima Dai-Ichi, certaines régions fréquemment exposées aux brouillards peuvent être particulièrement touchées par ces dépôts occultes de radionucléides, en particulier si l'accident a lieu à l'automne ou durant l'hiver. Il est donc important de savoir dans quelle mesure ils peuvent participer à la contamination de ces zones.

Dans le cas des dépôts occultes, les études réalisées portent souvent sur les canopées forestières car **les végétaux peuvent facilement capter les gouttelettes d'eau déposée et donc les composés présents dans l'eau**. C'est pourquoi nous nous intéressons aux dépôts sur les végétaux.

Ce type de dépôt dépendant fortement des conditions météorologiques (vitesse et direction de vent, humidité dans l'air, type de nuage et de brouillard) ainsi que du type de surface sur laquelle il est réalisé (prairie, champs, forêt...), il est nécessaire d'effectuer des travaux permettant de quantifier ce dépôt dans diverses conditions et pour un grand nombre d'épisodes de brouillards et de nuages. La particularité de notre étude réside dans l'utilisation d'une combinaison de techniques (mesure de masse, et collecte d'eau de nuage/brouillard) pour quantifier le dépôt par les gouttelettes.

CHAPITRE 3

SITES D'OBSERVATION ET MOYENS DE MESURE

CHAPITRE 3	SITES D'OBSERVATION ET MOYENS DE MESURE	43
3.1	Choix des sites	45
3.1.1	Site d'observation du Puy de Dôme (OPGC/LaMP)	45
3.1.2	Site d'observation du Sirta	45
3.1.3	Station atmosphérique d'Houdelaincourt (OPE-ANDRA)	46
3.2	Instrumentation du site d'Houdelaincourt	48
3.2.1	Instruments de mesures optiques	48
3.2.1.1	Visibilimètre	48
3.2.1.2	PVM-100	49
3.2.1.3	Fog Monitor 120	49
3.2.2	Balances de précision	50
3.2.3	Collecteurs de brouillard	51
3.3	Validation des données du FM-120	52
3.4	Mise en place du protocole expérimental	57
3.4.1	Méthode de pesée test	58
3.4.2	Méthode de pesée	59

Cette page est volontairement laissée blanche pour une impression recto-verso

La mise au point d'une méthode de mesure *in situ* de la masse d'eau déposée par les gouttelettes de brouillard est un des challenges méthodologiques de cette étude. Le choix des sites de mesure constitue également un élément important en termes de représentativité et de **généralisation des résultats obtenus à d'autres situations**. La thèse ayant débuté en octobre 2014, le **choix du site d'Houdelaincourt et une partie de l'installation du matériel** ont été effectués au préalable par l'équipe atmosphérique du LEREN de l'IRSN et l'équipe MNCPA du CNRM afin de pouvoir acquérir les premières mesures dès le démarrage de l'étude.

3.1 CHOIX DES SITES

Le choix des sites de mesure a été soumis à plusieurs conditions. La condition *sine qua non* étant la présence fréquente de brouillard ou de nuage bas. **D'un point de vue logistique, la nécessité d'une source d'alimentation électrique à proximité**, de même que le fait que le site soit sécurisé ont été des prérequis. Durant la thèse, trois sites de mesures ont été instrumentés : **le site d'observation atmosphérique du Puy de Dôme**, la plateforme du SIRTA à Palaiseau et la station atmosphérique de l'ANDRA à Houdelaincourt.

3.1.1 Site d'observation du Puy de Dôme (OPGC/LaMP)

La station d'observation choisie pour l'étude du dépôt par les gouttelettes de nuages est située au sommet du Puy de Dôme (Massif Central) à 1465 m d'altitude, au niveau d'un chalet d'observation appartenant l'Observatoire de Physique du Globe de Clermont-Ferrand (Université/ CNRS/LaMP ; Fig. 3.1 (a)). La ville de Clermont-Ferrand et sa banlieue sont situées à **16 km à l'est du site**, à environ **400 m d'altitude**. La présence du chalet constitue un des avantages du site car cela permet de résider sur le lieu des expérimentations. Cette plateforme de recherche est choisie car des épisodes nuageux fréquents sont observés (~45% du temps), causés par soulèvement frontal ou orographique. Les sites d'altitudes comme le sommet du Puy de Dôme étant influencé par les transports à grande échelle, cela apporte des informations sur la variabilité physico-chimique des masses d'air à l'échelle régionale. Cette station, labélisée en 2015 comme station d'observation globale de l'atmosphère (GAW, Global Atmospheric Watch) par l'Organisation Mondiale de la Météorologie est lourdement instrumentée pour l'étude des propriétés physico-chimiques des aérosols et des cristaux de glace. Des études sur les concentrations de composés connus comme des traceurs anthropogéniques tels que le noir de carbone ou le monoxyde d'azote ont montré que la zone urbaine de Clermont-Ferrand n'a que peu d'influence sur les mesures faites au Puy de Dôme (Deguillaume et al., 2014) en particulier à l'automne et durant l'hiver. En terme de radioactivité, Masson et al. (2015) ont démontré que la concentration des activités de césium 134 et 137 au sommet du Puy de Dôme étaient 40 fois plus importantes dans l'eau de nuage après l'accident de Fukushima que durant la période précédant l'accident.

3.1.2 Site d'observation du Sirta

La plateforme du Sirta est située sur le campus de l'École Polytechnique à Palaiseau en région parisienne. Le site est positionné sur un plateau à environ 160 m au-dessus du niveau de la mer. **L'environnement du site est considéré comme semi-urbain** et comprend des espaces agricoles, des massifs boisés ainsi que des bâtiments et des zones industrielles (Rangognio, 2009). En mars 2015 donc à la fin de la saison brouillard, il a été décidé de nous installer sur le site du Sirta (Fig. 3.1(b)) pour deux semaines. Malheureusement durant cette période aucun épisode de brouillard **ne s'est** manifesté.

3.1.3 Station atmosphérique d'Houdelaincourt (OPE-ANDRA)

Il s'agit d'une station atmosphérique dédiée au suivi climatique, au suivi de la qualité de l'air et aux prélèvements d'air et de particules mise en place par l'Observatoire Pérenne de l'Environnement (OPE) de l'Agence Nationale pour la gestion des Déchets RadioActifs (ANDRA). La station est située sur la commune d'Houdelaincourt dans le département de la Meuse sur un terrain de 2 hectares, entourée de champs, à 1,5 km des habitations et routes les plus proches et à 395 m d'altitude. La particularité de cette région est l'occurrence assez fréquente des brouillards. D'octobre 2014 à février 2015, nous avons recensé 22 périodes de plus de 2 heures pour lesquels la visibilité était inférieure à 1000 m.

L'objectif initial de la thèse étant d'étudier le dépôt de gouttelettes de différents types de brouillards et de nuages, il semblait judicieux d'instrumenter plusieurs sites afin de varier le type d'environnement. Cependant, les expériences ayant mené au développement du protocole expérimental nous ont conduits à nous concentrer sur un site en particulier : celui d'Houdelaincourt (Fig. 3.1(c)).



(a)



(b)



(c)

Figure 3.1 - Site expérimental de l'OPGC au Puy de Dôme (a), du Sirta à Palaiseau (b) et de l'OPE à Houdelaincourt (c).

3.2 INSTRUMENTATION DU SITE D'HOUDELAINCOURT

L'objectif d'un point de vue expérimental, est de mettre en place un système de pesée suffisamment sensible pour permettre la mesure du dépôt des gouttelettes de brouillard sur les végétaux, présentant également des caractéristiques en termes de robustesse vis-à-vis des intempéries (humidité et froid) et de simplicité de mise en œuvre. Cette simplicité doit également se retrouver au niveau de la méthodologie de pesée des échantillons exposés aux brouillards. Parallèlement à cela, la mesure de l'activité de l'eau de brouillard collectée grâce à des collecteurs de brouillard est réalisée dans le but de déterminer la quantité de radionucléides susceptibles de se déposer via les brouillards. La caractérisation des brouillards est obtenue à l'aide d'instruments de mesures optiques.

3.2.1 Instruments de mesures optiques

3.2.1.1 Visibilimètre

Un visibilimètre (Sentry Visibility Sensor, Envirotech Sensors Inc.) est utilisé pour mesurer la visibilité (Fig. 3.2). Il s'agit précisément d'un diffusomètre. Le visibilimètre est composé d'un support vertical et de deux bras, supportant les deux blocs : émetteur et récepteur d'un signal lumineux. Les bras plongent légèrement vers le bas afin de protéger les optiques des salissures. La détermination de la visibilité repose sur le fait que la diffusion du signal est proportionnelle à la densité de particules en suspension et la visibilité est inversement proportionnelle à l'intensité du signal diffusé reçu. La mesure de la diffusion du flux lumineux, permet de calculer le coefficient d'extinction (β). La visibilité horizontale Vis (m) est reliée au coefficient d'extinction β (m^{-1}) par la relation 3.1 :

$$Vis = -\frac{\ln(0,05)}{\beta} \quad (3.1)$$

Lorsque la visibilité devient inférieure à 1000 m, on peut considérer la présence de brouillard. Les mesures de visibilité doivent être couplées aux mesures de LWC pour s'assurer qu'il s'agit bien d'un épisode de brouillard et non pas de pluie ou de neige.



Figure 3.2 - Visibilimètre installé sur site d'Houdelaincourt.

3.2.1.2 PVM-100

Le PVM-100 (Particulate Volume Monitor), développé par Gerber Scientific Inc. (Gerber, 1991) est un spectromètre laser qui mesure **la quantité d'eau liquide dans l'air (LWC) en $\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$** (Fig. 3.3). Le PVM-100 **utilise un laser dont la longueur d'onde est de 780 nm**. Lorsque le faisceau laser rencontre les gouttelettes de brouillard, la lumière est diffusée puis collectée par un système de lentilles qui dirige ce faisceau vers deux filtres. Le premier filtre convertit le rayonnement diffusé en un signal électrique proportionnel à la densité volumique des gouttes, donc au LWC ; le second produit un signal proportionnel au PSA (Particle Surface Area). Seules, les particules liquides comprises entre 3 et 45 microns sont prises en compte et cela permet de mesurer des LWC allant de 0,002 à 10 $\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ avec une précision de 15%.



Figure 3.3 - PVM et FM-120 (pompe située dans la caisse grise) installés sur le site d'Houdelaincourt.

3.2.1.3 Fog Monitor 120

Le FM-120 (Fig. 3.3) développé par DMT est un spectromètre qui mesure la distribution en taille des gouttelettes de nuage à très grande fréquence (**jusqu'à 10Hz**) pour des particules dont la taille est comprise entre 2 et 50 microns.

Son principe de fonctionnement est basé sur la théorie de Mie, selon laquelle il existe une solution aux équations de Maxwell si l'on se trouve dans un milieu hétérogène avec comme hypothèses : une lumière incidente monochromatique, une particule sphérique homogène et isotrope, un milieu de dispersion non absorbant et dans le cas d'un phénomène de diffusion simple. Cette théorie permet de montrer que la figure de diffraction dépend de la taille de la particule et des indices de réfraction des deux milieux.

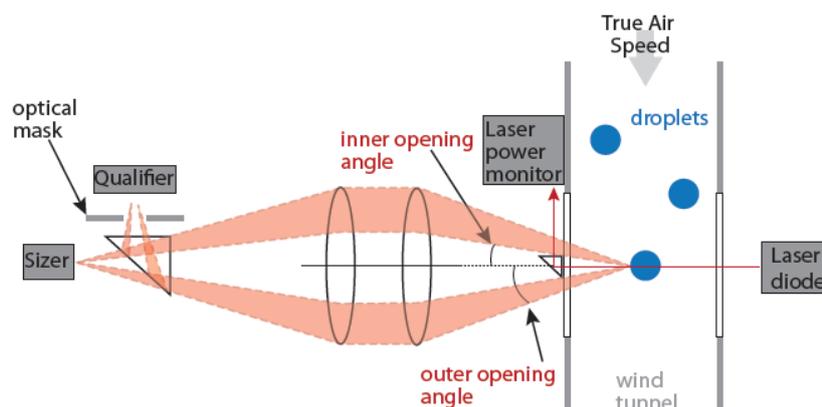


Figure 3.4 - Vue schématique des différentes étapes conduisant à la mesure des gouttelettes de nuages avec en rouge la lumière diffusée par les gouttelettes (Spiegel et al., 2012).

La figure 3.4 illustre le fonctionnement du FM-100 identique à celui du FM-120. Une pompe aspire un certain volume d'air ambiant (débit d'échantillonnage = $1\text{ m}^3.\text{min}^{-1}$) à l'intérieur de l'appareil. En premier lieu, les gouttelettes atteignent la zone d'évaluation des tailles, où elles traversent un faisceau laser de longueur d'onde égale à 658 nm. La lumière est diffusée selon un angle compris entre 3° et 12° par rapport à la direction du laser. Cette lumière est envoyée vers une paire de photodétecteurs. Ces récepteurs vont traduire ce signal lumineux en un signal électrique directement proportionnel à l'intensité de la lumière diffusée. Pour s'assurer d'une bonne mesure de la taille des gouttelettes, les particules détectées doivent être dans la profondeur de champ de l'instrument ou « Depth Of Field » (DOP) qui correspond à la région où la puissance du laser est uniforme. Le prisme représenté sur la figure 3.4 dirige un tiers de la lumière diffusée vers le « sizer » et deux tiers vers le « qualifier ». Si la particule à l'origine de la diffusion était dans le DOF, le « qualifier » va émettre un signal plus intense que le « sizer ».

Derrière la zone d'évaluation des tailles, un tube de Pitot mesure la vitesse dans la veine (« wind tunnel » sur le schéma) afin de déterminer le volume et le débit d'échantillonnage.

Le LWC peut être alors calculé à partir du nombre de gouttelettes comptées, de leurs tailles et du volume d'air échantillonné.

3.2.2 Balances de précision

La mesure de la masse d'eau déposée est effectuée grâce à des balances de précision KA15s développé par METTLER TOLEDO. La balance KA15s peut peser une charge maximale de 15 kg avec une précision de 0,1 g. Les dimensions du plateau de la balance sont de 350x280 mm soit environ $0,1\text{ m}^2$. Cette balance a été choisie car elle peut être utilisée en extérieur dans des conditions de forte humidité, elle bénéficie d'ailleurs d'un indice de protection IP 67 garantissant une protection contre les poussières et les effets d'immersion jusqu'à un mètre.



Figure 3.5 - Balance de précision et afficheur

3.2.3 Collecteurs de brouillard

Les différentes méthodes de collecte de l'eau de brouillard sont décrites dans la partie 2.6 de ce mémoire. Dans le cadre de nos expériences, nous avons principalement utilisé un type de collecteur similaire au CASCC (CALTECH Active Strand Cloudwater) décrit par Demoz (1996). Afin de récolter le **maximum d'eau de brouillard durant un épisode, plusieurs collecteurs** de ce type ont été fabriqués par le LEREN pour les campagnes de brouillard. **Il s'agit de copies du CASCC2 (Fig. 3.6(a)) de 14,6 cm de côté disposant d'un ventilateur 4114N/2H5 (ebmplast) pour un débit de $390 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ et d'une surface d'impaction composé de fils (Fig. 3.7). Des petits collecteurs composés d'un tube PVC de 12,5 cm de diamètre et du même type de ventilateurs sont également testés durant la campagne 2014-2015 (Fig. 3.6(b)), ce sont ce que nous appelons les collecteurs « tube ». La surface d'impaction disposée à l'intérieur du collecteur tube est constituée d'une toile de moustiquaire. La facilité de fabrication et le faible coût de ces collecteurs permettent d'avoir un nombre important de ces derniers sur le site. En revanche, le rendement de collecte reste faible, voire nul, en cas de brouillard givrant, ils ne seront plus utilisés pour les campagnes 2015-2016 et 2016 à Houdelaincourt.**

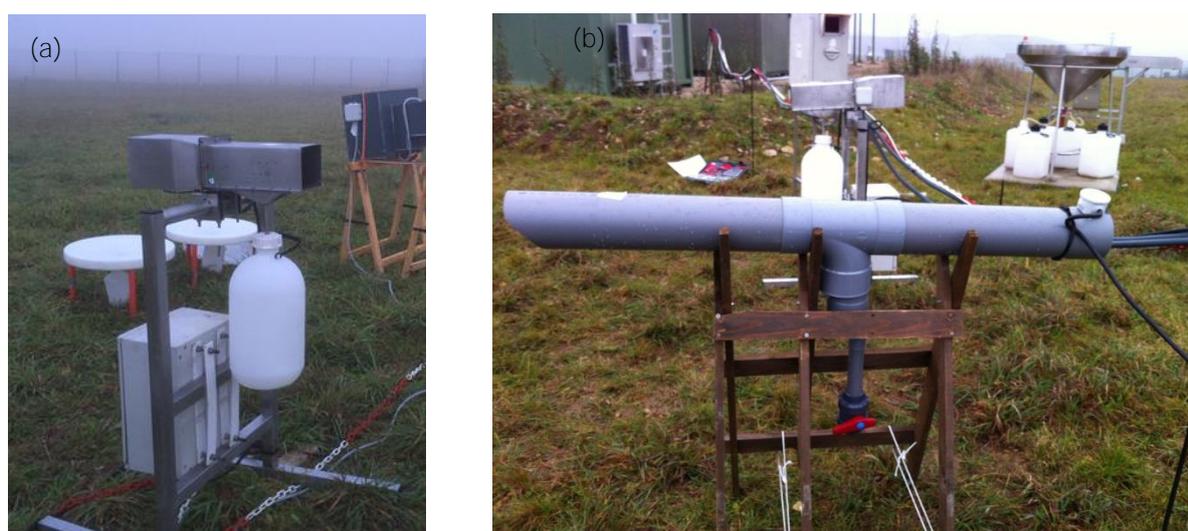


Figure 3.6 - Collecteurs de brouillards : copie du CASCC (a) et collecteur tube (b).

Afin de remplacer ces collecteurs, des collecteurs CASCC à grand débit sont développés à partir de plaque de PVC et de ventilateur dont le débit est de $2700 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$. **La section de passage du flux d'air est de $20 \times 20 \text{ cm}$. Les surfaces d'impaction de ces collecteurs sont au nombre de trois et sont composées de fils de nylon de $0,5 \text{ mm}$ de diamètre tendus entre deux tiges filetées, écartées d'environ 18 cm . Les surfaces d'impaction ainsi formées, sont disposées l'une derrière l'autre avec un angle de 60° environ par rapport à la verticale. De cette façon, les gouttelettes qui viennent s'impacter sur les fils coulent en partie basse de la surface d'impaction avant d'être récupérées dans un entonnoir commun aux trois grilles pour être dirigées vers un flacon.**

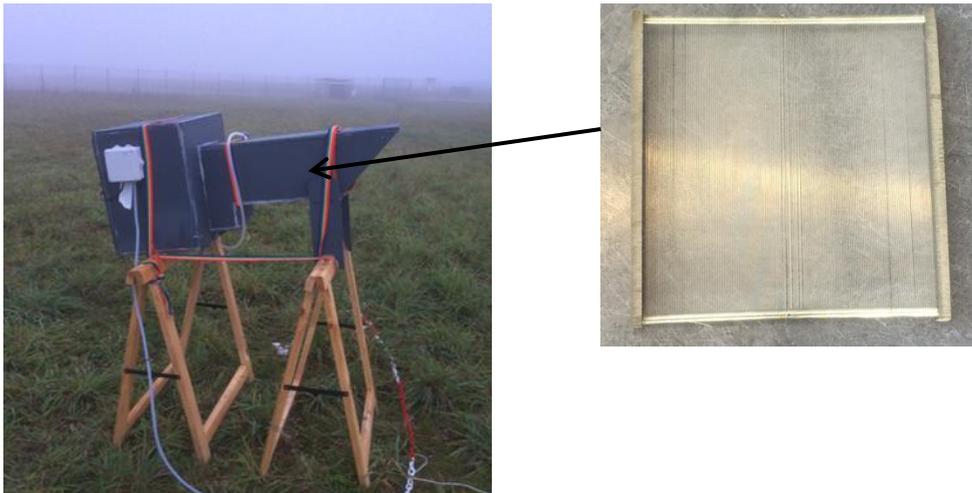


Figure 3.7 - Collecteur de brouillard grand débit et une de ses surfaces d'impaction.

La vitesse au niveau des fils pour ce collecteur est de $19 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ soit plus de 2 fois la vitesse au niveau des fils du CASCC2 (Tab 2-1). **Les quantités d'eau récoltées par les collecteurs gros débits sont plus importantes que pour la copie du CASCC.**

Durant la dernière campagne à Houdelaincourt, les collecteurs sont rincés abondamment et nettoyés, avant et après les épisodes de brouillard. En cas de non utilisation prolongée, ils sont également **protégés à l'aide de sacs plastiques**. En 2015-2016, le déclenchement des collecteurs est automatique lorsque la visibilité est inférieure à 1000 m .

3.3 VALIDATION DES DONNEES DU FM-120

Dans le cadre de nos expériences, nous disposons de plusieurs instruments de mesure du LWC : le PVM-100, le FM-120 **ainsi qu'un second PVM-100 et un FM-100 mises à disposition par l'équipe GMEI/MNPCA du CNRM**. Afin de valider les données fournies par le FM-120, une comparaison du FM-120 et du FM-100 est réalisée. Le FM-100 est quasi-identique au FM-120, ils ne diffèrent que par la **présence d'un « swivel » pour le FM-120, il s'agit d'un coude rotatif monté sur roulement à billes et muni d'un empennage permettant d'orienter le prélèvement dans la direction du vent**. Le FM-100 (Fig. 3.8) est équipé d'un cône de prélèvement fixe.

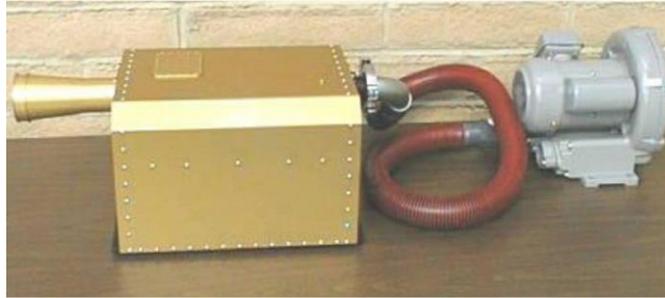


Figure 3.8 - Fog Monitor 100 et sa pompe (CNRM-GMEI/MNCPA)

Le type d'embout placé au niveau de l'entrée d'air de l'appareil peut créer un biais de mesure. En effet, les conditions d'isocinétisme et d'isoaxialité du prélèvement doivent être vérifiées pour que l'échantillon de gouttelettes prélevé par les appareils soit représentatif du système étudié. Le prélèvement est considéré isocinétique, lorsque la vitesse de l'air ambiant est similaire à la vitesse d'aspiration de l'air. Pour les appareils de mesure *in situ*, la vitesse d'aspiration de l'appareil et la vitesse ambiante de l'air doivent être du même ordre de grandeur. Les conditions d'isoaxialité du prélèvement sont quant à elles respectées lorsque les lignes de courants de l'écoulement extérieur et l'axe de la buse d'entrée de l'appareil sont parallèles. Cela signifie que l'instrument doit être orienté dans la direction du vent. Etant donné que le FM-100 dispose d'un cône de prélèvement fixe, les conditions d'isoaxialité ne sont pas respectées. Le « swivel » dont est équipé le FM-120 a été développé par DMT pour répondre à cette problématique mais il est possible que de par sa structure coudée, le prélèvement soit perturbé.

Le PVM-100 de l'IRSN ayant connu des problèmes techniques durant une grande partie des campagnes, il ne sera pas pris en compte dans cette intercomparaison.

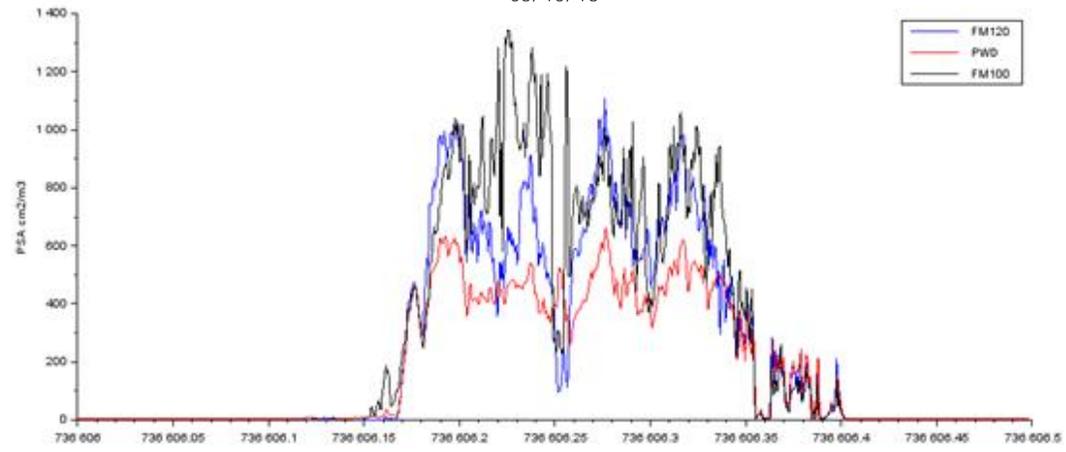
Les données du FM-100 et du FM-120 sont comparées pour cinq épisodes de brouillard. Les données d'un troisième appareil un Present Weather Detector (PWD) installé par l'équipe du CNRM sont également comparées à celles des Fog Monitors. Le PWD est un instrument optique utilisé pour des observations automatiques du temps. Il mesure la visibilité ainsi que l'intensité, la quantité des précipitations. S'agissant d'un visibilimètre, il est nécessaire d'utiliser un paramètre autre que le LWC, pour comparer ces trois appareils. La PSA (Particle Surface Area) en $\text{cm}^2 \cdot \text{m}^{-3}$ est ainsi calculée (Eq. 3.2), elle correspond à l'aire représentée par les gouttelettes. La PSA est aussi égale à deux fois le coefficient d'extinction β .

$$PSA = \sum 4\pi N(r)r^2 dr = 2 \times \beta \quad (3.2)$$

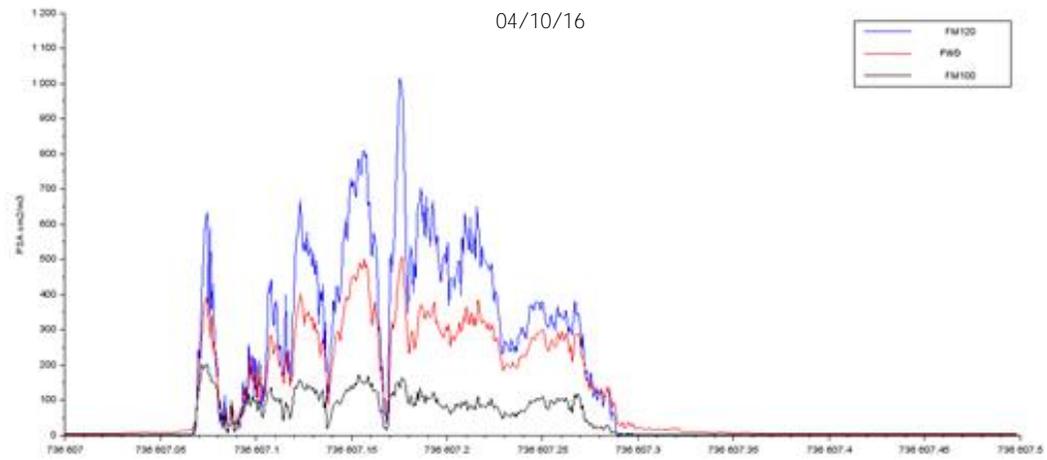
Avec $N(r)$ la concentration des gouttelettes de rayon r , et r le rayon de la gouttelette.

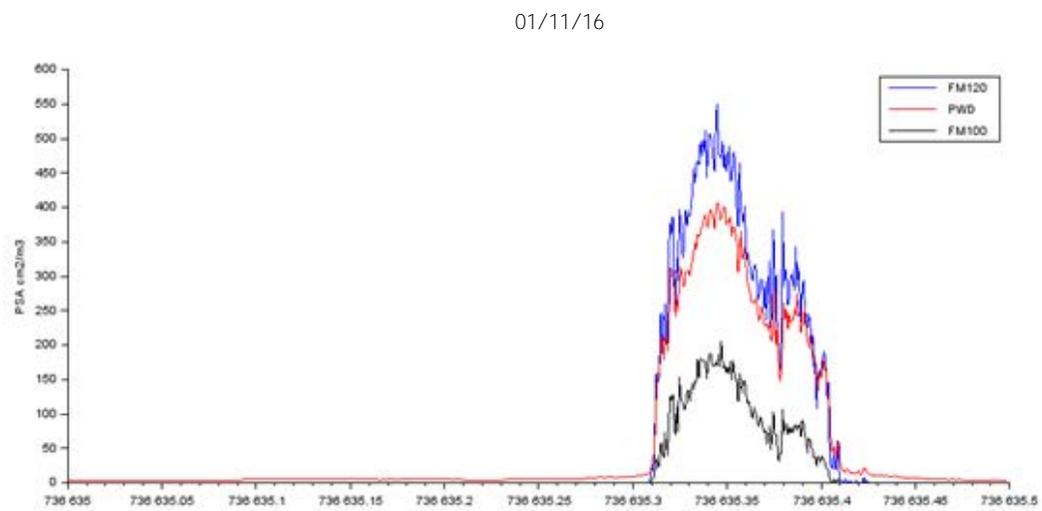
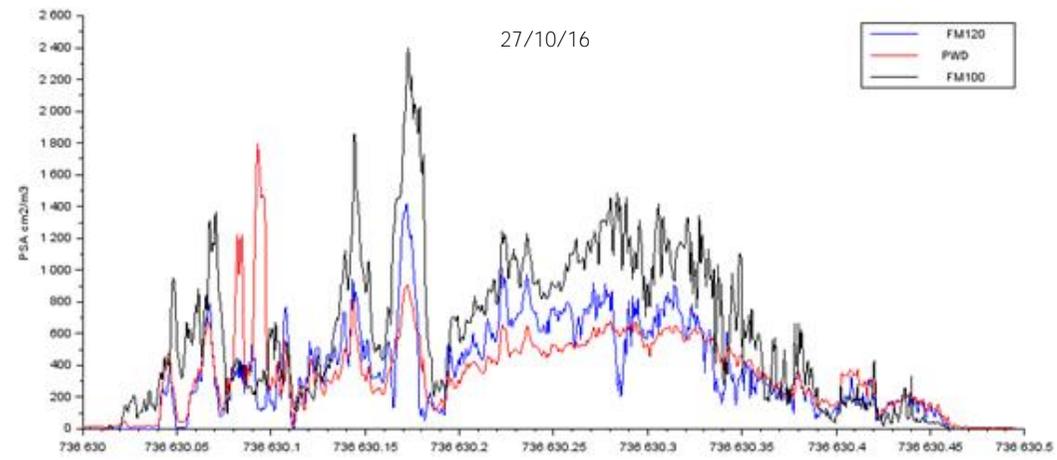
La figure 3.9 montre que pour les brouillards du 03/10, le 27/10 et le 02/11, les valeurs de PSA concordent pour les trois instruments. Le 03/10, les valeurs de PWD sont beaucoup plus faibles mais cela est probablement dû à la présence d'un brouillard peu développé en hauteur, le PWD se trouve en effet à 50 m de hauteur. Pour le 04/10 et le 01/11, on suppose au vu des différences entre le FM-100 et les deux autres instruments qu'il s'agit d'un problème lié à la direction du vent. Le FM-100 n'étant pas orienté dans la direction du vent, cela pourrait expliquer ces faibles valeurs de PSA.

03/10/16



04/10/16





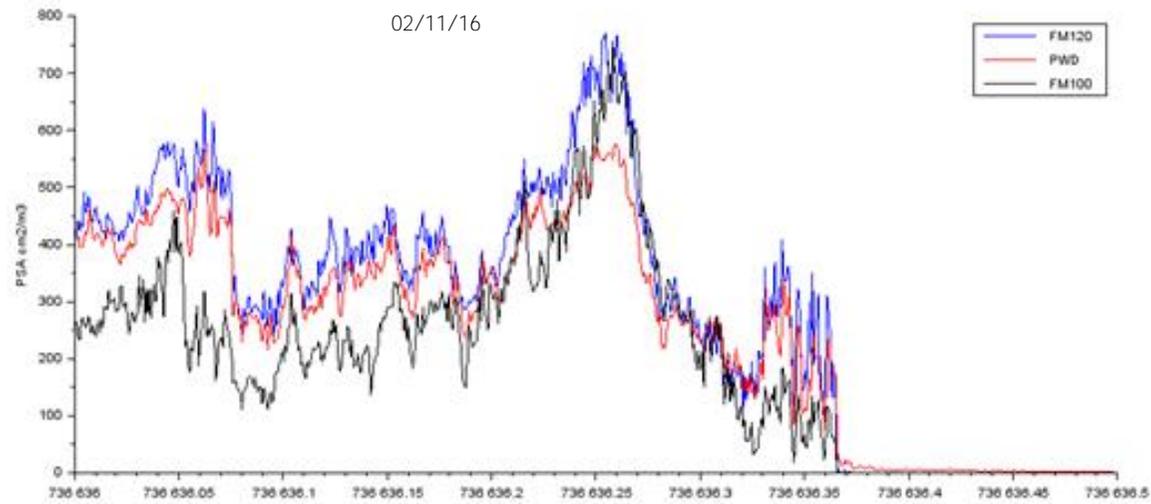


Figure 3.9 - Intercomparaison du PSA mesuré par le FM-100, le FM-120 et le PWD pour cinq épisodes de brouillard de la campagne 2016

Tableau 3-1 - Coefficients de corrélation (R) et pentes (a) pour l'intercomparaison de la PSA entre le FM-100, le FM-120 et le PWD.

	FM-120/FM100	FM-100/PWD	FM-120/PWD
03/10/16	R=0,84 / a=0,80	R=0,86/a=1,64	R=0,92/a=1,41
04/10/16	R=0,82/a=4,05	R=0,89/a=0,35	R=0,95/a=1,53
27/10/16	R=0,66/a=0,57	R=0,41/a=1,51	R=0,48 /a=0,94
01/11/16	R=0,98/a=3,00	R=0,95/a=0,39	R=0,98/1,21
02/11/16	R=0,80/a=1,31	R=0,80/a=0,81	R=0,97/a=0,81

Pour comparer les valeurs de PSA des trois instruments, la PSA de chaque instrument est tracée en fonction des deux autres. Le tableau 3-1 permet de compléter la figure 3.9 en présentant, les coefficients de corrélation et les pentes des valeurs de PSA des trois instruments pour les cinq épisodes **de brouillard étudiés. On remarque, qu'à l'exception du 27/10, il existe une bonne corrélation** des valeurs de PSA entre le FM-120 et le PWD. Les coefficients de corrélations obtenus par la comparaison **FM-100/PWD sont relativement élevés sauf pour le 27/10. Cela s'explique par la présence d'un pic de PSA** pour le PWD non mesuré par les deux Fog Monitors. Les faibles pentes de la comparaison **FM-100/PWD sont liées à l'orientation du FM-100** par rapport au vent et donc à la sous-estimation du nombre de gouttelettes par ce dernier. Quant à la comparaison FM-120/FM-100, les coefficients de corrélation sont **relativement bons ce qui signifie qu'en terme de tendance dans l'évolution du** nombre de gouttelettes, il y a concordance. En revanche, pour les pentes du 04/10, du 27/10 et du 01/11, les valeurs diffèrent.

Ces résultats permettent de montrer que les mesures du FM-120 utilisés dans la suite de ce travail sont valides pour les épisodes étudiés. **Ils laissent aussi supposer que l'utilisation du « swivel » peut améliorer la qualité de l'échantillonnage des gouttelettes. Pour définir avec certitude l'amélioration** apportée par le « swivel » sur la représentativité des diamètres de gouttelettes et de la valeur du LWC par le Fog Monitor, une intercomparaison sur un nombre plus important de brouillards est indispensable.

3.4 MISE EN PLACE DU PROTOCOLE EXPERIMENTAL

Durant les premières campagnes de brouillard 2014-2015, **l'enjeu principal a été de mettre au point un protocole de pesée du dépôt d'eau de brouillard sur les plantes. Le premier site instrumenté a été celui d'Houdelaincourt, d'octobre 2014 à février 2015.** Durant cette première saison de brouillard, la méthode de pesée « test » a été mise au point.

3.4.1 Méthode de pesée test

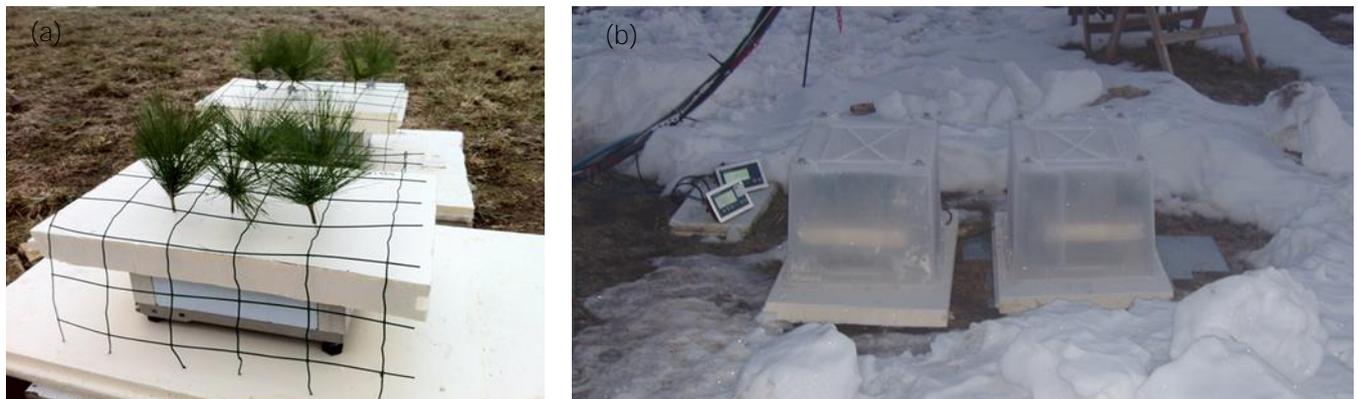


Figure 3.10 - Dispositif comprenant les balances, les plantes et le grillage(a) et le dispositif lors des pesées avec les protections plastiques.

Les surfaces de dépôt étaient constituées de plantes synthétiques avec des feuilles de type aiguille (Fig. 3.10 (a)). **Afin de prendre en compte un effet d'écrantage possible**, dû à la présence des plantes synthétiques, deux types de surfaces fixées chacune sur une balance ont été exposées au brouillard. Une première surface en polystyrène sur laquelle sont implantées les plantes et une seconde surface en polystyrène au-dessus de laquelle un grillage est placé. Pour cette seconde surface, les plantes sont fixées au grillage et non pas implantées sur la surface en polystyrène. Il est à noter comme le montre la figure 3.10 (a), **que le grillage n'est pas en contact avec la surface** en polystyrène fixée sur le plateau de la balance. **La seconde balance permet ainsi de mesurer la masse d'eau déposée par les gouttelettes de brouillard sur la surface en polystyrène exclusivement.** Les plantes synthétiques étant fixés au grillage, elles ne sont pas pesées par la balance mais du fait de leur position au-dessus de la surface **forment un effet d'écran partiel** (filtre) au dépôt des gouttelettes sur la surface polystyrène. La première balance sur laquelle repose les plantes fixées dans la surface polystyrène, permet de **mesurer la masse d'eau de brouillard déposée sur les plantes et sur le polystyrène.** **Il est alors possible de déterminer la masse d'eau déposée sur les plantes en soustrayant la masse d'eau déposée sur le polystyrène de la balance 2, de la masse d'eau déposée sur les plantes et le polystyrène de la balance 1.** Les deux types de surfaces sont exposés au brouillard pendant 20 minutes puis elles sont **recouvertes d'un** capot de protection afin de procéder à la pesée dans des conditions de stabilité vis-à-vis des perturbations induites par le vent (Fig. 3.10 (b)). Les surfaces sont ensuite de nouveau découvertes et exposées au brouillard et les pesées sont répétées ainsi de suite tout au long de **l'épisode de brouillard.** **L'utilisation de plantes synthétiques** a permis de réaliser des mesures sur des surfaces parfaitement **identiques d'un épisode à l'autre tout au long de la saison.** **En revanche, la surface de dépôt représentée par les plantes synthétiques est très différente de plantes, c'est pourquoi le dispositif de pesée a été modifié pour pouvoir peser directement des plantes vivantes** (pesée de bacs comprenant des plantes et de la terre).

Pour cette première saison de brouillard la principale difficulté fut d'être présent sur site en cas de prévision d'un épisode de brouillard. En effet, le LEREN (laboratoire d'accueil) étant basé à Cadarache (Bouches-du-Rhône), les missions brouillard étaient réalisées seulement sur quelques jours. Ainsi sur **la période d'octobre 2014 à février 2015, sept missions ont été effectuées.** Le départ pour Houdelaincourt **n'était envisagé qu'en cas de prévisions** de brouillard sur la région avec un indice de confiance élevé.

Le même dispositif de pesée a également été testé durant huit épisodes nuageux à la station du Puy de Dôme en juin 2015. Les vitesses de vent importantes au sommet du Puy de Dôme, ont rendu très difficile la stabilisation de la balance lors des pesées malgré la présence des capots de protection. Aucune donnée provenant des huit épisodes ne sont présentées, dans la suite du manuscrit, car nous **n'avons pas pu obtenir des mesures de dépôt fiables.**

Pour des raisons logistiques, les sites du Puy de Dôme et du Sirta ont été abandonnés après la première **année pour nous concentrer sur le site d'Houdelaincourt. En effet, cette première année a soulevé de nombreuses difficultés quant à l'organisation des missions brouillard. Le brouillard étant un phénomène météorologique assez localisé et complexe à prévoir, cela nécessite une grande réactivité et disponibilité des équipes. Par ailleurs les conditions de réalisation du travail de nuit, en extérieur et sur un site non IRSN ont fortement compliqué la gestion et l'organisation des missions.**

3.4.2 Méthode de pesée

Pour la seconde saison de brouillard qui a débutée en septembre 2015, différents types de plantes non synthétiques ont été utilisés pour les pesées : des cyprès (*Cypressus gold crest*), des graminées (*Carex panacea*) et des choux (*Brassica oleracea*). Une surface de sol nu, composée de terre a été également soumise aux pesées. Ces végétaux ont été choisis pour représenter des surfaces de dépôts **présentes dans l'environnement. Il s'agit de modèles réduits des canopées forestières** de conifères pour les cyprès, de prairie pour les graminées et de champs de « légumes-feuilles » pour les choux. Les végétaux sont plantés dans des bacs en plastiques de 705x400x165 mm représentant chacun une surface spécifique de dépôt (Fig. 3.11). Durant la campagne 2015-2016, tous les bacs ont été exposés au brouillard durant 20 minutes puis pesés sur la balance de précision. Pour chaque épisode de brouillard étudié, tous les bacs sont pesés avant exposition. La balance est placée dans une chambre **de pesée hermétique aux courants d'air** pour éviter les fluctuations de masse induites par le vent. **L'ensemble** du dispositif de pesée est installé dans une tente (Fig. 3.12) **à l'abri des intempéries.**

La masse totale (TM) incluant la masse du bac, des plantes, de la terre et de l'eau de brouillard déposée est donc enregistrée toutes les 20 minutes (Δt). La variation de masse (Δm) au temps $t + \Delta t$ est déterminée à partir de l'équation 3.1 suivante :

$$\Delta m(t + \Delta t) = TM(t + \Delta t) - TM(t) \quad (5.1)$$

L'eau qui ruisselle des plantes jusqu'au sol fait également partie de la masse totale (TM). On considère que la variation de masse (Δm) provient du dépôt par les gouttelettes de brouillard. La **masse d'eau déposée par unité de temps et de surface correspond au flux net d'eau de brouillard déposée. Lorsque le processus d'évaporation commence, le flux d'eau déposée diminue pour tendre vers zéro et les pesées sont arrêtées.**



Figure 3.11 - Les différentes surfaces de plantes de la campagne 2015-2016 : (a) les cyprès, (b) les graminées, (c) les choux, (d) le sol nu.



