

N° d'Ordre : D.U. 2305

UNIVERSITE BLAISE PASCAL
U.F.R. Sciences et Technologies

ECOLE DOCTORALE DES SCIENCES FONDAMENTALES
N° 734

THESE

présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR D'UNIVERSITE

Spécialité : Physique de l'atmosphère

Par **QUÉREL Arnaud**

Master

LESSIVAGE DE L'ATMOSPHERE PAR LA PLUIE : APPROCHE MICROPHYSIQUE

Soutenue publiquement le 07 décembre 2012, devant la commission d'examen.

Président

Wolfram WOBROCK

Rapporteur

Gilles BERGAMETTI

Rapporteur

Denis BOULAUD

Examineur

Stephan BORRMANN

Encadrant

Pascal LEMAITRE

Encadrant

Marie MONIER

Encadrant

Emmanuel PORCHERON

Directrice de thèse

Andrea FLOSSMANN

Remerciements

Tout d'abord, je tiens à remercier tous les membres de mon jury. Mes rapporteurs, Denis Boulaud et Gilles Bergametti ainsi que mes examinateurs, Wolfram Wobrock et Stephan Borrmann. Ils ont tous eu la grande amabilité de s'exprimer très positivement sur ma thèse, et de venir de plus ou moins loin assister à ma soutenance, dans des conditions de transports parfois difficiles.

Quatre personnes ont particulièrement contribué à cette thèse tout au long des trois années, de par leur suivi, leur soutien et leurs suggestions pour l'améliorer. Ma directrice de thèse, Andrea Flossmann, qui sait partager sa compétence et son positivisme. Marie Monier qui a passé beaucoup de temps à m'apprendre la modélisation du lessivage avec énormément de patience. Emmanuel Porcheron qui a bien veillé sur moi durant ces trois années. Et enfin Pascal Lemaitre, qui m'a beaucoup appris et beaucoup poussé durant cette thèse, et durant le stage avant celle-ci. Sa confiance en moi et son accompagnement au quotidien ont énormément contribué à faire de ma thèse ce qu'elle est aujourd'hui. Je tiens à remercier ces quatre personnes pour leurs relectures, parfois nombreuses et pour la cohérence dans leurs points de vue. C'est aussi l'occasion de remercier messieurs les rapporteurs pour leurs remarques et avis sur ce mémoire.

Egalement, je souhaite remercier les huit membres de mon jury ainsi cités de m'avoir accordé le titre de docteur en physique de l'atmosphère, et pour toutes leurs questions et remarques pendant et après la soutenance.

Je tiens aussi à remercier mes deux stagiaires, Albin Gasparetto (merci d'être venu à la soutenance !) et Guillaume Bourgeois. Ils ont tous les deux été d'une participation précieuse pour mes expériences avec BERGAME, en plus d'avoir été de très sympathiques collègues.

Ensuite, je veux remercier tout particulièrement Amandine Nuboer, qui a passé énormément de temps à m'aider dans la réalisation des expériences, des premières commandes de matériel et pour les longues journées passées à collecter mes précieuses gouttes, toujours avec gentillesse. A Amandine, je veux également associer Olivier Norvez qui a supervisé et dirigé la construction de BERGAME. Je ne trouve pas le mot exact, mais je doute que cette expérience aurait été un succès s'il n'avait pas été là.

Enfin, un mot pour tous les collègues de Saclay qui ont eu l'occasion de m'aider à de plus ou moins nombreuses reprises, ou pire pour eux, à déjeuner avec moi. Mettre une liste complète serait rébarbatif, mettre un ordre serait injuste, mais je tiens tout de même à citer Pierre, Constantin, Anne-Laure, Thibault, Sébastien, Corinne, Nadia, Mathieu, Maud,... Et j'en oublie autant. Je remercie aussi bien sûr Laurent Bouilloux de m'avoir accueilli dans son laboratoire et Jean-Claude Laborde dans son service et de m'avoir autorisé ces quelques voyages à travers l'Europe et même le monde. Et pour finir, j'ai une pensée pour tous les thésards de Saclay, en plus de Pierre déjà cité, ceux qui ont terminé comme moi ou ceux encore dans le dur.

Et puisque j'en suis aux thésards, je remercie aussi tout ceux du LaMP, ils m'ont toujours très chaleureusement accueilli à Clermont-Ferrand. J'aimerais citer tout le monde, mais ce n'est pas possible. Seulement Laurent qui m'a hébergé la nuit où j'ai été sans domicile, Yohann pour son aide très précieuse pour la préparation du pot de thèse et son goût en bande dessinée, Maxime pour son aide là aussi très précieuse pour l'HTDMA et sa visite de l'observatoire du Puy-de-Dôme, Christelle et Elise présentes aux répétitions, et tous les autres merci pour votre accueil ! D'ailleurs je remercie aussi tous le personnel du LaMP, en particulier ceux qui m'ont accordé de leur temps, notamment en vue de la soutenance.

Un grand merci aussi à tous mes amis qui m'ont rendu la vie un peu plus agréable pendant ces trois années, François, Bertrand, Alexandra, Vincent, et pour finir Camille et Rémi qui ont bravé la neige pour venir boire un coup le jour de ma soutenance.

Et pour vraiment finir, je remercie toute ma famille d'être venue, Papa, Laura, et Maman. Elle a surmonté son incompréhension de la physique pour corriger une grande partie de mon orthographe !