Figure 3.12 - Tente dans laquelle sont placées la balance de précision et la chambre de protection représentée ici avec le panneau avant enlevé permettant ainsi de déposer le bac à peser sur le plateau de la balance situé sous la plaque de polystyrène en partie basse.

Pour la campagne 2015-2016, les **missions brouillards n'ont permis** de suivre que deux épisodes, malgré une organisation améliorée permettant des départs plus fréquents. La fin de cette seconde saison de brouillard a été marquée par une tempête, le 9 février 2016, ayant entraîné la chute de la remorque sur laquelle était installée **l'ensemble** des instruments de mesure. Le PVM Gerber endommagé, fut donc envoyé pour réparation/calibration à *Gerber Inc.* aux Etats-Unis et le FM-120 pour le réalignement des optiques par **l'équipe du MNCPA du CNRM à Toulouse**. **Aucun site n'a donc** été instrumenté avant la saison suivante de brouillard à Houdelaincourt.

Pour la campagne automne / hiver **2016**, **l'installation des instruments et de l'équipement a été** réalisée fin septembre, pour un départ du site en décembre 2016. Le protocole expérimental est resté quasiment identique pour cette dernière campagne de brouillard. A la place de la tente, un module de chantier a été installé sur le site. Cela a permis, **d'une part**, de nous affranchir encore plus des **perturbations dues aux vents pour la pesée et d'autre part**, de pouvoir installer une seconde balance **afin d'effectuer des pesées plus fréquentes (toutes les 10 minutes)**. **En termes logistiques**, la présence **d'un gardien sur le site en permanence** a permis de réaliser les pesées en étant seule alors que pour les autres campagnes la **présence d'un accompagnateur s'était avérée indispensable pour des** questions de sécurité **(pas de travail isolé pour l'expérimentateur)**.

Un système d'alerte reliant une centrale d'acquisition (Datataker, DT80) enregistrant les données du PVM et du visibilimètre à un hub, **permettait d'envoyer** un SMS lorsque la visibilité passe sous les seuils de 5000 m (pré-alerte) et de 1000 m (présence du brouillard). **De plus, il m'a été possible de** résider à proximité du **site d'expérimentations (20 km)** avec en soutien un membre du LEREN (trois **personnes d'astreinte susceptible de partir en missions brouillard durant toute la campagne**). **L'ensemble de ces améliorations a conduit à l'obtention de données de pesée exploitables pour six** épisodes de brouillard.



Figure 3.13 - Module de chantier dans lequel sont réalisées les pesées durant campagne 2016.

Le développement du protocole expérimental de pesée constituait un des objectifs techniques de ce travail **de thèse**. **Une grande partie de la thèse a d'ailleurs été consacrée aux expérimentations de terrain**. Pour chaque campagne, lors de l'installation de l'ensemble des instruments, des modifications étaient faites au vu des résultats obtenus durant la saison de brouillard précédente afin **d'améliorer le dispositif**. **Dans les chapitres suivants, les résultats de ce travail sont donc présentés** en fonction de la saison de brouillard au cours de laquelle ils ont été obtenus du fait des conditions expérimentales différentes.

CHAPITRE 4

ANALYSE DES DONNEES DES CAMPAGNES BURE 2015 ET 2016

CHAPITRE 4	ANALYSE DES DONNEES DES CAMPAGNES BURE 2015 ET 2016 .	63
4.1	Dépôt par les gouttelettes de brouillard de la campagne 2015.....	65
4.2	Dépôt par les gouttelettes de brouillard de la campagne 2016.....	91
4.2.1	Comparaison des épisodes de brouillard à partir des paramètres microphysiques.	91
4.2.1.1	Influence du LWC sur le dépôt	93
4.2.1.2	Influence du diamètre des gouttelettes sur le dépôt	94
4.2.1.3	Influence de la concentration en gouttelettes sur le dépôt	96
4.2.2	Etude du dépôt des gouttelettes de brouillards des épisodes de la campagne 2016.....	97
4.2.2.1	Influence des surfaces de dépôt et des paramètres microphysiques.....	97

Cette page est volontairement laissée blanche pour une impression recto-verso

Durant cette thèse, la masse d'eau déposée au sol et sur différents types de surface végétale par les gouttelettes de brouillard a été mesurée pour 9 événements de brouillards à Houdelaincourt. Trois campagnes ont été réalisées : une première d'octobre 2014 à février 2015, une deuxième d'octobre 2015 à février 2016 et enfin une dernière campagne de septembre 2016 à décembre 2016. La première campagne correspondant au début de la thèse, le dispositif de pesée n'était pas encore au point et faisait l'objet de tests. Les événements de brouillard présentés ci-dessous correspondent donc aux résultats pour l'automne 2015 (2 événements) et pour l'automne-hiver 2016 (7 événements). Une distinction a été faite entre les événements de la campagne 2015 et ceux de la campagne 2016 car les surfaces de dépôts végétales utilisées ne sont pas identiques d'une campagne à l'autre. En effet, les cyprès utilisés en 2016 ayant des circonférences plus importantes qu'en 2015, le nombre maximum de cyprès en 2016 est de 6 contre 23 en 2015. Le dépôt est exprimé en quantité d'eau par unité de surface au sol, il est donc nécessaire d'avoir des surfaces végétales comparables d'un épisode de brouillard à un autre.

4.1 DEPOT PAR LES GOUTTELETTES DE BROUILLARD DE LA CAMPAGNE 2015

Durant la campagne 2015, la méthode de pesée est appliquée à 2 épisodes de brouillard. Les résultats obtenus ont fait l'objet d'une publication dans le journal *Aerosol and Air Quality Research* qui est reproduite *in extenso*.

Determination of fog-droplet deposition velocity from a simple weighing method

Jackie Tav*¹, Olivier Masson¹, Frédéric Burnet², Pascal Paulat¹, Thierry Bourrienne², Sébastien Conil³, Laurent Pourcelot¹

¹ *Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), LEREN,*

Cadarache, Bâtiment 153, Saint Paul-lez-Durance, 13115, France

² *Météo-France/CNRS, CNRM/GAME, 42, avenue Gustave Coriolis, Toulouse 31000, France*

³ *ANDRA/ OPE, Centre de Meuse/Haute-Marne - 55290 Bure*

Abstract

Fog water deposition can represent an important part of the atmospheric water, nutrient and pollutant inputs in specific areas such as mountainous or coastal regions (Hikari Shimadera et al., 2011). In order to determine the potential of fog water deposition on plants, a field experiment has been performed in the northeast of France to determine fog droplet deposition velocity on different types of plants. The main objective is to improve deposition models and make them prone to accurately take into account fog or low-cloud water inputs at ground level.

Flux of deposited fogwater was estimated by exposing plants to fog and weighing them with a precision balance. Contrary to other flux measurement methods, the weighing method is simple to set up. Three plant types (small conifers, grass and cabbages) plus a bare soil were used as impaction and deposition surfaces. A Particulate Volume Monitor (PVM-100) provides the liquid water content (LWC) to calculate fog droplet deposition velocities and a Fog Monitor (FM-120), the characterization of the droplet size distribution.

Two fog events with different features (visibility, LWC and droplet number) were compared with regard to deposition velocity.

When wind speed was below 4 m s^{-1} , mean fog droplet deposition velocities ranged from less than 2.2 cm s^{-1} on bare soil to 40 cm s^{-1} on cypress. Thus impaction of fog droplets can be an important part of fogwater deposition on plants.

Keywords: Atmospheric aerosols; Liquid water content; Fog; droplets; Aerosol deposition; Measurement techniques; Leaf area index.

INTRODUCTION

It has been reported that fog water deposition can have a significant impact on plant canopies regarding its contribution to the water budget and the chemical exposition of the canopy (Weathers & Likens, 1997). Studies about fog water inputs on forest canopies have shown that ecosystems are exposed to higher ion concentrations through fog water than through precipitation (Collett Jr et al., 2002; Fenn & Kiefer, 1999; Hikari Shimadera et al., 2011; Thalmann et al., 2002; Watanabe et al., 2006). Besides, acidic fogs are directly related to forest decline (Barker & Ashenden, 1992; Cape, 1993; Igawa et al., 2002; Pandis et al., 1990; Schemenauer, 1986). Fog water deposition could also explain some of the differences in soil contamination between deposition models and fields observations after the Fukushima accident (Hososhima & Kaneyasu, 2015; Katata, 2014). Deposition rate and deposition velocity values can be directly incorporated in operational models used in emergency situations. The deposition of fog droplets is a phenomenon rarely taken into account in deposition models of pollutants and even in the fog life cycle modelling. Actually, the removal of liquid water from the atmosphere as a result of fogwater deposition can affect the formation and development processes of fog (Mazoyer, 2016). Techniques developed to assess fog water deposition fluxes usually include throughfall (Pahl et al., 1995), canopy water balance method (Lovett, 1988) and the eddy covariance method (Beiderwieden, Wolff, Hsia, & Klemm, 2008; Dollard & Unsworth, 1983; Eugster, Burkard, Holwerda, Scatena, & Bruijnzeel, 2006; Vong & Kowalski, 1995). Even though the canopy water balance method is direct and simple, uncertainties are important because it requires knowledge of the canopy characteristics (leaf area, 3D structure). As for the eddy covariance method, flux measurements are difficult to set up in complex terrain. Eddy covariance studies quantify flux of fogwater over the canopy which is different from the gross flux of water deposition at the canopy or ground levels (Eugster et al., 2006). High variability of deposition velocity values were noticed with those methods. Reported values show that fog water deposition velocity ranged from 2.1 to 8.0 cm s⁻¹ for short vegetation with a horizontal wind speed between 1.1 and 9 m s⁻¹ while, for forests it ranged from 1 to 92 cm s⁻¹ with values of wind speed between 1 to 15 m s⁻¹ (Katata, 2014). Most studies about fog deposition on plants focused on one plant species. Our field study provides new and deeper insights on the contribution of fog water deposition on different types of short vegetation that could further being extrapolated to large scale canopies. The aim of this paper is to compare fog deposition on different types of plants and assess the amount of deposited water based on a single weighing method using a precision balance. Deposition velocity of fog droplets are then derived from these measurements.

MATERIALS AND METHODS

Site description

The field experiments were carried out at ANDRA's (The French National Radioactive Waste Management Agency) atmospheric platform located in Houdelaincourt (48.5623N; 5.5055E) in the North-Eastern part of France. The site is at the top of a small hill (395 m above sea level) covered with grassland and surrounded by fields; at about 1.5 km from the first village and roads. This rural site was chosen because of the high occurrence of fogs and the availability of electrical supply and security. Apart from two small prefabricated shelters, the site is free of any construction. Measurements were performed during three days from October 31st to November 2nd 2015. The whole experimental set-up included a precision balance, usual meteorological instruments and fog characterization instrumentation: Visibilimeter, Particle Volume Monitor (PVM-100) and Fog Monitor (FM-120) (Fig. 1).

Meteorological Measurements

Table 1 presents instruments deployed on site and the main parameters measured. A visibilimeter (Sentry Visibility Sensor, Envirotech Sensors Inc.) was used to measure visibility and to trigger fog water collectors for visibility below 1,000 m. A Particulate Volume Monitor (PVM-100), developed by Gerber Scientific Inc. (Gerber, 1991) provided the liquid water content (LWC) in the air in g m^{-3} . The PVM-100 is a forward scattering laser spectrometer with laser beam that crosses the air over a length of 42 cm. The light scattered by fog droplets is registered and thank to a linear relationship between **LWC and the registered signal, the LWC can be determined for droplet sizes from 3 to 45 μm . The Fog Monitor 120 (DMT FM-120, Droplet Measurement Technologies) is a forward scattering probe with an active ventilation forcing the air flux into a small measurement chamber. It is used to measure the **size distribution of cloud droplets between 1.5 and 50 μm . Particles are categorized** into 30 particle size bins, with a measurement frequency of 10 Hz. The FM-120 was equipped with a swivel inlet to follow the wind direction change and to have a co-linear sampling flux. An intercomparison on data of FM-120 and PVM-100 was performed for the two fog events studied to ensure that size distribution of droplets measured by FM-120 corresponded to LWC values of PVM-100. Based on size distribution data provided by the FM-120, the number density (N) and the mass density (M) of each size bin (i) at a time (t) were computed using following Eq (1 & 2):**

$$N(i, t) = \frac{n(i, t)}{TAS \times DOF \times \Delta t_{FM}} \quad (1)$$

$$M(i, t) = \frac{\pi}{6} \times \rho_w \times N(i, t) \times d_p(i)^3 \quad (2)$$

where n is the number of droplets for a size bin (i); TAS for True Air Speed, the speed of the air in the inlet; DOF the Depth of Field which is the sampling surface multiplied by the width of the laser beam; Δt_{FM} the sampling time; ρ_w the density of water and $d_p(i)$ the particle diameter of the size bin. Number density distribution $P_N(i, t)$ and mass density distribution $P_M(i, t)$ of a size bin (i) were obtained using Eq (3 & 4):

$$P_N(i, t) = \frac{N(i, t)}{\sum_{i=1}^{30} N(i, t)} \quad (3)$$

$$P_M(i, t) = \frac{M(i, t)}{\sum_{i=1}^{30} M(i, t)} \quad (4)$$

A Weather Transmitter probe (WXT520), developed by Vaisala was set up to measure wind speed and direction (ultrasonic anemometer). The transmitter also provided data on precipitation, atmospheric pressure, temperature and relative humidity.

Measurement of fog water deposition on plants

Our experimental set-up is similar to the one described by Trautner and Eiden (1988) who used a balance to monitor fog deposition on spruce trees. The net flux of water deposited over different canopies was measured using an outdoor precision balance (KA15s by METTLER TOLEDO) on a 350x280 mm plate. Balance KA15s can weigh a maximal load of 15 kg with a 0.1 g precision. The K line of

balances is designed for high-precision weighing in hazardous areas including wet areas. The mechanical structure of the balance absorbs impacts and lateral forces to protect the load cell from external influences. During our experiment three plant species: cypress (*Cypressus gold crest*), cabbage (*Brassica oleracea*) and grass (*Carex panicea*) were planted in rectangular plastic containers of 705x400x165 mm, each representing a specific deposition surface (Fig.2 (a)). Cypress was chosen for its 3-dimensional structure, cabbage because it is an edible leaf vegetable with more or less 2D flat structure, grass for short vegetation and its ubiquitous occurrence in the terrestrial environment. A fourth container filled **with soil represents the “bare soil”**. **Each container was exposed to fog during 20 minutes**, and then weighted on the precision balance. Before fog exposition each container was weighed for the tare. To get proper weighing measurements the balance was temporarily covered with a protection hood (measurement chamber) (Fig.2 (b)) to avoid wind-induced fluctuations. The whole equipment was settled under a camp tent in order not to be exposed to the elements. The total mass (*TM*) including the container mass, soil, plants and deposited water was registered every 20 minutes (Δt), **from the beginning to the end of the fog event. The beginning of the “fog event”** was accounted for when the visibility decreased below 1,000 m. Mass change (Δm) at a time $t + \Delta t$ is obtained following Eq. (5):

$$\Delta m(t + \Delta t) = TM(t + \Delta t) - TM(t) \quad (5)$$

Water streaming from the plant onto the ground disposed in the container is part of the mass weighed by the balance. Mass change determined every 20 minutes is considered due to fog droplet deposition. Uncertainty on flux measurement (1-5 %) are calculated based on the balance precision (± 0.1 g) and uncertainty on the weighing time (± 1 min.) over 20 min. of fog exposure.

Theoretical approach

The deposition of fog droplets is characterized by a deposition velocity V_g encompassing turbulent deposition and droplet sedimentation, being considered as the main processes of fog droplet deposition (Dollard & Unsworth, 1983), following Eq. (6) :

$$V_g = V_s + V_t \quad (6)$$

where V_s is the sedimentation velocity and V_t the turbulent impaction component. The sedimentation velocity component can be calculated based on the droplet diameter, following Eq. (7):

$$V_s = \frac{(\rho_p - \rho_{air}) \times d_p^2 \times g \times C_c}{18 \times \mu_{air}} \quad (7)$$

where ρ_p and ρ_{air} are the density of the particle and the density of the air, respectively; d_p is the diameter of the particle; g is the gravitational acceleration; C_c the Cunningham factor and μ_{air} the viscosity of air. For fog droplets ranging from 2 to 50 microns and assuming a droplet density of 1, the corresponding s velocities range between 0.01 cm s^{-1} and 8 cm s^{-1} .

Fog droplet velocity V_g is also defined as the flux density of water F divided by the liquid water content LWC in the air at a given height. These measured parameters allow to compute the fog deposition velocity of droplet, following Eq. (8).

$$V_g = \frac{F}{LWC} \quad (8)$$

The net flux of deposited water is the mass of water deposited by fog per unit of time and per unit of ground surface. To determine the uncertainty of deposition velocity obtained by the weighing method, the relative uncertainty of flux measurement (1-5 %) and the precision of LWC measurement (10 %) are taken into account. In addition, based on the droplet size distribution and using Eq. (7), sedimentation velocities V_s can be calculated and the respective contribution of turbulent and sedimentation process in fog droplet deposition can also be quantified.

Characterization of the plant canopy

In order to compare fog deposition on different plant types, it is essential to characterize the canopy (density, foliar structure) based on the Leaf Area Index (LAI). The Leaf Area Index is generally considered as the total one-sided area of photosynthetic tissue per unit of ground surface area (leaf area/ground area, $m^2 m^{-2}$) (Fowler et al., 2009). However this definition is only suitable for broadleaved trees with flat leaves. For coniferous trees, a projected leaf area is calculated to take into account the foliar structure complexity (Joslin, Mueller, & Wolfe, 1990). Many other definitions are proposed depending on the plant type and the measurement techniques (Jonckheere et al., 2004). It is noteworthy that the definition of the LAI will influence the calculated deposition leaf area. Two main procedures allow to calculate LAI: direct and indirect measurements (Fowler et al., 2009). Direct methods are considered as the most precise (Jonckheere et al., 2004) but are not often used for forest because they are very time consuming. For low size vegetation (grass and cabbage), the LAI was not directly measured; a geometric mean value was calculated from the literature data. Thus for cabbage a LAI of 2.4 was derived from 6 values ranging from 1.2 to 4.0 (Dawson, 1998). For grass, (Fowler et al., 2009) have computed an average LAI of 4.5 based on 87 values ranging from 0.4 to 16.2.

Contrary to low vegetation canopies, the cypress used for the experiment were not representative of a coniferous tree forest. Indeed the young plants were 50 cm high and densely planted (22 plants per container i.e. 91 plants per m^2). Such high plant density was chosen to obtain a surface deposition corresponding mostly to needles and branches, thus limiting possible fog water deposition on soil. To assess the LAI of cypress, a direct method was applied on a sample of 12 plants. For each young plant, branches were separated into categories based on their length; the number of branches was then computed for each category. For each category, one branch was chosen to determine the number of smaller branches and so on until we could count the number of needle leaves for one small branch to eventually evaluate the number of needle-leaves for one sampling. The needle-leaf shape was assimilated to a sharp triangular surface and an average leaf area was computed for each smaller branch. Therefore, the total leaf area of each plant could be assessed and the average leaf area of one sampling could be calculated and applied to the whole 22 cypress. Another point to consider with **a forest canopy is the “edge effect”** (Templer et al., 2015) meaning that trees on a forest edge are more exposed to fog deposition than elsewhere in the forest (e.g. interior zone). To account for this effect with regard to the cypress structure and plant density, young plants were spray-painted. Droplets of paint could only reach parts of the plants directly facing the spray. Thus it depended on their respective position inside the container. The percentage of the total foliar area intercepting droplets was evaluated by a scrutinized defoliation prior to the determination of the painted leaf area percentage. The interception area for the 22 young plants was evaluated at 5 m^2 leading to a

Leaf Area Index of 20. Even if high values of LAI are commonly found for coniferous forest, e.g. LAI of 14 for Douglas-fir trees (Agam & Berliner, 2006), a LAI of 20 is high but can be explained by the high density of cypress in the container.

RESULTS AND DISCUSSION

Main characteristics of the fog event

Microphysical parameters of two fog events are depicted on Figs. 3 & 4. The visibility is inversely related to LWC and to the number density of fog droplets. During the night of the 31st October 2015 (fog event 1), the visibility dropped from more than 1,000 m to less than 200 m between 1:30 and 2:00 a.m. while the LWC increased to 0.11 g m⁻³. During this dense fog, visibility stayed below 200 m from 1:30 a.m. to 2:00 a.m.; the average LWC value was 0.12 g m⁻³ with a standard deviation of 0.01 from 2:00 a.m. to 9:45 a.m., while the average particle density was 46 droplets per cm⁻³ with a standard deviation of 6. The fog reached its mature stage rapidly, in less than 30 minutes with a very low visibility and high LWC. The second fog event studied (fog event 2) began at 4 p.m. on 1st November and lasted until 10:30 a.m. on 2nd November. Visibility varied a lot between 50 m and more than 1,000 m before 10:00 a.m. The weighing stage corresponds to the period between 4:00 p.m. and 10:00 a.m. the day after (visibility was less than 200 m). This event was particularly interesting for fog deposition because mean LWC was 0.13 g m⁻³ with a standard deviation of 0.03. For the second fog event, the average droplet concentration was 34 droplets per cm⁻³ with a standard deviation of 6 during the weighing stage

The size distribution of fog droplets and its contribution to the liquid water content in the air is essential to assess fog droplet deposition velocity. Figs. 5 & 6 illustrate the contribution of each droplet size class to the total number density representing the number of droplets per cm³ and to the total mass density i.e., the mass of liquid water per m³ every minute. For fog event 1, droplets **between 10 and 20 µm and droplets between 20 to 50 µm represented respectively about 10 % and less than 5 % of the total number of droplets**, but more than 40 % and about 50 % of the mass of water during the mature phase. In the case of fog event 2, the percentage of droplets ranging between 10 and 20 µm **fluctuated mostly between 15 to 20 % of the total number density whereas the percentage of 20 to 50 µm droplets was slightly higher than for event 1 and reached 5 %**. **Beside, LWC was higher** for the second event due to the contribution of droplets between 10 to 20 µm and very large droplets between 20 to 50 µm. In terms of mass density, large droplets (10 to 50 µm) represented up to 90 % of the condensed water mass in the air. These results are in agreement with the fact that higher LWCs are mainly induced by a great number of large droplets (10 to 50 µm).

Deposition and evaporation rates

The weighing method described allows to quantify fog water deposition on different canopies by measuring the mass of water deposited during fog events. Weighing data from the early stage of both fogs events could not be recorded because operators were not permanently on the experimental site but staying in alert at a camp about 15 km away. Figs. 7 & 8 show the results of the net flux of water $\frac{\Delta m}{\Delta t}$, where Δm is the mass of water deposited during a time interval Δt , in g h⁻¹ m⁻² of soil which in our case corresponds to the container surface. This specific area is chosen to compare deposition fluxes of different plants planted on the same normalized surface.

At the beginning of the fog event 1, the net flux of water reaches a maximum for every plant just before 2:00 a.m., around 260 g m⁻² h⁻¹ for cypress, 180 g m⁻² h⁻¹ for grass, 100 g m⁻² h⁻¹ for cabbage (Fig. 7). For bare soil the maximum is 130 g m⁻² h⁻¹ after 2:00 a.m. Indeed deposition area for

vegetation canopy is more important than for bare soil. These maxima result from the deposition of **large droplets between 10 to 20 μm . The percentage of large droplet peak between 1:00 a.m. and 2:00 a.m.** (Fig. 5(a)) and decreases just after 2:00 a.m, consequently does the flux. Until the end of fog event 1, net fluxes of water on cabbage and grass are comparable. Deposition on cypress is a more complex phenomenon than on short vegetation canopies, mostly because of its 3D structure and overall size which represents an obstacle to the air flow and which may influence turbulent movements just above the surface. Therefore cypress tends to intercept a larger quantity of water droplets but the deposition rate is strongly variable and does not depend only on the LWC and the droplet diameter. During fog event 2 (Fig. 8), the net flux of water for cypress is at least twice the deposition rates on cabbages and grass. The net flux of water on bare soil is close to that on short vegetation for both events. For fog event 2 the net flux of water on bare soil is below $10 \text{ g m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (less than for fog event 1) even though the average LWC is higher.

During fog event 1, for short vegetation the evaporation process prevails at the same time around 7:00 a.m. and net flux of water around $50 \text{ g m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ is observed (Fig. 7).

Deposition velocity

In order to point out the dominant process of fog droplet deposition, deposition velocities V_g were calculated based on net flux of water $\frac{\Delta m}{\Delta t}$ and LWC values, then compared to sedimentation velocities V_s (Eq. 7) for 3 droplet sizes (Figs. 9 & 10). As seen previously (Figs. 3 & 4), most of the liquid water **content corresponds to droplet size over 10 μm . Therefore theoretical sedimentation velocities were calculated for droplets of 10 μm , 20 μm and 50 μm , using Eq. (7).**

Regarding fog event 1, the mean deposition velocity was $10 \pm 1 \text{ cm s}^{-1}$ for bare soil, $13 \pm 1 \text{ cm s}^{-1}$ for cabbage cm s^{-1} , $16 \pm 2 \text{ cm s}^{-1}$ for grass and $31 \pm 4 \text{ cm s}^{-1}$ for cypress (Table 2).

Deposition velocities are similar for short vegetation (grass or cabbage) and bare soil confirming the observation by Price and Clark (2014) who have shown that there were only small velocity differences between low canopies they experimented on. The canopy types tested by (Price & Clark, 2014) included artificial grass, metalized artificial grass, real live turf, real dead turf, real live long turf and real dead long turf. For cypress the mean deposition velocity is 3 times higher than the mean deposition velocity on bare soil. This can be explained by turbulent process around the tree components that may contribute in a significant way to the droplet impaction thus leading to higher deposition. As Herckes, Mirabel, and Wortham (2002) observed for cloud deposition, the contribution of sedimentation compared to impaction of fog droplets can be negligible on vegetation surface.

During both fog events, 20 to 50 μm droplets represented 40 % of the LWC during the mature phase. If dominant process of fog deposition is sedimentation, deposition velocity values should range from 1.2 to 7.6 cm s^{-1} respectively, corresponding to sedimentation velocities calculated for 20 and 50 μm . droplets. Surprisingly the deposition velocity on bare soil (10 cm s^{-1}) is higher than values of sedimentation velocity calculated for 20 and 50 μm . droplets. As observed from Table 2 and Fig. 9, the standard deviation for deposition velocity on bare soil is 4.6 and the values are ranging from 24 to 3 cm s^{-1} . Therefore for fog event 1, it is not possible to highlight the dominant process of fog deposition on bare soil. For fog event 2 (01-02/11/2015), mean deposition velocity was $2.2 \pm 0.2 \text{ cm s}^{-1}$ for bare soil, $12 \pm 1 \text{ cm s}^{-1}$ for cabbage, $16 \pm 2 \text{ cm s}^{-1}$ for grass and $40 \pm 4 \text{ cm s}^{-1}$ for cypress (Table 2). As for fog event 1, there is a higher deposition rate on every type of vegetation than on bare soil. Mean deposition velocity on bare soil is in the same order of magnitude than sedimentation velocities **for very large particles, ranging from 20 to 50 μm (Fig. 10). In this case sedimentation is supposed to be the key process of droplet deposition on bare soil.**

Deposition velocities acquired by weighing method are compared to values obtained by eddy covariance and throughfall method found in the literature. Thalmann et al. (2002) determined fog deposition fluxes of inorganic compounds on grass and needle leaf forest (spruces) using the eddy covariance method. Based on this flux data, Katata (2014) calculated deposition velocities of 7.5 cm s^{-1} for spruce (LAI=6.4) and 2.7 cm s^{-1} for grass. Deposition velocity on grass and needle-leaf trees obtained by weighing method are on average respectively 6 and 5 times greater than deposition velocity found with eddy covariance method by Thalmann et al. (2002). For spruce forest, deposition velocities ranging from 19 to 39 cm s^{-1} for cloud droplets were found by (Pahl et al., 1995) using throughfall collectors. Those values are closer to deposition velocity on cypress (31 ± 4 and $40 \pm 4 \text{ cm s}^{-1}$) than values obtained by eddy covariance. Throughfall measurement and the weighing approach are quite similar because fogwater deposited on canopy surface level is measured whereas for the eddy covariance method a net flux of water defined as the difference between upward flux and downward flux is measured above the canopy. Holwerda et al. (2006) demonstrated that net fogwater fluxes measured at 4 m above a forest in Puerto Rico could represent only $\sim 40\%$ of the fluxes at the canopy level itself due to the condensation of water vapor as the air moves upslope. Furthermore for fog deposition on needle leaf forest, deposition velocities are ranging from 1 to 92 cm s^{-1} mainly for high elevation sites (Katata, 2014). Such large range of velocity can be explained by the variety of applied methods during different fog event and on various experimental sites. Thus even if the container covered by small cypress may not be representative of a real needle leaf forest, the edge effect visible in both cases was taken into account to assess deposition velocities for cypress thanks to the spray painting experiment.

During fog event 1 the mean wind speed 4 m above the ground level was 3.8 m s^{-1} while lower 2.8 m s^{-1} , is recorded for the event 2. For wind speed above 4 m s^{-1} some adaptations of the weighing method might be necessary to use precision balance.

CONCLUSION

The aim of this paper was to estimate fog droplet deposition rate and velocity of fog deposition on different plant types from field experiment. Deposition velocities obtained by the weighing method point out the importance of turbulent process of fog deposition on vegetation. Whatever the fog event considered, there is a higher deposition rate on every type of vegetation than on bare soil. In addition, the higher the plant height and the more complex the plant leaf is, the higher the deposition velocities. Indeed, for the two fog events studied, fog deposition on vegetation canopies is more important than deposition on bare soil. Further experimentation is required to quantify the effect of wind speed on fogwater deposition. In very windy conditions the precision balance sensitivity may require some adaptations to cope with wind-induced measurement artefacts.

Even if the transposition of results obtained on 50 cm high cypress to the case of a needle leaf forest **may be complex the present experiment showed that the “edge effect” needs to be taken into account** in regard to fog deposition.

When compared to values from previous studies, there is an important discrepancy between deposition velocities obtained by the weighing method and those acquired by eddy covariance. One of the reasons could result from the fogwater flux measured at canopy level which is greater than the net fogwater flux above the canopy (Eugster et al., 2006; Holwerda et al., 2006). Moreover deposition process depends on many variables such as turbulent conditions, size distribution of particles, canopy type and the topography of the field site, thus it is important to acquire a wide range of data for different conditions. Thanks to the few assumptions it requires, the weighing method can be set up easily in various terrestrial environments making it possible to acquire valuable and relevant

parameters for fog modeling. The weighing method is suitable to compare fog deposition on different surfaces or objects at the same time.

ACKNOWLEDGMENTS

This study was supported in parts by IRSN and Météo-France/CNRM. The authors wish to thank ANDRA for their contribution to the settlement of the equipment and for providing access to the atmospheric platform.

REFERENCES

- Agam, N. and Berliner, P.R. (2006). Dew Formation and Water Vapor Adsorption in Semi-Arid Environments—a Review. *Journal of Arid Environments* 65: 572-590.
- Barker, M.G. and Ashenden, T.W. (1992). Effects of Acid Fog on Cuticular Permeability and Cation Leaching in Holly (*Ilex Aquifolium*). *Agriculture, Ecosystems & Environment* 42: 291-306.
- Beiderwieden, E., Wolff, V., Hsia, Y.J. and Klemm, O. (2008). It Goes Both Ways: Measurements of Simultaneous Evapotranspiration and Fog Droplet Deposition at a Montane Cloud Forest. *Hydrological Processes* 22: 4181-4189.
- Cape, J.N. (1993). Direct Damage to Vegetation Caused by Acid Rain and Polluted Cloud: Definition of Critical Levels for Forest Trees. *Environmental Pollution* 82: 167-180.
- Collett Jr, J.L., Bator, A., Sherman, D.E., Moore, K.F., Hoag, K.J., Demoz, B.B., Rao, X. and Reilly, J.E. (2002). The Chemical Composition of Fogs and Intercepted Clouds in the United States. *Atmospheric Research* 64: 29-40.
- Dawson, T.E. (1998). Fog in the California Redwood Forest: Ecosystem Inputs and Use by Plants. *Oecologia* 117: 476-485.
- Dollard, G.J. and Unsworth, M.H. (1983). Field Measurements of Turbulent Fluxes of Wind-Driven Fog Drops to a Grass Surface. *Atmospheric Environment (1967)* 17: 775-780.
- Eugster, W., Burkard, R., Holwerda, F., Scatena, F.N. and Bruijnzeel, L.A. (2006). Characteristics of Fog and Fogwater Fluxes in a Puerto Rican Elfin Cloud Forest. *Agricultural and Forest Meteorology* 139: 288-306.
- Fenn, M.E. and Kiefer, J.W. (1999). Throughfall Deposition of Nitrogen and Sulfur in a Jeffrey Pine Forest in the San Gabriel Mountains, Southern California. *Environmental Pollution* 104: 179-187.
- Fowler, D., Pilegaard, K., Sutton, M.A., Ambus, P., Raivonen, M., Duyzer, J., Simpson, D., Fagerli, H., Fuzzi, S., Schjoerring, J.K., Granier, C., Nefstel, 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., Ro-Poulsen, H., Cellier, P., Cape, J.N., Horváth, L., Loreto, F., Niinemets, Ü., Palmer, P.I., Rinne, J., Misztal, P., Nemitz, E., Nilsson, D., Pryor, S., Gallagher, M.W., Vesala, T., Skiba, U., Brüggemann, N., Zechmeister-Boltenstern, S., Williams, J., O'Dowd, C., Facchini, M.C., de Leeuw, G., Flossman, A., Chaumerliac, N. and Erisman, J.W. (2009). Atmospheric Composition Change: Ecosystems-Atmosphere Interactions. *Atmospheric Environment* 43: 5193-5267.
- Gerber, H. (1991). Direct Measurement of Suspended Particulate Volume Concentration and Far-Infrared Extinction Coefficient with a Laser-Diffraction Instrument. *Appl. Opt.* 30: 4824-4831.
- Herckes, P., Mirabel, P. and Wortham, H. (2002). Cloud Water Deposition at a High-Elevation Site in the Vosges Mountains (France). *Science of The Total Environment* 296: 59-75.
- Holwerda, F., Burkard, R., Eugster, W., Scatena, F.N., Meesters, A.G.C.A. and Bruijnzeel, L.A. (2006). Estimating Fog Deposition at a Puerto Rican Elfin Cloud Forest Site: Comparison of the Water Budget and Eddy Covariance Methods. *Hydrological Processes* 20: 2669-2692.

- Hososhima, M. and Kaneyasu, N. (2015). Altitude-Dependent Distribution of Ambient Gamma Dose Rates in a Mountainous Area of Japan Caused by the Fukushima Nuclear Accident. *Environmental Science & Technology* 49: 3341-3348.
- Igawa, M., Matsumura, K. and Okochi, H. (2002). High Frequency and Large Deposition of Acid Fog on High Elevation Forest. *Environmental Science & Technology* 36: 1-6.
- Jonckheere, I., Fleck, S., Nackaerts, K., Muys, B., Coppin, P., Weiss, M. and Baret, F. (2004). Review of Methods for in Situ Leaf Area Index Determination: Part I. Theories, Sensors and Hemispherical Photography. *Agricultural and Forest Meteorology* 121: 19-35.
- Joslin, J.D., Mueller, S.F. and Wolfe, M.H. (1990). Tests of Models of Cloudwater Deposition to Forest Canopies Using Artificial and Living Collectors. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics* 24: 3007-3019.
- Katata, G. (2014). Fogwater Deposition Modeling for Terrestrial Ecosystems: A Review of Developments and Measurements. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 119: 2014JD021669.
- Lovett, G.M. (1988). A Comparison of Methods for Estimating Cloud Water Deposition to a New Hampshire (U.S.A.) Subalpine Forest, In *Acid Deposition at High Elevation Sites*, Unsworth, M.H. and Fowler, D. (Eds.), Springer Netherlands, Dordrecht, pp. 309-320.
- Mazoyer, M. (2016). Impact Du Processus D'activation Sur Les Propriétés Microphysiques Des Brouillards Et Sur Leur Cycle De Vie.
- Pahl, S., Winkler, P., Schneider, T., Arends, B., Schell, D., Maser, R. and Wobrock, W. (1995). Deposition of Trace Substances Via Cloud Interception on a Coniferous Forest at Kleiner Feldberg, In *The Kleiner Feldberg Cloud Experiment 1990: Eurotrac Subproject Ground-Based Cloud Experiment (Gce)*, Fuzzi, S. (Ed.), Springer Netherlands, Dordrecht, pp. 231-252.
- Pandis, S.N., Seinfeld, J.H. and Pilinis, C. (1990). The Smog-Fog-Smog Cycle and Acid Deposition. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 95: 18489-18500.
- Price, J.D. and Clark, R. (2014). On the Measurement of Dewfall and Fog-Droplet Deposition. *Boundary-Layer Meteorology* 152: 367-393.
- Schemenauer, R.S. (1986). Acidic Deposition to Forests: The 1985 Chemistry of High Elevation Fog (Chef) Project. *Atmosphere-Ocean* 24: 303-328.
- Schmid, S., Burkard, R., Frumau, K.F.A., Tobón, C., Bruijnzeel, L.A., Siegwolf, R. and Eugster, W. (2011) Using Eddy Covariance and Stable Isotope Mass Balance Techniques to Estimate Fog Water Contributions to a Costa Rican Cloud Forest During the Dry Season. *Hydrological Processes* 25: 429-437.
- Shimadera, H., Kondo, A., Shrestha, K.L., Kaga, A. and Inoue, Y. (2011). Annual Sulfur Deposition through Fog, Wet and Dry Deposition in the Kinki Region of Japan. *Atmospheric Environment* 45: 6299-6308.
- Templer, P.H., Weathers, K.C., Ewing, H.A., Dawson, T.E., Mambelli, S., Lindsey, A.M., Webb, J., Boukili, V.K. and Firestone, M.K. (2015). Fog as a Source of Nitrogen for Redwood Trees: Evidence from Fluxes and Stable Isotopes. *Journal of Ecology* 103: 1397-1407.
- Thalmann, E., Burkard, R., Wrzesinsky, T., Eugster, W. and Klemm, O. (2002). Ion Fluxes from Fog and Rain to an Agricultural and a Forest Ecosystem in Europe. *Atmospheric Research* 64: 147-158.

Trautner, F. and Eiden, R. (1988). A Measuring Device to Quantify Deposition of Fogwater and Ionic Input by Fog on Small Spruce Trees. *Trees* 2: 92-95.

Vong, R.J. and Kowalski, A.S. (1995). Eddy Correlation Measurements of Size-Dependent Cloud Droplet Turbulent Fluxes to Complex Terrain. *Tellus B* 47: 331-352.

Watanabe, K., Takebe, Y., Sode, N., Igarashi, Y., Takahashi, H. and Dokiya, Y. (2006). Fog and Rain Water Chemistry at Mt. Fuji: A Case Study During the September 2002 Campaign. *Atmospheric Research* 82: 652-662.

Weathers, K.C. and Likens, G.E. (1997). Clouds in Southern Chile: An Important Source of Nitrogen to Nitrogen-Limited Ecosystems? *Environmental Science & Technology* 31: 210-213.

Figure Captions

Fig. 1. Experimental set-up with Visibilimeter, PVM-100 and FM-120.

Fig. 2. Experimental set-up of the weighing method: (a) plastic containers each containing one of the three plant species; (b) balance (without plants) below a shelter to prevent disturbance from wind fluctuations.

Fig. 3. Evolution of visibility (<1000 m: fog) (a) and Liquid Water Content (LWC) (b) measured by the PVM-100 during the 31 October 2015 fog event.

Fig. 4. Evolution of visibility (<1000 m: fog) (a) and Liquid Water Content (LWC) (b) measured by the PVM-100 during the 1-2 November 2015 fog event.

Fig. 5. Percentage of each droplet size class to the total number density (a) and to the total mass density (b) based on the FM120 data of 31 October 2015 fog event.

Fig. 6. Percentage of each droplet size class to the total number density (a) and to the total mass density (b) based on the FM120 data of 1-2 November 2015 fog event.

Fig. 7. Net flux of water during 31 October 2015 fog event measured by weighing method.

Fig. 8. Net flux of water during 1-2 November 2015 fog event measured by weighing method.

Fig. 9. Deposition velocity during 31 October 2015 fog event and sedimentation velocity for 10, 20, **50 μm droplets.**

Fig. 10. Deposition velocity during **1-2 November 2015 and sedimentation velocity for 10, 20, 50 μm droplets.**

Table. 1: Instruments deployed on the experiment site of Houdelaincourt.

Table. 2: Mean deposition velocity for fog event 131 October 2015 and fog event 2 during 1-2 November 2015.

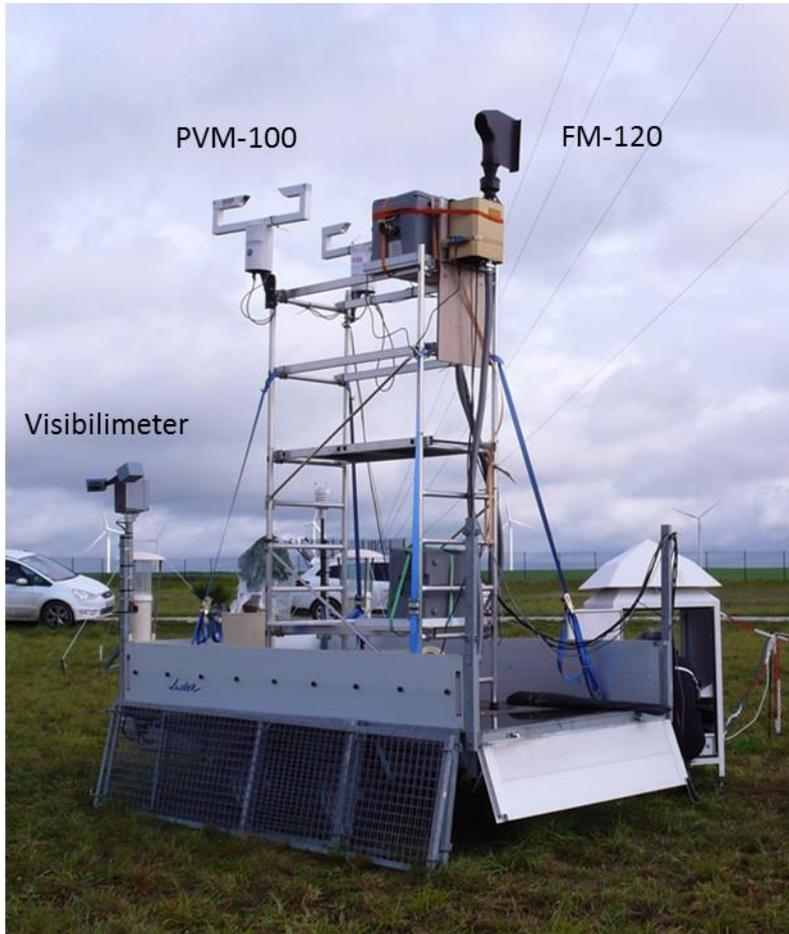


Fig. 1



(a)



(b)

Fig. 2

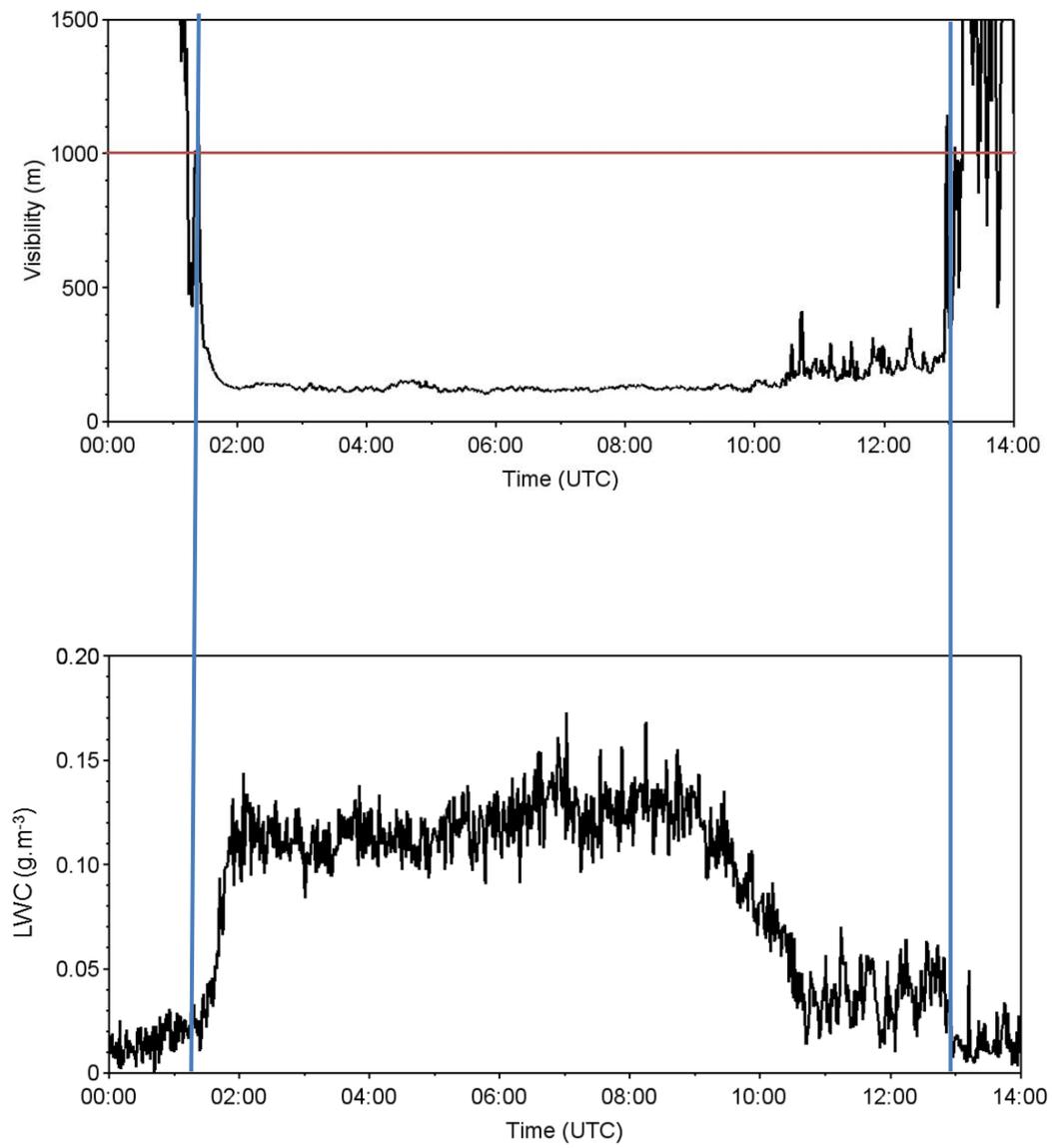
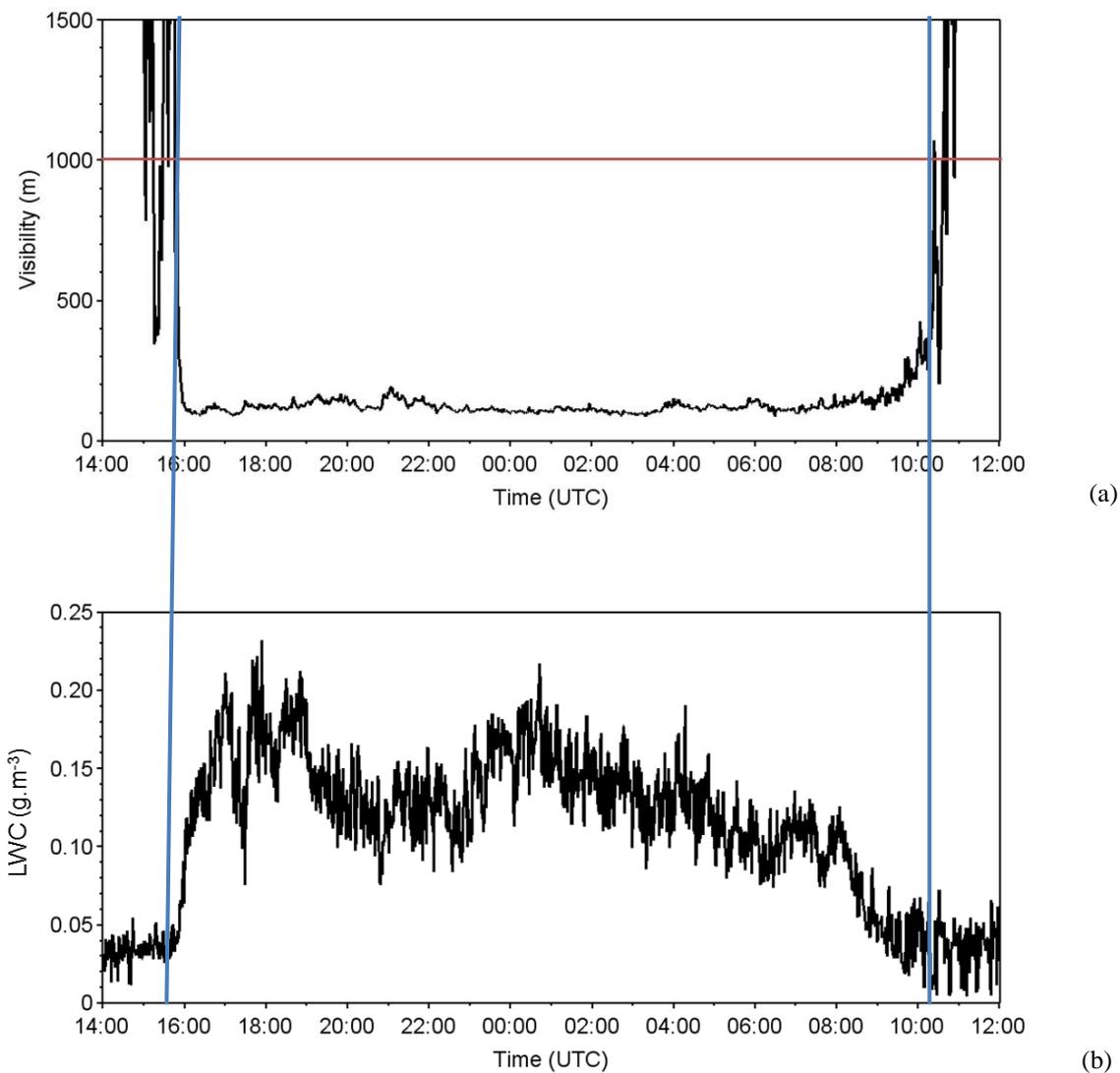


Fig. 3



2

Fig. 4

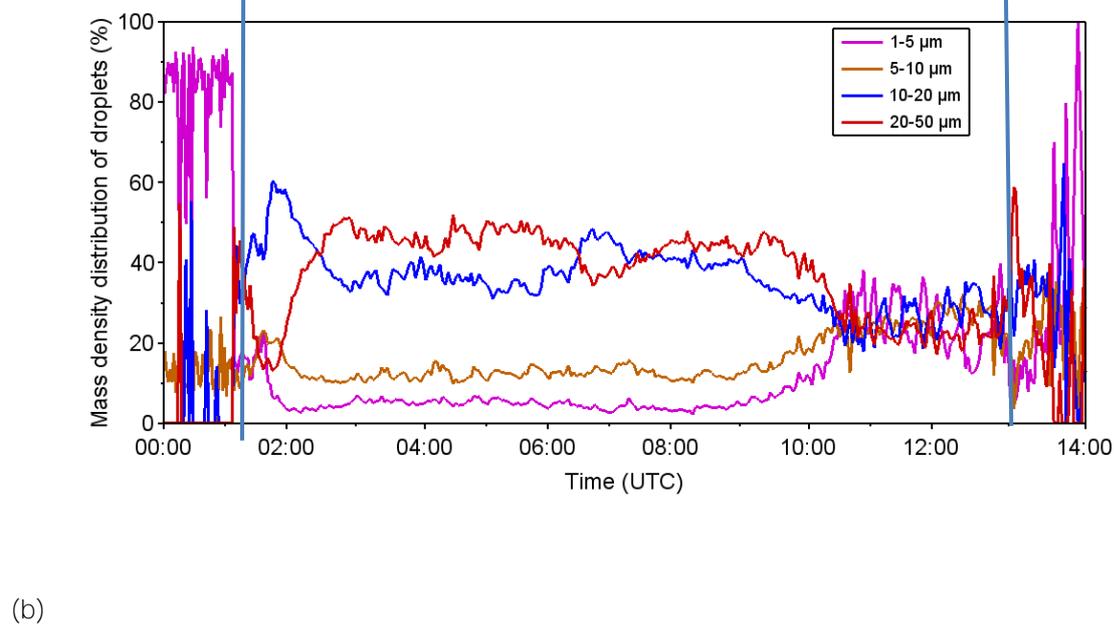
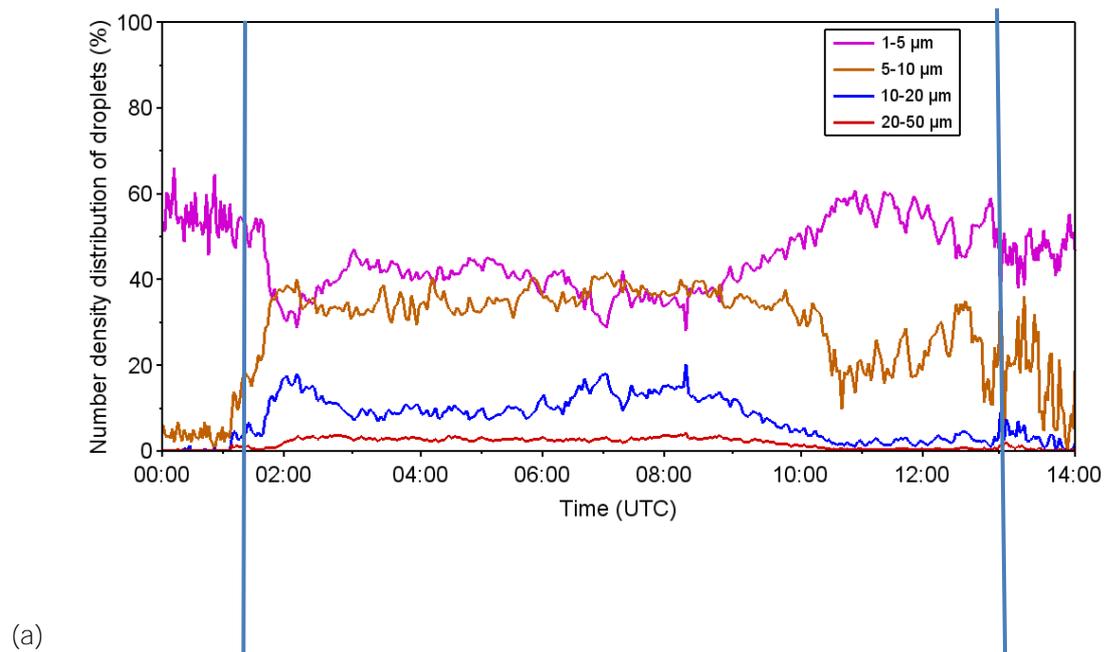
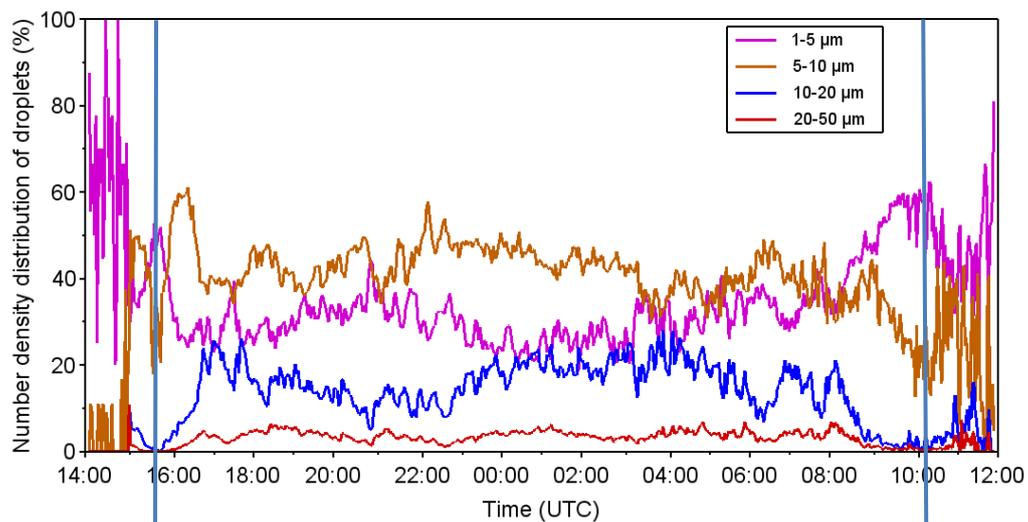
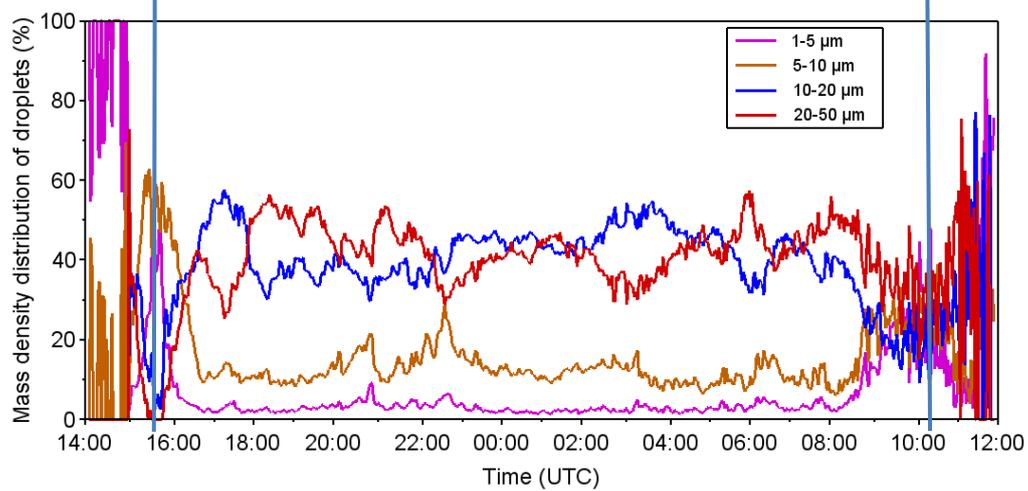


Fig. 5



(a)



(b)

Fig 6

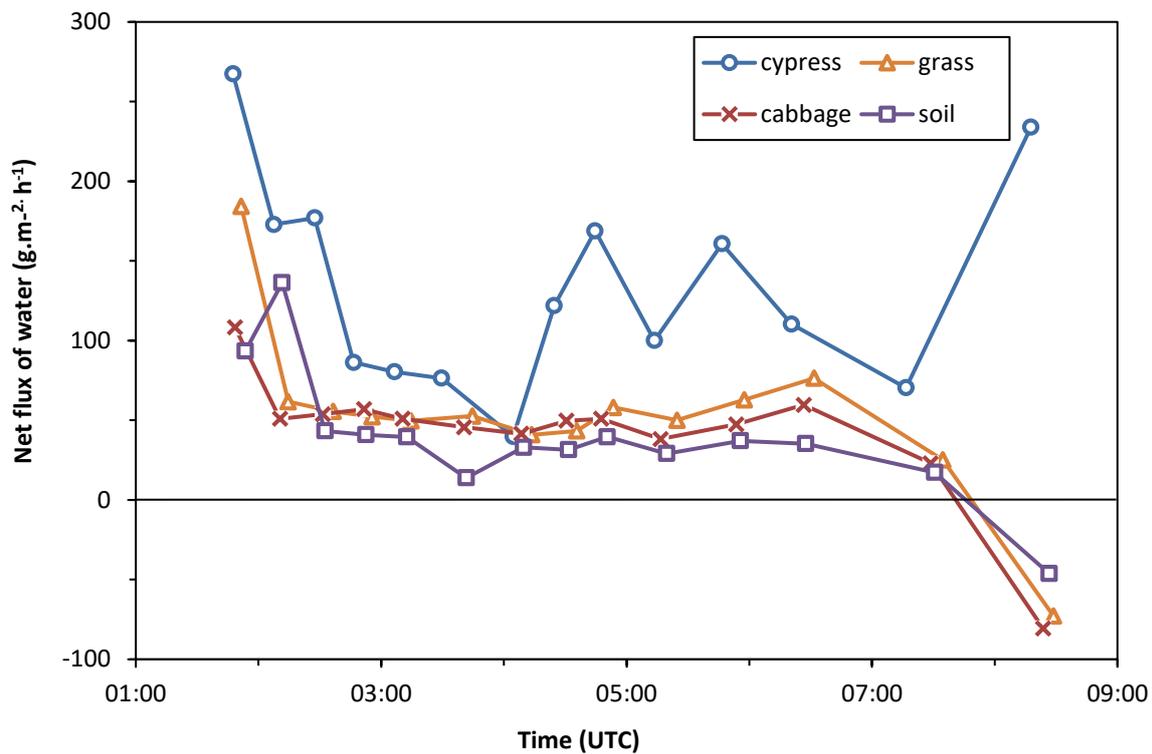


Fig. 7

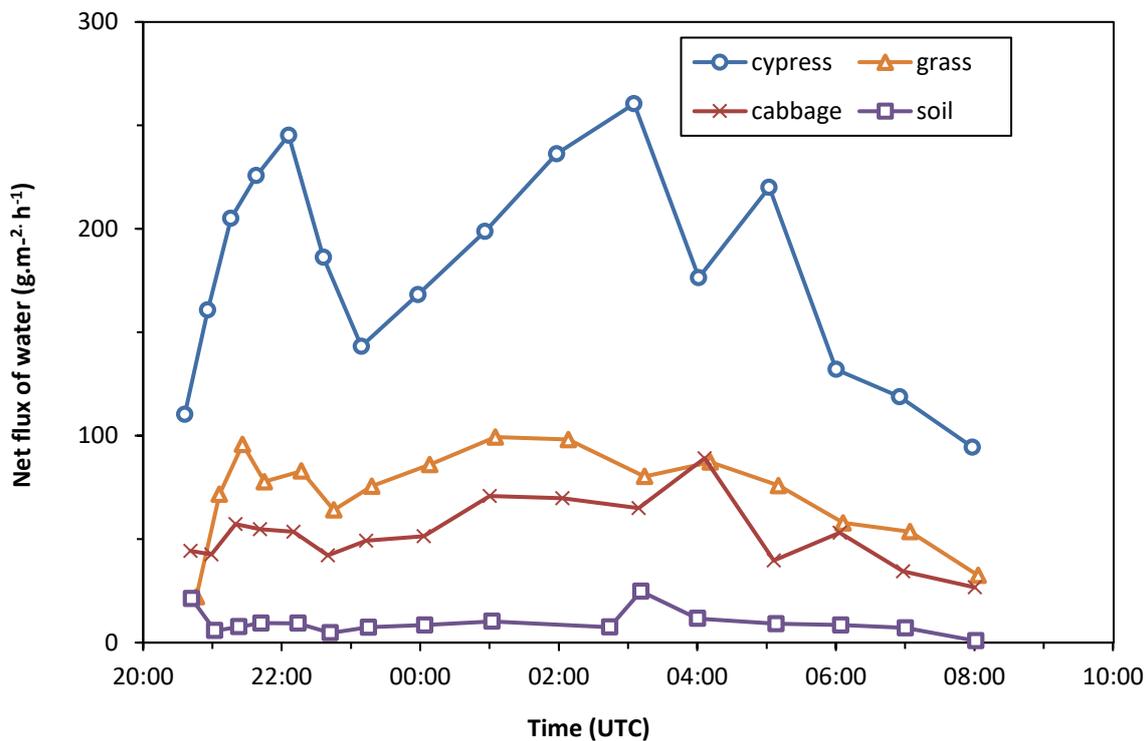


Fig. 8

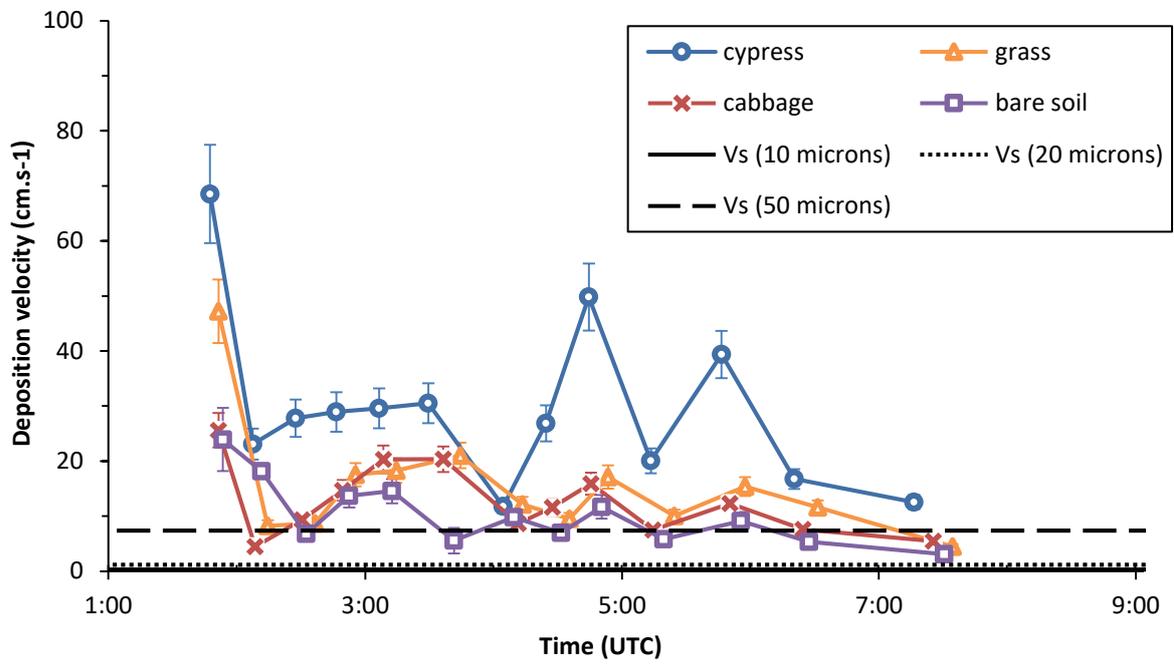


Fig 9

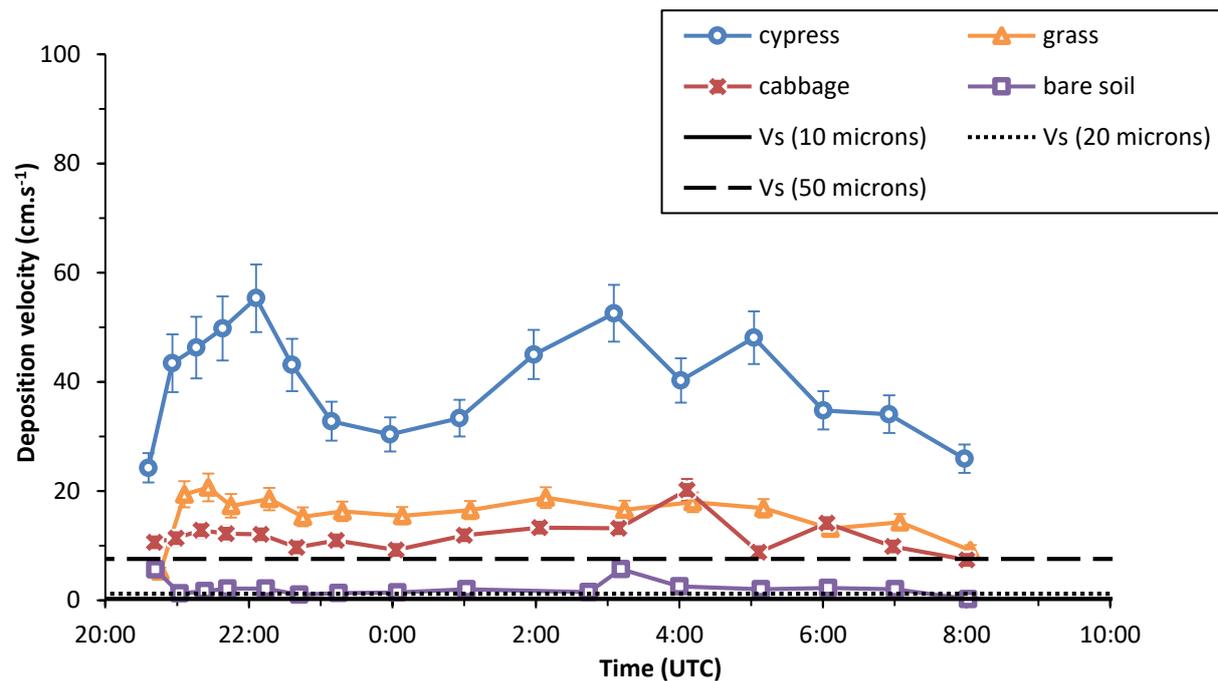


Fig. 10

Instrument	Measured parameter	Measurement frequency
Visibilimeter	Visibility (m)	2 min
Particulate Volume Monitor (PVM-100)	Liquid Water Content, LWC (g m^{-3})	2 min
Fog Monitor 120 (FM-120)	Size distribution of fog droplets	0.1 s
Weather Transmitter (WXT520)	Wind speed (m s^{-1})	2 min
Balance (KA15s)	Mass of container+plants+fogwater (g)	20 min

Table. 1

Surface	Mean V_d (cm s ⁻¹) 31/10/15	Standard deviation of V_d 31/10/15	Mean V_d (cm s ⁻¹) 01-02/11/15	Standard deviation of V_d 01-02/11/15
bare soil	10.3	4.6	2.2	0.9
cabbage	12.6	5.2	11.7	2.0
grass	15.5	6.7	15.7	2.7
cypress	31.1	11.8	40.0	8.0

Table. 2

4.2 DEPOT PAR LES GOUTTELETTES DE BROUILLARD DE LA CAMPAGNE 2016

4.2.1 Comparaison des épisodes de brouillard à partir des paramètres microphysiques.

Les différentes caractéristiques des événements de brouillard de la campagne 2016 sont présentées dans le tableau 4-1. **La moyenne et l'écart-type du contenu en eau liquide (LWC), du diamètre volumique médian (MVD) et de la concentration en gouttelettes sont calculés pour chaque épisode afin de catégoriser les épisodes de brouillard et d'évaluer la possible influence de ces paramètres sur le dépôt. Sachant que la quantité d'eau déposée par les gouttelettes obéit à la sédimentation sous l'action de la pesanteur ; la taille des gouttelettes et donc la masse d'eau qu'elles contiennent et leur nombre sont les premiers facteurs à considérer afin d'estimer la masse d'eau déposée par un brouillard.** Le dépôt moyen présenté correspond au dépôt sur six cyprès car cette surface est associée aux **quantités d'eau déposée** les plus importantes, pour chaque épisode. Le tableau 4-1 permet de distinguer quatre épisodes de brouillard pour lesquels les dépôts moyens observés sont les plus conséquents (le 4/10, le 27/10, le 28/10 et le 1-2/11). Dans le cas du 4 et du 27 octobre où les dépôts **sont les plus forts, il s'agit de brouillards radiatifs développés.** Le cas du 28 octobre est un brouillard **qui ne s'est développé que sur une hauteur de 10 m, quant à la nuit du 1^{er} au 2 novembre, c'est un brouillard dont la formation est due à une humidité si importante dans l'air qu'il s'est formé en hauteur avant de se propager au sol.** Le brouillard du 1^{er} novembre au matin est un cas particulier puisque bien que la visibilité soit descendue en dessous de 1000 m en raison d'une concentration moyenne élevée en gouttelettes (223 cm^{-3}), **il s'agissait de petites gouttelettes (MVD moyen=11,5 microns) qui n'ont pas permis d'obtenir un contenu en eau liquide suffisant pour entraîner un dépôt sur les surfaces.** Les plantes ayant été arrosées le jour précédent, elles étaient saturées en eau. Un **phénomène d'évaporation** de la terre saturée en eau contenue dans les bacs **permet d'expliquer ces flux de dépôt négatifs (dépôt moyen=-1,16 g.m².min⁻¹) durant l'ensemble de l'épisode.** Le 2 décembre constitue un épisode de brouillard par affaissement de stratus à l'origine d'un dépôt de gouttelettes assez faible (dépôt moyen=0,05 g.m².min⁻¹). Le fait que les brouillards radiatifs développés, que nous avons observés, engendrent les **quantités d'eau déposée les plus élevées est dû à leur fort contenu en eau liquide dans l'air. A partir de ces observations, nous avons cherché à établir si le contenu en eau liquide dans l'air (LWC), la taille des gouttelettes (MVD) et le nombre de gouttelettes** avaient une influence sur le dépôt des gouttelettes de brouillard. En effet, afin de mieux prévoir la formation **de brouillard ou de modéliser le dépôt au sol de radionucléides lors d'épisodes de brouillard, il est nécessaire de pouvoir évaluer ce dépôt en fonction de grandeurs mesurables.**

Tableau 4-1 - Episodes de brouillard de la campagne 2016

Épisode	Plage horaire (TU)	LWC (moyenne/écart-type) en g.m ⁻³	MVD (moyenne/écart-type) en µm	Concentration (moyenne/écart-type) en particules.cm ⁻³	Dépôt moyen sur cyprès (moyenne/écart-type) en g.m ⁻² .min ⁻¹	Type de brouillard
04 Oct. 2016	02:30-6:30	0,12±0,05	20±4	173±34	2,28±1,35	Radiatif développé
17-18 Oct. 2016	18:00-2:30	0,03±0,02	7±2	96±69	0,19±0,24	Brouillard intermittent avec épisode pluvieux à 17h.
27 Oct. 2016	02:00-08:00	0,2±0,07	24±1,6	81±29	1,80±1,11	Radiatif développé
28 Oct. 2016	05:00-9:30	0,07±0,03	21±2	44±22	0,85±0,41	Radiatif peu développé (>10m de hauteur)
01 Nov. 2016	08:10-09:40	0,04±0,01	11±1,5	223±20	-1,16±0,28	Brouillard avec très faible LWC (non étudié par la suite)
01-02 Nov. 2016	18:00-02:00	0,09±0,02	23±1,4	180±031	0,94±0,25	Brouillard lié à l'humidité importante dans l'air avec une formation par le haut, brouillard développé
02 Déc. 2016	06:00-10:00	0,025±0,013	15±3	254±56	0,05±0,02	Stratus

4.2.1.1 Influence du LWC sur le dépôt

Dans un premier temps nous avons cherché à savoir s'il était possible de prévoir le dépôt occulte en fonction du contenu en eau liquide dans l'air (LWC). Pour cela, nous avons tracé le dépôt moyen sur le sol nu en fonction du contenu en eau liquide moyen de chacun des épisodes de brouillard de la campagne 2016 (Fig. 4.1). On précise que le terme sol nu ou terre sera employé pour désigner le bac contenant la terre sans plantes. Le dépôt moyen sur sol nu est considéré car il s'agit de fournir une estimation « simplifiée » du dépôt, sans tenir compte de la surface offerte aux dépôts. Il est à noter que l'épisode du 1^{er} Novembre 2016 au matin n'apparaît pas car nous n'y avons mesuré que de l'évaporation (perte de masse).

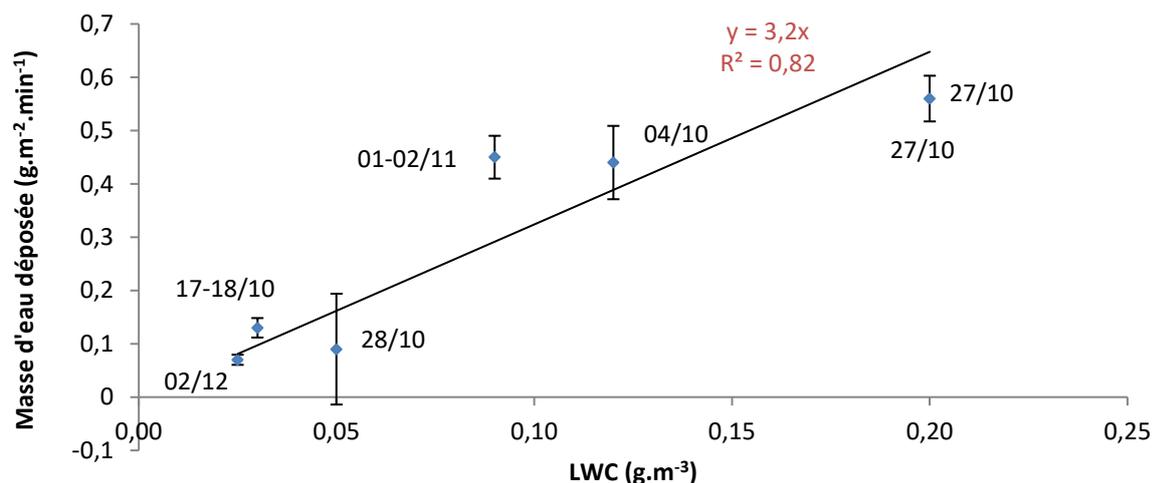


Figure 4.1 - Masse d'eau moyenne déposée sur le sol nu ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction du LWC moyen (g.m^{-3}) de chaque épisode de brouillard de la campagne 2016.

La figure 4.1 permet de mettre en évidence un lien fort entre le LWC moyen et le dépôt moyen sur sol nu des brouillards étudiés au cours de la campagne 2016. Les brouillards de la campagne 2015 étant des brouillards givrants donc avec des caractéristiques bien différentes, nous n'en avons pas tenu compte. Il serait donc possible de prévoir le dépôt moyen via l'équation 4.1.

$$\text{dépôt} = 3,2 \times \text{LWC} \quad 0.1$$

Avec le *dépôt* en $\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$ et le *LWC* en g.m^{-3} . Concernant le dépôt moyen sur sol nu, le maximum d'eau déposée est mesuré pour l'épisode du 27/10 alors que pour le dépôt moyen sur cyprès, ce maximum correspond à l'épisode du 04/10 (Tableau 4-1). Ainsi, la corrélation LWC-masse d'eau déposée est valable sur sol nu mais nécessite des ajustements, avec probablement l'introduction d'autres paramètres sur les cyprès et plus généralement sur des végétaux avec une hauteur de rugosité équivalente élevée. Il est probable que le dépôt de gouttelettes sur sol et les cyprès n'obéissent pas aux mêmes processus.

Pour le tableau 4-1 et la figure 4.1, seule la valeur moyenne du LWC des épisodes de brouillards a été considérée. Or durant un événement de brouillard de plusieurs heures, le LWC peut varier de façon importante. La figure 4.2 montre la répartition des valeurs de LWC pour chaque épisode de brouillard étudié.

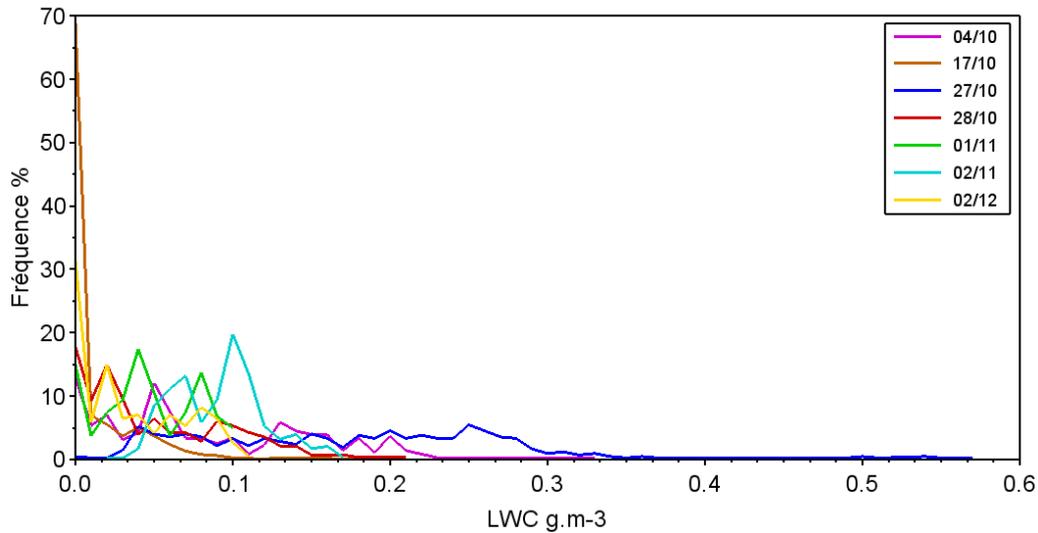


Figure 4.2 - Distribution des LWC durant les épisodes de brouillard de la campagne 2016.

La figure 4.2 permet de compléter les informations du tableau 4-1 puisque les brouillards présentant les plus faibles dépôts le 17/10, 01/11 et le 02/12 sont les épisodes dont la distribution de LWC est comprise entre 0 et 0,1 g.m⁻³. Le 17/10, 68% des valeurs de LWC sont comprises entre 0 et 0,02 g.m⁻³, cela traduit l'aspect intermittent de ce brouillard. Pour le 02/11, 20% des valeurs de LWC sont égales à 0,1 g.m⁻³ avec des valeurs allant jusqu'à 0,17 g.m⁻³ ce qui explique le dépôt moyen de 0,94 g.m⁻².min⁻¹. Le 28/10, le pourcentage de LWC supérieur à 0,1 g.m⁻³ est assez faible (<7%) or les maximas de LWC sont à 0,2 g.m⁻³, ce qui influe probablement sur le dépôt moyen. Quant aux brouillards avec les plus forts dépôts le 4/10 et le 27/10, ils présentent les LWC les plus élevés. Cependant, on observe que le pourcentage de LWC supérieur à 0,2 g.m⁻³ est plus important pour le 27/10 avec un maxima à 0,57 g.m⁻³ alors même que pour le 04/10 le dépôt moyen sur cyprès est significativement plus élevé (Tableau 4-1). Pour le 27/10 la plupart des valeurs de LWC se concentre entre 0,04 et 0,28 g.m⁻³. Ainsi, il existe une bonne corrélation en moyenne du dépôt sur sol nu pour l'ensemble des épisodes de brouillard au LWC, mais concernant le dépôt sur les cyprès d'autres paramètres doivent être pris en compte.

Le LWC étant dépendant du nombre de gouttelettes et de leur taille, à LWC égal il est possible d'avoir de nombreuses petites gouttelettes ou des grosses gouttelettes moins nombreuses. Dans quelle mesure le diamètre des gouttelettes et leur concentration peuvent influencer sur le dépôt moyen ?

4.2.1.2 Influence du diamètre des gouttelettes sur le dépôt

Afin d'exprimer le diamètre d'une population de gouttelettes, le diamètre volumique médian (MVD) est calculé. Le diamètre volumique médian est défini comme le diamètre séparant la distribution en taille des gouttelettes en deux aires égales. La figure 4.3 représente la masse d'eau moyenne déposée sur sol nu en fonction du MVD des épisodes de brouillards 2016.

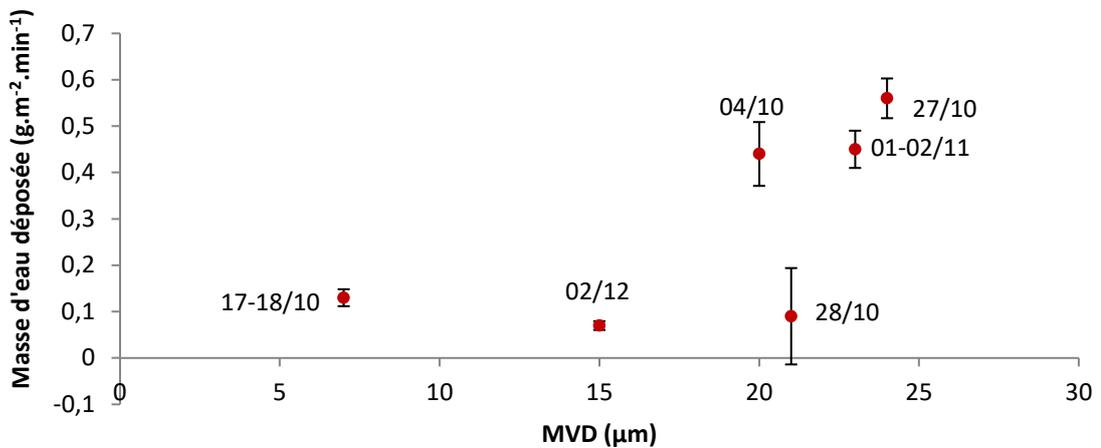


Figure 4.3 - Masse d'eau moyenne déposée sur sol nu ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction du MVD moyen (μm) pour chaque épisode de brouillard de la campagne 2016.

La corrélation entre la masse d'eau déposée et le MVD pour l'ensemble des épisodes est de 0,40 (Fig. 4.3), alors que la corrélation pour le LWC moyen est de 0,82 (Fig. 4.1). Pour quatre des six épisodes de brouillards étudiés, la masse d'eau déposée est proportionnelle à la valeur du MVD. En revanche, les épisodes du 28/10 et du 02/12 présentent des MVD moyen respectifs de 21 et 15 μm pour une masse déposée moyenne inférieure à 0,1 $\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$. Pour le 28/10, cela peut s'expliquer en première analyse par le faible nombre de gouttelettes (44 particules. cm^{-3}). Pour le 02/12 en revanche, le nombre de particules est de 254 particules. cm^{-3} , ce qui suggère probablement qu'un autre facteur est susceptible d'expliquer ce faible dépôt d'eau sur les surfaces. Le MDV moyen ne permet donc pas de rendre compte de l'évolution du MVD (acquisition des données toutes les secondes) durant l'épisode, c'est pourquoi la distribution des MVD pour chacun des brouillards observés en 2016 est tracée (Fig.4.4).

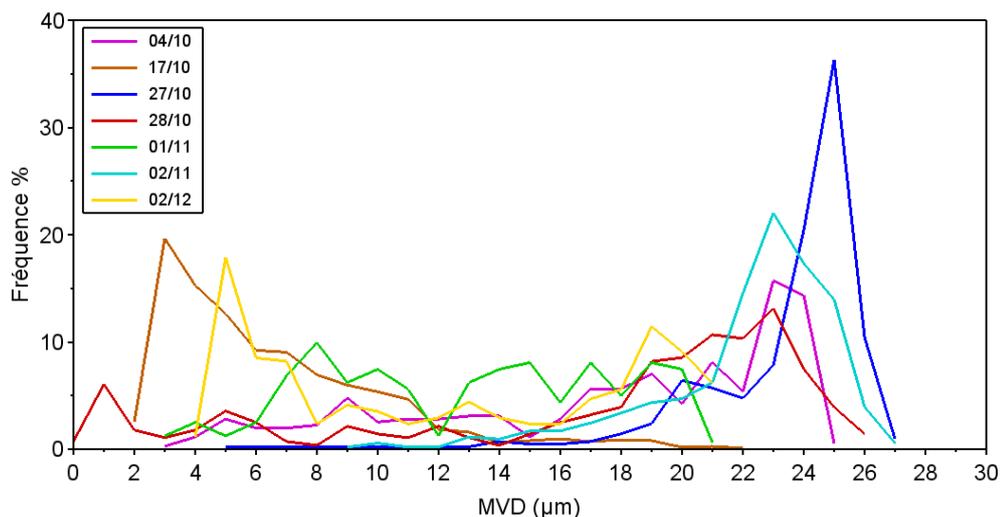


Figure 4.4 - Distribution des MVD durant les épisodes de brouillard de la campagne 2016.