SOMMAIRE

INTRODUCTION	3
CHAPITRE 1 AEROSOLS ATMOSPHERIQUES : DISPERSION ET EVOLUTION	7
1. Composition particulaire de l'atmosphère	7
1.1. <i>Distribution granulométrique des particules dans différents environnements</i>	7
1.2. <i>Processus contrôlant la composition granulométrique de l'atmosphère</i>	9
1.3. <i>Lessivage de l'atmosphère par la pluie sous le nuage</i>	10
2. Particules radioactives dans l'atmosphère	10
2.1. <i>Historique des pollutions d'aérosol radioactifs</i>	10
2.2. <i>Distribution granulométrique des particules radioactives</i>	11
3. Etudes de la dispersion et de l'évolution des panaches vis-à-vis des précipitations	12
3.1. <i>Modèle de Slinn</i>	15
3.2. <i>Mesures ponctuelles (approche eulérienne)</i>	16
3.3. <i>Approche lagrangienne</i>	16
CHAPITRE 2 MODELISATION DU LESSIVAGE DES PARTICULES ATMOSPHERIQUES PAR LA PLUIE	19
1. Description du modèle DESCAM.....	20
1.1. <i>Modèle cylindrique</i>	20
1.2. <i>Équations de la microphysique</i>	22
2. Processus de collecte des particules par les gouttes	24
3. Etude théorique de l'importance de l'impaction sous nuage	27
3.1. <i>Initialisation du modèle</i>	27
3.2. <i>Résultats</i>	30
3.3. <i>Sensibilité</i>	33
4. Conclusion : amélioration de la connaissance des efficacités de collecte	35
CHAPITRE 3 EXPERIENCE BERGAME	37
1. Objectifs et contraintes	37
2. Techniques pour obtenir des gouttes tombant à leurs vitesses limites de chute	37
2.1. <i>Choix du puits de chute</i>	37
2.2. <i>Optimisation de la hauteur du puits de chute</i>	38
2.3. <i>Validation expérimentale</i>	40

3. Génération des gouttes	42
3.1. Dispositif technique	42
3.2. Indications sur la performance du générateur de gouttes	44
3.3. Plan général de BERGAME	46
4. Choix de l'aérosol.....	47
4.1. Choix de la fluorescéine	47
4.2. Intensité de fluorescence et concentration massique	47
4.3. Hygroscopie des aérosols de fluorescéine.....	49
4.4. Influence du pH de la solution sur le rendement de fluorescence de la fluorescéine	53
5. Génération et confinement des aérosols	54
5.1. Objectifs à atteindre pour la concentration des particules	54
5.2. Génération des aérosols	57
5.3. Confinement des aérosols	59
6. Dispositif optique	61
6.1. Choix du dispositif	61
6.2. Montage optique.....	63
6.3. Traitement préparatoire à la PIV	70
6.4. Traitement et post-traitement PIV	71
6.5. Exploitation des données d'ombroscopie	73
7. Protocole expérimental	76
7.1. Introduction.....	76
7.2. Préparatifs.....	76
7.3. Mesure du diamètre des gouttes.....	76
7.4. Vérification du niveau de contamination de BERGAME	79
7.5. Collecte des gouttes	79
7.6. Arrêt de l'expérience.....	80
7.7. Mesures par fluorimétrie	80
CHAPITRE 4 RESULTATS EXPERIMENTAUX.....	83
1. Critères de sélection	84
2. Incertitudes et erreurs expérimentales	86
2.1. Incertitude sur le diamètre des gouttes	87
2.2. Incertitude sur la taille des aérosols	87
2.3. Incertitude sur l'efficacité de collecte due à la précision des mesures.....	89

2.4. Erreur due à la dispersion des tailles de particules dans l'estimation de l'efficacité de collecte	92
3. Analyse des résultats expérimentaux	95
3.1. Gamme explorée jusqu'à aujourd'hui	95
3.2. Influence de la taille des gouttes sur l'efficacité de collecte	96
3.3. Influence de l'humidité relative sur l'efficacité de collecte.....	97
3.4. Influence de la taille de l'aérosol sur l'efficacité de collecte	99
4. Paramétrage des efficacités de collecte mesurées	101
4.1. Confrontation des résultats expérimentaux au modèle de Slinn et à la base de données de DESCAM	101
4.2. Modifications apportées au modèle de Slinn et justifications expérimentales des hypothèses	102
CHAPITRE 5 APPLICATION A LA MODELISATION DU LESSIVAGE.....	115
1. Modifications apportées à la base de données d'efficacités de collecte	115
2. Description de l'expérience CCOPE.....	116
3. Application de DESCAM à l'expérience CCOPE	117
4. Résultats obtenues avec la base de données d'efficacité de collecte modifiée.....	122
4.1. Importance des nouvelles efficacités de collecte sur le rabattement.....	122
4.2. Taux de lessivage	124
4.3. Masse de particules dans l'atmosphère après une pluie	125
4.4. Importance relative de la subsidence par rapport au lessivage.....	126
4.5. Effets comparés de la collecte des aérosols et de la subsidence sur la distribution granulométrique des aérosols après une pluie.....	128
5. Conclusion	129
CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES	132
RÉFÉRENCES.....	136

Liste des tableaux

Tableau 1 : Intensité de la pluie avec la distribution de type Marshall et Palmer (1948) et différents coefficients de Uijlenhoet et Stricker (1999) pour une valeur de R de 10 mm/h	29
Tableau 2 : Efficacités de collecte de DESCAM et de la littérature	34
Tableau 3 : Pourcentage de la vitesse limite atteinte après 10 m de chute libre en fonction du diamètre des gouttes	39
Tableau 4 : Efficacité de collecte due à la diffusiophorèse en fonction de l'humidité relative	103
Tableau 5 : Les efficacités de collecte modifiées dans la matrice d'efficacité de collecte, pour une humidité relative de 50 %, entre parenthèses les anciennes valeurs	116