La figure 4.4 nous indique que pour les épisodes les plus importants en termes de **masse d'eau déposée** (27/10, 04/10 et 02/11), les valeurs de MVD au-dessus de 20 microns sont les plus fréquentes. Pour le 28/10, le pourcentage relativement élevé des valeurs de MVD au-dessus de 20 microns, même avec une faible concentration de gouttelettes peut expliquer le dépôt moyen sur cyprès de $0,85 \text{ g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$ (Tableau 4-1). En effet, **sur les cyprès la surface d'interception pour** les gouttelettes est multipliée par 3,5 par rapport à un sol nu, donc même avec un faible nombre de gouttelettes il peut y avoir impaction des gouttelettes. On remarque également, sur la figure 4.4 que le brouillard du 27/10 présentant les valeurs de MVD les plus élevées et les plus fréquemment distribuées, correspondent aux dépôts les plus importants sur le sol nu **mais ce n'est pas le cas pour** les cyprès. Des paramètres tels que la vitesse de vent et la turbulence sont à explorer pour expliquer cette différence de dépôt entre sol nu et cyprès. Concernant les épisodes avec de faible dépôt : le 17/10, le 01/11 et le 02/12, ils présentent des valeurs de MVD très différentes. Le 17/10 est un épisode qui comporte beaucoup de petites gouttelettes avec pour 20% **de l'épisode des MVD de 3 microns** et plus de 50% des valeurs de MVD inférieures à 14 microns. Pour le 01/11, les valeurs de MVD sont réparties relativement uniformément entre 6 et 21 microns et enfin pour le 02/12, on observe un pic de fréquence à 18% pour les MVD de 5 microns et 13% pour les MVD de 19 microns **qui n'explique pas le faible dépôt du** 02/12.

4.2.1.3 Influence de la concentration en gouttelettes sur le dépôt

Le LWC étant la combinaison de la distribution en taille et de la concentration en gouttelettes, la concentration **moyenne des gouttelettes sur l'ensemble des brouillards de la campagne 2016** est également étudiée.

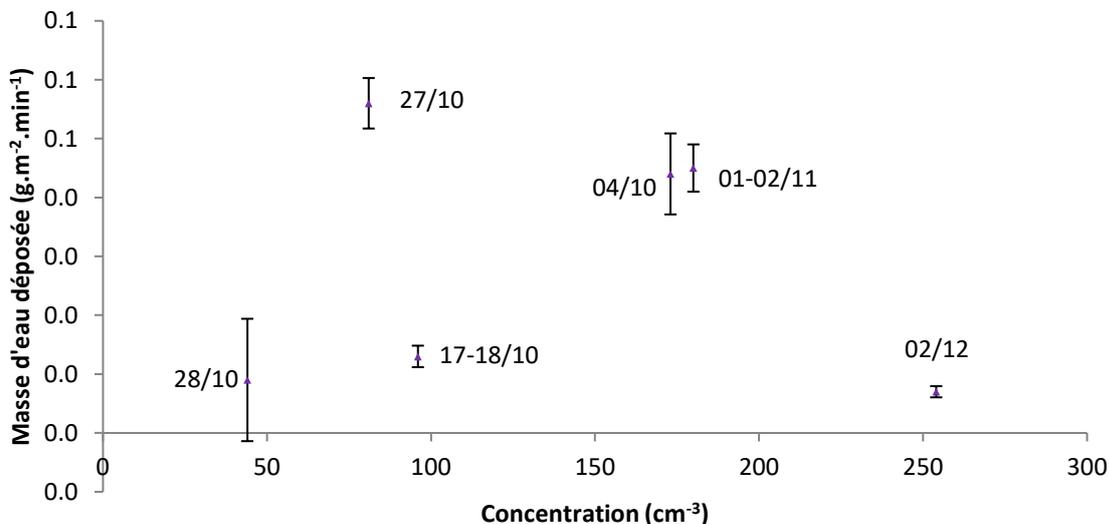


Figure 4.5 - **Masse d'eau moyenne déposée sur le sol nu (g.m⁻².min⁻¹)** en fonction de la concentration moyenne en gouttelettes (cm⁻³) pour chaque épisode de brouillard de la campagne 2016.

La figure 4.5, **qui représente la masse d'eau déposée en fonction de la concentration moyenne en gouttelette** pour les six épisodes de 2016, nous montre, en complément de la figure 4.4 que la taille des gouttelettes semble être un facteur plus important que le nombre de gouttelettes. En effet, un épisode comme le 27/10 pour lequel une concentration moyenne de 81 gouttelettes.cm⁻³ et un écart-type de 29 gouttelettes.cm⁻³ sont observés, constitue le brouillard avec le plus fort dépôt ($0,056 \text{ g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$). En revanche, le 02/12 présente une concentration de 254 gouttelettes.cm⁻³ et un écart-type de 56 gouttelettes.cm⁻³ pour un dépôt moyen de $0,005 \text{ g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$.

Cette première partie de l'analyse des résultats de la campagne 2016, a permis de mettre en évidence une corrélation entre le dépôt moyen d'eau de brouillard sur sol nu et le LWC moyen de l'épisode. En étudiant l'influence des deux facteurs à l'origine du contenu en eau liquide dans l'air, le diamètre des gouttelettes et leur concentration ; la distribution en taille des gouttelettes semble être le facteur prédominant qui conditionne la masse d'eau déposée par les gouttelettes de brouillard. Ainsi, un brouillard composé de grosses gouttelettes (>20 microns) même peu nombreuses, sera à l'origine d'un dépôt plus important qu'un brouillard composé de nombreuses petites gouttelettes. Cependant, les différences observées entre le dépôt sur sol nu et sur les cyprès ne peuvent s'expliquer uniquement par la variation des paramètres propres au brouillard et une étude des conditions de vent et de turbulence est donc réalisée par la suite. De plus, étant donnée les fortes variations potentielles des paramètres microphysiques durant un épisode brouillard, une étude détaillée de chaque cas de brouillard de la campagne 2016 est réalisée.

4.2.2 Etude du dépôt des gouttelettes de brouillards des épisodes de la campagne 2016

4.2.2.1 Influence des surfaces de dépôt et des paramètres microphysiques

Dans un premier temps, afin d'examiner l'influence du type de surface sur le dépôt des gouttelettes de brouillard, l'évolution de la masse d'eau déposée par minute et par mètre carré de surface végétalisée est étudiée durant un épisode de brouillard. Nous ne tiendrons pas compte de la surface foliaire des plantes, il s'agit d'étudier le dépôt sur un mètre carré de sol nu ou recouvert de cyprès, d'herbes, de choux. Il est ainsi possible d'évaluer, si la présence d'un végétal a une influence sur le dépôt du fait de sa structure, de sa hauteur ou de l'agencement de ces feuilles. Puis, à partir des données de dépôt et des données microphysiques du brouillard (LWC et distribution en taille des gouttelettes), il est possible d'évaluer l'impact des variations de ces paramètres sur le dépôt.

- Brouillard du 4 octobre 2016

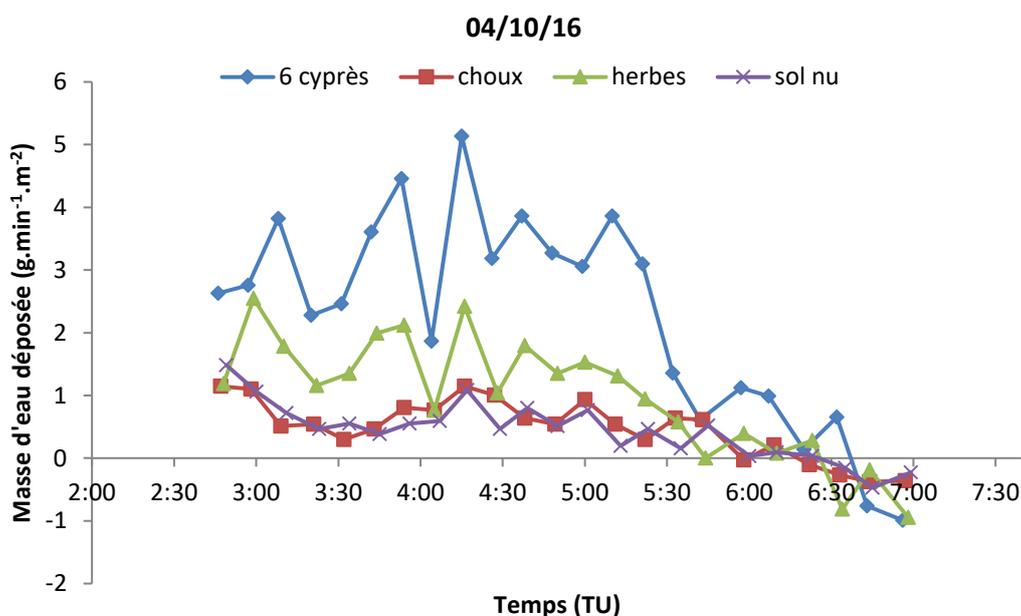
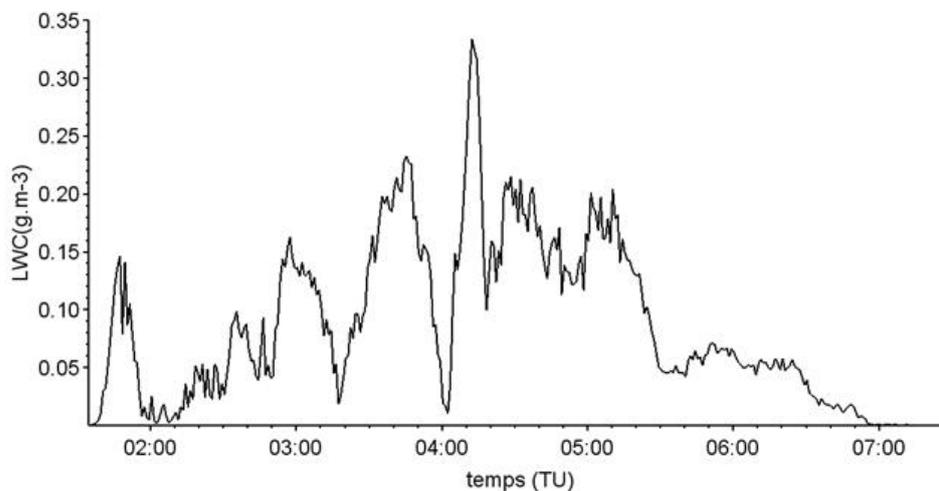
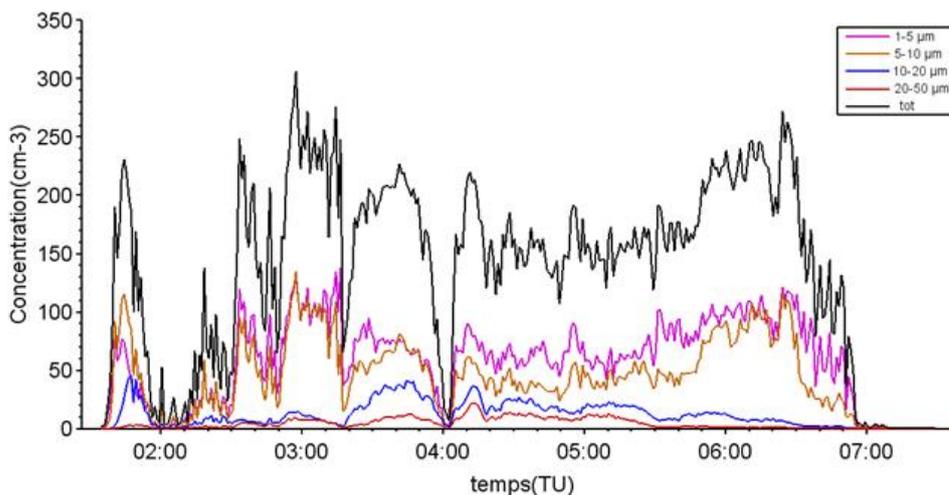


Figure 4.6 - Evolution temporelle de la masse d'eau (g.m⁻².min⁻¹) déposée sur les végétaux et le sol nu/terre durant l'épisode de brouillard du 04/10/16.

La figure 4.6 montre que conformément à ce qui a été observé pour les deux épisodes de la campagne 2015 (cf. partie 4.1), le dépôt sur les choux et la terre est sensiblement le même avec peu de variations, en moyenne $0,48 \text{ g}\cdot\text{min}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ pour les choux et $0,44 \text{ g}\cdot\text{min}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$ pour la **terre**. **L'herbe** représentant une surface de dépôt foliaire plus importante, le dépôt y est en moyenne deux fois plus élevé que sur les choux ($0,99 \text{ g}\cdot\text{min}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$) et le sol nu. Concernant les cyprès, ils constituent le couvert végétal avec la plus forte densité de biomasse et le dépôt est jusqu'à 5 fois plus important que sur la terre et les choux, la surface de dépôt du couvert cyprès étant 3,5 fois plus élevées que la surface sol nu. **La valeur moyenne d'eau de brouillard se déposant sur les cyprès est de $2,28 \text{ g}\cdot\text{min}^{-1}\cdot\text{m}^{-2}$** . L'évolution du LWC ainsi que du nombre et de la taille des gouttelettes permettent d'expliquer les variations de masse d'eau déposée durant l'épisode du 04/10/16.



(a)



(b)

Figure 4.7 - Evolution temporelle du contenu en eau liquide dans l'air ou LWC ($\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) (a) et de la concentration en particules (cm^{-3}) (b) du 04/10/16.

L'épisode du 4 octobre 2016 présente des valeurs de LWC très importantes pouvant atteindre $0,3 \text{ g}\cdot\text{m}^{-3}$ pour une concentration de 220 gouttelettes par cm^{-3} (Fig. 4.7(a)). Ce pic de LWC à 04h10 correspond au maxima de dépôts d'eau de brouillard sur toutes sur les surfaces entre 04h15 et 04h18. Nous

observons cependant, que les valeurs les plus élevées de LWC durant cet épisode ne correspondent pas au moment où la concentration en gouttelettes est la plus élevée. Par exemple, pour un LWC de $0,3 \text{ g.m}^{-3}$ la concentration en gouttelettes est de 220 par cm^{-3} alors que pour un LWC de $0,17 \text{ g.m}^{-3}$ la concentration est de $310 \text{ gouttelettes.cm}^{-3}$ à 03h00. A partir de 03h20, le nombre total de gouttelettes diminue alors que le nombre de grosses gouttelettes (entre 15 et 20 microns) doublent. Cela correspond à une phase où, les petites gouttelettes grossissent par coalescence et/ou condensation. Le nombre de gouttelettes est donc moins élevé mais le contenu en eau liquide est plus important. Par ailleurs, lorsque le brouillard entre en phase de dissipation, avec un LWC inférieur à $0,1 \text{ g.m}^{-3}$ à 05h30, il ne s'agit pas d'une diminution nette du nombre total de gouttelettes qui reste relativement constant entre 05h00 et 06h00 mais d'une diminution du nombre de grosses gouttelettes (de 10 à 50 microns). A partir de 05h20, le LWC diminue et reste inférieur à $0,1 \text{ g.m}^{-3}$, ce qui entraîne une diminution également de la masse d'eau déposée sur toutes les surfaces. Lorsque le dépôt est faible, les écarts de dépôts entre les différentes surfaces ont tendance à se réduire. Il semble, d'après ces mesures que le LWC soit principalement influencé par la concentration des grosses gouttelettes (Fig. 4.6). Les variations du dépôt semblent fortement corrélées à l'évolution du LWC. Cette corrélation dépôt-LWC est confirmée par la figure 4.8 représentant la masse d'eau déposée en fonction du LWC.

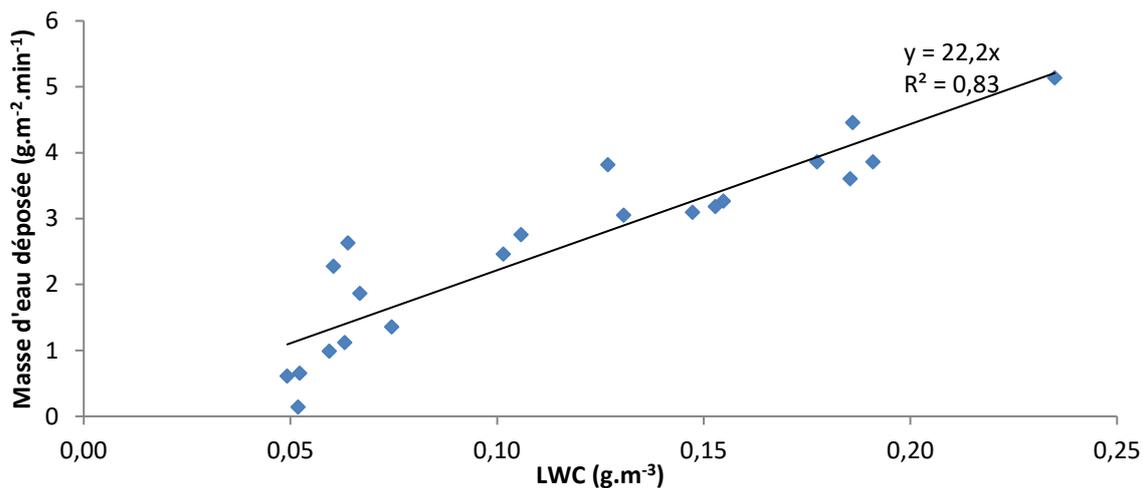


Figure 4.8 - Masse d'eau déposée sur les cyprès ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction du LWC (g.m^{-3}) de l'épisode du 04/10/16.

Pour obtenir la figure 4.8, nous avons pris en compte les données de pesées pour l'épisode du 4 octobre entre 02h47 et 06h30 (Fig. 4.6). Lors de cette phase, le nombre de gouttelettes ne subit que deux fortes variations en un court laps de temps, entre 03h20 et 04h00, où le nombre de gouttelettes est proche de 0 (Fig. 4.7(b)). Les pesées étant réalisées toutes les 10 minutes, les valeurs moyennes de LWC sur cette même période sont calculées. Plus de 57% des valeurs moyennes de LWC sont supérieures à $0,1 \text{ g.m}^{-3}$. Cela s'explique par le fait que la période étudiée, ne comprend pas la phase de formation du brouillard et peu la phase de dissipation pour laquelle les valeurs d'évaporation (masses de dépôt négatives) n'ont pas été prises en compte. La relation entre la masse d'eau déposée et le LWC est spécifique à cet épisode puisque le coefficient liant ces deux paramètres est de 22 (Fig. 4.8) est déterminé pour le 4 octobre, alors que pour l'ensemble des épisodes de brouillard ce coefficient est de 3,2 (Eq. 4.1).

Nous avons vu que le LWC est fortement influencé par le nombre de grosses gouttelettes. Afin d'évaluer si le dépôt de grosses gouttelettes est le processus majoritairement à l'origine du dépôt

d'eau de brouillard, la masse d'eau déposée en fonction de la concentration des gouttelettes comprises entre 20 et 50 microns est tracée (Fig. 4.9).

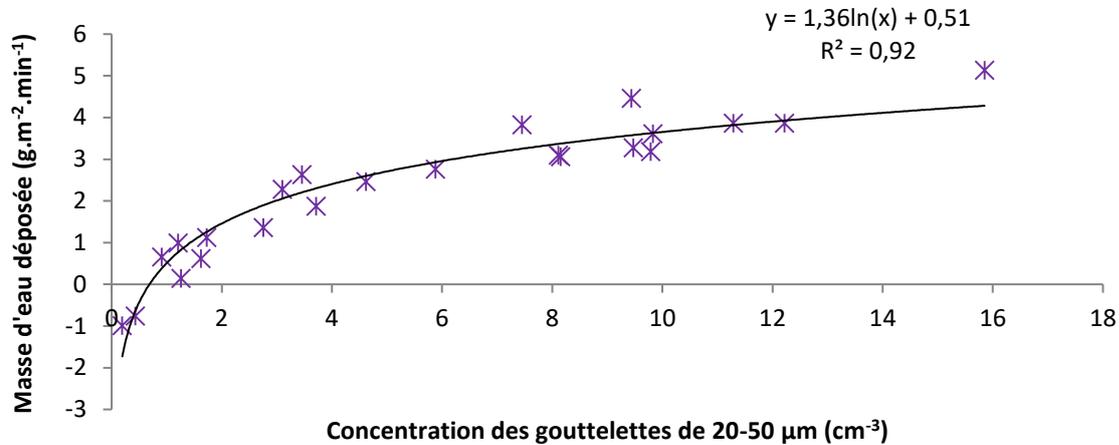


Figure 4.9 - Masse d'eau déposée sur les cyprès ($\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{min}^{-1}$) en fonction de la concentration des gouttelettes de 20 à 50 μm (cm^{-3}) pour l'épisode du 04/10/16.

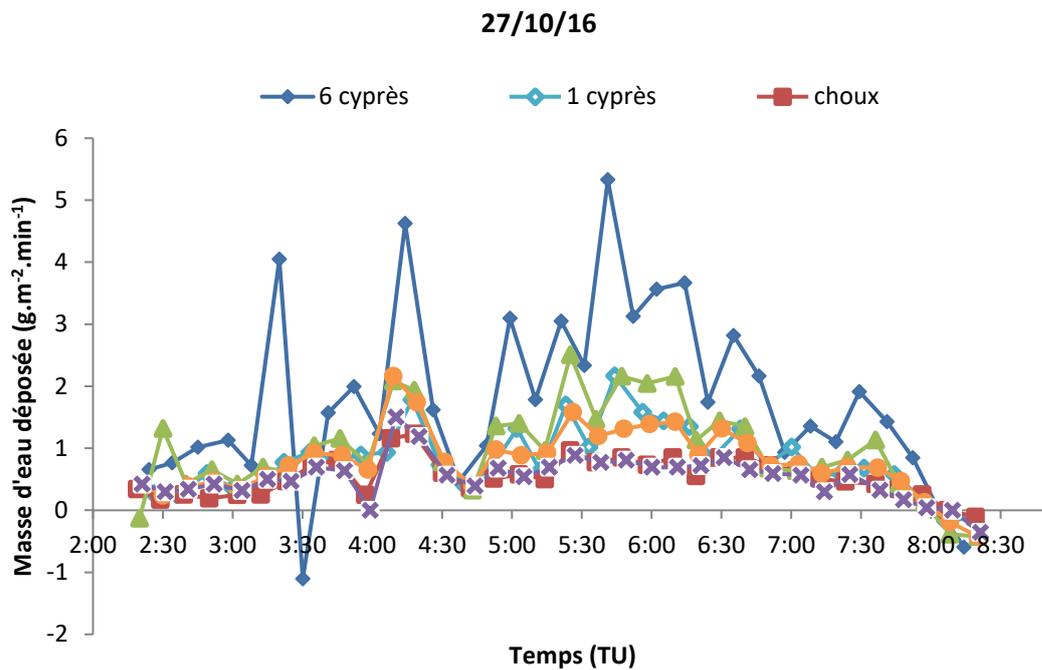
La figure 4.9 met en évidence une relation logarithmique **entre la masse d'eau déposée et la concentration en gouttelettes de 20 à 50 microns**. Les masses d'eau déposées négatives correspondent au début de la phase de dissipation du brouillard où le nombre de grosses gouttelettes diminuent.

L'épisode de brouillard radiatif du 4 octobre correspond à un brouillard pour lequel la masse d'eau déposée semble provenir du dépôt des grosses gouttelettes (20 à 50 μm). Le calcul de la vitesse de dépôt des gouttelettes basé sur la relation théorique entre vitesse et diamètre pour cet épisode, **permettra de déterminer l'importance de la composante turbulente de la vitesse de dépôt des grosses gouttelettes par rapport à la composante sédimentation**.

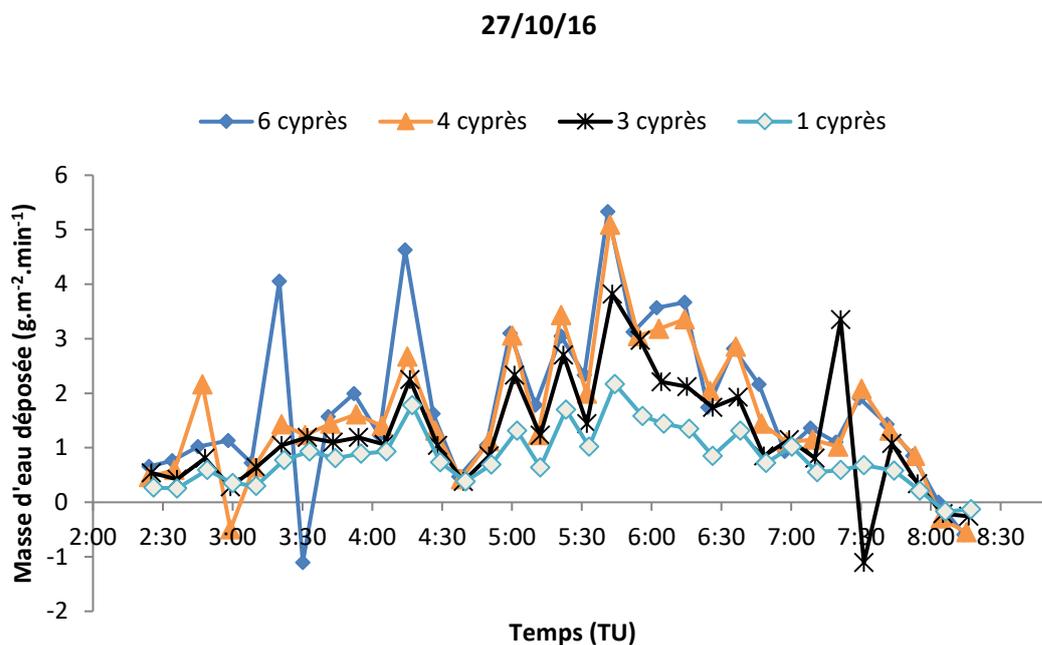
Les épisodes du 4 octobre et du 27 octobre sont les deux brouillards dont les valeurs de dépôt d'eau de brouillard sont les plus élevées en moyenne. L'étude détaillée du 27 octobre permet d'établir si les processus de dépôt sont les mêmes pour ces deux épisodes.

- Brouillard du 27 octobre 2016

Pour l'épisode du 27 octobre, il a été possible de mesurer le dépôt d'eau de brouillard sur huit surfaces différentes : six cyprès, quatre cyprès, trois cyprès, un cyprès, choux, herbe, colza et sol nu (Fig. 4.10). L'utilisation de surfaces de dépôt constituées d'un nombre différent de cyprès permet de mettre en évidence l'impact de la densité d'un végétal sur le dépôt d'eau de brouillard.



(a)



(b)

Figure 4.10 - Evolution de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les végétaux (6 cyprès, choux, herbes) et le sol nu (a) durant l'épisode de brouillard du 27/10/16 ; évolution de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les cyprès (6, 4, 3 et 1) durant l'épisode de brouillard du 27/10/16 (b).

Dans le cas du 27 octobre 2017, les valeurs de LWC sont très importantes ce qui produit un dépôt d'eau conséquent de l'ordre du gramme par mètre carré et par minute (tableau 4-1 et Fig. 4.10 (a)). Cet épisode confirme que lorsque le LWC est supérieur à $0,1 \text{ g.m}^{-3}$, le dépôt est beaucoup plus

important sur les six cyprès et l'herbe que sur les choux et le sol nu. Le dépôt sur un seul cyprès est similaire à celui sur l'herbe.

La figure 4.10 (b)) montre, que la masse d'eau déposée au sol pour six, quatre et trois cyprès est peu variable ; seul le dépôt sur une surface ne comprenant qu'un seul cyprès est significativement plus faible. L'effet « d'écrantage » selon lequel le dépôt sur les cyprès varie en fonction de leur densité (plus la densité d'arbres est élevée plus l'effet d'écran est important) n'est donc pas observable à partir de cette expérience.

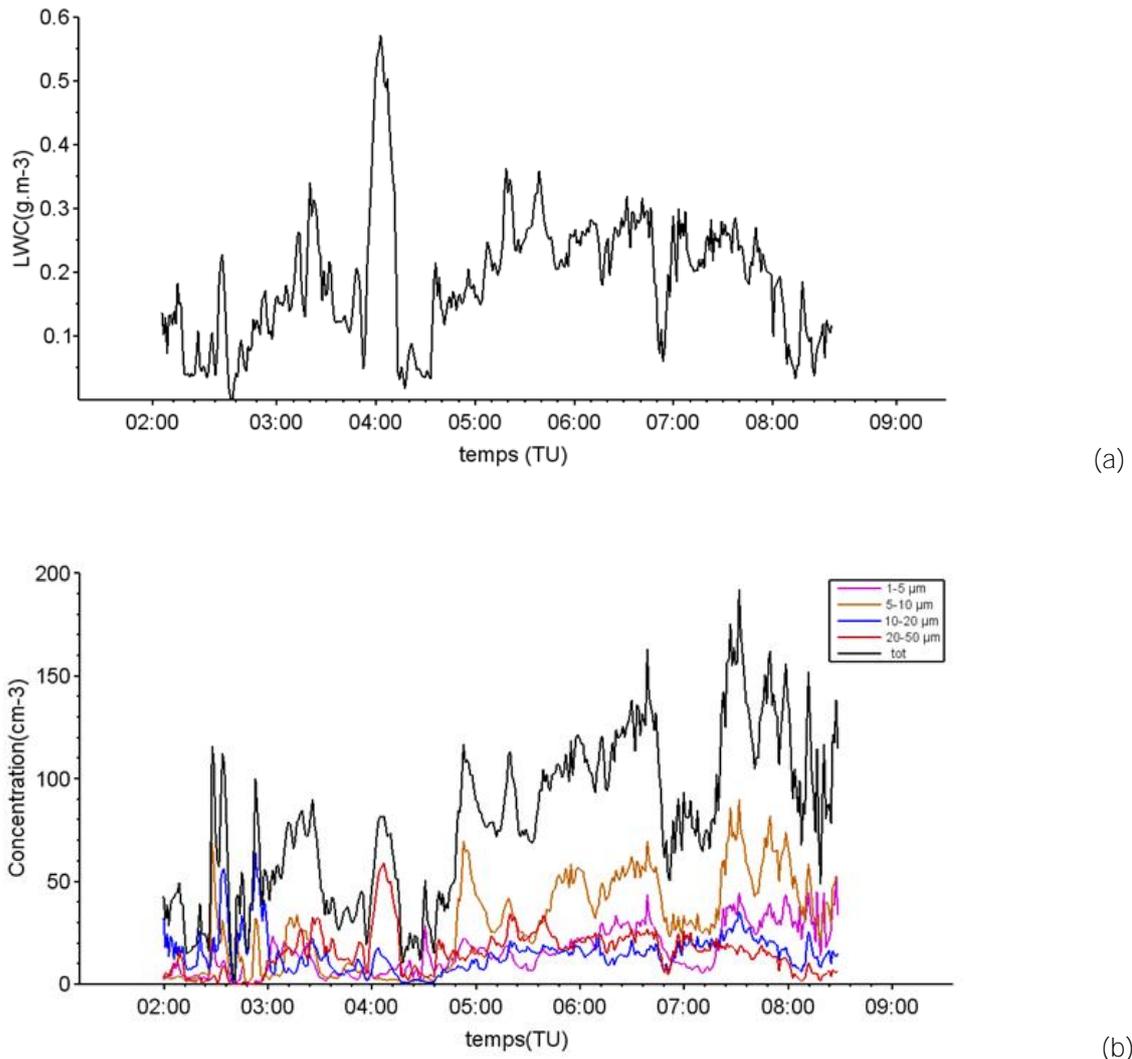


Figure 4.11 - Evolution temporelle du contenu en eau liquide dans l'air ou LWC (g.m⁻³) (a) et de la concentration en particules (cm⁻³) (b) du 27/10/16.

Le 27 octobre 2016 est un cas assez particulier car il présente des valeurs de LWC très élevées ; en moyenne 0,2 g.m⁻³ (Fig.4.11(a)). Cela s'explique par le nombre de très grosses gouttelettes (>20 microns) qui reste relativement élevé sur tout l'épisode de brouillard (Fig.4.11(b)), en moyenne 21% du nombre total de gouttelettes (Fig. 4.11(a)). La concentration en gouttelettes est en revanche plus faible que pour l'épisode du 4 octobre 2016, avec un maximum à 190 gouttelettes.cm⁻³ à 07h25 (Fig.4.11(b)). Durant tout l'épisode, les très grosses gouttelettes sont responsables de ces contenus

en eau liquide élevés. Cela confirme les observations précédentes, à savoir que le nombre de grosses gouttelettes va déterminer principalement le contenu en eau liquide dans l'air. Contrairement à l'épisode du 4 octobre, les pics de LWC ne correspondent pas systématiquement aux maxima de masse d'eau déposée (Fig. 4.10 et 4.11(a)). D'après la figure 4.10, une masse d'eau déposée négative est observée à 03h30 pour la surface composée de six cyprès, or la masse d'eau déposée est positive pour le reste des surfaces plantées de cyprès. Il semblerait que ce soit dû à une erreur lors du report des données car cette période correspond à des valeurs de LWC très fortes ($>0,2 \text{ g.m}^{-3}$) (Fig. 4.11(a)).

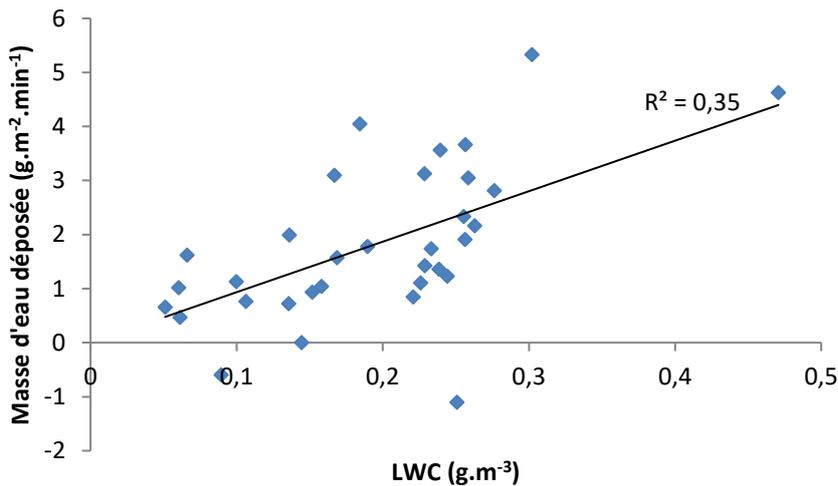


Figure 4.12 - Masse d'eau déposée sur les cyprès ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction du LWC (g.m^{-3}) pour l'épisode du 27/10/16.

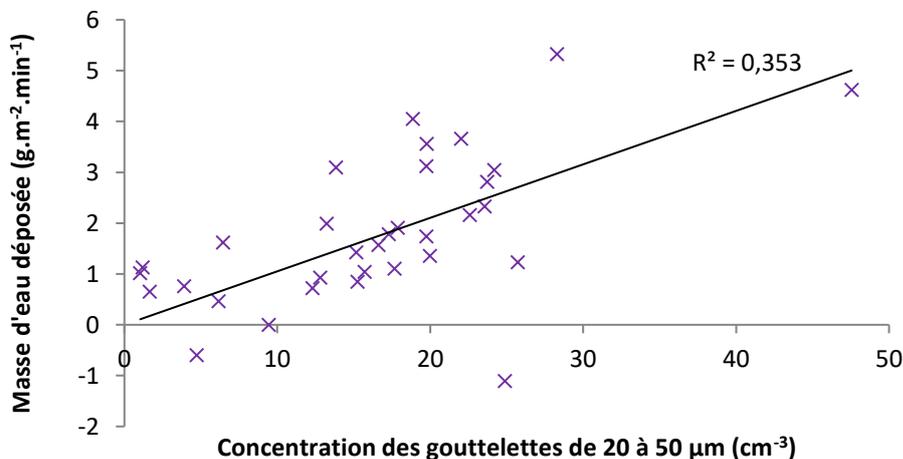


Figure 4.13 - Masse d'eau déposée sur les cyprès ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction de la concentration des gouttelettes de 20 à 50 µm (cm^{-3}) pour l'épisode du 27/10/16.

D'après la figure 4.12, la tendance générale selon laquelle plus le contenu en eau liquide est important, plus le dépôt est élevé est respectée. La figure 4.13 est quasiment identique à la figure 4.12 représentant le dépôt en fonction de la concentration des gouttelettes de 20 à 50 microns car la proportion de gouttelettes est élevée (21%) ce qui indique qu'une grosse partie de l'eau liquide dans l'air est contenue dans ces grosses gouttelettes.

L'épisode du 27 octobre pour lequel le dépôt d'eau de brouillard ne dépend pas seulement du contenu en eau liquide dans l'air, suggère que malgré une forte concentration en grosses gouttelettes, des facteurs tels que la vitesse de vent ou la turbulence peuvent expliquer les variations de dépôt.

- Brouillard du 01 au 02 Novembre 2016

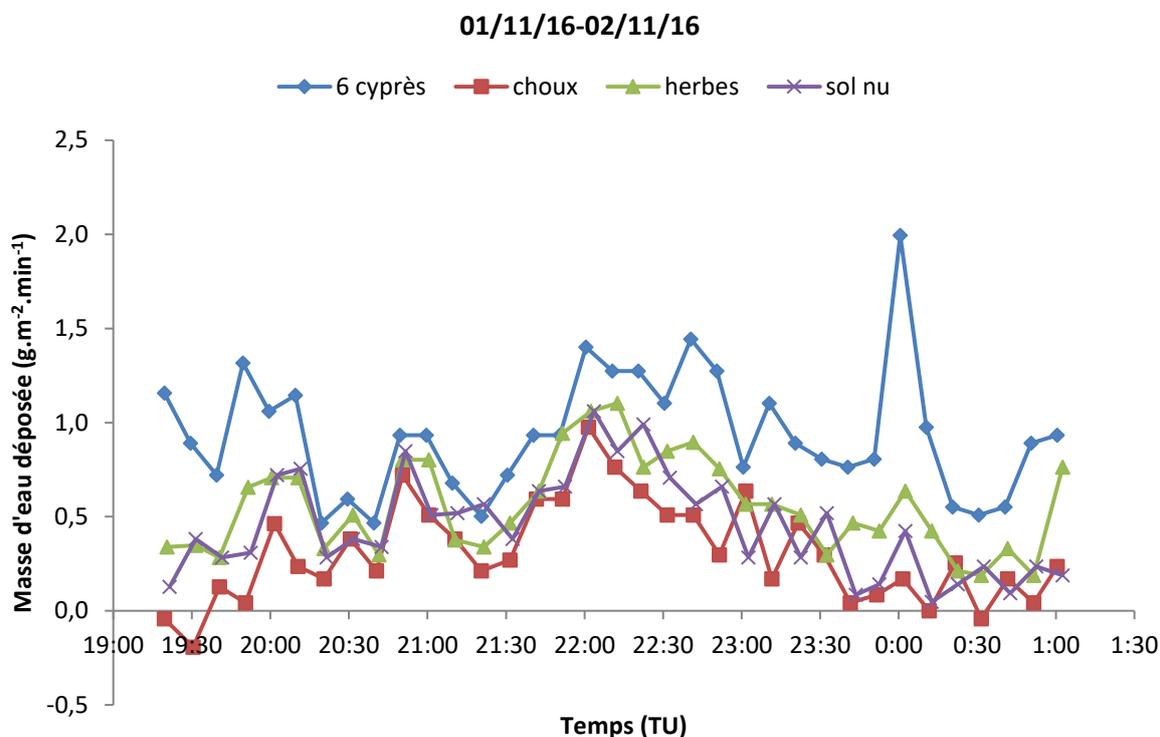


Figure 4.14 - Evolution de la masse d'eau (g.m⁻².min⁻¹) déposée sur les végétaux et le sol nu/terre durant l'épisode de brouillard du 01-02/11/16.

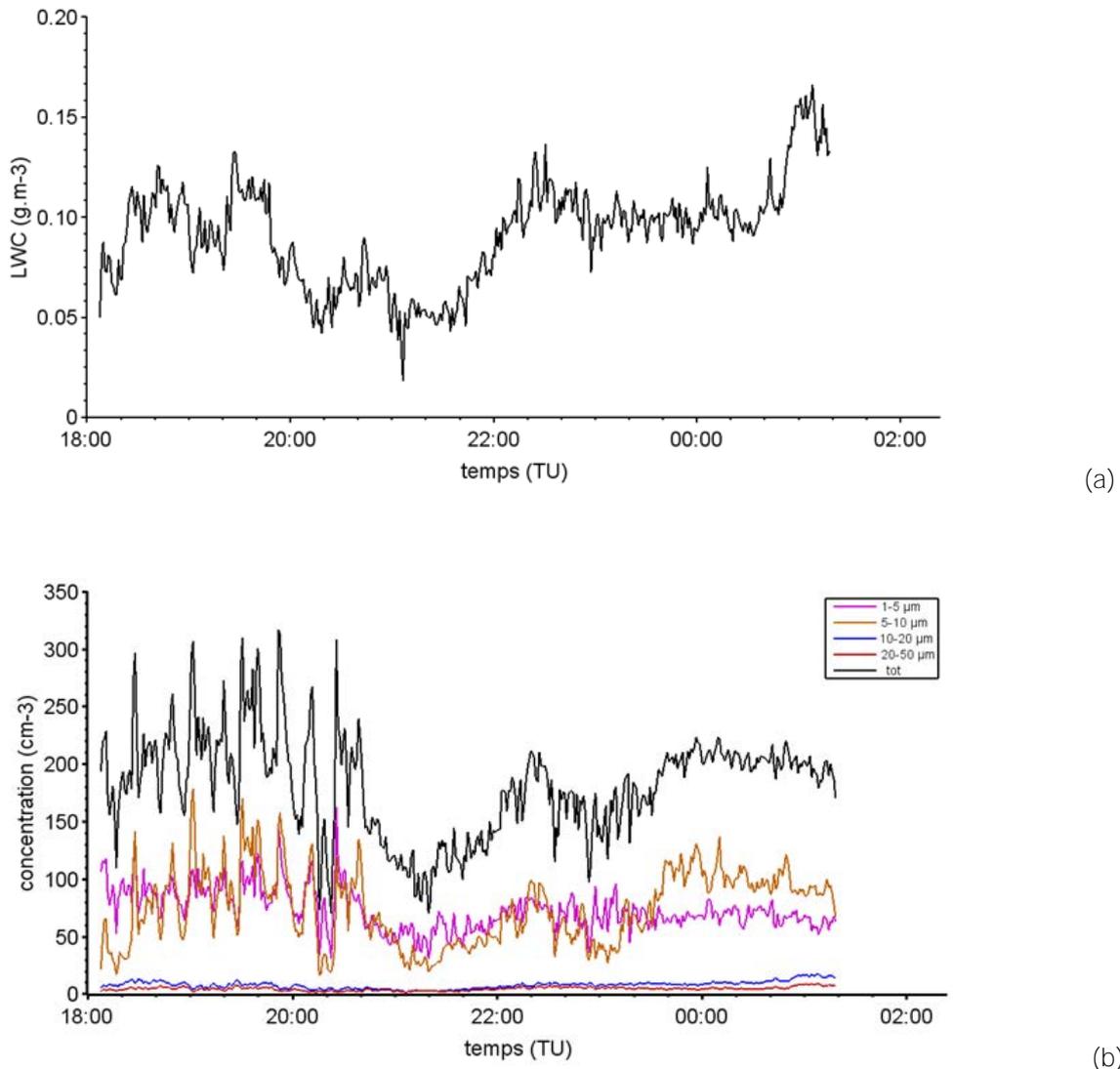


Figure 4.15 - Evolution temporelle du contenu en eau liquide dans l'air ou LWC (g.m^{-3}) (a) et de la concentration en particules (cm^{-3}) (b) du 01-02/11/16.

Dans le cas de l'épisode du 1 au 2 Novembre 2016, les variations de la masse d'eau déposée sur les végétaux (Fig. 4.14) et l'évolution du LWC et du nombre de gouttelettes (Fig. 4.15 (a) & (b)) sont à étudier parallèlement. En effet, durant la période de pesée, le contenu en eau liquide est assez constant avec une valeur moyenne de $0,09 \text{ g.m}^{-3}$ et un écart-type de $0,02$ (Tableau 4-1). La diminution majeure de LWC apparaît de 19h40 jusqu'à 22h00 avec un LWC proche de $0,05 \text{ g.m}^{-3}$ (Fig. 4.15 (a)). Concernant le dépôt, la figure 4.14 montre que l'écart de masse d'eau déposée entre les cyprès et les autres surfaces (végétation basse et sol nu) diminue entre 20h20 et 22h00, ce qui correspond à la période où le LWC est inférieure à $0,1 \text{ g.m}^{-3}$. Cette diminution du LWC a pour origine, une baisse de la concentration du nombre de gouttelettes (Fig. 4.15 (b)) qui est divisée par deux en moyenne de 20h00 à 21h00.

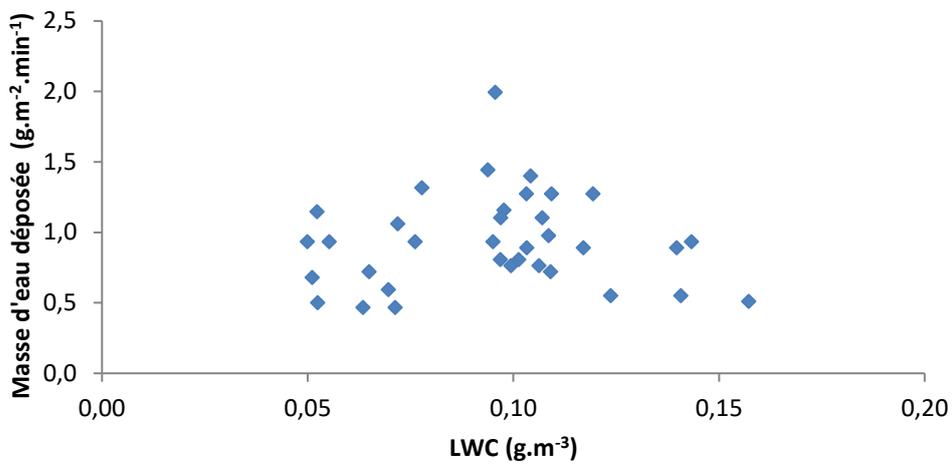


Figure 4.16 - Masse d'eau déposée sur les cyprès ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction du LWC (g.m^{-3}) de l'épisode du 01-02/11/16.

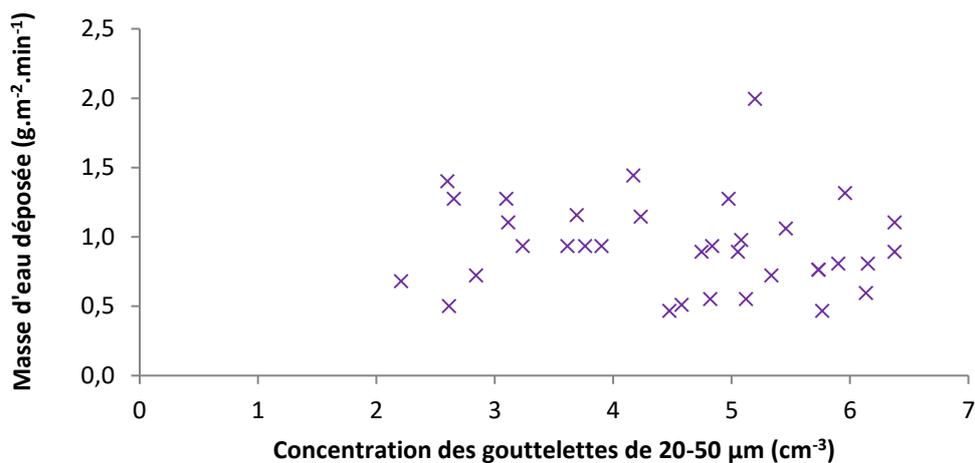
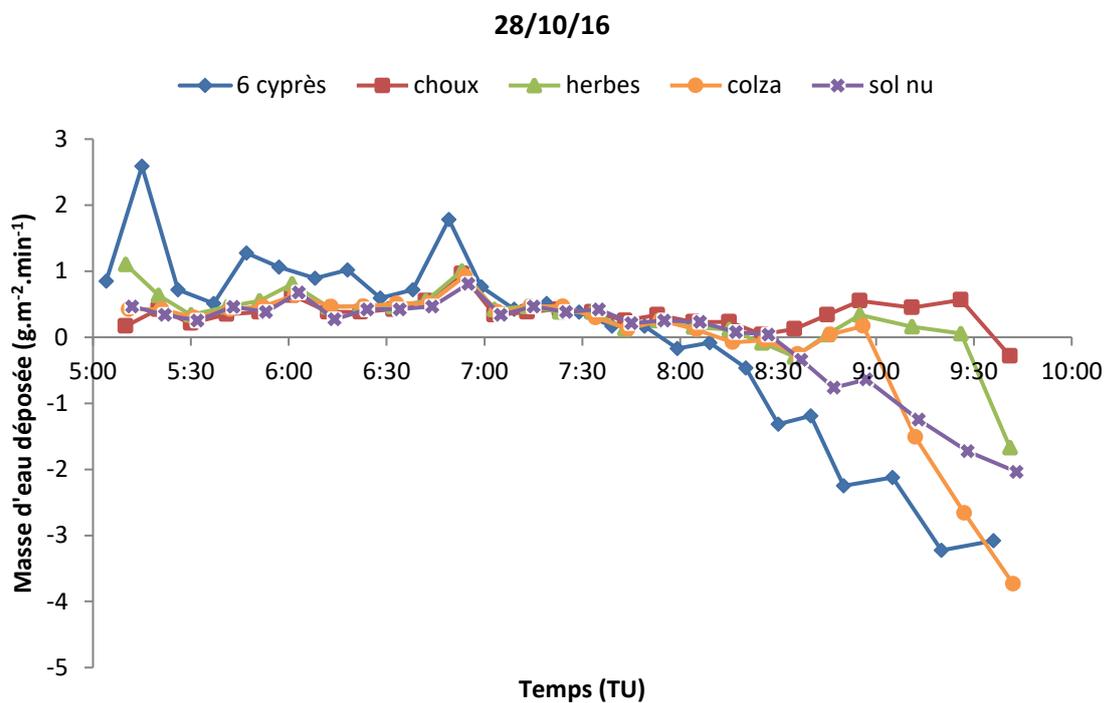


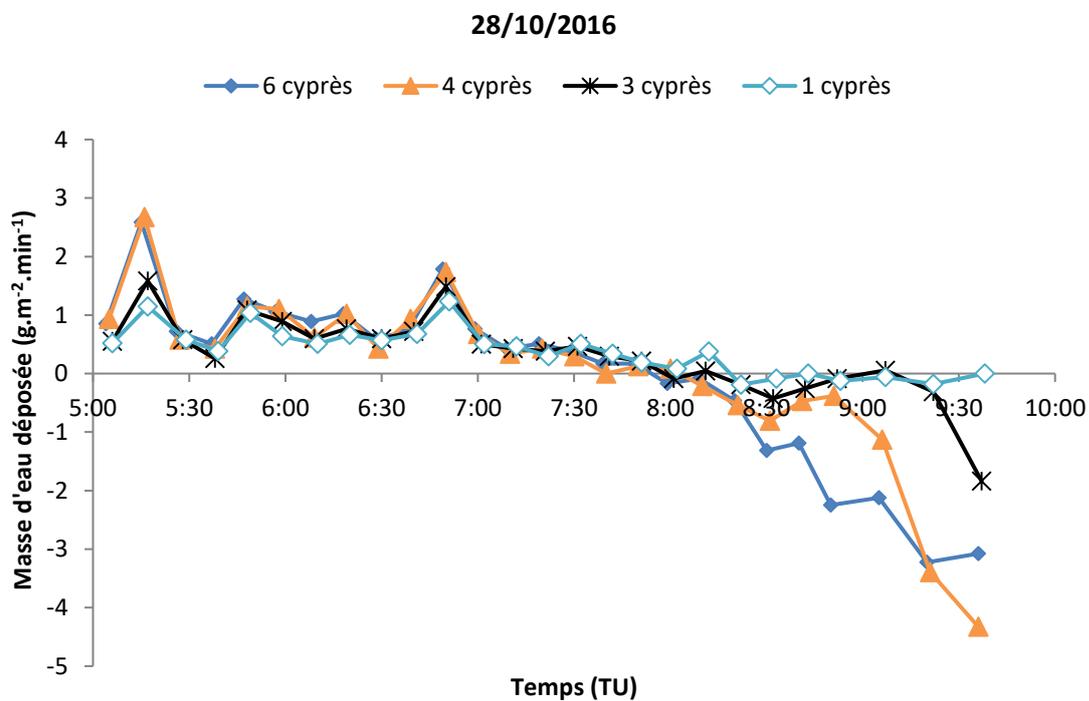
Figure 4.17 - Masse d'eau déposée sur les cyprès ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction de la concentration des gouttelettes de 20 à 50 μm (cm^{-3}) de l'épisode du 01-02/11/16.

La figure 4.16 représentant la masse d'eau déposée sur les cyprès en fonction du LWC ne met pas en évidence de dépendance des quantités d'eau de brouillard déposée avec le LWC car le contenu en eau liquide dans l'air durant la période de pesée est assez stable. Une grande majorité des valeurs de LWC est comprise entre 0,05 et 0,15 g.m^{-3} . Le flux de dépôt est également peu variable et compris entre 0,5 et 1,5 $\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$. Cela montre que, pour de faibles variations de LWC, le dépôt sera également peu variable.

- Brouillard du 28 octobre 2016

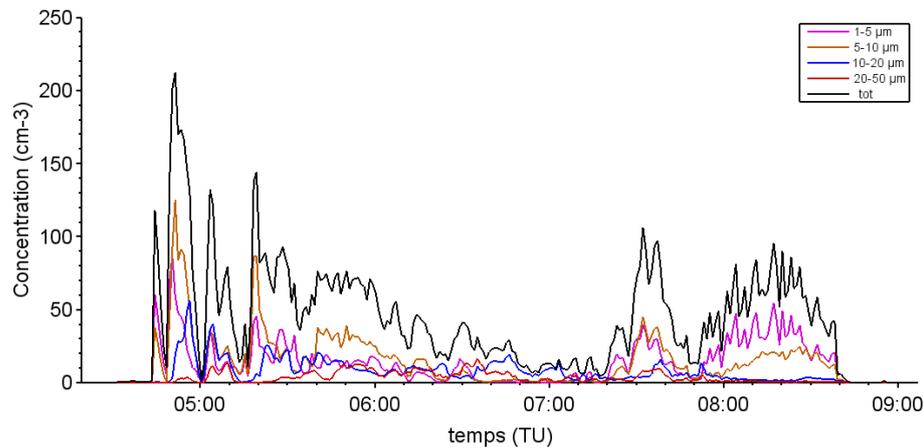


(a)

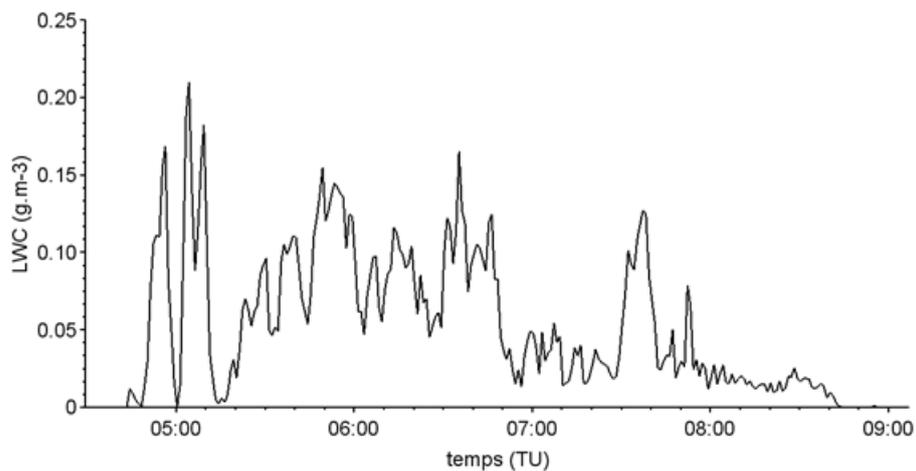


(b)

Figure 4.18 - Evolution de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les végétaux (6 cyprès, choux, herbes) et le sol nu (a) durant l'épisode de brouillard du 28/10/16 ; évolution de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les cyprès (6, 4, 3 et 1) durant l'épisode de brouillard du 28/10/16 (b).



(a)



(b)

Figure 4.19 - Evolution temporelle du contenu en eau liquide dans l'air ou LWC (g.m^{-3}) (a) et de la concentration en particules (cm^{-3}) (b) du 28/10/16.

Pour le brouillard du 28 octobre 2016, deux phases de dépôt sont visibles (Fig. 4.18 (a)), une première phase de 05h00 à 07h00 où la moyenne du LWC est égale à $0,08 \text{ g.m}^{-3}$ (Fig. 4.19 (a)), puis une seconde phase de 07h00 à 08h30, durant laquelle le LWC est en moyenne égale à $0,03 \text{ g.m}^{-3}$. Ces phases correspondent aux différents stades de développement du brouillard. En effet, selon la figure 4.19 (b), de 04h00 à 05h00, la concentration en gouttelettes est importante avec majoritairement des petites gouttelettes (<10 microns). A partir de 05h00 le maximum de LWC est atteint pour ce brouillard car le nombre de grosses gouttelettes (>10 microns) augmentent alors que la concentration totale en gouttelettes diminue. (Fig. 4.19 (a) & (b)). Les gouttelettes se réunissent pour former des **gouttelettes plus grosses. Ce phénomène se poursuit jusqu'à 07h00, à ce moment, la concentration totale de gouttelettes a fortement diminué ($<50 \text{ cm}^{-3}$) pourtant le LWC atteint $0,1 \text{ g.m}^{-3}$. Cela peut s'expliquer par le nombre de grosses gouttelettes. A partir de 08h00 le nombre de grosses gouttelettes chute de même que le LWC alors que le nombre de petites gouttelettes augmente, le brouillard se dissipe par évaporation des gouttelettes.**

Durant la seconde phase, du fait d'un contenu en eau liquide dans l'air faible, le dépôt est quasi nul quelle que soit la surface de dépôt. La figure 4.18 (b) ne montre pas de différence majeure en termes

de dépôt entre les différentes densités de cyprès contrairement à la phase d'évaporation où le flux d'évaporation est proportionnel à la densité en végétaux des surfaces. (Fig. 4.18 (a) et (b)).

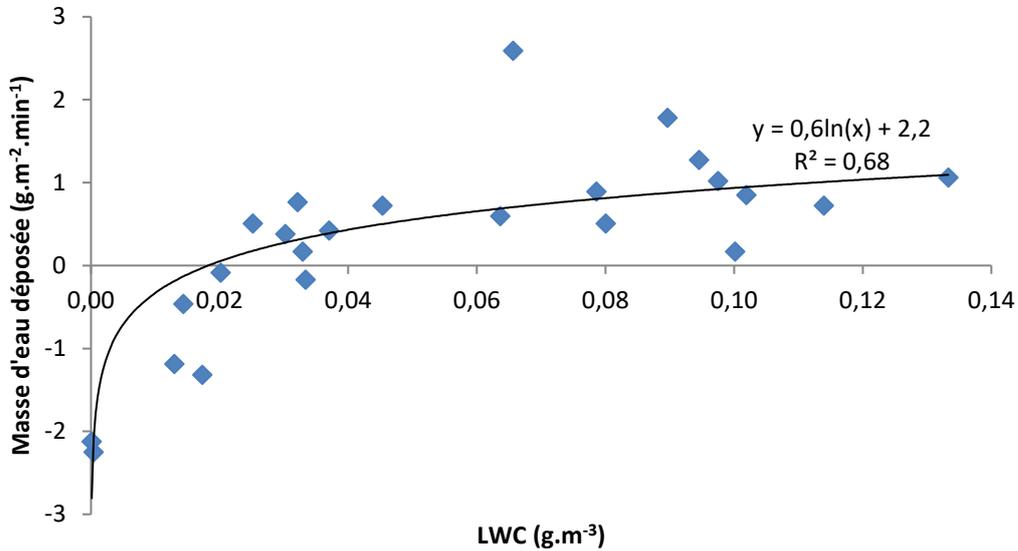


Figure 4.20 - Masse d'eau déposée sur les cyprès ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction du LWC (g.m^{-3}) de l'épisode du 28/10/16.

La figure 4.20 montre qu'il existe effectivement une corrélation entre masse d'eau déposée sur les cyprès et LWC, il s'agit d'une relation logarithmique et non pas linéaire comme pour le 4 octobre 2016. Afin de tracer cette courbe, les flux d'eau d'évaporation (masse d'eau déposée $< 0 \text{ g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) ont été pris en compte ce qui pourrait expliquer une dépendance non-linéaire du dépôt avec le LWC dans ce cas. On suppose que la cinétique du processus d'évaporation n'est pas la même que celle conduisant au dépôt des gouttelettes (condensation et coalescence).

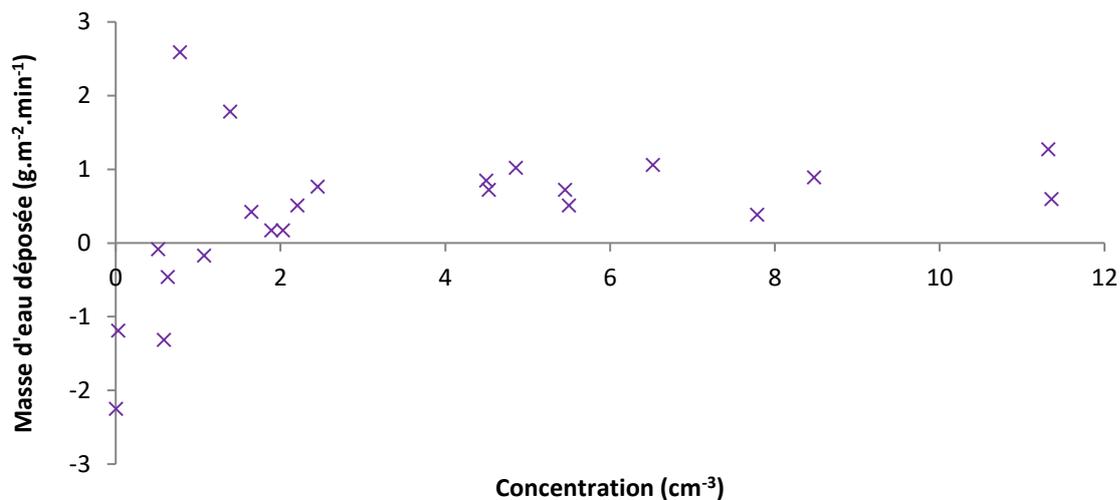


Figure 4.21- Masse d'eau déposée sur les cyprès ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) en fonction de la concentration des gouttelettes de 20 à 50 μm (cm^{-3}) pour l'épisode du 28/10/16.

Malgré la corrélation entre le LWC et la masse d'eau de brouillard déposée sur les cyprès la concentration en grosses gouttelettes n'ait pas d'impact sur le dépôt (Fig. 4.21). Dans le cas de faibles concentrations ($<2 \text{ cm}^{-3}$), on observe les minima de flux d'eau de brouillard. Les minima correspondant à des flux d'évaporation.

- Brouillard du 17 au 18 octobre 2016

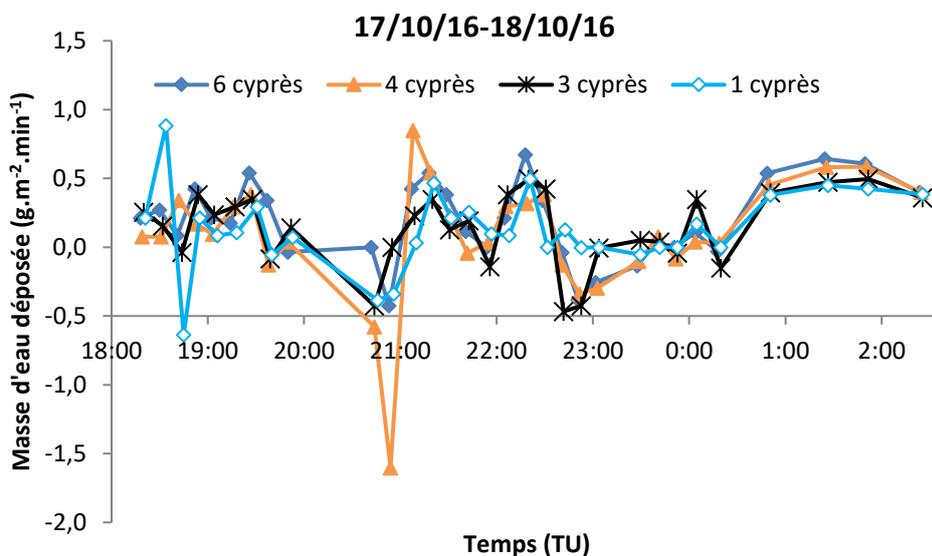
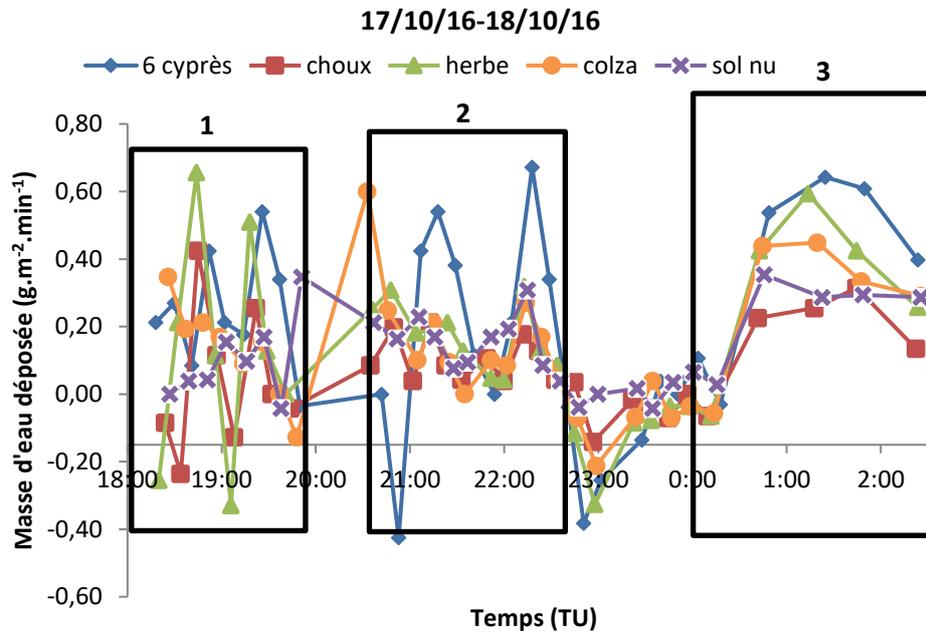
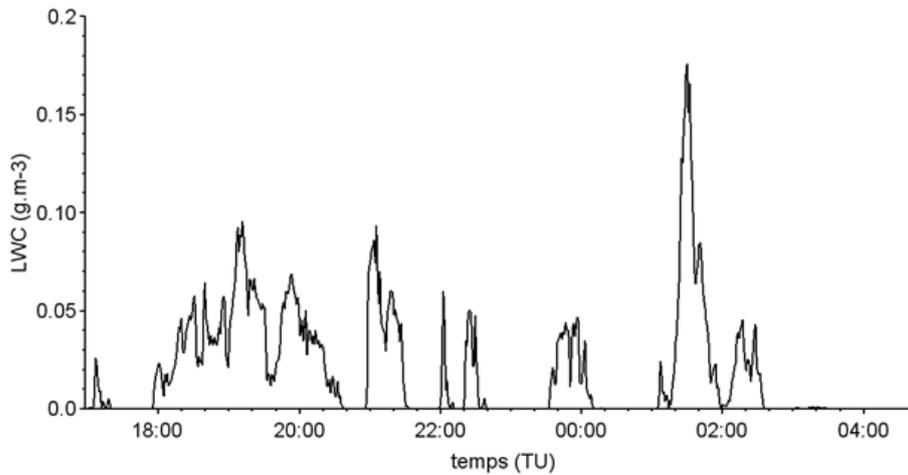
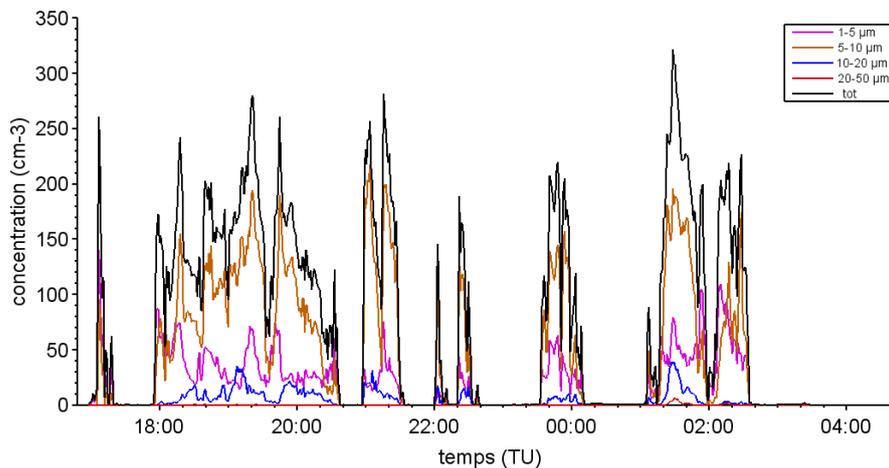


Figure 4.22 - Evolution de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les végétaux (6 cyprès, choux, herbes) et le sol nu/terre (a) durant l'épisode de brouillard du 17-18/10/16 ; évolution de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les cyprès (6, 4, 3 et 1) durant l'épisode de brouillard du 17-18/10/16 (b).



(a)



(b)

Figure 4.23 - Evolution temporelle du contenu en eau liquide dans l'air ou LWC (g.m^{-3}) (a) et de la concentration en particules (cm^{-3}) (b) du 17 au 18/10/16.

Pour l'épisode du 17 au 18 octobre 2016, les valeurs de LWC sont majoritairement inférieures à $0,1 \text{ g.m}^{-3}$ (Fig. 4.23 (a)), les seules valeurs de LWC supérieures à $0,1 \text{ g.m}^{-3}$ sont observées entre 01h30 et 02h00. La figure 4.22 (a) montre que jusqu'à 01h00, il n'existe que peu de différence en termes de dépôt entre les six cyprès et les trois autres surfaces (végétation basse et sol). En effet, la différence de dépôt entre la surface la plus « déposante » (les six cyprès) et celle avec le plus faible dépôt (sol nu/terre) est en moyenne égale à $0,08 \text{ g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$ sur cette période. Cela confirme ce qui a été observée précédemment pour l'épisode du 01-02/11 et du 28/10. Lorsque les LWC sont faibles ($<0,1 \text{ g.m}^{-3}$), cela entraîne des dépôts faibles sur lesquels les types de surface n'ont pas d'influence. Lors du pic de LWC à $0,18 \text{ g.m}^{-3}$ à 02 h00 (Fig. 4.23 (a)), les masses d'eau déposée sont plus importantes sur les cyprès et l'herbe que sur les choux et la terre (Fig.4.22 (a)), ce qui a été observé dans le cas du 4 octobre 2016 également. Par ailleurs, il ne semble pas y avoir de différence significative de dépôt sur des surfaces de cyprès de densité allant d'un à six cyprès (Fig. 4.22(b)). Lorsque le LWC est égale à 0 de 22h30 à 23h20 puis de 00h20 à 01h00, l'évaporation de l'eau déposée sur l'ensemble des surfaces est constatée.

Le contenu en eau liquide assez faible de cet épisode de brouillard s'explique probablement par la faible teneur en gouttelettes supérieures à 20 microns (Fig. 4.23 (b)).

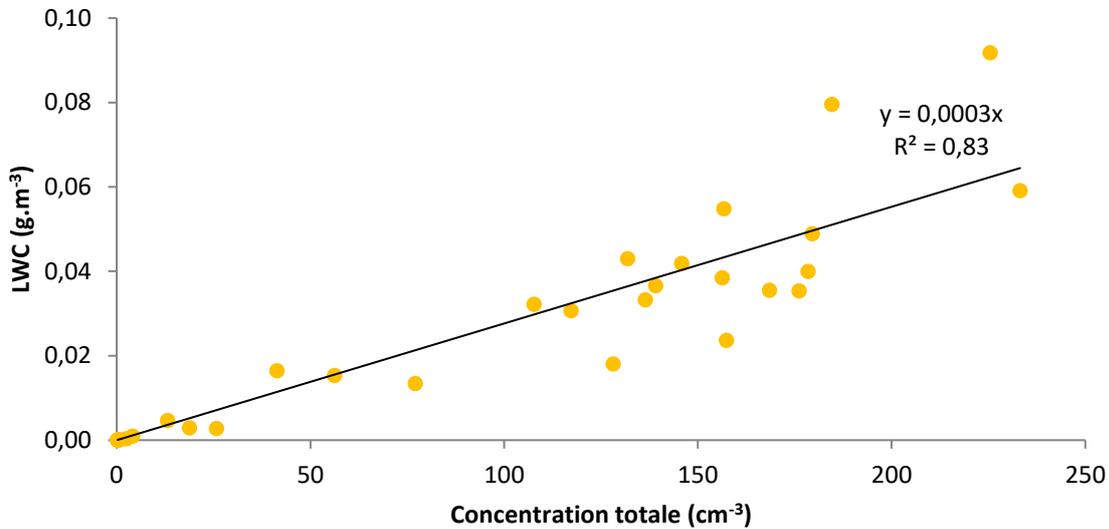


Figure 4.24 - Contenu en eau liquide dans l'air ou LWC (g.m⁻³) en fonction de de la concentration totale de gouttelettes (cm⁻³).

Du fait de l'absence de très grosses gouttelettes (en moyenne 0,1 gouttelettes.cm⁻³) supérieures à 20 microns sur l'ensemble de l'épisode de brouillard, le LWC est directement proportionnel à la concentration totale de gouttelettes (Fig. 4.24).

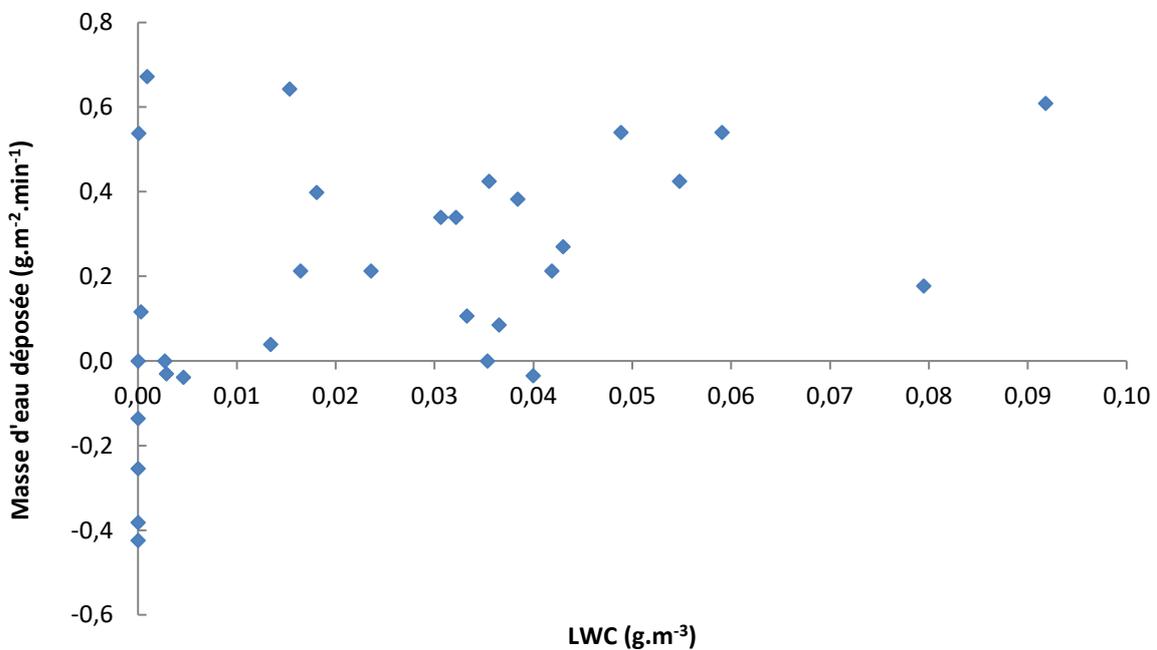


Figure 4.25 - Masse d'eau déposée sur les cyprès (g.m⁻².min⁻¹) en fonction du LWC (g.m⁻³) de l'épisode du 17-18/10/16.

La figure 4.25 ne permet pas de mettre en évidence une corrélation entre masse d'eau déposée par les gouttelettes de brouillard et le LWC. Cela ne signifie pas forcément qu'il n'y a pas de lien entre ces deux paramètres.

En effet, les variations de LWC durant cet épisode sont fréquentes et très rapides, or l'utilisation des balances pour la pesée du dépôt occulte nécessite une accumulation au moins supérieure à 0,1 g pour être détectée. Le dispositif ne permet pas de rendre compte des faibles variations de flux d'eau déposée.

- Brouillard du 02 décembre 2016

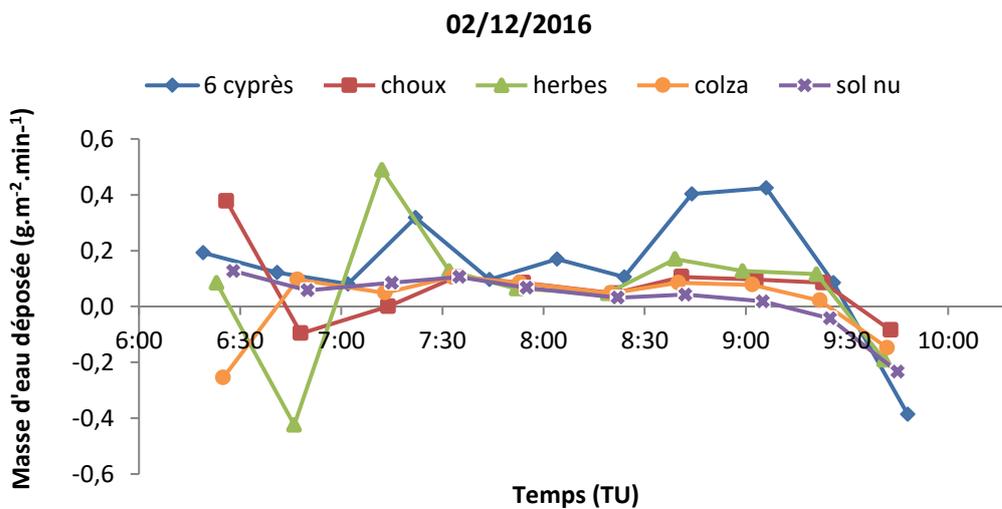
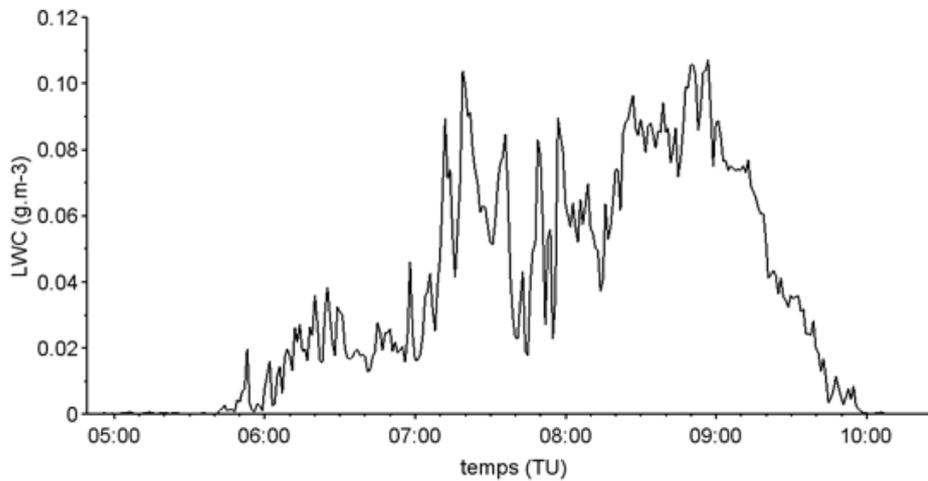
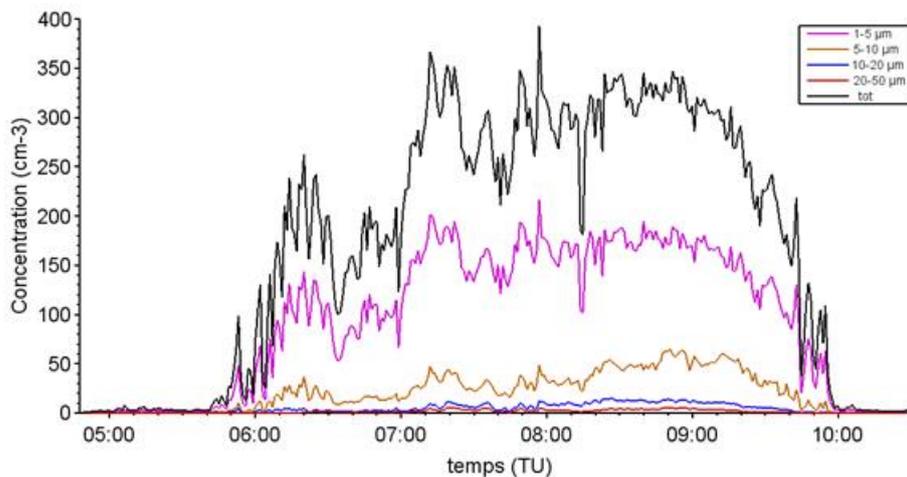


Figure 4.26 - Evolution de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les végétaux et le sol nu/terre durant l'épisode de brouillard du 02/12/16.



(a)



(b)

Figure 4.27 - Evolution temporelle du contenu en eau liquide dans l'air ou LWC (g.m^{-3}) (a) et de la concentration en particules (cm^{-3}) (b) du 02/12/16.

Le brouillard du 02 décembre 2016 est relativement court (environ trois heures), cependant les observations faites pour les épisodes étudiés précédemment sont les mêmes. De 08h30 à 09h30, le LWC est supérieur à $0,1 \text{ g.m}^{-3}$ (Fig. 4.25 (a)). Durant cette période, le dépôt sur les cyprès est environ quatre fois plus important que sur les autres surfaces (végétation basse et sol nu).

Quant à la concentration en gouttelettes, elle est élevée, avec un maximum de 400 gouttelettes par cm^{-3} à 08h00. Or généralement, plus la concentration en gouttelettes est forte plus leur diamètre **tendra à être faible du fait de la compétition pour l'eau liquide dans l'air, cela n'est vrai qu'une fois que les gouttelettes sont formées (Mazoyer, 2016). Cela est confirmée par le fait qu'il s'agit d'un brouillard composé à plus de 50 % de fines gouttelettes (<5 microns) (Fig.4.27 (b))**. Les valeurs les plus élevées de LWC sont expliquées par la contribution des gouttelettes de diamètre supérieur à $10 \mu\text{m}$ entre 08h10 et 09h20.

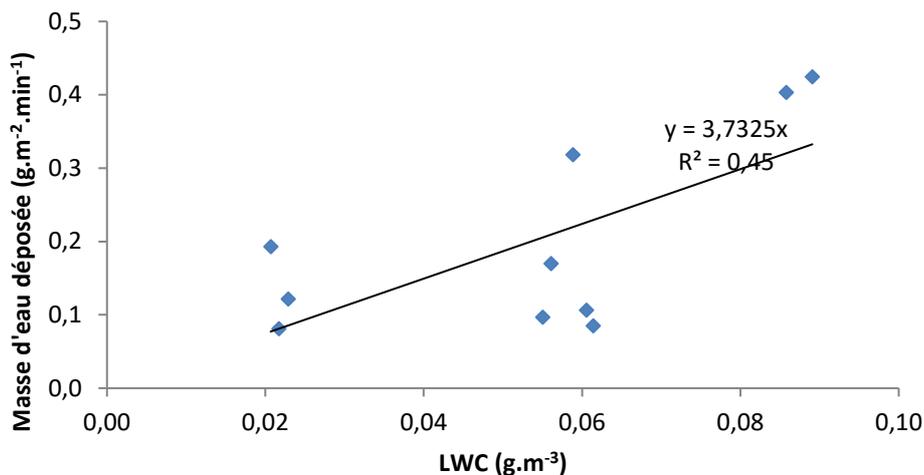


Figure 4.28 - Masse d'eau déposée sur les cyprès (g.m⁻².min⁻¹) en fonction du LWC (g.m⁻³) pour l'épisode du 02/12/16.

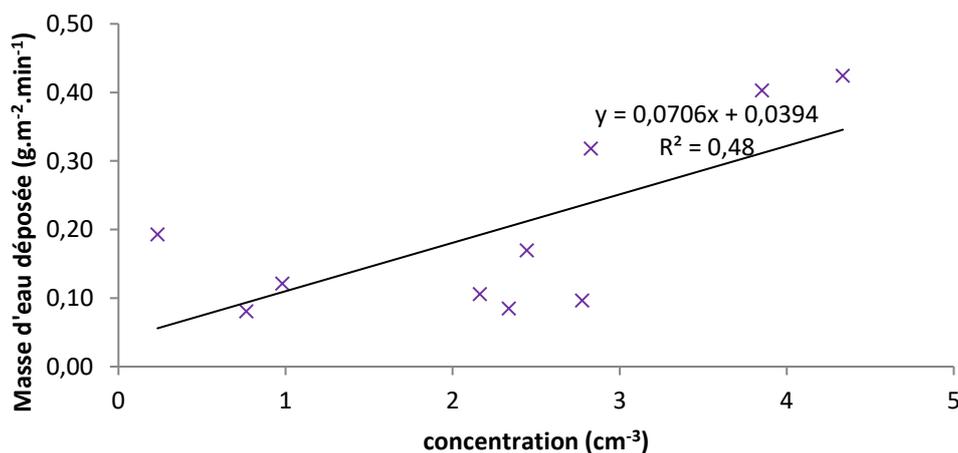


Figure 4.29 - Masse d'eau déposée sur les cyprès (g.m⁻².min⁻¹) en fonction de la concentration des gouttelettes de 20 à 50 µm (cm⁻³) de l'épisode du 02/12/16.

Dans le cas du 2 décembre 2016, la tendance selon laquelle la masse d'eau de brouillard déposée est d'autant plus importante que le LWC est élevée, est respectée. En revanche, il ne s'agit pas tout à fait d'une relation linéaire (Fig. 4.28). Le LWC étant fortement corrélé à la concentration des grosses gouttelettes (20 à 50 microns), le coefficient de corrélation entre la masse d'eau déposée et le LWC (0,45) est quasi identique à celui entre la masse d'eau déposée et la concentration des grosses gouttelettes (0,48) (Fig. 4.28 & 4.29).

Synthèse des connaissances issues de l'analyse de différents épisodes de brouillards

L'analyse détaillée de l'ensemble des cas de dépôt 2016 montre que pour des LWC inférieurs à 0,1 g.m⁻³, dans le cas de dépôt faible, nous n'observons pas de différence de dépôt en fonction des surfaces (surfaces sol nu ou différents végétaux). Il pourrait s'agir d'un manque de sensibilité de la balance, le dépôt étant trop faible. Ainsi, pour un épisode de brouillard comme le 2 décembre, avec

de nombreuses petites gouttelettes, le dépôt d'eau de brouillard moyen est moins important que pour un épisode composé de peu de grosses gouttelettes. Dans le cas de fort LWC, supérieur à $0,1 \text{ g}\cdot\text{m}^{-3}$, la quantité d'eau liquide est portée par les grosses gouttelettes. Cependant, il est difficile d'estimer le dépôt occulte seulement à partir des paramètres propres au brouillard que sont le LWC, la distribution en taille des gouttelettes et leur concentration. C'est pourquoi, dans le chapitre suivant, nous nous intéressons à d'autres paramètres comme le vent et la turbulence qui sont également susceptibles de moduler l'intensité du dépôt des gouttelettes.