Liste des figures

Figure 1 : Distributions granulométriques de particules dans la troposphère (Hobbs, 1993)	8
Figure 2 : Distributions volumiques de particules dans la troposphère (Hobbs, 1993)	8
Figure 3 : Temps de résidence des particules dans l'atmosphère en fonction de leur taille (modèle de Jaenicke (Hobbs, 1993), figure extraite de Renoux et Boulaud (1998))	9
Figure 4 : Diagramme des mécanismes décrivant le rabattement des particules au sol	10
Figure 5 : Définition des échelles troposphériques (Malardel, 2009)	12
Figure 6 : Représentation schématique de la collecte d'une sphère par une autre	14
Figure 7 : Schéma du modèle cylindrique. Le cylindre intérieur représente le nuage, tandis que le cylindre extérieur représente l'environnement	21
Figure 8 : Diagramme des modèles microphysiques impliqués dans DESCAM	24
Figure 9 : Matrice des efficacités de collecte en fonction du diamètre des gouttes et des aérosols pour une humidité relative de 50 %	27
Figure 10 : Distribution massique des particules dans l'atmosphère à une altitude de 100 m pour différents temps	30
Figure 11 : Masse de particules soustrait de l'air en fonction de la taille des particules	31
Figure 12 : Nombre de particules enlevées de l'air en fonction de la taille des particules	31
Figure 13 : Distribution intégrée sur 1000 s de la masse de particules dans chaque classe de gouttes (en bleu) et distribution granulométrique de la pluie au sol (en vert)	32
Figure 14 : Zoom sur la zone d'étude retenue, superposée aux valeurs d'efficacité de collecte présentes dans le modèle DESCAM	33
Figure 15 : Masse de particules rabattues au sol en fonction du temps	35
Figure 16 : Vitesse de la goutte en fonction de sa hauteur de chute (Wang and Pruppacher, 1977a)	39
Figure 17 : Modélisation de forme de goutte (trait plein) par rapport à leur diamètre équivalent (pointillés) (Beard et al., 1989)	40
Figure 18 : Définition des axes de l'ellipse	40
Figure 19 : Comparaison des rapports d'axes obtenus dans BERGAME et à Mayence pour des gouttes de 4,5 mm	42
Figure 20 : A gauche le générateur de Lai <i>et al</i> (1978), à droite celui d'Andsager <i>et al</i> (1999)	43
Figure 21 : Exemple de distribution de gouttes	44
Figure 22 : Plan général de BERGAME	46
Figure 23 : Intensité de fluorescence mesurée en fonction de la concentration de fluorescéine	48

Figure 24 : Défaut de la régression linéaire	49
Figure 25 : Schéma de l'HTDMA du LaMP (Villani et al., 2008)	50
Figure 26 : Facteur de grossissement de la fluorescéine en fonction de l'humidité relative. Les diamètres des particules sont présentés en diamètre de mobilité électrique	52
Figure 27 : Dégradation de différentes molécules fluorescentes soumises à leur longueur d'onde excitatrice sous pH neutre (Invitrogen.com)	53
Figure 28 : Emission de la molécule de fluorescéine en fonction du pH (Invitrogen.com)	53
Figure 29 : Concentration minimale en fonction du diamètre des aérosols pour des efficacités de collecte de 10^{-5} (a) et 10^{-4} (b)	55
Figure 30 : Distribution granulométrique obtenue avec un générateur 2400 kHz et une concentration initiale de 60 g/l	58
Figure 31 : Schéma de disposition du confinement dynamique du haut de la cuve de BERGAME et des vitesses d'écoulement associées	60
Figure 32 : Comparaison des distributions des rapports d'axes avec et sans confinement (courant d'air latéral)	61
Figure 33 : Schéma de principe de l'ombroscopie	62
Figure 34 : Schéma global du dispositif optique autour de BERGAME	64
Figure 35 : Temps de déclenchement des différents appareils autour de la cuve de BERGAME	65
Figure 36 : Quatre images enregistrées autour d'une goutte. a et b sont les images obtenues en ombroscopie. c et d sont les images obtenues en PIV	67
Figure 37 : Exemple d'ombre projetée sans dispositif de rétro-éclairage	68
Figure 38 : Schéma du dispositif de rétro-éclairage	69
Figure 39 : Photographie du miroir placé dans la cuve de BERGAME, réfléchissant la nappe laser... ..	69
Figure 40 : Ombre projetée sans dispositif de rétro-éclairage (gauche) et avec dispositif (droite).. ..	70
Figure 41 : Les deux images préparées pour le calcul PIV	71
Figure 42 : Schéma représentant le traitement PIV (Willert and Gharib, 1991)	72
Figure 43 : Exemple d'écoulement d'air autour d'une goutte de 4,5 mm de diamètre, mesuré par la combinaison PIV/ombroscopie	73
Figure 44 : Exemple de rapport d'axes	75
Figure 45 : Distributions de gouttes pour une même aiguille constatées les 04 et 17 novembre 2011	77
Figure 46 : Statistique de la position horizontale des gouttes	78
Figure 47 : Figuration de l'hypothèse d'une granulométrie dépendante de la localisation	79
Figure 48 : Distribution brute des points expérimentaux	83
Figure 49 : Mesure d'efficacité de collecte après sélection (163 mesures expérimentales retenues) ..	86
Figure 50 : Ajustement de distribution de type log-normale sur une distribution granulométrique mesurée	88
Figure 51 : Efficacités de collecte mesurée expérimentalement, avec les écart-types des distributions granulométriques associées	89
Figure 52 : Incertitudes induite par le fluorimètre	90
Figure 53 : Incertitude relative en fonction du diamètre des particules pour chacune des expériences sélectionnées	92
Figure 54 : Evaluation du biais du à la poly-dispersion des particules	93
Figure 55 : Diagramme de la correction des distributions de particules	94