CHAPITRE 5

EFFET DE LA TURBULENCE SUR LE DEPOT ET VITESSE DE DEPOT

CHAPITRE 5	EFFET DE LA TURBULENCE SUR LE DEPOT ET VITESSE DE DEPOT	118
5.1	Effets de la turbulence sur la masse d'eau déposée par les gouttelettes de brouillard	120
5.1.1	Episodes de brouillard à l'origine d'un dépôt important	121
5.1.2	Episodes de brouillard présentant un dépôt faible	122
5.2	Vitesses de dépôt	124
5.2.1	Calcul de la vitesse de dépôt des gouttelettes	124
5.2.2	Vitesses de dépôts pour la campagne 2015 et 2016	126
5.2.3	Détermination du LAI pour les surfaces végétales étudiées	129
5.2.3.1	Végétation basse	129
5.2.3.2	Cyprès	132
5.2.4	Comparaison des vitesses de dépôt avec des données existantes	134

Cette page est volontairement laissée blanche pour une impression recto-verso

Le dépôt des gouttelettes de brouillard dépend de deux phénomènes, la turbulence liée à **l'écoulement de l'air au voisinage d'obstacles ou de surfaces** et les forces gravitationnelles (cf. 2.3.2.1). La contribution des forces gravitationnelles est déterminée grâce à la mesure de la **distribution granulométrique des gouttelettes**. Afin de déterminer l'effet et la contribution de la turbulence, il est nécessaire de définir la notion de turbulence. La turbulence atmosphérique est constituée par les mouvements irréguliers de l'air permettant le transfert de quantité de mouvement, de chaleur ou d'humidité. Des études ont permis de mettre en évidence l'impact de la turbulence sur le cycle de vie du brouillard (Bergot, 2013; Terradellas, Ferreres, & Soler, 2008). Dans ce chapitre, l'influence potentielle de la turbulence sur la masse d'eau de brouillard déposée sur les plantes est étudiée puis le calcul des vitesses de dépôt est réalisé.

5.1 EFFETS DE LA TURBULENCE SUR LA MASSE D'EAU DEPOSEE PAR LES GOUTTELETTES DE BROUILLARD

La notion de turbulence étant complexe, elle peut être décrite de manière statistique par des moyennes temporelles de grandeurs physiques caractérisant le champ formé par les mouvements d'air. L'énergie cinétique turbulente (Turbulence Kinetic Energy ou TKE) est la grandeur utilisée pour décrire la turbulence du système. Il s'agit de l'énergie cinétique moyenne par unité de masse associée aux tourbillons. Elle constitue une mesure de l'intensité tourbillonnaire, elle est calculée à partir des mesures de vitesse de vent obtenues grâce à un anémomètre ultrasonique. La TKE est généralement définie comme la moyenne quadratique des fluctuations de vitesse dans les trois directions u, v et w (Eq.5.1) (Foken, 2008).

$$TKE = \frac{1}{2} \left(\overline{u'^2} + \overline{v'^2} + \overline{w'^2} \right) \quad (5.1)$$

Le calcul des valeurs de TKE sur une période de 30 minutes est effectué par le CNRM. L'objectif de l'étude de la TKE est de déterminer si la turbulence de la couche d'air permet de contribuer au dépôt durant les périodes pour lesquelles la quantité en eau liquide dans l'air ne suffit pas à expliquer la masse d'eau déposée. Pour cela, l'évolution de la masse d'eau déposée et de la TKE en fonction du temps pour chaque épisode de brouillard de la saison 2016, a été tracée. A noter que seules les données de TKE de la campagne 2016 sont disponibles. Les brouillards à fort dépôt sont distingués des brouillards à faible dépôt. La surface choisie pour l'étude de la masse d'eau déposée par rapport à la TKE correspond à la surface plantée de six cyprès car il s'agit, en général, du dépôt le plus important permettant de mettre en évidence le phénomène avec certitude. Par ailleurs, la structure 3D des arbres et des aiguilles de cyprès est un élément pouvant entraîner des phénomènes turbulents. On suppose que lorsque la turbulence de la parcelle d'air autour des cyprès augmente, l'impaction des gouttelettes de brouillards sur les cyprès augmente également.

5.1.1 *Episodes de brouillard à l'origine d'un dépôt important*

- Brouillard du 4 octobre 2016

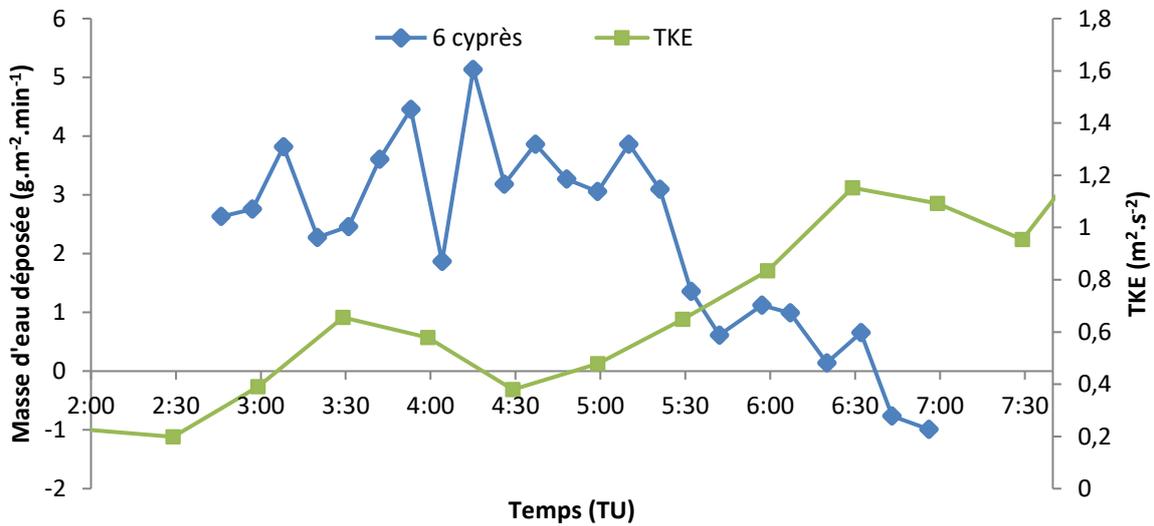


Figure 5.1 - Évolution temporelle de la masse d'eau (g.m².min⁻¹) déposée sur les cyprès et de la TKE (m².s⁻²) durant l'épisode de brouillard du 04/10/16.

- Brouillard du 27 octobre 2016

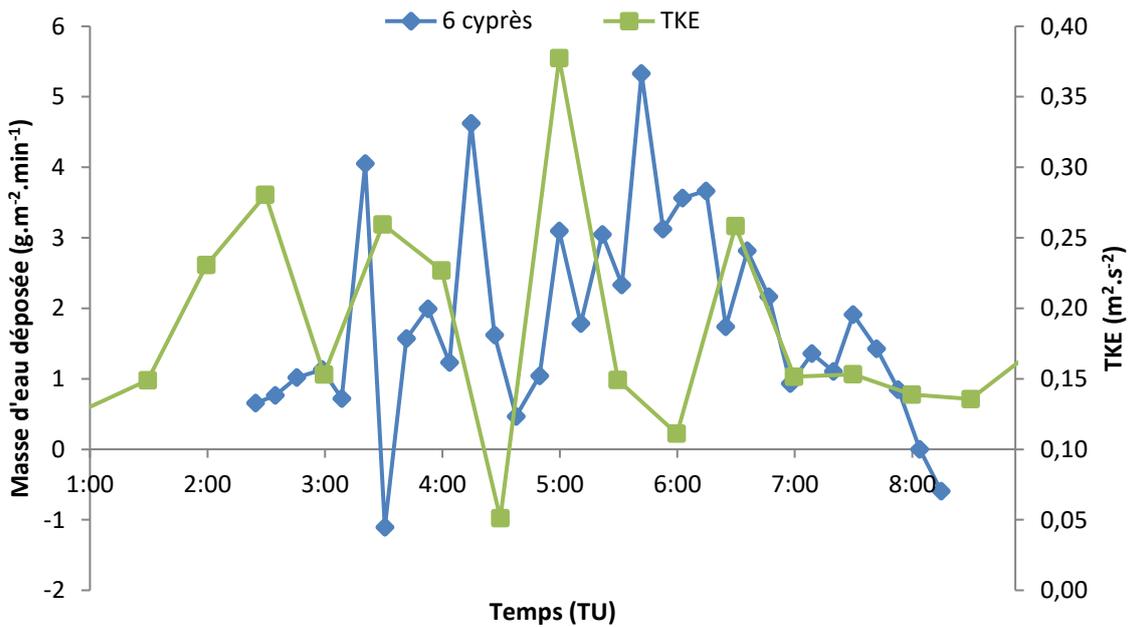


Figure 5.2 - Evolution temporelle de la masse d'eau (g.m².min⁻¹) déposée sur les cyprès et de la TKE (m².s⁻²) durant l'épisode de brouillard du 27/10/16.

Dans le cas de brouillards à forts dépôts comme ceux du 04/10 (fig. 5.1) et du 27/10 (fig. 5.2), la TKE et la masse d'eau déposée sur les cyprès ont un comportement très différent. On notera cependant, que pour l'épisode du 04/10, lorsque la TKE augmente au-delà de $0,6 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-2}$ entre 05h00 et 05h30, le dépôt diminue. Dans ce cas, l'augmentation de la turbulence est à l'origine de la dissipation du brouillard. Pour ces deux épisodes, la masse d'eau déposée provient principalement de la contribution des grosses gouttelettes dont le MVD moyen pour ces deux épisodes est respectivement de 20 et 24 microns (Tab 4-1). Le calcul de la TKE ne permet pas de mettre en évidence l'impact de la turbulence sur le dépôt. Il semble que pour cet épisode le niveau de turbulence ne soit pas suffisant pour avoir un effet significatif sur le dépôt des grosses gouttelettes.

- Brouillard de la nuit du 1^{er} au 2 novembre 2016

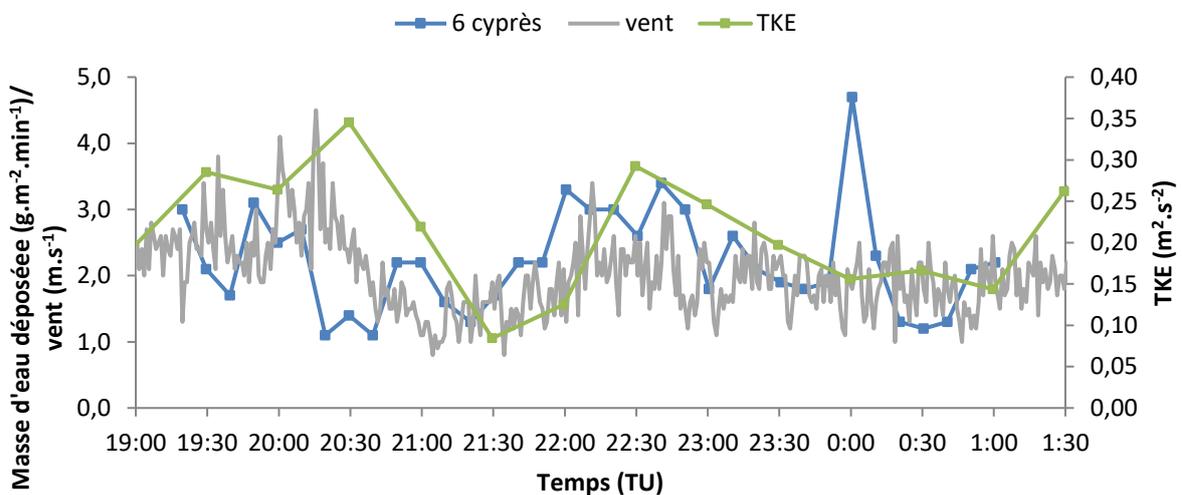


Figure 5.3 - Evolution de la masse d'eau ($\text{g} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{min}^{-1}$) déposée sur les cyprès et de la TKE ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-2}$) durant l'épisode de brouillard du 01-02/11/16.

L'épisode du 01-02/11 (Fig.5.3) permet de réfuter l'hypothèse selon laquelle la turbulence n'influencerait pas le dépôt des grosses gouttelettes. En effet, la figure 5.3 montre que la vitesse de vent suit globalement les variations de la TKE.

L'évolution de la masse d'eau déposée semble également suivre celle de la vitesse de vent pour laquelle on dispose de données toutes les minutes. Il n'est pas possible à partir de la figure 5.3 de déterminer si la vitesse du vent favorise l'impaction des gouttelettes ou si le vent a une action sur le contenu en eau liquide dans l'air qui de ce fait conditionne le dépôt. Cependant, même dans le cas de gouttelettes supermicroniques (<10 microns), le vent et la turbulence peuvent influencer le dépôt.

5.1.2 Episodes de brouillard présentant un dépôt faible

Les brouillards dont le dépôt est faible sont constitués de gouttelettes de plus petite taille que les épisodes de brouillards à fort dépôt (cf. Chapitre 4). Le fait que les petites gouttelettes soient plus sensibles aux effets de la turbulence que les grosses gouttelettes (les forces gravitationnelles étant proportionnelles au volume des gouttelettes), représente une des hypothèses initiales de l'étude. Selon cette hypothèse, la turbulence est susceptible d'avoir une influence plus grande sur la

masse d'eau de brouillard déposée sur les épisodes à faible dépôt, composés de petites gouttelettes, que sur les épisodes à fort dépôt.

- Brouillard de la nuit du 17 au 18 octobre 2016

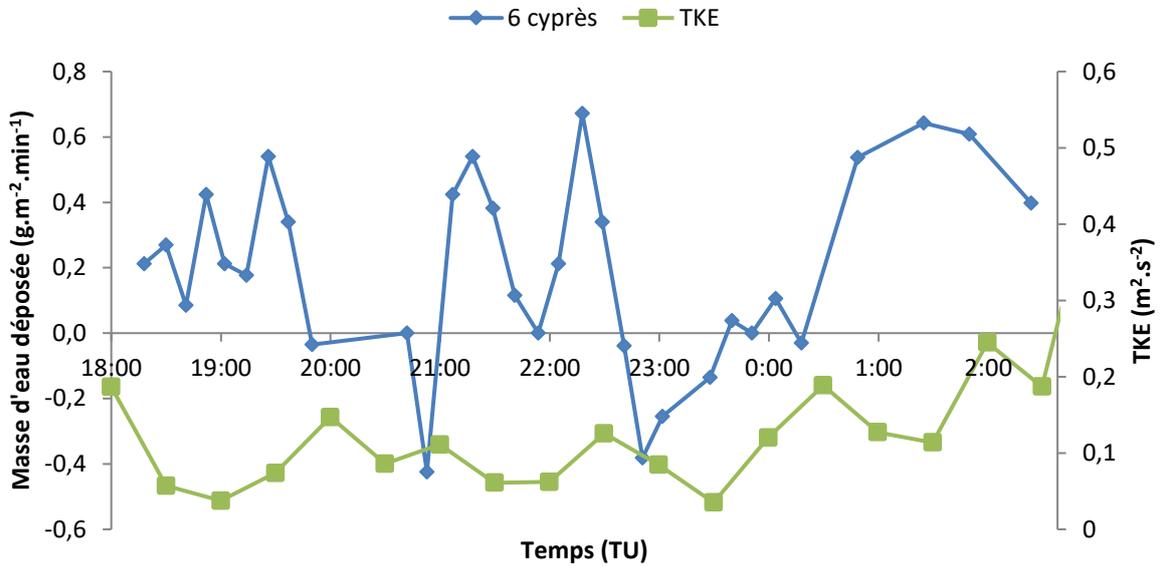


Figure 5.4 - Evolution temporelle de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les cyprès et de la TKE ($\text{m}^2.\text{s}^{-2}$) durant l'épisode de brouillard du 17-18/10/16.

- Brouillard du 28 octobre 2016

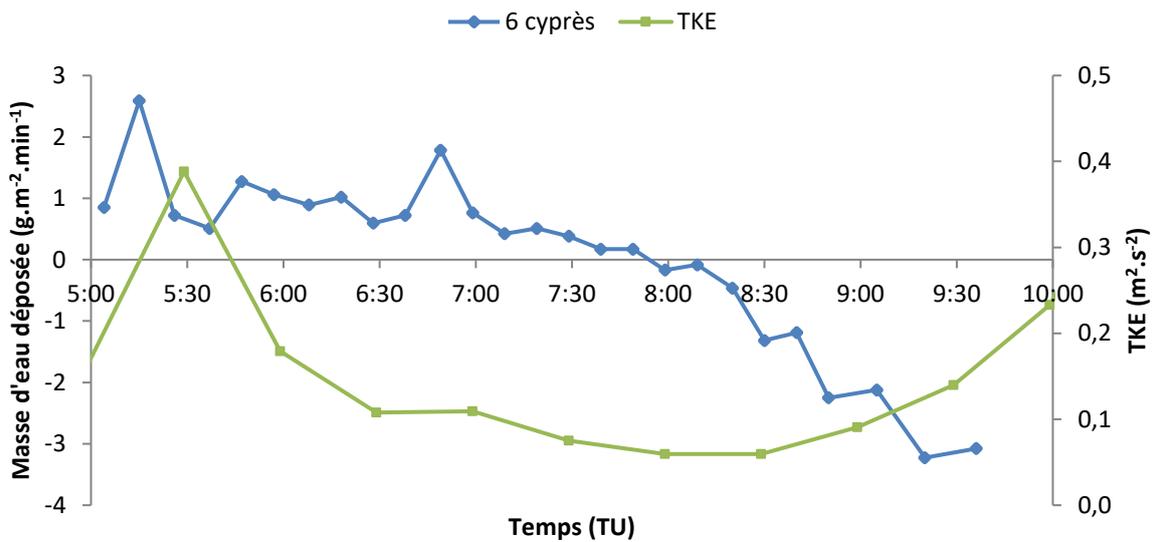


Figure 5.5 - Evolution temporelle de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les cyprès et de la TKE ($\text{m}^2.\text{s}^{-2}$) durant l'épisode de brouillard du 28/10/16.

- Le brouillard du 2 décembre 2016

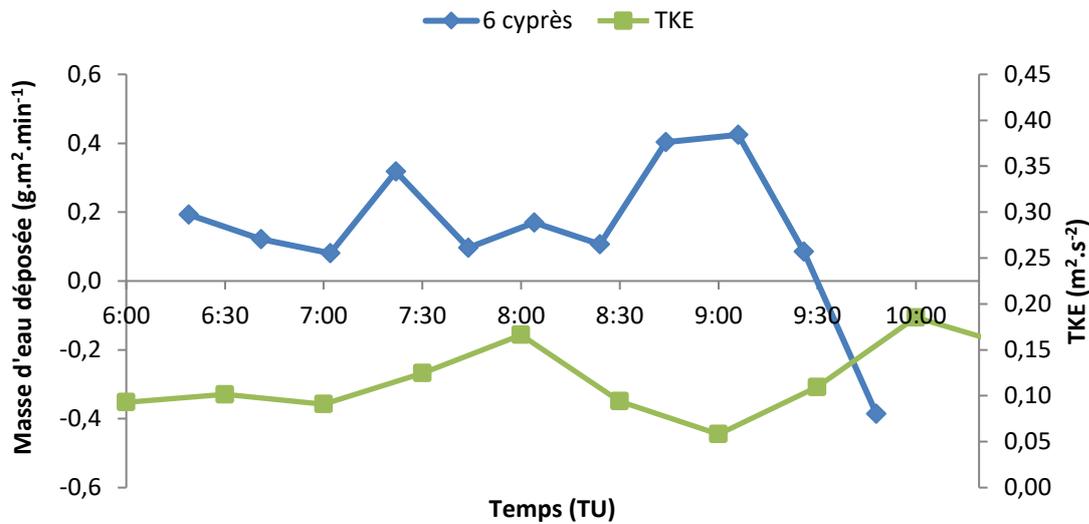


Figure 5.6 - Evolution temporelle de la masse d'eau ($\text{g.m}^{-2}.\text{min}^{-1}$) déposée sur les cyprès et de la TKE ($\text{m}^2.\text{s}^{-2}$) durant l'épisode de brouillard du 02/12/16.

Les figures 5.4, 5.5 et 5.6 représentant la masse d'eau déposée sur les cyprès et les variations de TKE durant le brouillard du 17-18/10, du 28/10 et du 02/12, ne mettent pas en évidence une quelconque influence de la TKE sur le dépôt.

Jusqu'à présent, on considérait que les gouttelettes de nuage et de brouillard qui ont des diamètres de l'ordre de la dizaine de microns se déposaient principalement par sédimentation. Or, l'épisode du 1^{er} au 2 novembre 2016 montre que la turbulence peut contribuer significativement au dépôt. Il est néanmoins difficile dans le cas d'expériences *in situ* d'isoler un seul paramètre tel que le vent ou la turbulence.

Le calcul de vitesses de dépôt à partir des données expérimentales obtenues durant la thèse et la comparaison de ces dernières aux vitesses théoriques de sédimentation des gouttelettes permettent également d'appréhender l'impact de la turbulence sur le dépôt. Des vitesses de sédimentation comprises entre 1,6 et 1,8 cm.s^{-1} durant la phase la plus dense du brouillard et sensiblement plus faibles (comprises entre 0,7 et 1,4 cm.s^{-1}) ont été calculées par Bergot and Guedalia (1994) pendant la phase de dissipation, à partir de distributions granulométriques de gouttelettes observées.

5.2 VITESSES DE DÉPÔT

5.2.1 Calcul de la vitesse de dépôt des gouttelettes

Le dépôt des gouttelettes de brouillard est piloté par les mêmes processus mécaniques que le dépôt sec de particules supermicroniques (Petroff, 2005). La modélisation du dépôt sec nécessite le calcul des vitesses de dépôt des aérosols secs. De la même manière, dans le cadre de la modélisation d'un brouillard ou du dépôt par les brouillards, la vitesse de dépôt des gouttelettes doit être connue afin d'estimer la composante dépôt du brouillard. A partir des données de variation de masse d'eau déposée Δm ($\text{g.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$) obtenues par pesée et des mesures du contenu en eau liquide dans l'air *LWC* (g.m^{-3}), la vitesse de dépôt des gouttelettes V_d (m.s^{-1}) est calculée (Eq 5.1).

$$V_d = \frac{\Delta m}{LWC} \quad (5.1)$$

Le LWC étant mesuré toutes les secondes, une moyenne des valeurs de LWC sur une période de dix minutes est utilisée pour calculer les vitesses de dépôt des gouttelettes pour chaque pesée.

La vitesse de dépôt (V_d) des gouttelettes comporte deux composantes : (V_t) la vitesse turbulente et V_s la vitesse de sédimentation représentant respectivement la contribution des forces turbulentes et des forces gravitationnelles sur le dépôt (Eq. 5.2) (Dollard & Unsworth, 1983).

$$V_d = V_t + V_s \quad (5.2)$$

La vitesse de sédimentation dépend directement de la distribution granulométrique des gouttelettes **selon l'équation (5-3)** (Renoux & Boulaud, 1998) :

$$V_s = \frac{(\rho_p - \rho_{air}) \times d_p^2 \times g \times C_c}{18 \times \mu_{air}} \quad (5.3)$$

avec ρ_p et ρ_{air} respectivement la masse volumique de la particule et celle **de l'air** ; d_p le diamètre de la particule; g **l'accélération de la pesanteur** ; C_c le facteur de Cunningham et μ_{air} la viscosité de l'air. **On précise que le facteur de Cunningham C_c est un facteur correctif permettant de fournir une expression de la traînée d'une particule** (Mailliat, 2012). Ce facteur dépend de la taille de la particule.

$$F_T = 3\pi\mu_{air}d_p \quad (5.4)$$

En effet, l'équation (5-3) est déduite de la loi de Stokes (Eq 5-4) qui régit la force de traînée F_T qu'exerce un fluide, dans notre cas l'air, sur une particule de diamètre d_p . La loi de Stokes s'applique pour une particule dont le diamètre doit être plus grand que le libre parcours moyen λ_G dans le gaz porteur. Cette condition est vérifiée par le nombre de Knudsen qui correspond au rapport du libre parcours moyen au rayon d'une particule (Eq. 5-5) :

$$K_n = \frac{\lambda_G}{d_p} \quad (5.5)$$

Dans l'air, à la pression atmosphérique et à 20°C, le libre parcours moyen est de 0,07 µm. Lorsque la particule est petite et donc que le nombre de Knudsen est grand, la loi de Stokes n'est pas applicable. Dans ce cas de figure, l'introduction du facteur de Cunningham (C_c) permet de corriger l'expression de la traînée.

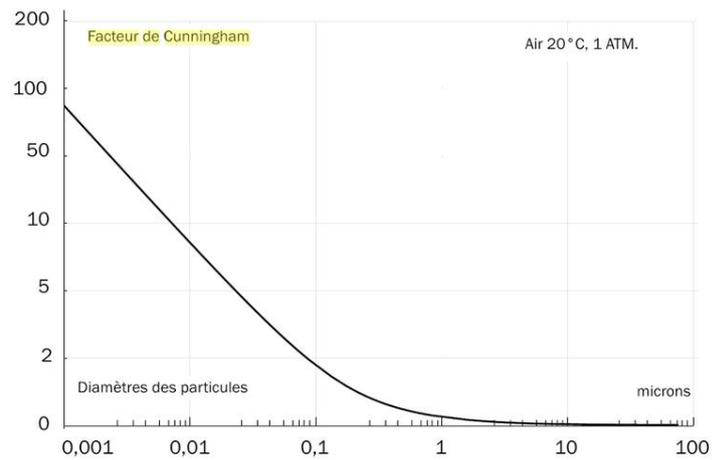


Figure 5.7 - Facteur de Cunningham en fonction du diamètre de la particule (Mailliat, 2012).

Les particules dont le diamètre est supérieur à quelques microns ne nécessitent pas de facteur de correction car leur nombre de Knudsen est très faible (Fig. 5.7). Dans le cas des gouttelettes de brouillards, mesurables par le PVM et les FM (diamètre de 1 à 50 microns), le facteur de Cunningham est donc égal à 1.

A partir de la vitesse de dépôt et de la vitesse de sédimentation des gouttelettes, il est possible de déduire une vitesse turbulente des gouttelettes.

5.2.2 Vitesses de dépôts pour la campagne 2015 et 2016

La moyenne et l'écart-type des vitesses de dépôt pour l'ensemble des pesées de la campagne 2015 et 2016 sont présentés dans le tableau 5-1 :

Tableau 5-1 : vitesses de dépôt obtenues par pesée lors des épisodes de brouillards des campagnes 2015 et 2016.

Brouillards	V_d cyprès (cm.s ⁻¹)	V_d choux (cm.s ⁻¹)	V_d herbes (cm.s ⁻¹)	V_d sol nu (cm.s ⁻¹)	Vitesse moyenne du vent (m.s ⁻¹)	MVD (μ m)
31/10/2015	31±12	13±5	15±7	10±5	3,8	10±5
01-02/11/2015	40±8	12±2	16±3	2±1	2,8	2±1
04/10/2016	37±9	10±6	17±7	9±6	2,6	20±4
17-18/10/2016	10±10	8±12	5±6	5±5	1,2	7±2
27/10/2016	29±13	10±5	17±10	10±5	1,3	24±2
28/10/2016	26±17	13±8	13±5	11±5	0,8	21±2
01-02/11/2016	18±6	4±4	11±5	9±5	2,0	23±1
02/12/2016	7±3	6±3	7±7	6±3	0,8	15±3

Les données de vitesse moyenne de vent et de diamètre volumique médian (MVD) fournissent des **indications de base sur l'état de turbulence générale et la granulométrie des gouttelettes.**

Les vitesses moyennes de vent ne semblent pas être un paramètre influençant directement les vitesses de dépôt de gouttelettes.

La figure 5.8 permet de compléter le tableau 5-1. **Il s'agit d'une représentation graphique des données** de vitesses moyennes de dépôt de chaque épisode de brouillard étudié, pour les différentes surfaces de dépôts. Les épisodes de brouillards 4 et 8 correspondant aux dépôts les plus faibles sont grisés. Pour ces deux épisodes, les vitesses de dépôt des gouttelettes sont identiques quelle que soit la **surface. L'étude de la** distribution granulométrique de gouttelettes des épisodes 4 et 8 (cf. chapitre 4) et des diamètres volumiques médians associés (Tab. 5-1) **indiquent qu'il s'agit de brouillards composés de fines gouttelettes à l'origine des faibles valeurs de LWC. Lorsque les quantités d'eau liquide dans l'air sont faibles, il semblerait qu'il n'y ait pas de différence de vitesse de dépôt des** gouttelettes en fonction de la surface de dépôt. En revanche, pour les épisodes 1, 2, 3, 5 et 6 pour lesquels on a mesuré des masses d'eau déposées importantes, **il existe une différence significative en termes de vitesse de dépôt entre les cyprès et la végétation basse d'une part et le sol nu d'autre** part. En ce qui concerne la végétation basse et le sol nu, les vitesses de dépôt ne diffèrent que très peu et elles sont assez stables d'un épisode à l'autre. **A partir de l'équation 5-3, la vitesse de sédimentation pour des gouttelettes supermicroniques est égale à 1,2 cm.s⁻¹ pour des gouttelettes de 20 µm, à 2,7 cm.s⁻¹ pour celles de 30 µm et à 7,6 cm.s⁻¹ pour celles de 50 µm. Si les gouttelettes ne se déposaient que par sédimentation sur la végétation basse et le sol nu, les vitesses de dépôts de ces gouttelettes devraient être de l'ordre de grandeur des vitesses de sédimentation des gouttelettes supermicroniques calculées. C'est effectivement le cas pour les épisodes 4, 7 et 8 les vitesses de** dépôt sur végétation basse sont proches des vitesses de sédimentation. Dans ces cas, on suppose que la contribution des forces gravitationnelles est plus importante que celle des forces turbulentes.

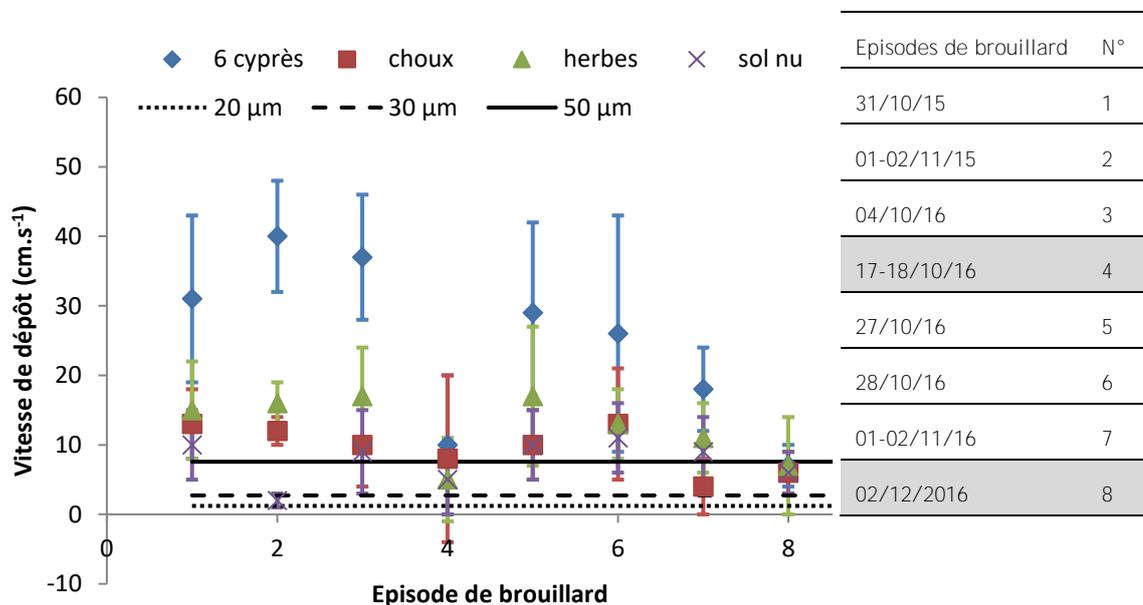


Figure 5.8 - Vitesse moyenne de dépôt des épisodes de brouillard étudiés durant les campagnes 2015 et 2016 et vitesse théorique en fonction de la taille des particules (20, 30 et 50 µm).

Afin de comparer les vitesses de dépôt obtenues par pesée aux données de la littérature, il est **nécessaire de caractériser la surface végétale sur laquelle se déposent les gouttelettes. L'indice de Surface Foliaire (Leaf Area Index) est le paramètre choisi afin de décrire les surfaces végétales car il**

permet de rendre compte de la surface foliaire totale de la plante et de la surface au sol du couvert végétal. De plus, il a été montré que dans le cas de brouillard radiatif, le dépôt est plus conséquent sur un support de type « végétation » car le refroidissement radiatif est plus important sur le végétal que sur le sol (Rangognio, 2009). Nous nous sommes donc plus particulièrement intéressés au dépôt **des gouttelettes sur les végétaux afin de quantifier l'impact que le couvert végétal peut avoir sur le dépôt des gouttelettes.**

5.2.3 Détermination du LAI pour les surfaces végétales étudiées

Les campagnes de mesures ayant lieu durant les saisons d'automne-hiver, des plantes résistantes au froid et capables de survivre en pot ont donc été sélectionnées. Nous avons utilisé quatre types de plantes **à l'occasion** des 2 deux campagnes à Bure : des cyprès dorés de Monterrey (*Cupressus macrocarpa 'Goldcrest'*), des choux (*Brassica oleracea var. acephala*), du colza (*Brassica napus L*) et des graminées (*Carex panicea*) pour représenter respectivement des conifères, des légumes-feuilles, et une prairie. Les plantes placées dans les bacs correspondent ainsi à des surfaces réduites de couvert **végétal présent dans l'environnement. S'agissant des légumes-feuilles par exemple nous aurions souhaité disposer d'épinards en tant que surface de dépôt mais malheureusement les plants n'ont pas réussi à se développer et n'ont pas survécu dans les bacs. En ce qui concerne le stade de développement des plantes, nous avons également choisi des plantes à la croissance lente en hiver pour maintenir des surfaces comparables d'un épisode à l'autre, et permettre la détermination du LAI une fois la campagne terminée.** Le LAI de chaque plante sera calculé de deux manières différentes en distinguant les plantes de type végétation basse (choux, colza et herbes) et la végétation haute (cyprès).

5.2.3.1 Végétation basse

Colle and Madoz-Escande (2007) ont constitué à partir de 145 publications ou rapports une base de données de valeurs de LAI au cours du cycle végétatif des principales cultures. Les auteurs de ce rapport ont également effectué une analyse statistique des index foliaires. Des paramètres concernant le lieu, le mode de culture, le stade de développement, **le mode d'obtention des données** ont été renseignés au niveau de cette base de données afin de sélectionner des valeurs de LAI pouvant **servir de référence dans le domaine des transferts de radionucléides sur des cultures d'Europe de l'Ouest. A titre d'exemple, les données pour lesquelles il était impossible de déterminer si les plantes se trouvaient à un stade de développement foliaire maximum ont été rejetées.** Les groupes figurant dans cette base de données sont les céréales, les légumes-fruits, les légumes racines et tubercules, les légumes-feuilles, **les arbres fruitiers et les plantes fourragères (herbe).** **Il est à noter qu'il existe** de nombreuses études concernant les LAI des surfaces en herbe mais assez peu concernant ceux des légumes-feuilles (choux et salade).

- Choux

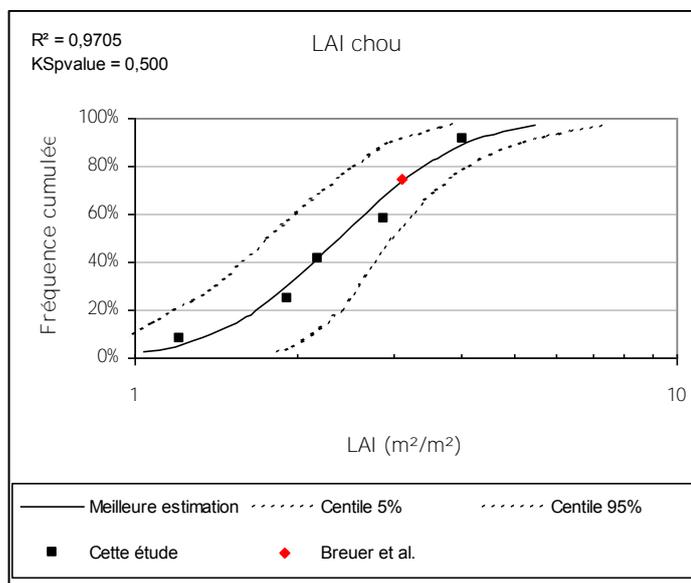


Figure 5.9 - Distribution des valeurs maximales de LAI (m².m⁻²) pour des cultures de choux, (Colle & Madoz-Escande, 2007).



Figure 5.10 - Surface de dépôt des choux.

La figure 5.9 regroupe des valeurs expérimentales maximales de LAI correspondant à des choux à maturité. Nous disposons de six données qui vont de 1,2 à 4,0 avec une moyenne géométrique à 2,4 pour un intervalle de confiance à 90% de 1,8 à 3,0. Ces valeurs, sauf une, ont été obtenues par mesure directe (Francescangeli, Sangiacomo, & Martí, 2006). Nous considérons que nous avons dans notre bac une culture de chou (Fig.5.102) **représentative d'une parcelle de chou dans l'environnement et** donc nous associons à la surface de dépôt « chou » un LAI de 2,4.

- Herbe de prairie

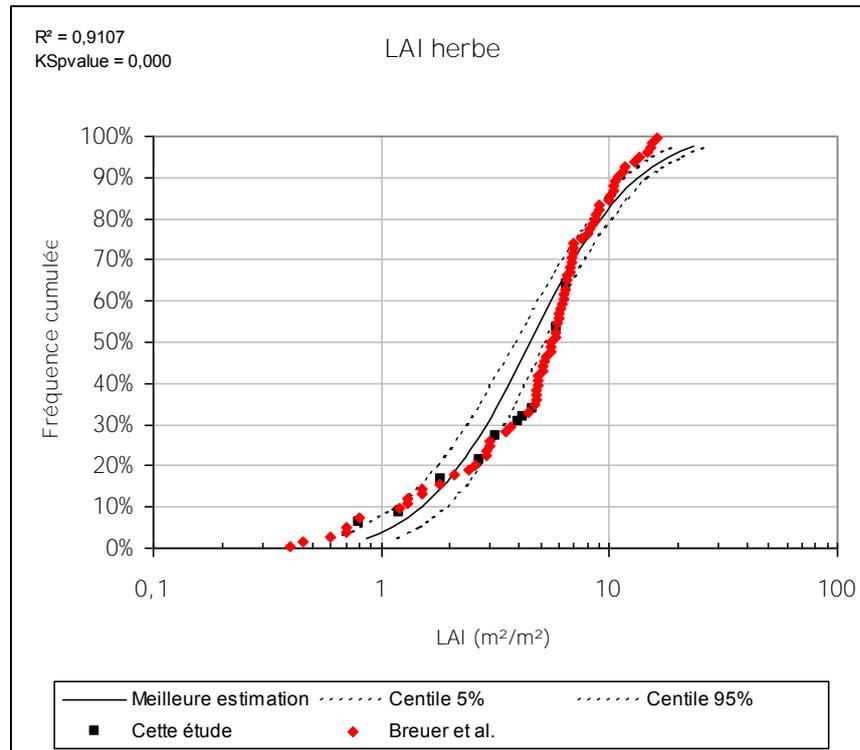


Figure 5.12 - Surface de dépôt « herbe ».

Dans le cas des surfaces en herbe, quatre-vingt-sept données ont été sélectionnées pour la base de données. Elles correspondent toute à un stade de pleine végétation. Les valeurs sont cependant très disparates allant de 0,4 à 16,2, **car l'entretien des parcelles peut être très différent d'une étude à une autre**. Les données se répartissent selon une loi log-normale avec une moyenne géométrique à 4,5 pour un intervalle de confiance à 90% de 3,2 à 5,2. Contrairement à la surface « chou », **les données LAI de l'herbe ont été en grande partie obtenues par méthode optique notamment par planimétrie**. La valeur de LAI retenue pour caractériser la surface de dépôt « herbe » est de 4,5.

L'implantation des choux et des plants d'herbe dans leurs bacs permet d'obtenir des parcelles à petite échelle de champs de choux et de prairie, ce qui explique le choix d'utiliser des valeurs moyennes de LAI pour caractériser les surfaces de dépôt par type végétation.

5.2.3.2 Cyprès

Pour les canopées forestières, des mesures de LAI par méthode indirecte sont généralement utilisées pour des raisons pratiques. Il s'agit généralement de surfaces très étendues avec des arbres à différents stades de développement. En revanche, dans le cas des cyprès utilisés pour notre expérience, la taille réduite des cyprès (environ 50 cm) et la petite surface sur laquelle ils sont plantés (0,24 m²) ne permettent pas l'utilisation de méthodes optiques. C'est pourquoi, une méthode consistant à compter le nombre de branches, puis de feuilles par branche est mise en œuvre. Une procédure similaire a été réalisée pour des arbres de plus grande envergure afin de déterminer la surface foliaire de sapin dans le cadre d'une étude sur le dépôt occulte sur des conifères (Trautner & Eiden, 1988).



Figure 5.13 - Classement des branches de cyprès en fonction de leur taille pour comptage.

Etant donné le grand nombre d'individus et le temps nécessaire au comptage des feuilles, un échantillon de 10 arbustes est choisi. Pour chaque arbuste, un classement des branches en fonction de leurs tailles est réalisé (Fig. 5-13). Sur chacune des branches, le nombre de branches de tailles plus petites est dénombré et ainsi de suite jusqu'à pouvoir déterminer le nombre d'aiguilles par petites branches. On estime le nombre d'aiguilles par groupe de branches et donc le nombre total de d'aiguilles par arbuste. La surface moyenne d'une aiguille est ensuite déterminée pour chaque petite branche. La surface foliaire totale est ainsi calculée à partir du nombre total d'aiguilles et de la surface moyenne des aiguilles.

La structure tridimensionnelle des cyprès nécessite également la prise en compte de leur densité dans le calcul du LAI. En effet, lors d'un dépôt d'aérosols, on suppose que les parties de l'arbre les plus exposées vont être les plus impactées par le dépôt.



Figure 5.14 - Surface composée de neuf cyprès avant (à gauche) et après exposition (à droite) à la peinture en bombe.

Afin de mettre en évidence **l'influence de la densité des plants** sur le dépôt, nous avons utilisé une bombe de peinture projetant de petites gouttelettes de peinture rouge. En considérant que les gouttelettes de brouillard peuvent arriver sur la surface de dépôt par le haut et par les côtés, nous avons pulvérisé de la peinture rouge en bombe de chaque côté de la surface composée de neuf cyprès (Fig. 5.14). Après peinture, la position de chaque cyprès est notée puis le nombre total de feuilles est **compté pour chaque arbuste suivant la même technique qu'exposée précédemment, en distinguant** les feuilles rouges, des feuilles non-touchées par la peinture. On précise que dès que la feuille comporte la moindre trace de peinture, elle est considérée comme impactée par le dépôt. Le pourcentage de la surface foliaire touchée par le dépôt de peinture rouge est ainsi déterminé en fonction de la position relative de **l'arbre par rapport aux autres cyprès (Fig. 5.15)**

Angle = 51%	Côté = 29%	Côté = 29%	Angle = 51%
Côté = 29%	Centre = 20%	Centre = 20%	Côté = 29%
Angle = 51%	Côté = 29%	Côté = 29%	Angle = 51%

Figure 5.15 - Cartographie des cyprès exposés au dépôt de peinture rouge - rapport de la surface de dépôt sur la surface foliaire totale de chacun des douze cyprès.

La figure 5.15 indique que les cyprès les plus impactés sont ceux situés sur les angles du bac puis ceux **sur les côtés, c'est un phénomène qui est également observé notamment par** Wuyts, De Schrijver, Vermeiren, and Verheyen (2009) dans le cas de dépôt par ruissellement au sein de massifs forestiers. **C'est ce qu'on dénomme l' « edge effect ».** Reinap, Wiman, Svenningsson, and Gunnarsson (2012) ont **effectué une étude relative à l'effet d'écrantage (« edge effect ») observé pour le dépôt d'aérosols marins** sur une canopée composée de feuilles de chêne, dans une soufflerie. Ils ont déterminé que le **dépôt d'aérosols en bord de canopée pouvait être entre 50 et 60 % plus important qu'à l'intérieur de la canopée. En tenant compte de l'effet d'écrantage, un LAI de 20 pour une surface foliaire totale de 4,9 m² est estimé, pour le bac de cyprès utilisé dans les expériences de pesée menées lors des épisodes**

de brouillard. Un inconvénient majeur dans la technique utilisée pour l'estimation du LAI de la surface des cyprès est la grande incertitude (entre 20 et 50%) due à la méthode de comptage. Cependant, la méthode directe de comptage représente l'alternative la plus adaptée à notre échelle d'observation.