Figure 56 : Efficacités de collecte mesurées, avec les estimations de l'erreur due à la PSD associée	95
Figure 57 : Localisation des points de mesures d'efficacités de collecte dans la matrice de DESCAM	96
Figure 58 : Efficacités de collecte originales utilisées dans DESCAM et efficacités de collecte mesurées pour des gouttes de 2 mm et des gouttes de 2,6 mm	97
Figure 59 : Evolution de l'efficacité de collecte en fonction de l'humidité relative (Wang and Pruppacher, 1977b)	98
Figure 60 : Efficacité de collecte pour des gouttes de 2 mm en fonction de l'humidité relative de l'air	99
Figure 61 : Efficacité de collecte mesurée pour des gouttes autour de 2 mm de diamètre	100
Figure 62 : Efficacités de collecte expérimentales confrontées aux modèles de Slinn et aux données originales de DESCAM	102
Figure 63 : Modèle de Slinn et mesures expérimentales	104
Figure 64 : Modèle de Slinn modifié	105
Figure 65 : Moyenne des vitesses relatives dans l'axe de la goutte	106
Figure 66 : Estimation de la loi de décroissance de l'efficacité de collecte pour des particules de diamètre inférieur à 0,8 μm	108
Figure 67 : Les modèles de Slinn et de Beard comparés	109
Figure 68 : Estimation de la loi de décroissance de l'efficacité de collecte pour des particules de diamètre inférieur à 0,8 μm dans le modèle de Beard (1974)	110
Figure 69 : Présentation des neuf cartes de vitesses superposées pour des gouttes de 2 mm de diamètre	111
Figure 70 : Moyenne de neuf champs de vitesses pour une goutte de 2 mm de diamètre	111
Figure 71 : Ecoulement moyen autour de gouttes de 2 mm	112
Figure 72 : Lignes de courant calculées par Johnson et Patel (1999) autour d'une sphère rigide pour $Re = 300$	113
Figure 73 : Paramétrage de la pente descendante de l'efficacité de collecte par le nombre de Stokes	114
Figure 74 : Modèle semi-empirique décrivant l'efficacité de collecte pour des gouttes d'un diamètre de 2 mm	114
Figure 75 : Efficacités de collecte modifiées et les originales correspondantes	116
Figure 76 : Distribution spatio-temporelle des vents verticaux	118
Figure 77 : Distribution spatio-temporelle du contenu en eau liquide	118
Figure 78 : Distribution spatio-temporelle du contenu en aérosols de type 1	119
Figure 79 : Distribution spatio-temporelle du contenu en aérosol de type 1 dans les gouttes	119
Figure 80 : Contenu en glace	120
Figure 81 : Contenu en aérosols de type 2	121
Figure 82 : Contenu en aérosols de type 2 dans les gouttes	121
Figure 83 : Intensité (ligne pointillée, axe droit) et cumul de pluie (ligne continue, axe gauche)	122
Figure 84 : Masse de particules rabattues par les gouttes en fonction du temps	123
Figure 85 : Concentration massique de particules entre 100 m et 200 m et intensité de la pluie en fonction du temps	124
Figure 86 : Taux de lessivage de la masse de particules de type 2 en fonction du temps	125
Figure 87 : Spectres des particules avant et après la pluie	126

Figure 88 : Evolution des masses en suspension dans l'atmosphère avec et sans collecte	127
Figure 89 : Effets de la collecte sur la masse de particule restante dans l'atmosphère	128
Figure 90 : Distribution granulométrique des aérosols de type 1 et 2 après la pluie du cas CCOPE avec et sans activation du mécanisme de collecte des particules par les gouttes de pluie	129

Liste des symboles

Λ	Taux de rabattement (s^{-1})	E_{Impact}	Efficacité de collecte due aux effets d'impactions
μ_{air}	Viscosité dynamique de l'air ($kg.m^{-1}.s^{-1}$)	$E_{ImpactMod}$	Efficacité de collecte due au mode d'impaction modifié
μ_{wat}	Viscosité dynamique de l'eau ($kg.m^{-1}.s^{-1}$)	$E_{Interception}$	Efficacité de collecte due aux effets d'interceptions
ν_{air}	Viscosité cinématique de l'air ($m^2.s^{-1}$)	f_{AP}	Fonction de distribution de la concentration numérique des particules (m^{-4})
ρ	Masse volumique de l'air ($kg.m^{-3}$)	f_G	Fonction de distribution de la concentration numérique des gouttes (m^{-4})
ρ_{AP}	Masse volumique de la particule ($kg.m^{-3}$)	F_G	Facteur de grossissement des aérosols
ρ_{APsec}	Masse volumique de la particule sèche ($kg.m^{-3}$)	H	Hauteur sur laquelle la goutte rencontre des particules (m)
ρ_{eau}	Masse volumique de l'eau ($kg.m^{-3}$)	HR	Humidité relative
θ	Température potentielle de l'air	I	Intensité de la pluie ($mm.h^{-1}$)
c	Concentration numérique de l'aérosol (m^{-3})	K	Noyau de collecte (kernel)
Cu	Facteur de correction de Cunningham	m_{AP}	Masse d'une particule (kg)
C_{fvd}	Concentration de fluorescéine dans le volume de dilution du filtre ($kg.m^{-3}$)	m_{APsec}	Masse d'une particule sèche (kg)
C_{Gfluo}	Concentration de fluorescéine dans la goutte ($kg.m^{-3}$)	$m_{captée}$	Masse de particules captée par la goutte (kg)
C_m	Concentration massique de particules dans l'air ($kg.m^{-3}$)	m_{eau}	Masse d'eau dans une particule (kg)
C_{mfluo}	Concentration massique de l'aérosol de fluorescéine ($kg.m^{-3}$)	$m_{rencontrée}$	Masse de particules présente dans le volume défini par la goutte au cours de sa chute (kg)
d_{AP}	Diamètre de l'aérosol (m)	N	Concentration numérique des aérosols (m^{-3})
d_{APsec}	Diamètre qu'aurait la particule sans eau (m)	N_{Coll}	Nombre de particules collectées par la goutte
D_{eq}	Diamètre équivalent à une sphère de même volume de la goutte	N_{Renc}	Nombre de particules rencontrées par la goutte
D_G	Diamètre de la goutte (m)	p	Pression de l'air (Pa)
E	Efficacité de collecte des aérosols	Pe	Nombre de Peclet
E_{Diffu}	Efficacité de collecte due aux effets diffusionnels		

$Q_{air-filtre}$	Débit volumique de filtration ($m^3.s^{-1}$)
q_v	Contenu en vapeur dans l'air
Re	Nombre de Reynolds
Sc	Nombre de Schmidt
St	Nombre de Stokes
$T_{1/2}$	Temps de demi-vie d'un élément radioactif
U_{∞}	Vitesse limite de chute de la goutte ($m.s^{-1}$)
$U_{Sillage}$	Vitesse moyenne de l'air dans le sillage de la goutte dans le référentiel de la goutte ($m.s^{-1}$)
\tilde{u}	Vitesse radiale à l'interface des deux cylindres du modèle DESCAM 1D ($m.s^{-1}$)
$V_{Balayé}$	Volume balayé par la goutte au cours de sa chute (m^3)
V_{kernel}	Volume du kernel (m^3)
w	Vitesse verticale de la parcelle d'air ($m.s^{-1}$)
w_e	Vitesse verticale de la parcelle d'air dans le cylindre extérieur du modèle DESCAM 1D ($m.s^{-1}$)

INTRODUCTION

L'atmosphère n'est pas constituée que de gaz et d'eau sous toutes ses formes, elle contient également de gigantesques masses de particules en suspension (autrement appelées particules d'aérosol atmosphériques). Ainsi, la masse de particules mises en suspension dans l'atmosphère chaque année est de l'ordre de grandeur de trois milliards de tonnes (Hobbs, 1993).