Le calcul des LAI de chacune des surfaces végétales permet de comparer les vitesses de dépôt calculées par pesée aux vitesses de dépôt de la littérature. **Le LAI d'un couvert végétal va donc dépendre de l'espèce, du stade de développement et de la saisonnalité des plantes. De plus, le LAI est fortement dépendant des conditions de mesure.** Tout cela entraîne une très forte variabilité des valeurs de LAI mesurées (Jonckheere et al, 2004). De manière générale, les valeurs les plus importantes sont celles obtenues pour des forêts de conifères.

5.2.4 Comparaison des vitesses de dépôt avec des données existantes

En 2014, Katata a effectué une revue concernant la modélisation et les mesures du dépôt d'eau de brouillard sur les écosystèmes terrestres. Une des conclusions de l'étude est la grande hétérogénéité des valeurs de vitesse de dépôt, en fonction des techniques de mesure. L'ensemble des valeurs de vitesses de dépôt pour la végétation basse ainsi que pour les forêts de conifères utilisé dans le cadre de l'étude de Katata (2014) est présenté dans les tableaux 5-2 et 5-3 afin de les comparer aux vitesses de dépôt obtenues par pesée.

Les tableaux 5-2 et 5-3 regroupent des valeurs de vitesses de dépôt obtenues à partir de techniques différentes : la méthode des gradients, le lysimètre, la méthode par corrélation turbulente (« eddy correlation »), la méthode « canopy water balance budget » **et la mesure par collecte d'eau.** Certaines de ces techniques sont décrites de manière détaillée dans le paragraphe 2.9 du chapitre 2. **La méthode des gradients est une technique nécessitant l'utilisation de deux appareils de mesure identiques placés à deux niveaux de mesure. Dans le cas du brouillard, par exemple, il s'agit de mesure d'eau liquide ou de compteurs de gouttelettes** (Gallagher, Choularton, Morse, & Fowler, 1988). Le flux est alors décrit comme proportionnel au gradient moyen vertical. Le lysimètre est une **méthode similaire à la méthode de pesée puisqu'il s'agit de quantifier la quantité d'eau qui se dépose** grâce au lysimètre. La méthode de « canopy water budget » **ou mesure de l'équilibre hydrique de la canopée, consiste à réaliser un bilan hydrique. La quantité d'eau globale déposée par précipitations et par ruissellement** (Giambelluca, DeLay, Nullet, Scholl, & Gingerich, 2011) est déterminée. Une **estimation de l'eau évaporée par la canopée humide est également réalisée. Cela permet de déterminer la quantité d'eau additionnelle déposée par les brouillards ou les nuages.**

Les vitesses de dépôt obtenues par pesée sont divisées en deux catégories, afin de distinguer les **épisodes de brouillard à forts dépôts et ceux aux dépôts plus faibles. Il s'agit de comparer les ordres de grandeur des vitesses de dépôt. En effet, l'ensemble des valeurs mesurées dans les tableaux 5-2 et 5-3 proviennent d'expériences in-situ** pour lesquelles les surfaces de dépôt, les conditions de vents et les paramètres microphysiques du brouillard sont différents.

Les vitesses de dépôt obtenues par méthode de pesée sur la surface « herbe » sont bien supérieures (valeurs) aux vitesses de dépôt de la littérature, de 2 à 6 fois supérieur (Tab. 5-2). Cela pourrait être **lié aux types d'herbe prairie utilisée et au stade de développement des plantes, variables d'une expérience à l'autre. Concernant les vitesses de dépôt sur les arbres de type conifère, les valeurs sont très hétérogènes, mais les vitesses de dépôt mesurées par collecte d'eau de brouillard par Pahl et al. (1995) et Katata et al. (2011), comprises entre 19-39 cm.s⁻¹ et 23-31 cm.s⁻¹ respectivement, sont proches des vitesses de dépôt sur les cyprès obtenues par pesée pour les dépôt importants (entre 18 et 37 cm.s⁻¹).** **De façon générale, la méthode basée sur la collecte d'eau de brouillard est à l'origine des vitesses de dépôt les plus élevées, dans le cas des mesures par « canopy water budget » et collecte d'eau de brouillard. Il s'agit de méthodes directes, simples à mettre en place. La précision de la méthode va dépendre du nombre de jauges utilisées pour la collecte de l'eau de ruissellement et des précipitations totales. En effet, une forte incertitude peut être due au faible nombre de jauges et à**

l'inhomogénéité du terrain avec notamment une influence de l'effet d'écrantage. La localisation de la jauge va donc directement influencer la détermination de la vitesse de dépôt des gouttelettes. Les faibles valeurs de vitesse de dépôt obtenues par eddy covariance peuvent être expliquées par le phénomène de condensation de vapeur d'eau dû à des mouvements d'air ascendant. En effet, les mesures d'eddy covariance sont effectuées à plusieurs mètres au-dessus de la canopée, or Holwerda et al. (2006) ont montré que le flux net d'eau de brouillard mesuré à 4 m au-dessus d'une canopée forestière à Puerto Rico pouvaient ne représenter que 40% du flux net observé au niveau de la canopée.

Tableau 5-2 : Bilan des vitesses de dépôts sur une surface de type herbe mesurées par diverses méthodes.

Espèce de plantes	Technique de mesure	LAI	Vitesse de vent (m.s ⁻¹)	LWC (g.m ⁻³)	Diamètre des gouttelettes (µm)	Vitesse de dépôt (cm.s ⁻¹)	Références
Herbe	Méthode des gradients	-	1,1-4,2	0,05-0,22	20	2,8-6,4	(Dollard et al., 1983)
Prairie	Méthode des gradients+lysimètre	2	7,0	0-0,24	6-10	4,2-6,7	(Gallagher et al., 1988)
Prairie	Méthode des gradients+lysimètre	5	9,0	0,24-0,40	10	2,1-3,9	(Fowler, Morse, Gallagher, & Choularton, 1990)
Graminées	Lysimètre	3	4-9	0,14	14	4,0-8,0	(Cameron et al., 1997)
Herbe et culture	Eddy covariance	≈3	1,1	0,061	10-20	2,7	(Thalmann et al., 2002)
Herbes graminée	Méthode de pesée ¹	4,5	0,8-3,8	0,07-0,2	20-23	11-17	Présente étude
Herbes graminées	Méthode de pesée ²	4,5	0,8-1,2	0,025-0,03	7-15	5-7	Présente étude

¹ valeurs regroupant les épisodes à fort dépôt (04/10, 27/10, 28/10, 1-02/11) de 2016

² valeurs regroupant les épisodes à faible dépôt (17-18/10, 02/12) de 2016

Tableau 5-3 : Bilan des vitesses de dépôts sur une surface de type conifères par diverses méthodes.

Espèce de plantes	Technique de mesure	LAI	Vitesse de vent (m.s ⁻¹)	LWC (g.m ⁻³)	Diamètre gouttelettes (µm)	Vitesse de dépôt (cm.s ⁻¹)	Références
Epicéa-sapin	Mesure par collecte d'eau	6	3,7-4,7	0-0,28	>6	7,7	(Dasch, 1988)
Epicéa-sapin	Mesure par collecte d'eau	6	3,7-4,7	0-0,28	>6	52	
Epicéa	« Canopy water budget »	2	7-11	0,17-0,26	-	34	(Mueller & Weatherford, 1988)
Epicéa	« Canopy water budget »	3,6	4-7,5	0,05-0,25	-	62	
Epicéa	Eddy-Covariance	10	2,7-6,1	0,05-0,35	4,4-6,4	1,0-2,0	(Beswick et al., 1991)
Epicéa	Eddy-Covariance	10	15	0,2	5-9	10	(Gallagher et al., 1992)
Epicéa	Mesure par collecte d'eau	13	-	0,34	8-12	19-39	(Pahl et al., 1995; Wobrock et al., 1994)
Sapin	Eddy-Covariance	7	4-10	<0,4	15	1-3	(Vong & Kowalski, 1995)
Sapin	Eddy-Covariance	11	1-4	<0,4	20	0-10	(Vermeulen et al., 1997)
Sapin	Eddy-Covariance	7	2-10	0,2-1,0	15-19	0-8	(Kowalski & Vong, 1999)
Epicéa	Eddy-Covariance	6,4	0-8	0,16	9-15	0-20	(Burkard, Eugster, Wrzesinsky, & Klemm, 2002; Klemm & Wrzesinsky, 2007)
Epicéa	Eddy-Covariance	6,4	3,3	0,066	9-15	7,5	(Thalmann et al., 2002)
Epicéa	Eddy-Covariance	6,3	1,5	0,18	5-25	4,4	(Beiderwieden et al., 2008)
Cèdre	Modèles + mesures par collecte d'eau	4,5	2-8	0,1-0,3	-	23-31	(Katata et al., 2011)
Cyprès	Méthode de pesée ¹	20	0,8-2,6	0,07-0,20	20-23	18-37	Présente étude
Cyprès	Méthode de pesée ²	20	0,8-1,2	0,025-0,03	7-15	7-10	Présente étude

¹ valeurs regroupant les épisodes à fort dépôt (04/10, 27/10, 28/10, 1-02/11) de 2016 ; ² valeurs regroupant les épisodes à faible dépôt (17-18/10, 02/12) de 2016

Synthèse des observations concernant la turbulence

Même s'il a été possible de mettre en évidence une influence de la turbulence sur le dépôt d'eau pour quelques épisodes de brouillard, la méthode de pesée ne permet pas de calculer la contribution de la turbulence au dépôt. Le calcul des vitesses de dépôt des gouttelettes fait apparaître que ces vitesses sont bien supérieures aux vitesses des sédimentations attendues pour des particules supermicroniques. Katata et al. (2011) ont mis au point une méthode simple pour estimer le dépôt de **brouillard à partir d'un modèle météorologique, ils supposent que la vitesse de dépôt est directement** proportionnelle à la vitesse du vent mesurée au-dessus des canopées forestières. Nos observations **n'ont pas permis de confirmer cette hypothèse**. Ce modèle a été développé dans un environnement montagneux et au vu de ce qui a été observé durant nos expériences au sommet du Puy de Dôme, il semblerait judicieux de distinguer le dépôt par brouillard radiatif en plaine, des dépôts en milieu montagneux. Dans un environnement au relief important, les vitesses de vent peuvent être nettement **plus élevées et le dépôt occulte est lié à des formations nuageuses plutôt qu'à des brouillards**.

Les vitesses de dépôt calculées par méthode de pesée sont proches de celles obtenues par méthode **de collecte d'eau et « canopy water budget »**. Ces valeurs élevées sont probablement explicables par **la propagation des incertitudes au niveau de la pesée. En effet, l'incertitude sur le temps d'exposition** au moment de la pesée **engendre une incertitude sur la durée d'exposition (± 1 minute)**. Il existe également une incertitude due à la stabilisation de la balance ($\pm 0,2$ g) et, enfin, les incertitudes propres des instruments.

CHAPITRE 6

DEPOT OCCULTE DE RADIONUCLEIDES

CHAPITRE 6	DEPOT OCCULTE DE RADIONUCLEIDES	140
6.1	Concentration en radionucléide de l'eau de brouillard	142
6.1.1	Les traceurs des dépôts de brouillard	142
6.1.2	Activités mesurées durant les différentes campagnes de mesures menées à Houdelaincourt	142
6.2	Contribution du brouillard au dépôt	145
6.3	Le dépôt par les gouttelettes de brouillard en cas de rejet accidentel de Cesium-137..	151

Cette page est volontairement laissée blanche pour une impression recto-verso

Les brouillards et les nuages peuvent représenter une source non négligeable de dépôts humides de composés atmosphériques, avec des concentrations en ions, en nutriments et en polluants plus importantes que dans la pluie. Toutefois et jusqu'à maintenant, peu d'études ont porté sur la concentration en radionucléides dans les nuages et les brouillards. Lors d'une situation d'incident ou d'accident nucléaire comme à Fukushima Daiichi, certaines régions ont pu être touchées par ces dépôts occultes de radionucléides. Il est donc important de savoir dans quelle mesure les brouillards peuvent participer à la contamination des territoires. Pour cela, des échantillons d'eau de brouillard ont été prélevés grâce à des collecteurs de brouillard pour chaque événement étudié lors des campagnes menées à Bure en 2014-2015, puis en 2015-2016 et en 2016. A partir des données d'activité volumique dans les eaux de brouillard et des données de masse d'eau déposée par épisode, la contribution des gouttelettes de brouillards aux retombées atmosphériques totales de radionucléides a été évaluée.

6.1 CONCENTRATION EN RADIONUCLEIDE DE L'EAU DE BROUILLARD

6.1.1 Les traceurs des dépôts de brouillard

Notre travail s'appuie sur des mesures de radionucléides artificiels dans le brouillard. Or, la majorité des radionucléides artificiels rejetés en cas d'accident sur un CNPE (par ordre d'abondance décroissante : l'iode 131 (^{131}I), le césium 137 (^{137}Cs), le césium 134 (^{134}Cs), le tellure 132 (^{132}Te), l'iode 132 (^{132}I), etc...) ne sont pas mesurables à l'heure actuelle dans l'atmosphère, essentiellement à cause des périodes souvent courtes. En effet, l'iode-131 possède une demi-vie assez courte ($t_{1/2}=8,02$ jours), de même pour le tellure-132 ($t_{1/2}=3,2$ jours) et l'iode-132 ($t_{1/2}=140$ minutes). Quant au ^{134}Cs , il possède un temps de demi-vie de 2 ans, ce qui ne permet pas de le mesurer actuellement. La seule exception est le ^{137}Cs dont la période est plus longue ($t_{1/2}=30,17$ ans) et qui est toujours présent dans la troposphère à l'état de trace (de l'ordre de quelques $\mu\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) en Europe occidentale. Rappelons que les sources « primaires » les plus importantes de ce radionucléide sont les tirs atmosphériques d'armes nucléaires et l'accident de Tchernobyl (Povinec, 2013). Actuellement, la présence du ^{137}Cs dans l'atmosphère provient de sources « secondaires » (remise en suspension de particules de sol, combustion de la biomasse, épisode de poussières sahariennes, etc.) (cf. chapitre 2).

Cependant, la mesure du ^{137}Cs dans les brouillards est rendue très difficile par le fait que le ^{137}Cs est présent à l'état trace dans l'atmosphère avec une valeur moyenne annuelle de $0,25 \mu\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ (Winkler & Rosner, 2000) et que les volumes d'eau de brouillard sont très faibles. Nous nous sommes donc également intéressés à un autre traceur atmosphérique, en l'occurrence le plomb 210 (^{210}Pb) qui est un radionucléide présent naturellement dans l'environnement avec une demi-vie assez longue ($t_{1/2}=22,26$ ans). La principale source de ^{210}Pb dans l'atmosphère provient de l'exhalation du radon-222 (^{222}Rn) ($t_{1/2}=3,8$ jours) à partir du sol. Le ^{210}Pb est fréquemment utilisé en tant que traceur atmosphérique afin de mieux comprendre les phénomènes de transport et de lavage atmosphérique (Winkler & Rosner, 2000). En effet, les atomes de ^{210}Pb sont associés principalement à des aérosols submicroniques de diamètre aérodynamique compris entre $0,5$ et $0,6 \mu\text{m}$ qui peuvent se déposer au sol par des processus de dépôt humide et sec.

6.1.2 Activités mesurées durant les différentes campagnes de mesures menées à Houdelaincourt

La première campagne de terrain a débuté en octobre 2014 et s'est terminée en février 2015. Il s'agissait d'une phase d'essai pour la mise au point du protocole expérimental de pesée. Pour cette raison nous ne disposons pas de pesées suffisamment fiables pour cette période. En revanche, la collecte d'eau de brouillard s'est déroulée correctement et des résultats ont été obtenus pour sept événements de brouillard. Le nombre d'échantillons d'eau de brouillard peut paraître assez faible

par rapport à la durée de la campagne (5 mois). Cela s'explique par des prélèvements déclenchés en fonction de la prévision météorologique et l'éloignement du site expérimental (depuis le centre de Cadarache). Afin de pallier ces contraintes, les campagnes suivantes ont été réalisées grâce à la présence permanente d'une équipe sur le site d'expérimentation. D'après les données de visibilité sur la période 2014-2015, 22 épisodes de brouillards ont été enregistrés.

L'eau de brouillard provient de l'eau récoltée pendant la durée totale de chaque épisode de brouillard à l'aide de l'ensemble des collecteurs de brouillard. (cf. chapitre 2). Les quantités récupérées sont très variables d'un évènement à l'autre et dépendent de la quantité d'eau condensée dans l'air (LWC), du nombre de collecteurs utilisés ainsi que de leurs efficacités de collecte. Une fois récoltée, l'eau de brouillard est conservée pour être pesée puis évaporée en laboratoire dans une étuve à 80°. L'eau de brouillard est évaporée jusqu'à obtention d'un extrait sec. L'extrait est ensuite conditionné dans une géométrie de comptage de 12 mL ayant l'aspect d'un tube à essai et compatible avec une mesure dans un détecteur HPGe de type « puits » (Canberra Industries). Les échantillons ainsi conditionnés sont envoyés au Laboratoire de Mesure de la Radioactivité de l'Environnement (LMRE) de l'IRSN, à Orsay qui dispose également de détecteurs puits installés dans le tunnel du Laboratoire Souterrain de Modane (LSM) géré par l'IN2P3, où finalement les échantillons sont orientés compte tenu de la très faible quantité de matière présente dans les géométries ainsi que de la faible quantité de Becquerels de ^{137}Cs attendue dans ces échantillons. Ce laboratoire est situé sous une couche de roche de 1800 m (équivalent en eau de 4800 m). Ces conditions permettent de réduire considérablement le bruit de fond du laboratoire et d'obtenir un rendement de détection de 24% pour le ^{137}Cs , à comparer avec le rendement de détection de 5% obtenu sur les meilleurs détecteurs du LMRE installés dans le laboratoire situé à Orsay. Grâce à cette métrologie de pointe des traces de ^{137}Cs ont pu être quantifiées dans les échantillons d'eau de brouillard au-dessus de limites de détection correspondant à 1 mBq/échantillon ou encore 1 à 5 mBq.L⁻¹.

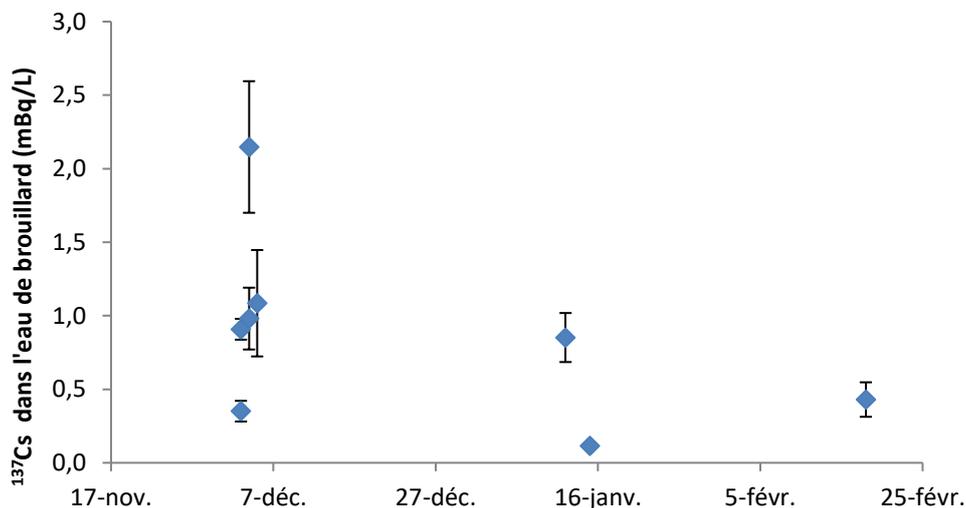


Figure 6.1 : Activité en ^{137}Cs dans l'eau de brouillard durant l'automne-hiver 2014-2015.

La Figure 6.1 représente l'activité en ^{137}Cs des huit échantillons d'eau de brouillard de la campagne 2014-2015. L'activité moyenne dans l'eau de brouillard en 2014-2015 est de 0,9 mBq.L⁻¹, les valeurs s'étendent de 0,3 à 2,1 mBq.L⁻¹. L'incertitude de mesure pour ces faibles concentrations est importante, elle varie de 22 à 66%. En effet, les quantités de matière sèche analysées sont très faibles, de l'ordre du milligramme pour certains échantillons. Durant cette première saison de

brouillard, les gouttelettes d'eau ont été récoltées par deux collecteurs passifs et deux collecteurs actifs (cf. chapitre 3). Durant cette première campagne, les collecteurs ne disposaient pas encore d'un système permettant leur déclenchement lorsque la visibilité était inférieure à 1000 m, et étaient donc enclenchés manuellement. De ce fait les échantillons d'eau ont été collectés essentiellement lors de la phase mature du brouillard.

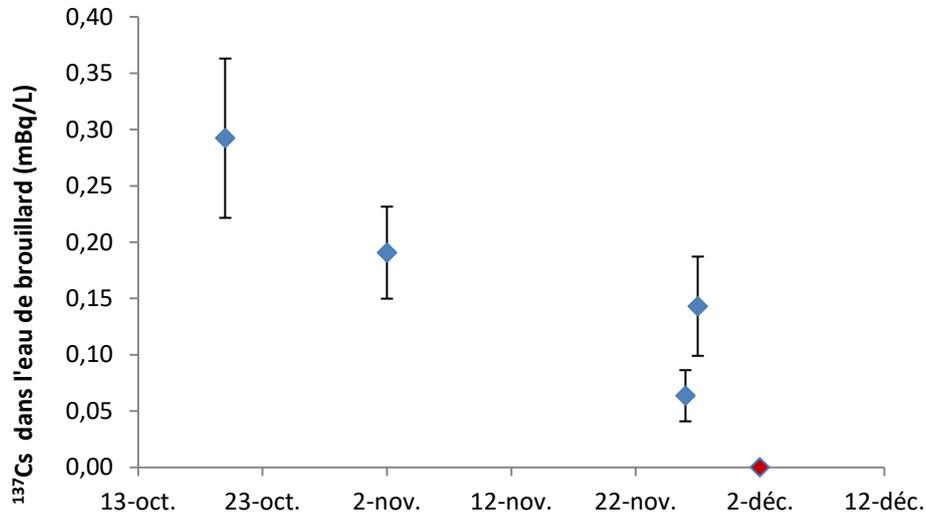


Figure 6.2 : Activité en ^{137}Cs dans l'eau de brouillard durant l'automne 2015, (en rouge valeur inférieure au seuil de détection)

La Figure 6.2 représente l'activité en ^{137}Cs des cinq échantillons d'eau de brouillard de la campagne automne-hiver 2015. L'activité moyenne dans l'eau brouillard de l'automne 2015 est de $0,17 \text{ mBq} \cdot \text{L}^{-1}$, pour une plage de valeurs de 0 à $0,3 \text{ mBq} \cdot \text{L}^{-1}$ avec des incertitudes de mesure variant de 48 à 71%. La concentration moyenne en ^{137}Cs est 5 fois moins importante que celle mesurée dans l'eau de brouillard de l'hiver 2014-2015. Cela est probablement dû au fait que durant la seconde campagne, le nettoyage des collecteurs se faisait de manière beaucoup plus rigoureuse, les collecteurs étaient rincés avant un épisode de brouillard pour éliminer les dépôts secs puis couverts lors de nos absences à l'aide d'un sac plastique de grande capacité. Les collecteurs se déclenchaient automatiquement en cas de visibilité inférieure à 1000 m et de nouveaux collecteurs actifs ont été installés en renfort.

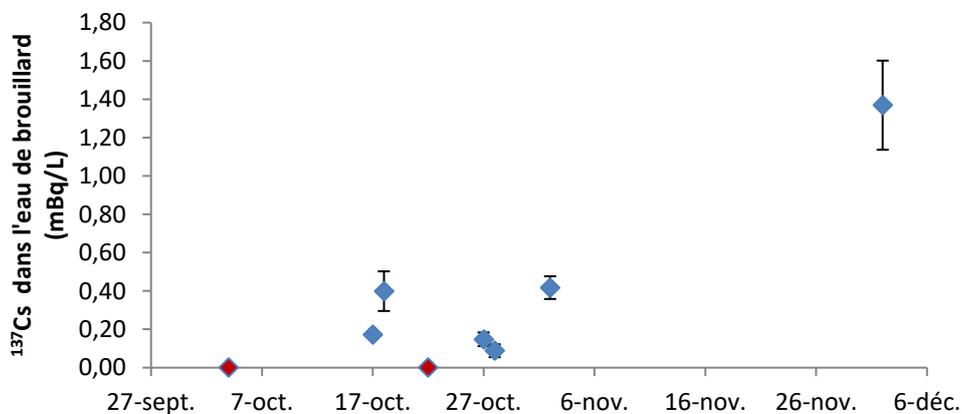


Figure 6.3 : Activité en ^{137}Cs dans l'eau de brouillard durant l'automne 2016, (en rouge valeur inférieure au seuil de détection).

La Figure 6.3 représente l'activité en ^{137}Cs des huit échantillons d'eau de brouillard de la campagne 2016. L'activité moyenne dans l'eau brouillard durant l'automne 2016 est de 0,3 mBq.L⁻¹ pour un écart type de 0,3 mBq.L⁻¹ avec des incertitudes de mesure variant de 28 à 52%. Contrairement aux campagnes précédentes, la présence permanente d'une équipe sur le site permet d'affirmer que chaque échantillon correspond bien exclusivement à un épisode de brouillard. De plus, à chacune de ces mesures d'activité a été couplée une expérience de pesée de l'eau de brouillard déposée sur les végétaux (cf. chapitre 4).

Tableau 6-1 : Caractéristiques de l'eau de brouillard récoltée sur 3 campagnes de 2014 à 2016.

Campagne	Nombres d'échantillons	Volume d'eau collectée (L)	Masse matière sèche (g)	Moyenne ^{137}Cs (mBq.L ⁻¹)	Ecart-type ^{137}Cs
2014-2015	7	11,9	4,6	0,9	0,4
2015	5	5,2	0,225	0,17	0,07
2016	8	7,2	1,27	0,3	0,3
Total	20	24,3	6,10	0,46	0,26

Un récapitulatif concernant la mesure du ^{137}Cs dans les échantillons d'eau de brouillard collectée durant la thèse est présenté dans le tableau 6-1, la dernière ligne du tableau correspond à la somme du nombre d'échantillons, du volume d'eau collectée et de matière sèche ainsi que la moyenne des activités en ^{137}Cs sur l'ensemble des campagnes effectuées durant la thèse. Il nous est possible, à partir de ces mesures, de comparer l'activité de l'eau de brouillard à l'activité dans l'eau de pluie, le principal contributeur en termes de dépôt de radionucléides au sol.

6.2 CONTRIBUTION DU BROUILLARD AU DEPOT

La détermination de la contribution du dépôt de radionucléides par les gouttelettes de brouillard constitue un des principaux objectifs de la thèse et nécessite de connaître la quantité d'eau déposée par les brouillards et la concentration en radionucléides de l'eau de brouillard. Durant la première campagne, notre protocole expérimental de pesée n'était pas encore au point. L'équation 4.1 a été utilisée pour déduire la masse d'eau déposée moyenne à partir de la valeur moyenne de LWC enregistrée, pour chaque épisode de brouillard pour lesquels nous ne disposons pas des données de pesées.

$$\text{dépôt} = 2,1 \times \text{LWC} \quad (4.1)$$

Afin d'évaluer la quantité d'eau déposée par les brouillards sur une saison, on dispose de la masse d'eau moyenne déposée par unité de temps et par unité de surface durant un épisode de brouillard (M_{fog}). Les données du visibilimètre et du PVM nous renseignent sur la durée de chaque épisode de brouillard enregistrée (ΔT). A partir de ces valeurs, il est possible d'estimer le dépôt d'eau de brouillard durant une période (en L.m⁻²) afin de comparer cette valeur au dépôt par la pluie.

Pour calculer le dépôt de radionucléides au sol provenant des gouttelettes de brouillard ($dépôt_{fog}$) à partir de la concentration en radionucléide de l'eau de brouillard (C_{fog}), on utilise l'équation suivante 6.1 :

$$dépôt_{fog} = M_{fog} \times \Delta T \times C_{fog} \quad (6.1)$$

Avec $dépôt_{fog}$ en $mBq.m^{-2}$, M_{fog} en $L.m^{-2}.h^{-1}$, ΔT en h et C_{fog} en $mBq.L^{-1}$. L'ensemble de ces données pour chaque campagne figure dans les tableaux 6-1, 6-2 et 6-3.

Pour connaître le dépôt de radionucléide total sur une saison, la somme des dépôts de radionucléides de chaque épisode de brouillard est réalisée.

Tableau 6-2 : Caractéristiques des brouillards de la campagne 2014-2015 avec calcul du dépôt moyen

Épisode	Visibilité moyenne (m)	LWC moyen ($g.m^{-3}$)	Dépôt moyen ($g.m^{-2}.min^{-1}$)	Durée (hh:min)
01/10/2014	436	0,09	0,19	02:46
06/11/2014	118	0,06	0,13	06:56
13/11/2014	574	0,05	0,11	11:39
19/11/2014	556	0,07	0,15	02:46
04/12/2014	274	0,06	0,13	10:00
21/01/2015	282	0,04	0,08	05:33
25/01/2015	246	0,04	0,08	19:40
28/01/2015	203	0,03	0,06	16:40
03/02/2015	127	0,1	0,21	08:20
10/02/2015	422	0,03	0,06	04:10
16/02/2015	138	0,07	0,15	08:53

Durant la campagne 2014-2015, du 23 septembre 2014 au 19 février 2015, un total de vingt-deux épisodes de brouillards a été enregistré soit quatre-vingt-dix-sept heures de brouillards. Seuls, les brouillards de plus de deux heures sont pris en compte car il a été observé que pour les évènements de moins de deux heures, le dépôt cumulé par les gouttelettes de brouillard est insignifiant en regard des erreurs de mesure. Pour chaque épisode de brouillard, le dépôt moyen est calculé grâce à **l'équation 4.1**. **Les caractéristiques des épisodes de brouillards sont présentées dans le tableau 6-2.**

Tableau 6-3 : Bilan comparé du dépôt sur sol nu par le brouillard et par la pluie (novembre 2014-février 2015)

	Dépôt d'eau (L.m ⁻²)	¹³⁷ Cs (mBq. L ⁻¹)	Dépôt ¹³⁷ Cs (mBq.m ⁻²)	Dépôt ²¹⁰ Pb (mBq.m ⁻²)
Brouillard	0,65	0,92	0,55	863
Pluie	285	0,045	13	21060
Rapport brouillard/pluie*	0,15%	X 20		
Rapport brouillard/retombées totales			5%	4%

Le tableau 6-3 sur la période novembre 2014-février 2015 à **indique que l'eau de brouillard représente une part négligeable de l'apport hydrique au niveau des sols puisqu'elle** constitue 0,15% de la masse d'eau déposée par la pluie. En revanche, la concentration en ¹³⁷Cs est **20 fois plus élevée dans l'eau de brouillard que dans l'eau de pluie, de ce fait le dépôt de ¹³⁷Cs par les gouttelettes d'eau de brouillard représente 5% des retombées totales.** Il en est de même avec le ²¹⁰Pb qui représente 4% des retombées totales en ²¹⁰Pb. **L'eau de pluie étant collectée de manière continue à l'aide d'un collecteur dont la surface de dépôt représente 1m², les mesures d'activité dans les échantillons récoltés correspondent à la somme du dépôt par la pluie, du dépôt par temps sec et du dépôt par les brouillards et la rosée. Pour l'année 2014-2015, sachant que nous avons utilisé une valeur de masse d'eau de brouillard déposée moyenne calculée et que de nombreux problèmes techniques ont entraîné des coupures de courant ne permettant pas l'enregistrement de tous les épisodes de brouillard éventuels, ces valeurs de dépôt n'ont qu'un caractère approximatif.**

Pour la campagne suivante (à partir de la fin du mois de septembre 2015), la méthode de pesée étant fonctionnelle, elle a été utilisée pour mesurer le dépôt pour deux épisodes de brouillard : le 31 octobre 2015 et du 1^{er} au 2 novembre 2015. Afin d'estimer le dépôt résultant du brouillard pour l'ensemble de la campagne, un recensement des épisodes de brouillards a été réalisé (Tableau 6-4). L'équation 4.1 permet de nouveau de déterminer le dépôt moyen à partir du LWC moyen de chaque épisode.

Tableau 6-4 Caractéristiques des brouillards de la campagne 2015 avec calcul du dépôt moyen.

Épisode	Visibilité moyenne (m)	LWC moyen (g.m ⁻³)	Dépôt moyen (g.m ⁻² .min ⁻¹)	Durée (hh:min)
09/10/2015	720	0,26	0,54	04:10
10/10/2015	362	0,1	0,21	08:20
13/10/2015	171	0,06	0,12	05:33
31/10/2015*	150	0,1	2,26	11:00
02/11/2015*	130	0,14	3	10:30
03/11/2015	264	0,13	0,27	08:53
23/11/2015	205	0,09	0,18	02:46
24/11/2015	121	0,1	0,21	05:16
26/11/2015	164	0,14	0,29	05:06
27/11/2016	195	0,13	0,27	00:50
04/12/2015	133	0,18	0,37	02:03
05/12/2015	104	0,2	0,42	05:50
10/12/2015	204	0,28	0,59	06:56
17/12/2015	166	0,15	0,32	04:43
26/12/2015	193	0,17	0,36	02:46
31/12/2015	118	0,28	0,59	03:10

* en grisé les épisodes ayant fait l'objet d'une publication (cf. Chapitre 4).

Tableau 6-5 Bilan comparé du dépôt sur sol nu par le brouillard et par la pluie (octobre 2015-décembre 2015)

	Dépôt d'eau (L.m ⁻²)	¹³⁷ Cs (mBq. L ⁻¹)	Dépôt ¹³⁷ Cs (mBq.m ⁻²)	Dépôt ²¹⁰ Pb (mBq.m ⁻²)
Brouillard	4,7	0,17	0,8	332
Pluie	156,2	0,017	2,8	5810
Rapport brouillard/pluie*	2%	X 10		
Rapport brouillard/retombées totales			29%	6%

Le tableau 6-5 regroupe les données de la campagne 2015 qui a débuté en octobre pour se finir en décembre. Cette campagne est plus courte **que la précédente mais le nombre d'épisodes de brouillard est plus important (28 épisodes) pour une durée totale d'heures de brouillard de 87 heures**. Cela peut s'expliquer par la prise en compte **du mois d'octobre** dans la campagne 2015. En effet, les mois **d'octobre et de novembre sont** généralement les plus propices au brouillard à Houdelaincourt. De **plus l'installation d'un disjoncteur spécifique à l'expérimentation**, a permis de diminuer le nombre et la durée des coupures électriques. En revanche, le cumul total de pluie est moins élevé sur cette **période et de ce fait la contribution de l'eau de brouillard au dépôt de radionucléides atteint 29%** pour le ¹³⁷Cs et 6% pour le ²¹⁰Pb. Un autre facteur expliquant ce dépôt de ¹³⁷Cs élevé est le nombre **d'épisodes** de brouillard avec des LWC moyens élevés (>0.1 g.m⁻³) : 14 épisodes.

Tableau 6-6 : Comparaison des dépôts (eau et radionucléides) par le brouillard sur sol nu et par la pluie (octobre 2016-décembre 2016)

	Dépôt d'eau (L.m ⁻²)	¹³⁷ Cs (mBq. L ⁻¹)	Dépôt ¹³⁷ Cs (mBq.m ⁻²)	Dépôt ²¹⁰ Pb (mBq.m ⁻²)
Brouillard	0,6	0,32	0,12	138
Pluie	192,17	0,017	3	5168
Rapport brouillard/pluie*	0,3%	X 19		
Rapport brouillard/retombées totales			4%	2,6%

Durant la dernière campagne en 2016, nous disposons des données de pesées ainsi que des mesures **d'activité dans l'eau de brouillard pour les évènements de brouillard enregistrés. Les résultats**

présentés dans le tableau 6-6 correspondent bien à des cumuls et non pas à des valeurs moyennes utilisées par la suite pour en déduire les activités réellement déposées contrairement aux cas de la **saison précédente. La masse d'eau déposée au sol par les gouttelettes de brouillard est 4,5 fois moins importante qu'en 2015. En 2015, une masse d'eau déposée moyenne par épisode de brouillard est estimée à partir de valeurs moyenne de LWC or le dépôt par le brouillard est un phénomène dynamique qui fluctue durant un épisode ce qui permet d'expliquer en partie pourquoi en 2016, la masse d'eau déposée pour l'ensemble des événements de brouillard est plus faible qu'en 2015. De plus, pour la campagne 2016 seulement 65 heures de brouillards ont été recensées contre 87 heures en 2015. Cela explique pourquoi la contribution de l'eau de brouillard aux retombées totales est assez faible, 4 % pour le ^{137}Cs et 2,6% pour le ^{210}Pb .**

Au cours des trois campagnes, on constate que l'eau de brouillard est systématiquement plus concentrée en radionucléides que l'eau de pluie (entre 10 à 20 fois plus), ce qui confirme ce qui a été observé dans le cas d'autres composés chimiques notamment par Hikari Shimadera et al. (2011) dans la région de Kinki au Japon où la concentration moyenne annuelle de SO_4^{2-} dans l'eau de brouillard est six fois plus importante que la concentration de ce composé dans l'eau de pluie, mais aussi par Weathers and Likens (1997) pour les source de N_2 dans l'eau de brouillard au sud du Chili. La quantité d'eau déposée par le brouillard est toutefois négligeable par rapport à celle déposée par la pluie (entre 0,3 et 2%). Lorsqu'on observe la contribution des brouillards aux retombées totales, elle varie de 4 à 29 % pour le ^{137}Cs et de 2,6 à 6 % pour le ^{210}Pb durant les 3 campagnes. La forte valeur observée pour le ^{137}Cs en 2015 peut s'expliquer par l'occurrence de nombreux brouillards aux LWC élevés et une pluviométrie moins importante qu'en 2016. Ainsi, le dépôt de radionucléides par les gouttelettes de brouillard peut représenter une source non négligeable de contamination des sols dans le cas d'un brouillard à fort LWC.

6.3 LE DEPOT PAR LES GOUTTELETTES DE BROUILLARD EN CAS DE REJET ACCIDENTEL DE CESIUM-137

Lorsque le processus de dépôt des gouttelettes de brouillard est considéré, il a souvent été assimilé au processus de dépôt sec (Chamberlain, 1970). Or les vitesses calculées par méthode de pesée (*cf.* chapitre 5) pour des gouttelettes de brouillard, sont bien supérieures à la valeur de vitesse de dépôt utilisée dans le cas d'aérosol sec ($0,5 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$). **Donc le cas d'une situation post-accidentelle, en l'absence d'épisode pluvieux tel qu'observé dans plusieurs régions situées au Sud-Est de la centrale de Fukushima le 15 mars 2011 mais avec dépôt d'aérosols secs, la question se pose de la contribution d'un épisode de brouillard à la contamination des sols.**

Pour répondre à cette question, un calcul simple qui compare le dépôt par temps sec et le dépôt en présence de brouillard est réalisé. Une activité dans l'air (C_{air}) comprise entre 1 et $100 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ est fixée et on considère une vitesse de dépôt (Vd_{sec}) de $0,5 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ pour les aérosols secs. Le calcul du dépôt sec de radionucléides durant une période (Δt) est effectué grâce à l'équation 6.2 (Parache et al., 2011) :

$$dépôt_{sec} = C_{air} \times Vd_{sec} \times \Delta t \quad (6.2)$$

Dans le cas du dépôt par le brouillard ($dépôt_{fog}$), il est nécessaire d'évaluer la concentration en radionucléides de l'eau de brouillard (C_{fog}) afin d'utiliser l'équation (6.1).

$$\text{dépôt}_{fog} = M_{fog} \times \Delta T \times C_{fog} \quad (6.1)$$

Pour cela un rapport de lavage pour le brouillard (RR_{fog}) est calculée (Dueñas, Fernández, Carretero, Liger, & Cañete, 2005), **il s'agit du rapport entre l'activité dans l'eau de brouillard et l'activité dans l'air** (Eq. 6.3) :

$$RR_{fog} = \frac{C_{fog}}{C_{air}} \quad (6.3)$$

Pour une activité moyenne en ^{137}Cs (C_{fog}) de $0,46 \text{ mBq.L}^{-1}$ **dans l'eau de brouillard (tableau 6-1) et une activité moyenne dans l'air (C_{air}) de $0,5 \text{ mBq.m}^{-3}$, le rapport de lavage pour le brouillard (RR_{fog}) est de $9,2 \cdot 10^{-4} \text{ L.m}^{-3}$. Il est ainsi possible grâce à ce rapport de lavage de déterminer la concentration en radionucléides dans l'eau de brouillard pour une activité dans l'air donnée, dans ce cas pour 1 et 100 Bq.m^{-3} . En considérant un épisode de brouillard dont le LWC est de $0,1 \text{ g.m}^{-3}$ la masse d'eau déposée moyenne (M_{fog}) durant cet épisode est de $0,21 \text{ g.m}^{-2} \text{ min}^{-1}$ d'après la relation (4.1). L'activité en ^{137}Cs dans l'eau de brouillard, le dépôt sec sur une période de deux jours et le dépôt pour un épisode de brouillard de dix heures sont présentés dans le tableau 6-7 suivant :**

Tableau 6-7 Dépôt par le brouillard et dépôt sec pour une activité dans l'air donnée.

Activité en ^{137}Cs dans l'air (Bq.m^{-3})	Activité en ^{137}Cs dans l'eau de brouillard (mBq.L^{-1})	Dépôt par le brouillard (mBq.m^{-2})	Dépôt sec (Bq.m^{-2})	Retombées totales (Bq.m^{-2})
0,0005*	0,46	0,058	0,43	0,49
1	920	116	864	980
100	92000	11592	86400	97992

*Activité volumique moyenne de l'air à Houdelaincourt

D'après les données du tableau 6-7, en cas de rejet de ^{137}Cs (activité comprise entre 1 et 100 Bq.m^{-3}) et sans évènement pluvieux, le dépôt par le brouillard ou dépôt occulte constituerait 12% des retombées totales (dépôt sec et dépôt occulte). Le brouillard peut ainsi représenter une source non négligeable de contamination des sols par temps « sec ». L'application des résultats expérimentaux obtenus à l'issue de ce travail de thèse à un exemple concret montre qu'il est possible, à partir de l'activité dans l'air et la connaissance des conditions météorologiques dans une situation donnée, d'estimer si le brouillard est une source de contamination qu'il est nécessaire de prendre en compte.

CHAPITRE 7

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

CHAPITRE 7	CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES	154
7.1	Conclusion générale	156
7.2	Perspectives	157

Cette page est volontairement laissée blanche pour une impression recto-verso

7.1 CONCLUSION GÉNÉRALE

Suite à l'accident de Tchernobyl, l'étude des processus de dépôt au sol des radionucléides présents dans l'atmosphère, a mis en évidence l'importance des événements pluvieux afin d'expliquer l'hétérogénéité de la distribution des niveaux de contamination des sols. Après l'accident de Fukushima, les différents modèles employés pour évaluer la contamination des sols n'ont pas permis d'expliquer la présence de niveaux d'activités élevées dans des zones n'ayant pas subi de dépôt humide par la pluie. La localisation de ces zones en région montagneuse laisse à supposer que les dépôts occultes peuvent être à l'origine de ces dépôts. Le dépôt d'eau par les nuages et les brouillards est un processus déjà connu qui représente une source supplémentaire de nutriments et de polluants pour les forêts (Aleksic et al., 2009; Barrie & Schemenauer, 1986; Collett Jr et al., 2002). Le dépôt occulte est relativement faible par rapport au dépôt par la pluie et donc non mesurable par des dispositifs conventionnels comme les pluviomètres. Par ailleurs, le brouillard est un phénomène météorologique pour lequel peu d'instruments de mesure sont généralement installés en routine, ce qui conduit à une relative absence de données d'observation.

L'enjeu de la prévision du brouillard est d'évaluer la quantité d'eau qui se dépose lors d'un épisode ainsi que les dépôts de polluants atmosphériques, dont font partie les radionucléides.