Ces particules sont transportées le long des courants atmosphériques, jusqu'au moment où elles retombent au sol (ou en mer), servent de noyaux de nucléation pour la formation des nuages ou sont collectées par ces derniers.

La connaissance du comportement des particules atmosphériques est essentielle à la compréhension de la physique de l'atmosphère. Ainsi, les particules d'aérosols atmosphériques ont une importance primordiale pour la formation des nuages, et jouent donc un rôle fondamental pour la formation des précipitations. Le bilan radiatif des particules est également essentiel, de par leur nature physico-chimique même (effet direct), mais aussi de par leur capacité à former des gouttes de nuages (effet indirect). Les particules présentes dans l'atmosphère agissent également sur la chimie atmosphérique, et ont un rôle dans l'évolution de la capacité oxydante de l'atmosphère.

Les aérosols ne jouent pas seulement un rôle dans l'atmosphère. En étant respirés par les humains, dans certain cas, ils peuvent être dangereux pour la santé humaine, et tout particulièrement les aérosols d'origine anthropique, généralement de plus petite taille. Les aérosols d'origine anthropique peuvent aussi être impliqués dans les modifications du climat, en particulier lorsque les suies, issue des combustions incomplètes, sont transportées et déposées sur les glaciers et les calottes glaciaires, changeant alors l'albédo de ces surfaces et favorisant leur fonte. En somme, la compréhension du cycle des particules est une composante essentielle de la météorologie, de la climatologie et de la santé publique.

Parmi les aérosols d'origine anthropique, les aérosols radioactifs sont une préoccupation majeure pour la santé publique et l'environnement que ce soit par le danger d'inhalation (Ansolobro and Stather, 2000) ou par la contamination de l'eau et de la nourriture consécutive à la retombée de ces particules radioactives. Et, l'histoire a montré au cours des trente dernières années qu'un accident majeur dans une installation nucléaire n'est jamais à exclure. Ce type d'accident pouvant impliquer une libération massive de particules radioactives dans l'atmosphère, il est nécessaire pour la sûreté nucléaire de comprendre au mieux la physique impliquée autour du cycle des particules, afin de pouvoir prévoir et évaluer le plus précisément possible le devenir de ces aérosols dans l'atmosphère, ainsi que la localisation et la quantification de leurs retombées sur les sols.

En plus des mesures *in-situ* qui vont permettre de délimiter le dépôt des particules radioactives, il serait préférable de pouvoir anticiper les zones pouvant être contaminées, ainsi que leur niveau de contamination, avant l'arrivée du panache radioactif. Ou au moins d'estimer la contamination des sols dans un temps très court suivant le passage du panache radioactif.

Le cas le plus notable en France d'une contamination radioactive de l'atmosphère était l'accident de Tchernobyl en 1986. Les premières cartes de prévention alors éditées n'ont pas été en mesure de prévoir correctement la contamination des sols (Renaud, 2008). La principale raison de cet échec venait de la sous-évaluation du rôle déterminant des précipitations pour la contamination des sols. En effet, les mesures effectuées après le passage du panache radioactif ont confirmé une très forte corrélation entre le cumul des pluies, la présence du panache et la contamination des sols.

C'est ainsi que le lessivage de l'atmosphère par la pluie est apparu comme une composante fondamentale de la pollution des sols par des particules radioactives présentes dans l'atmosphère. La gamme de 10 % à 90 % des contaminations dues au lessivage a été avancée (Penner and Molenkamp, 1989). On appelle le lessivage de l'atmosphère l'ensemble des phénomènes physiques responsables de la capture des particules atmosphériques par les hydrométéores, conduisant ainsi à une diminution de la concentration de particules en suspension dans l'atmosphère et à une contamination du sol. Le terme de rabattement des particules est également utilisé.

Dans l'optique d'améliorer la prévision des zones de contamination des sols par des précipitations, l'interaction entre les particules radioactives et les systèmes nuageux précipitants est donc un processus clef à comprendre et à quantifier.

Dans ce but, l'IRSN développe un ensemble de travaux pour mieux comprendre le lessivage de l'atmosphère par la pluie et pour améliorer sa modélisation du lessivage dans les codes de calculs de dispersion et de rabattement des radionucléides (e.q. la thèse de Lauréline Bourcier (Bourcier, 2009) et la thèse de Guillaume Depuydt (IRSN/PRP-ENV/SESURE/LERCM) centrés sur les mesures environnementales du lessivage ou l'étude semi-analytique dans l'enceinte TOSQAN (Lemaitre et al., 2009)).

Les travaux qui font l'objet de cette thèse se concentrent sur un des aspects de la physique du cycle des particules atmosphériques. L'objectif est d'étudier plus particulièrement les mécanismes impliqués dans le lessivage de l'atmosphère par la pluie sous le nuage dans le but d'améliorer la compréhension et la modélisation de ce lessivage. Une modélisation fiable de ce phénomène physique pourrait alors améliorer notre connaissance du cycle des aérosols atmosphériques, et ainsi de comprendre puis de prévenir au mieux les conséquences d'une libération de radioéléments dans l'atmosphère.

La première étape fait le point sur les connaissances actuelles liées au lessivage des radioéléments : de la granulométrie des particules émises lors d'un accident nucléaire aux connaissances actuelles sur le lessivage. Un intérêt particulier est porté sur les efficacités de collecte qui déterminent la capture des particules par les gouttes.

Ensuite, dans le deuxième chapitre, le modèle DESCAM (Flossmann and Wobrock, 2010), qui sera utilisé pour notre étude théorique du rabatement des particules, est présenté.

Le troisième chapitre décrit l'expérience BERGAME qui a été construite dans le but d'améliorer notre connaissance des efficacités de collecte des particules par les gouttes, devenue nécessaire pour le calcul du lessivage dans DESCAM. L'expérience et son protocole de qualification et d'utilisation sont justifiés pour répondre au mieux aux mesures des grandeurs physiques exigées par l'amélioration du modèle.

Puis, le quatrième chapitre décrit les résultats obtenus avec BERGAME, explique les incertitudes expérimentales, et tente de justifier physiquement les mesures obtenues.

Enfin, dans la cinquième partie, les mesures expérimentales de l'efficacité de collecte sont implémentées dans le modèle DESCAM. Le cadre de la modélisation théorique est le cas réel d'un nuage convectif observé lors de l'expérience CCOPE (Dye et al., 1986). Cette nouvelle modélisation permet d'obtenir des changements significatifs du calcul du rabatement des aérosols atmosphériques. Cette modélisation permet également de mettre en avant des mécanismes entraînant la variation des concentrations de particules atmosphériques autres que la collecte par les gouttes de pluie.

CHAPITRE 1

AÉROSOLS ATMOSPHÉRIQUES : DISPERSION ET ÉVOLUTION

1. Composition particulaire de l'atmosphère

Au niveau du sol, l'atmosphère contient en moyenne un millier de particules par centimètre cube. Cette concentration et la composition physico-chimique de ces éléments dépendent très largement du milieu et des conditions météorologiques, mais certaines tendances générales se dégagent concernant la distribution granulométrique des particules d'aérosols atmosphériques.

1.1. Distribution granulométrique des particules dans différents environnements

Plusieurs définitions d'une distribution granulométrique typique de particules naturelles en fonction de la masse d'air ont été proposées. Une des plus reconnues est celle proposée par Jaenicke (Hobbs, 1993). Les distributions d'aérosols y sont modélisées par des sommes de distributions log-normales appelées modes.

La Figure 1 représente les distributions granulométriques des particules dans la troposphère pour différents environnements, d'après Jaenicke (Hobbs, 1993). La distribution des particules est très variable suivant l'environnement. Mais malgré cette variabilité, dans tous les cas le plus grand nombre de particules est observés pour des particules d'un diamètre entre 0,01 et 10 μm . La distribution en volume (donc proportionnelle à la masse, si les particules atmosphériques possèdent en moyenne la même masse volumique quel que soit leur taille) montre plutôt une distribution comprise entre 0,1 et 10-20 μm (Figure 2). La radioactivité au sol étant plutôt proportionnelle à la masse de particules (strictement proportionnelle si la distribution des radioéléments reste uniforme), ce sont plutôt les distributions massiques qui représentent mieux son importance.

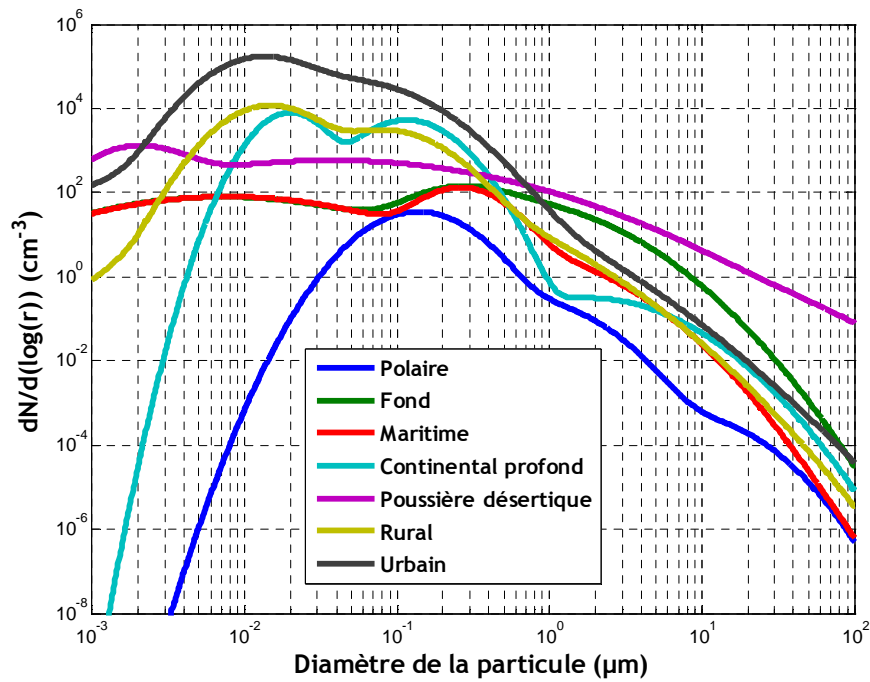


Figure 1 : Distributions granulométriques de particules dans la troposphère (Hobbs, 1993)

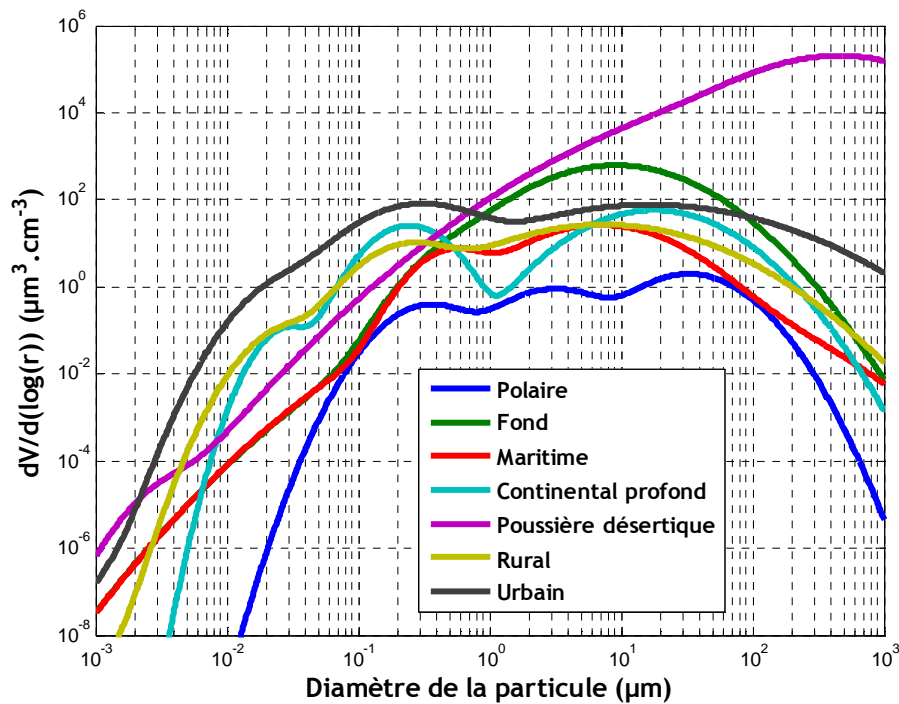


Figure 2 : Distributions volumiques de particules dans la troposphère (Hobbs, 1993)