Le dépôt de radionucléides a été obtenu par combinaison de la quantité d'eau déposée par les brouillards et la concentration de radionucléides dans l'eau de brouillard. L'intérêt de cette étude repose sur une approche expérimentale de terrain et l'acquisition d'échantillons d'eau de brouillard et de paramètres microphysiques tels que le contenu en eau liquide et la granulométrie des gouttelettes. Le dépôt est considéré pour différents surfaces et végétaux présentant des caractéristiques de rugosité et de LAI très variables, tels que le sol nu, les choux, l'herbe et les cyprès. Ce dépôt a été évalué par une méthode simple et robuste, c'est-à-dire par pesée après exposition des végétaux au brouillard.

Des expériences similaires de pesée ont été réalisées sur des petits cyprès par Trautner et Eiden (1988) et plus récemment sur des surfaces de type « herbe » par Price et Clark (2014). Généralement, les études concernant le dépôt occulte sur les végétaux ne sont effectuées que sur un seul type de canopée à la fois, quelle que soit la technique (Katata, 2014). Cela rend difficile la comparaison des données de dépôt puisqu'il s'agit de brouillards aux caractéristiques différentes. Par ailleurs, à ce jour, il n'existe pas de données de mesure de dépôt occulte sur des légumes de type « légumes-feuilles », ce qui constitue un obstacle à l'évaluation de la contamination des cultures. Or en termes de radioprotection de l'homme et de l'environnement, la contamination potentielle des cultures en cas de rejets accidentels doit être évaluée.

L'analyse du contenu en eau liquide (LWC) a mis en évidence une différence de la masse d'eau déposée en fonction du type de surface végétale, pour des valeurs de LWC supérieures à $0,1 \text{ g} \cdot \text{m}^{-3}$. La masse d'eau déposée sur les cyprès est plus importante que sur la végétation basse, pour une même surface au sol car la surface d'impaction des végétaux est plus étendue dans le cas des cyprès. La détermination du LAI (Leaf Area Index) pour les types de végétaux utilisés permet de rendre compte de cette différence. En effet, le LAI des cyprès est de 20 ; 4,5 pour l'herbe et 2,4 pour les choux. L'étude du dépôt sur les surfaces cyprès a également mise en évidence l'influence de la position relative de l'arbre dans le bac sur le dépôt de gouttelettes. Cela traduit à moindre échelle, le phénomène d'« edge effect » observé au niveau des canopées forestières. La différence de dépôt entre les choux et l'herbe est assez faible, du fait de LAI proches et de structure foliaire à proximité du sol entraînant des phénomènes d'impaction moins importants des gouttelettes.

Les paramètres microphysiques des gouttelettes ont également été analysés (taille et concentration) au cours de ces épisodes. On constate que les gouttelettes supermicroniques (>10 microns) contribuent majoritairement au contenu en eau liquide dans l'air. Nous avons également mis en

évidence une corrélation entre le LWC et la masse d'eau déposée par les gouttelettes de brouillard. Cette relation permet ainsi, à partir de la mesure du LWC, d'estimer le dépôt occulte. Les brouillards pour lesquels cette corrélation a été établie sont des brouillards radiatifs

Deux processus gouvernent le dépôt des gouttelettes de brouillard : les forces de gravitation et la turbulence. **C'est pourquoi, des mesures d'énergie cinétique turbulente (TKE) ont été réalisées par l'équipe du CNRM. La comparaison des masses d'eau déposée et de la turbulence durant chaque épisode n'a pas permis d'observer une relation directe entre ces deux paramètres. Néanmoins, le calcul des vitesses de dépôt des gouttelettes à partir de la masse d'eau déposée et du LWC fait apparaître que les vitesses de dépôt sont bien supérieures aux vitesses théoriques de sédimentation des gouttelettes surpermicroniques. Ainsi, la turbulence contribue au dépôt des gouttelettes, même pour des grosses gouttelettes en situation de faible turbulence (brouillard radiatif).**

Après comparaison des vitesses de dépôt obtenues par méthode de pesée avec les vitesses de dépôt **de la littérature et déterminées par méthode de collecte d'eau (« canopy water budget ») » ou par la méthode des gradients ou encore par la méthode d'« eddy correlation », nous avons constaté que les vitesses de dépôt obtenues par pesée sont très proches de celles déterminées par méthode de collecte d'eau et « canopy water budget ». Ces trois méthodes conduisent à des valeurs de vitesses les plus élevées, toutes canopées confondues. A l'inverse, la méthode d'« eddy correlation » a tendance à sous-estimer les flux d'eau à la surface de la canopée car les mesures sont réalisées à distance de la surface de dépôt, et ne tiennent pas compte des phénomènes de condensation de la vapeur d'eau en surface de la canopée (Holwerda et al., 2006). Les méthodes directes telles que la méthode de pesée présentent en revanche l'inconvénient de générer des incertitudes plus élevées, même si elles restent difficiles à quantifier.**

Comparativement aux autres techniques, la méthode de pesée présente l'avantage d'être extrêmement simple à mettre en place et permet de réaliser des mesures de dépôt sur des surfaces végétales variées, dès lors que les surfaces offertes aux dépôts sont importantes. Ces campagnes de mesure ayant pour objectif de fournir aux modèles opérationnels du dépôt de radionucléides ou de formation du brouillard des paramètres liés au dépôt d'eau de brouillard, il est nécessaire d'acquérir des données pour différents types de surface.

Du fait des concentrations en radionucléides très faibles attendues, il a été nécessaire de disposer de **volumes importants d'eau de brouillard. Les prélèvements d'eau de brouillard ont donc été réalisés à l'aide de collecteurs actifs. L'eau de brouillard est en moyenne 10 à 20 fois plus concentrée que l'eau de pluie. La quantité d'eau déposée par le brouillard reste toutefois négligeable par rapport à celle déposée par la pluie (entre 0,3 et 2%). Quant à la contribution des brouillards aux retombées totales de radionucléides, elle varie de 4 à 29% pour le ^{137}Cs et de 3 à 6% pour le ^{210}Pb . Cela signifie que le dépôt d'eau de brouillard n'est pas la source majeure de contamination en comparaison au dépôt par la pluie. En revanche, en l'absence d'épisode pluvieux mais en présence de brouillard ou de nuage (région montagneuse ou proche de cours d'eau), le dépôt occulte ne peut être négligé et peut représenter jusqu'à 12% du dépôt total (sec et humide).**

7.2 PERSPECTIVES

La limite principale de ce travail est liée aux faibles nombres de cas étudiés (8 épisodes de brouillard). **A partir de cet effectif réduit de cas, il n'est pas possible d'étendre les conclusions de cette étude à toutes les situations de brouillard. C'est pourquoi, l'application de la méthode de pesées pour des cas de formations nuageuses autre que le brouillard radiatif, reste nécessaire. Nous avons constaté lors de nos expériences au Puy de Dôme, que la méthode par pesée est difficilement applicable en cas de vent important. L'occurrence de brouillard étant la plus forte pour les saisons d'automne et**

d'hiver en France, cela nous a contraints à nous focaliser sur un site en particulier. L'application de la méthode de pesée à d'autres sites d'expérimentations à la topographie différente permettrait un enrichissement des données de dépôt.

Les mesures de turbulence n'ont été réalisées que lors de la dernière campagne de la thèse, une étude plus approfondie de sensibilité sur plus de cas de brouillards aurait peut-être permis d'évaluer la contribution turbulente au dépôt.

D'autre part, les mesures d'activités dans l'eau de brouillard pourraient être complétées par des mesures d'activité du dépôt sec uniquement. L'utilisation d'un collecteur découvrant par exemple permettrait de connaître avec précision la contribution de chaque processus de dépôt (sec/pluie/brouillard). En effectuant la collecte d'eau de brouillard dans des zones présentant de fortes concentrations de radionucléides, les mesures d'activités pourraient être réalisées sur des volumes d'eau moins importants et il serait également possible de procéder à une collecte d'eau en fonction des classes de taille de gouttelettes ; l'objectif étant de d'évaluer quels sont les diamètres de gouttelettes les plus concentrées en radionucléides. En effet, il est possible que des gouttelettes d'une certaine taille soit porteuse d'une activité maximum.

S'agissant d'une thèse expérimentale, nous n'avons pas abordé le domaine de la modélisation bien que la finalité de la thèse soit 1) de proposer des valeurs de vitesses de dépôt utilisables en modélisation opérationnelle en cas de crise ; 2) de fournir une estimation des flux d'eau soustraits de l'atmosphère lors du dépôt (terme puits). La prise en compte des données de flux d'eau déposée dans un modèle de dépôt ou de prévision du cycle de vie du brouillard permettrait en première intention d'évaluer si cela permet une amélioration dudit modèle.

RÉFÉRENCES

- Agam, N., & Berliner, P. R. (2006). Dew formation and water vapor adsorption in semi-arid environments—A review. *Journal of Arid Environments*, 65(4), 572-590. doi:<http://dx.doi.org/10.1016/j.jaridenv.2005.09.004>
- Aikawa, M., Hiraki, T., Suzuki, M., Tamaki, M., & Kasahara, M. (2007). Separate chemical characterizations of fog water, aerosol, and gas before, during, and after fog events near an industrialized area in Japan. *Atmospheric Environment*, 41(9), 1950-1959. doi:<http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2006.10.049>
- Aikawa, M., Hiraki, T., & Tamaki, M. (2006). Comparative field study on precipitation, throughfall, stemflow, fog water, and atmospheric aerosol and gases at urban and rural sites in Japan. *Science of The Total Environment*, 366(1), 275-285. doi:<http://dx.doi.org/10.1016/j.scitotenv.2005.06.027>
- Aleksic, N., Roy, K., Sistla, G., Dukett, J., Houck, N., & Casson, P. (2009). Analysis of cloud and precipitation chemistry at Whiteface Mountain, NY. *Atmospheric Environment*, 43(17), 2709-2716. doi:<http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2009.02.053>
- Barker, M. G., & Ashenden, T. W. (1992). Effects of acid fog on cuticular permeability and cation leaching in holly (*Ilex aquifolium*). *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 42(3-4), 291-306. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/0167-8809\(92\)90005-V](http://dx.doi.org/10.1016/0167-8809(92)90005-V)
- Barrie, L. A., & Schemenauer, R. S. (1986). Pollutant wet deposition mechanisms in precipitation and fog water. *Water, Air, and Soil Pollution*, 30(1-2), 91-104. doi:10.1007/bf00305178
- Beiderwieden, E., Wolff, V., Hsia, Y. J., & Klemm, O. (2008). It goes both ways: measurements of simultaneous evapotranspiration and fog droplet deposition at a montane cloud forest. *Hydrological Processes*, 22(21), 4181-4189. doi:10.1002/hyp.7017
- Bergot, T. (2013). Small-scale structure of radiation fog: a large-eddy simulation study. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 139(673), 1099-1112. doi:10.1002/qj.2051
- Bergot, T., & Guedalia, D. (1994). Numerical forecasting of radiation fog. Part I: Numerical model and sensitivity tests. *Monthly Weather Review*, 122(6), 1218-1230.
- Beswick, K. M., Hargreaves, K. J., Gallagher, M. W., Choularton, T. W., & Fowler, D. (1991). Size-resolved measurements of cloud droplet deposition velocity to a forest canopy using an eddy correlation technique. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 117(499), 623-645. doi:10.1002/qj.49711749910
- Beysens, D. (1995). The formation of dew. *Atmospheric Research*, 39(1-3), 215-237. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/0169-8095\(95\)00015-J](http://dx.doi.org/10.1016/0169-8095(95)00015-J)
- Boucher, O. (2011). *Aérosols atmosphériques propriétés et impacts climatiques*. Paris Berlin Heidelberg [etc.]: Springer.
- Bourcier, L., Masson, O., Laj, P., Paulat, P., Pichon, J. M., Chausse, P., . . . Sellegri, K. (2014). 7Be, 210Pb and 137Cs concentrations in cloud water. *Journal of Environmental Radioactivity*, 128(0), 15-19. doi:<http://dx.doi.org/10.1016/j.jenvrad.2013.10.020>
- Burkard, R., Eugster, W., Wrzesinsky, T., & Klemm, O. (2002). Vertical divergence of fogwater fluxes above a spruce forest. *Atmospheric Research*, 64(1-4), 133-145. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/S0169-8095\(02\)00086-8](http://dx.doi.org/10.1016/S0169-8095(02)00086-8)
- Cameron, C. S., Murray, D. L., Fahey, B. D., Jackson, R. M., Kelliher, F. M., & Fisher, G. W. (1997). Fog deposition in tall tussock grassland, South Island, New Zealand. *Journal of Hydrology*, 193(1), 363-376. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/S0022-1694\(96\)03040-5](http://dx.doi.org/10.1016/S0022-1694(96)03040-5)
- Cape, J. N. (1993). Direct damage to vegetation caused by acid rain and polluted cloud: Definition of critical levels for forest trees. *Environmental Pollution*, 82(2), 167-180. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/0269-7491\(93\)90114-4](http://dx.doi.org/10.1016/0269-7491(93)90114-4)

- Chamberlain, A. C. (1970). Interception and retention of radioactive aerosols by vegetation. *Atmospheric Environment (1967)*, 4(1), 57-78. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/0004-6981\(70\)90054-5](http://dx.doi.org/10.1016/0004-6981(70)90054-5)
- Choularton, T. W., Gay, M. J., Jones, A., Fowler, D., Cape, J. N., & Leith, I. D. (1988). The influence of altitude on wet deposition comparison between field measurements at great dun fell and the predictions of a seeder-feeder model. *Atmospheric Environment (1967)*, 22(7), 1363-1371. doi:[https://doi.org/10.1016/0004-6981\(88\)90161-8](https://doi.org/10.1016/0004-6981(88)90161-8)
- Colle, C., & Madoz-Escande, C. (2007). *Revue bibliographique et expertise des valeurs de paramètres de transfert foliaire dans la biosphère. 2ème partie : l'indice de surface foliaire (LAI)*. Retrieved from DEI/SECRE:
- Collett Jr, J. L., Bator, A., Sherman, D. E., Moore, K. F., Hoag, K. J., Demoz, B. B., . . . Reilly, J. E. (2002). The chemical composition of fogs and intercepted clouds in the United States. *Atmospheric Research*, 64(1,À4), 29-40. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/S0169-8095\(02\)00077-7](http://dx.doi.org/10.1016/S0169-8095(02)00077-7)
- Cruz, C. N., & Pandis, S. N. (1997). A study of the ability of pure secondary organic aerosol to act as cloud condensation nuclei. *Atmospheric Environment*, 31(15), 2205-2214. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/S1352-2310\(97\)00054-X](http://dx.doi.org/10.1016/S1352-2310(97)00054-X)
- 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*. Retrieved from <http://www.theses.fr/2010ISAM0020/document> Available from <http://www.theses.fr/2010ISAM0020>
- Dasch, J. M. (1988). Hydrological and chemical inputs to fir trees from rain and clouds during a 1-month study at Clingmans Peak, NC. *Atmospheric Environment (1967)*, 22(10), 2255-2262. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/0004-6981\(88\)90136-9](http://dx.doi.org/10.1016/0004-6981(88)90136-9)
- Daube, B. C., Jr, Flagan, R. C., & Hoffmann, M. R. (1987). United States Patent No.
- Davidson, C. I., & Friedlander, S. K. (1978). A filtration model for aerosol dry deposition: Application to trace metal deposition from the atmosphere. *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 83(C5), 2343-2352. doi:10.1029/JC083iC05p02343
- Dawson, T. E. (1998). Fog in the California redwood forest: ecosystem inputs and use by plants. *Oecologia*, 117(4), 476-485. doi:10.1007/s004420050683
- DeFelice, T. P., & Saxena, V. K. (1990). Mechanisms for the Operation of three cloudwater collectors: comparison of mountain-top results. *Atmospheric Research*, 25(4), 277-292. doi:10.1016/0169-8095(90)90015-5
- Deguillaume, L., Charbouillot, T., Joly, M., Vaïtilingom, M., Parazols, M., Marinoni, A., . . . Mailhot, G. (2014). Classification of clouds sampled at the puy de Dôme (France) based on 10 yr of monitoring of their physicochemical properties. *Atmos. Chem. Phys.*, 14(3), 1485-1506. doi:10.5194/acp-14-1485-2014
- Demoz, B. B., Collett Jr, J. L., & Daube Jr, B. C. (1996). On the caltech active strand cloudwater collectors. *Atmospheric Research*, 41(1), 47-62. doi:10.1016/0169-8095(95)00044-5
- Depuydt, G. (2013). *Etude expérimentale in situ du potentiel de lessivage de l'aérosol atmosphérique par les précipitations*. Retrieved from <http://www.theses.fr/2013INPT0122/document> Available from <http://www.theses.fr/2013INPT0122>
- Dollard, G. J., & Unsworth, M. H. (1983). Field measurements of turbulent fluxes of wind-driven fog drops to a grass surface. *Atmospheric Environment (1967)*, 17(4), 775-780. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/0004-6981\(83\)90426-2](http://dx.doi.org/10.1016/0004-6981(83)90426-2)
- Dollard, G. J., Unsworth, M. H., & Harve, M. J. (1983). Pollutant transfer in upland regions by occult precipitation. *Nature*, 302(5905), 241-242.
- Dueñas, C., Fernández, M. C., Carretero, J., Liger, E., & Cañete, S. (2005). Deposition velocities and washout ratios on a coastal site (southeastern Spain) calculated from 7Be and 210Pb measurements. *Atmospheric Environment*, 39(36), 6897-6908. doi:<https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.08.008>

- Dupuy, R. (2003). *Etude de l'activation des noyaux de condensation mesure, analyse et développement instrumental*. Available from <http://www.sudoc.fr/078005248>
- Eller, C. B., Lima, A. L., & Oliveira, R. S. (2013). Foliar uptake of fog water and transport belowground alleviates drought effects in the cloud forest tree species, *Drimys brasiliensis* (Winteraceae). *New Phytologist*, *199*(1), 151-162. doi:10.1111/nph.12248
- Eugster, W., Burkard, R., Holwerda, F., Scatena, F. N., & Bruijnzeel, L. A. (2006). Characteristics of fog and fogwater fluxes in a Puerto Rican elfin cloud forest. *Agricultural and Forest Meteorology*, *139*(3-4), 288-306. doi:<http://dx.doi.org/10.1016/j.agrformet.2006.07.008>
- Fenn, M. E., & Kiefer, J. W. (1999). Throughfall deposition of nitrogen and sulfur in a Jeffrey pine forest in the San Gabriel Mountains, southern California. *Environmental Pollution*, *104*(2), 179-187. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/S0269-7491\(98\)00195-X](http://dx.doi.org/10.1016/S0269-7491(98)00195-X)
- Foken, T. (2008). Basic Equations of Atmospheric Turbulence. In *Micrometeorology* (pp. 25-60). Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg.
- Fournier-Bidoz, V. (1991). *CONTRIBUTION A L'ETUDE DU LAVAGE DE L'IODE MOLECULAIRE GAZEUX PAR LES PLUIES NATURELLES*: Commissariat à l'énergie atomique.
- Fowler, D., Morse, A. P., Gallagher, M. W., & Choularton, T. W. (1990). Measurements of cloud water deposition on vegetation using a lysimeter and a flux gradient technique. *Tellus B*, *42*(3), 285-293. doi:10.1034/j.1600-0889.1990.t01-1-00007.x
- Fowler, D., Pilegaard, K., Sutton, M. A., Ambus, P., Raivonen, M., Duyzer, J., . . . Erisman, J. W. (2009). Atmospheric composition change: Ecosystems–Atmosphere interactions. *Atmospheric Environment*, *43*(33), 5193-5267. doi:<http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2009.07.068>
- Francescangeli, N., Sangiacomo, M. A., & Martí, H. (2006). Effects of plant density in broccoli on yield and radiation use efficiency. *Scientia Horticulturae*, *110*(2), 135-143. doi:<http://dx.doi.org/10.1016/j.scienta.2006.06.025>
- Gallagher, M. W., Beswick, K., Choularton, T. W., Coe, H., Fowler, D., & Hargreaves, K. (1992). Measurements and modelling of cloudwater deposition to moorland and forests. *Environmental Pollution*, *75*(1), 97-107. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/0269-7491\(92\)90062-F](http://dx.doi.org/10.1016/0269-7491(92)90062-F)
- Gallagher, M. W., Choularton, T. W., Morse, A. P., & Fowler, D. (1988). Measurements of the size dependence of cloud droplet deposition at a hill site. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, *114*(483), 1291-1303. doi:10.1002/qj.49711448307
- Gerber, H. (1991). Direct measurement of suspended particulate volume concentration and far-infrared extinction coefficient with a laser-diffraction instrument. *Applied Optics*, *30*(33), 4824-4831. doi:10.1364/ao.30.004824
- Giambelluca, T. W., DeLay, J. K., Nullet, M. A., Scholl, M. A., & Gingerich, S. B. (2011). Canopy water balance of windward and leeward Hawaiian cloud forests on Haleakalā, Maui, Hawai'i. *Hydrological Processes*, *25*(3), 438-447. doi:10.1002/hyp.7738
- Herckes, P., Mirabel, P., & Wortham, H. (2002). Cloud water deposition at a high-elevation site in the Vosges Mountains (France). *Science of The Total Environment*, *296*(1-3), 59-75. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/S0048-9697\(02\)00037-2](http://dx.doi.org/10.1016/S0048-9697(02)00037-2)
- Herckes, P., Valsaraj, K. T., & Collett Jr, J. L. A review of observations of organic matter in fogs and clouds: Origin, processing and fate. *Atmospheric Research*, *132*, 434-449. doi:<http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosres.2013.06.005>
- Holwerda, F., Burkard, R., Eugster, W., Scatena, F. N., Meesters, A. G. C. A., & Bruijnzeel, L. A. (2006). Estimating fog deposition at a Puerto Rican elfin cloud forest site: comparison of the water budget and eddy covariance methods. *Hydrological Processes*, *20*(13), 2669-2692. doi:10.1002/hyp.6065
- Hososhima, M., & Kaneyasu, N. (2015). Altitude-Dependent Distribution of Ambient Gamma Dose Rates in a Mountainous Area of Japan Caused by the Fukushima Nuclear Accident. *Environmental Science & Technology*, *49*(6), 3341-3348. doi:10.1021/es504838w

- Igawa, M., Matsumura, K., & Okochi, H. (2002). High Frequency and Large Deposition of Acid Fog on High Elevation Forest. *Environmental Science & Technology*, 36(1), 1-6. doi:10.1021/es0105358
- Igawa, M., Tsutsumi, Y., Mori, T., & Okochi, H. (1998). Fogwater Chemistry at a Mountainside Forest and the Estimation of the Air Pollutant Deposition via Fog Droplets Based on the Atmospheric Quality at the Mountain Base. *Environmental Science & Technology*, 32(11), 1566-1572. doi:10.1021/es970213x
- Jonckheere, I., Fleck, S., Nackaerts, K., Muys, B., Coppin, P., Weiss, M., & Baret, F. (2004). Review of methods for in situ leaf area index determination: Part I. Theories, sensors and hemispherical photography. *Agricultural and Forest Meteorology*, 121(1-2), 19-35. doi:<http://dx.doi.org/10.1016/j.agrformet.2003.08.027>
- Joslin, J. D., Mueller, S. F., & Wolfe, M. H. (1990). Tests of models of cloudwater deposition to forest canopies using artificial and living collectors. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 24(12), 3007-3019. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/0960-1686\(90\)90480-B](http://dx.doi.org/10.1016/0960-1686(90)90480-B)
- Katata, G. (2014). Fogwater deposition modeling for terrestrial ecosystems: A review of developments and measurements. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 119(13), 2014JD021669. doi:10.1002/2014jd021669
- Katata, G., Kajino, M., Hiraki, T., Aikawa, M., Kobayashi, T., & Nagai, H. (2011). A method for simple and accurate estimation of fog deposition in a mountain forest using a meteorological model. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 116(D20), n/a-n/a. doi:10.1029/2010jd015552
- Katata, G., Nagai, H., Wrzesinsky, T., Klemm, O., Eugster, W., & Burkard, R. (2008). Development of a Land Surface Model Including Cloud Water Deposition on Vegetation. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 47(8), 2129-2146. doi:10.1175/2008jamc1758.1
- Klemm, O., & Wrzesinsky, T. (2007). Fog deposition fluxes of water and ions to a mountainous site in Central Europe. *Tellus B*, 59(4), 705-714. doi:10.1111/j.1600-0889.2007.00287.x
- Kobayashi, T., Nakagawa, Y., Tamaki, M., Hiraki, T., & Aikawa, M. (2001). Cloud Water Deposition to Forest Canopies of *Cryptomeria Japonica* at Mt.Rokko, Kobe, Japan. *Water, Air, and Soil Pollution*, 130(1-4), 601-606. doi:10.1023/a:1013859403320
- Kokhanovsky, A., & Rozanov, V. V. (2012). Droplet vertical sizing in warm clouds using passive optical measurements from a satellite. *Atmos. Meas. Tech.*, 5(3), 517-528. doi:10.5194/amt-5-517-2012
- Kowalski, A. S., & Vong, R. J. (1999). Near-surface fluxes of cloud water evolve vertically. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 125(559), 2663-2684. doi:10.1002/qj.49712555916
- Laguionie, P., Rouspard, P., Maro, D., Solier, L., Rozet, M., Hébert, D., & Connan, O. (2014). Simultaneous quantification of the contributions of dry, washout and rainout deposition to the total deposition of particle-bound ⁷Be and ²¹⁰Pb on an urban catchment area on a monthly scale. *Journal of Aerosol Science*, 77, 67-84. doi:<http://dx.doi.org/10.1016/j.jaerosci.2014.07.008>
- Lange, C. A., Matschullat, J. r., Zimmermann, F., Sterzik, G. r., & Wienhaus, O. (2003). Fog frequency and chemical composition of fog water, Åa relevant contribution to atmospheric deposition in the eastern Erzgebirge, Germany. *Atmospheric Environment*, 37(26), 3731-3739. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/S1352-2310\(03\)00350-9](http://dx.doi.org/10.1016/S1352-2310(03)00350-9)
- Li, P., Li, X., Yang, C., Wang, X., Chen, J., & Collett Jr, J. L. Fog water chemistry in Shanghai. *Atmospheric Environment*, 45(24), 4034-4041. doi:<http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2011.04.036>
- Liu, D., Yang, J., Niu, S., & Li, Z. (2011). On the evolution and structure of a radiation fog event in Nanjing. *Advances in Atmospheric Sciences*, 28(1), 223-237. doi:10.1007/s00376-010-0017-0
- Lovett, G. M. (1984). Rates and mechanisms of cloud water deposition to a subalpine balsam fir forest. *Atmospheric Environment (1967)*, 18(2), 361-371. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/0004-6981\(84\)90110-0](http://dx.doi.org/10.1016/0004-6981(84)90110-0)

- Lovett, G. M. (1988). A Comparison of Methods for Estimating Cloud Water Deposition to a New Hampshire (U.S.A.) Subalpine Forest. In M. H. Unsworth & D. Fowler (Eds.), *Acid Deposition at High Elevation Sites* (pp. 309-320). Dordrecht: Springer Netherlands.
- Mailliat, A. (2012). *Les Milieux aérosols et leurs représentations*: EDP Sciences.
- Masson, O., de Vismes Ott, A., Bourcier, L., Paulat, P., Ribeiro, M., Pichon, J.-M., . . . Gurriaran, R. (2015). Change of radioactive cesium (¹³⁷Cs and ¹³⁴Cs) content in cloud water at an elevated site in France, before and after the Fukushima nuclear accident: Comparison with radioactivity in rainwater and in aerosol particles. *Atmospheric Research*, 151(0), 45-51. doi:<http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosres.2014.03.031>
- Mazoyer, M. (2016). *Impact du processus d'activation sur les propriétés microphysiques des brouillards et sur leur cycle de vie*. Retrieved from <http://www.theses.fr/2016INPT0025/document>
- http://oatao.univ-toulouse.fr/15822/1/These_Marie_Mazoyer.pdf
- <http://www.theses.fr/2016INPT0025> Available from <http://www.sudoc.fr/193180421>
- Miles, N. L., Verlinde, J., & Clothiaux, E. E. (2000). Cloud Droplet Size Distributions in Low-Level Stratiform Clouds. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 57(2), 295-311. doi:10.1175/1520-0469(2000)057<0295:cdsdil>2.0.co;2
- Mueller, S. F., & Weatherford, F. P. (1988). Chemical deposition to a high elevation red spruce forest. *Water, Air, and Soil Pollution*, 38(3), 345-363. doi:10.1007/bf00280765
- Niinemets, Ü., & Kull, K. (1994). Leaf weight per area and leaf size of 85 Estonian woody species in relation to shade tolerance and light availability. *Forest Ecology and Management*, 70(1), 1-10. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/0378-1127\(94\)90070-1](http://dx.doi.org/10.1016/0378-1127(94)90070-1)
- Pahl, S., Winkler, P., Schneider, T., Arends, B., Schell, D., Maser, R., & Wobrock, W. (1995). Deposition of Trace Substances via Cloud Interception on a Coniferous Forest at Kleiner Feldberg. In S. Fuzzi (Ed.), *The Kleiner Feldberg Cloud Experiment 1990: EUROTRAC Subproject Ground-Based Cloud Experiment (GCE)* (pp. 231-252). Dordrecht: Springer Netherlands.
- Pandis, S. N., Seinfeld, J. H., & Pilinis, C. (1990). The smog-fog-smog cycle and acid deposition. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 95(D11), 18489-18500. doi:10.1029/JD095iD11p18489
- Parache, V., Pourcelot, L., Roussel-Debet, S., Orjollet, D., Leblanc, F., Soria, C., . . . Masson, O. (2011). Transfer of ¹³¹I from Fukushima to the Vegetation and Milk in France. *Environmental Science & Technology*, 45(23), 9998-10003. doi:10.1021/es202242g
- Petroff, A. (2005). *Etude mécaniste du dépôt sec d'aérosols sur les couverts végétaux*. Available from <http://www.theses.fr/2005AIX22026>
- Podzimek, J. (1997). Droplet concentration and size distribution in haze and fog. *Studia Geophysica et Geodaetica*, 41(3), 277-296.
- Povinec, P. (2013). *Fukushima accident : radioactivity impact on the environment / Pavel P. Povinec, Katsumi Hirose, Michio Aoyama*. Amsterdam: Elsevier.
- Price, J. D., & Clark, R. (2014). On the Measurement of Dewfall and Fog-Droplet Deposition. *Boundary-Layer Meteorology*, 152(3), 367-393. doi:10.1007/s10546-014-9930-6
- Quérel, A. (2012). *Lessivage de l'atmosphère par la pluie : approche microphysique*. Retrieved from <http://www.theses.fr/2012CLF22305/document> Available from <http://www.theses.fr/2012CLF22305>
- Rangognio, J. (2009). *Impact des aérosols sur le cycle de vie du brouillard*. (Thèse de doctorat), Université Paul Sabatier,
- Reinap, A., Wiman, B. L. B., Svenningsson, B., & Gunnarsson, S. (2012). Forest-edge effects on sea-salt aerosol deposition : a wind-tunnel study using living oak leaves. *Boreal environment research*, 17(3-4), 193-209.
- Renaud, P., & Louvat, D. (2003). Les retombées de l'accident de Tchernobyl en France : analyse critique des mesures effectuées à l'époque sur le territoire national et enseignements pour la gestion de crise. *Radioprotection*, 38(04), 529-542. doi:doi:10.1051/radiopro:2003016

- Renoux, A., & Boulaud, D. (1998). *Les aérosols: physique et métrologie*: Tec & Doc Lavoisier.
- Saxena, V. K., Stogner, R. E., Hendler, A. H., De Felice, T. P., Yeh, R. J. Y., & Lin, N. H. (1989). Monitoring the chemical climate of the Mt. Mitchell State Park for evaluation of its impact on forest decline. *Tellus B*, 41B(1), 92-109. doi:10.1111/j.1600-0889.1989.tb00128.x
- Schemenauer, R. S. (1986). Acidic deposition to forests: The 1985 chemistry of high elevation fog (CHEF) project. *Atmosphere-Ocean*, 24(4), 303-328. doi:10.1080/07055900.1986.9649254
- Sellegrì, K. (2002). *Etude du processus d'activation des gouttelettes de nuage : implications en chimie multiphases*. Available from <http://www.theses.fr/2002GRE10114>
- Shimadera, H., Kondo, A., Kaga, A., Shrestha, K. L., & Inoue, Y. (2010). *Estimate of acid deposition through fog using numerical models in the Kinki Region of Japan*. Paper presented at the HARMO 2010 - Proceedings of the 13th International Conference on Harmonisation within Atmospheric Dispersion Modelling for Regulatory Purposes.
- Shimadera, H., Kondo, A., Shrestha, K. L., Kaga, A., & Inoue, Y. (2011). Annual sulfur deposition through fog, wet and dry deposition in the Kinki Region of Japan. *Atmospheric Environment*, 45(35), 6299-6308. doi:10.1016/j.atmosenv.2011.08.055
- Shulman, M. L., Jacobson, M. C., Carlson, R. J., Synovec, R. E., & Young, T. E. (1996). Dissolution behavior and surface tension effects of organic compounds in nucleating cloud droplets. *Geophysical Research Letters*, 23(3), 277-280. doi:10.1029/95gl03810
- Spiegel, J. K., Zieger, P., Bukowiecki, N., Hammer, E., Weingartner, E., & Eugster, W. (2012). Evaluating the capabilities and uncertainties of droplet measurements for the fog droplet spectrometer (FM-100). *Atmos. Meas. Tech.*, 5(9), 2237-2260. doi:10.5194/amt-5-2237-2012
- Tardif, R., & Rasmussen, R. M. (2007). Event-Based Climatology and Typology of Fog in the New York City Region. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 46(8), 1141-1168. doi:10.1175/jam2516.1
- Templer, P. H., Weathers, K. C., Ewing, H. A., Dawson, T. E., Mambelli, S., Lindsey, A. M., . . . Firestone, M. K. (2015). Fog as a source of nitrogen for redwood trees: evidence from fluxes and stable isotopes. *Journal of Ecology*, 103(6), 1397-1407. doi:10.1111/1365-2745.12462
- Terradellas, E., Ferreres, E., & Soler, M. R. (2008). Analysis of turbulence in fog episodes. *Advances in Science and Research*, 2, 31-34.
- Thalmann, E., Burkard, R., Wrzesinsky, T., Eugster, W., & Klemm, O. (2002). Ion fluxes from fog and rain to an agricultural and a forest ecosystem in Europe. *Atmospheric Research*, 64(1-4), 147-158. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/S0169-8095\(02\)00087-X](http://dx.doi.org/10.1016/S0169-8095(02)00087-X)
- Trautner, F., & Eiden, R. (1988). A measuring device to quantify deposition of fogwater and ionic input by fog on small spruce trees. *Trees*, 2(2), 92-95. doi:10.1007/bf00196754
- Vermeulen, A. T., Wyers, G. P., Rvðmer, F. G., Van Leeuwen, N. F. M., Draaijers, G. P. J., & Erisman, J. W. (1997). Fog deposition on a coniferous forest in The Netherlands. *Atmospheric Environment*, 31(3), 375-386. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/S1352-2310\(96\)00056-8](http://dx.doi.org/10.1016/S1352-2310(96)00056-8)
- Vong, R. J., & Kowalski, A. S. (1995). Eddy correlation measurements of size-dependent cloud droplet turbulent fluxes to complex terrain. *Tellus B*, 47(3), 331-352. doi:10.1034/j.1600-0889.47.issue3.5.x
- Wagenpfeil, F., Paretzke, H. G., Peres, J. M., & Tschiersch, J. (1999). Resuspension of coarse particles in the region of Chernobyl. *Atmospheric Environment*, 33(20), 3313-3323. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/S1352-2310\(98\)00293-3](http://dx.doi.org/10.1016/S1352-2310(98)00293-3)
- Wallace, J. M., & Hobbs, P. V. (2006). 6 - Cloud Microphysics. In J. M. Wallace & P. V. Hobbs (Eds.), *Atmospheric Science (Second Edition)* (pp. 209-269). San Diego: Academic Press.
- Watanabe, K., Takebe, Y., Sode, N., Igarashi, Y., Takahashi, H., & Dokiya, Y. (2006). Fog and rain water chemistry at Mt. Fuji: A case study during the September 2002 campaign. *Atmospheric Research*, 82(3-4), 652-662. doi:<http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosres.2006.02.021>
- Weathers, K. C., & Likens, G. E. (1997). Clouds in Southern Chile: An Important Source of Nitrogen to Nitrogen-Limited Ecosystems? *Environmental Science & Technology*, 31(1), 210-213. doi:10.1021/es9603416

- Wilson, J. (1963). Estimation of foliage denseness and foliage angle by inclined point quadrats. *Australian Journal of Botany*, 11(1), 95-105. doi:<http://dx.doi.org/10.1071/BT9630095>
- Winkler, R., & Rosner, G. (2000). Seasonal and long-term variation of ²¹⁰Pb concentration in air, atmospheric deposition rate and total deposition velocity in south Germany. *Science of The Total Environment*, 263(1-3), 57-68. doi:[http://dx.doi.org/10.1016/S0048-9697\(00\)00666-5](http://dx.doi.org/10.1016/S0048-9697(00)00666-5)
- Wobrock, W., Schell, D., Maser, R., Jaeschke, W., Georgii, H.-W., Wieprecht, W., . . . Borrmann, S. (1994). The Kleiner Feldberg Cloud Experiment 1990. An overview. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 19(1), 3-35. doi:10.1007/bf00696581
- Wuyts, K., De Schrijver, A., Vermeiren, F., & Verheyen, K. (2009). Gradual forest edges can mitigate edge effects on throughfall deposition if their size and shape are well considered. *Forest Ecology and Management*, 257(2), 679-687. doi:<http://dx.doi.org/10.1016/j.foreco.2008.09.045>
- Yamaguchi, T., Katata, G., Noguchi, I., Sakai, S., Watanabe, Y., Uematsu, M., & Furutani, H. (2015). Long-term observation of fog chemistry and estimation of fog water and nitrogen input via fog water deposition at a mountainous site in Hokkaido, Japan. *Atmospheric Research*, 151(0), 82-92. doi:<http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosres.2014.01.023>

ABSTRACT

For the purpose of cooling off their reactors, nuclear power plants are located near rivers, ponds or in coastal areas. In temperate regions and during fall and winter, they are frequently exposed to fogs. Operational models of atmospheric dispersion and deposition used to estimate radioactive contamination of the environment after a nuclear accident, consider dry deposition and wet deposition by rain. Should we take into account the deposition by fog droplets as an additional process in term of deposition? To answer this question, an experimental study has been setup on several sites often exposed to fogs or clouds. Fogwater collection and measurement of fogwater deposited on plants were realized with string collectors and precision balances, respectively. Different plant types were used for this study: small conifers, cabbage, grass plus a bare soil as a reference deposition surface. By measuring the liquid water content (LWC) and the mass of water deposited on plants, fog droplet deposition velocities can be calculated. In the case of fog composed mainly of big droplets (mean median volume diameter of 20 μm), deposition velocities of these droplets can reach several tens $\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$. These high deposition velocities highlight the fact that gravitational but also turbulent processes are both contributing to the deposition on plants especially with a tri-dimensional structure such as conifers. The edge effect linked to a strong density of trees has also been identified and quantified during our experiments. The radionuclides found in trace amounts in fogwater showed that fogwater could be up to twenty times more concentrated in radionuclides than rain water. It is due to the activity dilution during the condensation phase of the droplets, when the droplets are growing. Based on measurements of the mass of water deposited by fog and concentrations of radionuclides in fog droplets on the site of Houdelaincourt, occult deposition that cannot be quantify by rain gauges or meteorological radar can be estimated. Over a whole season of fog, occult deposition can represent up to 25% of the total deposition (dry and wet by rain) of radionuclides. In case of an accidental release, fog could contribute to 14% of the total deposition if no rain event occurs. Those results highlight the fact that fog deposition should be considered to better quantify radioactive fallouts in areas embedded by fog (or clouds for high altitude sites), particularly in post-accident situation. A simple model of dry deposition to simulate the droplets deposition by sedimentation can be developed, using the median diameter of droplets derived from the visibility. This work still needs to be completed to quantify the turbulence contribution induced by the air flow near obstacles such as large plants and to implement a specific scheme into deposition model.

Key words: Fog, deposition, droplets, radionuclides, deposition velocity, weighing method, plants, LWC, LAI, foliar index.

RESUME

Pour les besoins du refroidissement de leurs réacteurs, les CNPE¹ sont placés à proximité immédiate de cours d'eau ou du littoral. Ils sont de ce fait exposés à des bancs de brouillards, en particulier à l'automne et au cours de l'hiver. Or les modèles opérationnels de dispersion atmosphérique/dépôt, utilisés pour simuler la contamination radioactive de l'environnement à la suite d'un accident nucléaire, considèrent uniquement les dépôts par temps sec et ceux par temps de pluie. Faut-il tenir compte de la présence des brouillards comme terme additionnel de dépôt de radionucléides en cas d'accident nucléaire ? Pour répondre à cette question, une étude expérimentale a été conduite sur plusieurs sites exposés aux brouillards ou aux nuages (principalement la plateforme d'observation atmosphérique de l'ANDRA à Houdelaincourt ainsi que la station de recherche atmosphérique de l'OPGC/CNRS² au sommet du Puy de Dôme et la plateforme d'étude atmosphérique SIRT³ de l'IPSL⁴ à Palaiseau). La collecte d'eau de brouillard et la mesure des quantités d'eau déposées sous forme de gouttelettes sur différents types de végétaux, ont été réalisées respectivement grâce à collecteurs à fils et des pesées de précision. En mesurant le contenu en eau liquide dans l'air ainsi que la masse d'eau déposée sur les plantes, il a été possible de calculer des vitesses de dépôt des gouttelettes de brouillard pouvant atteindre plusieurs dizaines de $\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$ dans le cas d'un brouillard composé de grosses gouttelettes (diamètre médian volumique moyen de 20 μm). Ces vitesses élevées mettent en évidence l'importance des processus gravitationnels mais aussi turbulents notamment dans le cadre du dépôt sur des végétaux à structure foliaire tridimensionnelle comme les conifères

¹ Centre Nucléaire de Production d'Electricité

² Observatoire de Physique du Globe de Clermont-Ferrand / Centre National de la Recherche Scientifique

³ Site Instrumental de Recherche par Télédétection Atmosphérique.

⁴ Institut Pierre Simon Laplace

L'effet d'auto-écranage lié à une densité de biomasse foliaire élevée a également été quantifié. Les **concentrations en radionucléides à l'état de traces ont montré que l'eau de brouillard pouvait être jusqu'à 20 fois plus concentrée que l'eau de pluie, du fait de la dilution par condensation de vapeur d'eau sur les gouttelettes au cours de leur grossissement. Les mesures des masses d'eau déposées par les brouillards et de la concentration en radionucléides dans les gouttelettes sur le site d'Houdelaincourt, permettent d'estimer ces dépôts habituellement qualifiés d'occultes car trop faibles pour être quantifiés par des pluviomètres ou des radars météorologiques. Sur l'ensemble d'une saison de brouillard, le dépôt occulte de radionucléides a représenté jusqu'à 25% des dépôts par temps secs et par temps de pluie. En cas de rejet accidentel, la présence de brouillard pourrait contribuer à hauteur de 14% du dépôt par temps sec. Ces résultats mettent en évidence la nécessité de prendre en compte ce processus de dépôt pour mieux quantifier les retombées radioactives sur des territoires en contact avec des brouillards ou des nuages (en ce qui concerne les sites d'altitudes), en particulier en situation post-accidentelle. Un schéma simple de type dépôt sec, considérant le diamètre médian des gouttelettes dérivé de la visibilité, permet à minima de mieux simuler le processus de dépôt par sédimentation des gouttelettes. Ces travaux restent à compléter pour quantifier la contribution de la turbulence induite par l'écoulement de l'air au voisinage des obstacles comme des végétaux de grandes tailles et incorporer un schéma spécifique dans les modèles de dépôt.**

Mots clés : Brouillard, dépôt, gouttelettes, radionucléides, vitesse de dépôt, méthode de pesée, végétaux, LWC, LAI, indice foliaire.