Les particules sont générées suivant une grande variété de processus. Par exemple l'arrachement de gouttelettes par le vent à la surface des océans (ces gouttelettes en s'évaporant vont créer des particules plutôt composées de sel NaCl), le soulèvement de poussières par le vent, l'émission des pollens par les végétaux, ou encore la pollution particulaire due aux moteurs à combustion. Des particules sont également formées par une co-condensation de gaz naturels et/ou anthropogéniques.

Ces distributions relativement proches s'expliquent par la présence de mécanismes de sélection des particules par leur taille quelle que soit la nature des particules. C'est-à-dire que le temps de vie des particules dans l'atmosphère est essentiellement conduit par la taille des particules, plutôt que par leur nature physico-chimique.

1.2. Processus contrôlant la composition granulométrique de l'atmosphère

Quel que soit le mode de génération, les particules d'un diamètre inférieur à 0,1 μm vont avoir tendance à s'agréger et les particules d'un diamètre supérieur à 10 μm vont avoir tendance à sédimenter. Dû à son temps de vie, l'aérosol atmosphérique va adopter une distribution granulométrique principalement située entre 0,1 et 10 μm , avec des variations locales qui seront dûes au terme source.

La Figure 3 représente le temps de résidence des aérosols atmosphériques dans l'atmosphère en fonction de leur taille. Cette courbe permet d'identifier les tailles de particules les plus abondantes et les plus susceptibles d'être lessivées au cours d'une pluie.

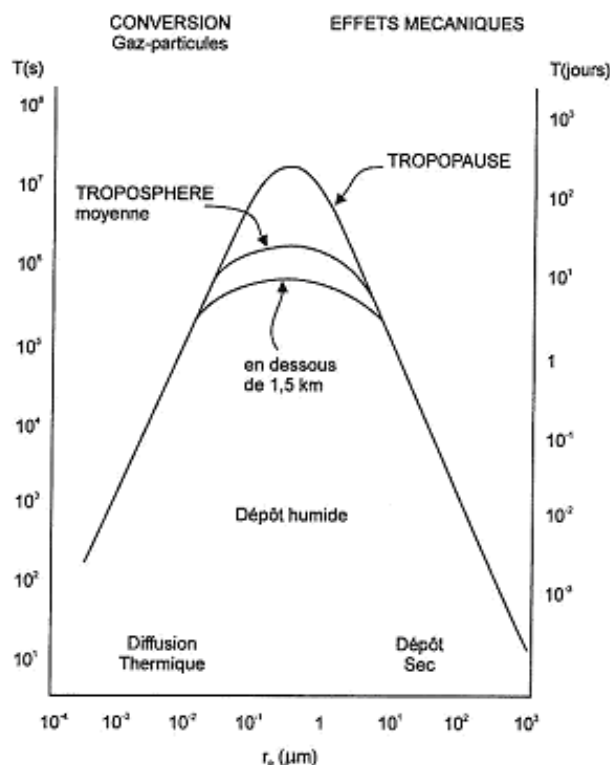


Figure 3 : Temps de résidence des particules dans l'atmosphère en fonction de leur taille (modèle de Jaenicke (Hobbs, 1993), figure extraite de Renoux et Boulaud (1998))

Ainsi, la voie principale de disparition pour les particules d'un diamètre compris entre 0,1 et 10 μm est le lessivage par les précipitations.

1.3. Lessivage de l'atmosphère par la pluie sous le nuage

Le diagramme de la Figure 4 rappelle tous les mécanismes de dépôts, et représente la position du lessivage par la pluie parmi tous les mécanismes de dépôts des particules. Le rabattement des aérosols atmosphériques est possible suivant deux voies distinctes : d'une part le dépôt sec, et d'autre part le dépôt humide.

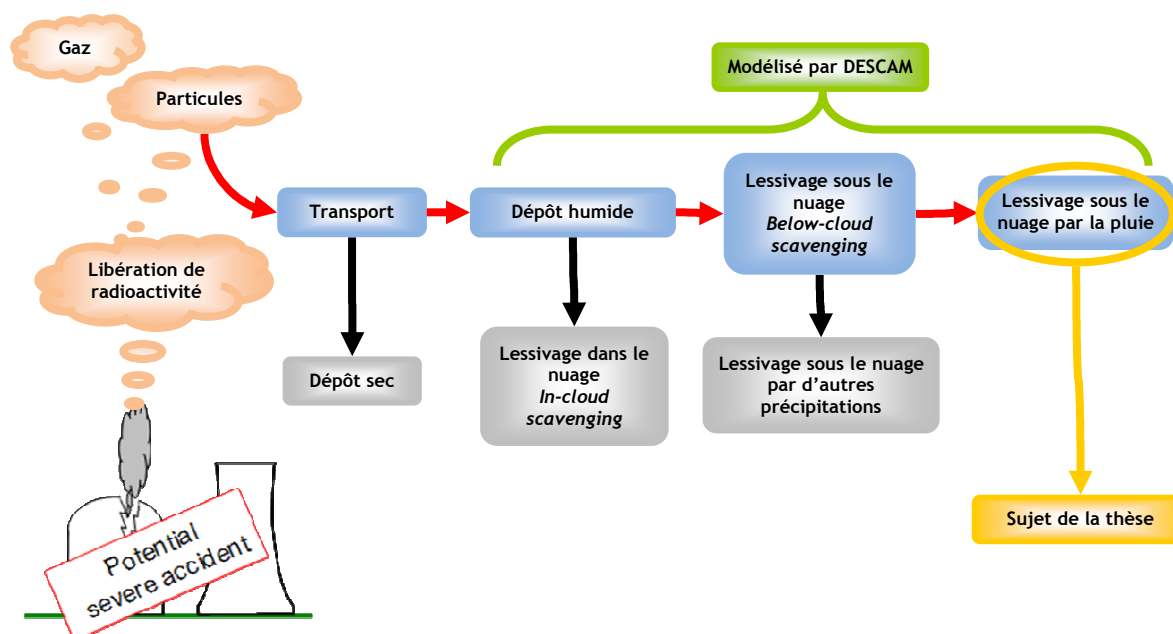


Figure 4 : Diagramme des mécanismes décrivant le rabattement des particules au sol

Le dépôt humide recoupe deux phénomènes météorologiques. Il est distingué d'un côté par les mécanismes de collecte des particules dans le nuage (*in-cloud scavenging*) et de l'autre côté par les mécanismes de collecte des particules sous le nuage (*washout*). Flossmann (1998) évalue que pour une goutte atteignant le sol, environ 70 % de la masse de particules qu'elle contient provienne du nuage, laissant 30 % de la masse rabattue au lessivage par la pluie sous le nuage.

Le lessivage par les précipitations inclue de nombreuses composantes (pluie, mais aussi neige, bruine, grêle, etc. (Malardel, 2009)) et il serait très ambitieux de vouloir toutes les étudier en même temps. C'est pourquoi dans cette thèse nous nous intéressons d'abord à la précipitation la plus courante sous nos latitudes (la pluie) et seulement pour sa contribution sous le nuage.

2. Particules radioactives dans l'atmosphère

2.1. Historique des pollutions d'aérosol radioactifs

Tchernobyl et Fukushima, deux des trois plus graves accidents de l'histoire du nucléaire civil, ont eu pour conséquence une libération massive de particules radioactives dans

l'atmosphère. En plus de ces deux épisodes très médiatisés des émissions détectables à longues distances ont aussi été causés par l'accident d'Algeciras en 1998 (Baklanov and Sørensen, 2001), l'explosion du sous-marin expérimental soviétique dans la baie de Chazma (ou Chazhma) en 1985 (Yu et al., 1994) ou les essais nucléaires atmosphériques dans les années 1960.

2.2. Distribution granulométrique des particules radioactives

Malgré les différences entre les accidents, certaines similitudes concernant la granulométrie des particules émises lors d'un accident nucléaire existent.

D'après Masson et al. (2011), pour l'accident de Fukushima, le Xénon-133 ($T_{1/2} = 5,2$ j) était le principal contributeur des émissions radioactives dans l'atmosphère. Mais le ^{133}Xe est sous forme gazeuse et reste sous cette forme à cause d'une affinité chimique très faible avec les aérosols atmosphériques. L'iode-131 ($T_{1/2} = 8$ j), bien qu'émis sous forme gazeuse, se fixe en partie sur les aérosols atmosphériques (Garland, 1967). Les césium-134 ($T_{1/2} = 2$ ans) et 137 ($T_{1/2} = 30$ ans) sont également émis directement sous forme particulaire.

Dans le cas de l'accident de Chernobyl, la granulométrie des particules d'aérosol fut caractérisée par Dorrian (1997) et Baklanov et Sørensen (2001), leur dispersion par Pöllänen *et al* (1997). Leurs études montrent que les aérosols de taille supérieure à $10\ \mu\text{m}$ sont restés dans un rayon de 100 km autour de la centrale, tandis que les aérosols entre $0,01\ \mu\text{m}$ et $10\ \mu\text{m}$ ont pu se disperser sur de longues distances.

En résumé, la compréhension du lessivage des particules atmosphériques entre $0,1$ et $10\ \mu\text{m}$ par la pluie est essentielle pour l'estimation de la contamination des sols résultant d'un rejet accidentel :

- les particules dont la taille se situe entre $0,1$ et $10\ \mu\text{m}$ sont celles qui sont transportées sur les plus grandes distances et qui restent le plus longtemps en suspension dans l'atmosphère,
- les particules radioactives créées lors d'un rejet de radionucléides dans l'atmosphère vont adopter, loin de leurs sources d'émission, la distribution granulométrique typique des particules atmosphériques,
- ces particules radioactives qui ont pu être transportées loin des sources vont être principalement rabattues au sol par les phénomènes de lessivages ou de dépôts secs.

3. Etudes de la dispersion et de l'évolution des panaches vis-à-vis des précipitations

Le lessivage de l'atmosphère est modélisé le plus simplement comme une décroissance de la concentration de particules de l'atmosphère en fonction du temps à cause des seuls effets de collecte des particules par les gouttes (Équation 1).

La plus commune des définitions mathématiques du phénomène est de représenter ce lessivage par un taux de rabattement (Λ en s^{-1}). Ce taux rend compte de la fraction de particules qui sont captées par les gouttes à chaque seconde. Ce taux de rabattement est appelé *below-cloud coefficient* ou *washout coefficient* en anglais. Ce terme est défini mathématiquement comme :

$$\text{Équation 1} \quad \frac{dc}{dt} = -\Lambda c(t)_{collecte}$$

Où c est la concentration de l'aérosol en nombre de particules par cm^3 .

Cette définition du taux de rabattement se retrouve par exemple dans les publications suivantes : (Kerker and Hampl, 1974; Volken and Schumann, 1993; Baklanov and Sørensen, 2001; Chate et al., 2003; Sportisse, 2007).

Une solution souvent utilisée pour comprendre les évolutions du taux de rabattement est de le paramétrer en fonction de l'intensité des précipitations (en mm/h) et du diamètre des particules d'aérosol (Laakso, 2003).

En effet, cette étude du lessivage *via* le taux de rabattement est une étude à l'échelle moyenne. Pour accéder à une meilleure estimation de l'efficacité de collecte, il faut s'intéresser à une échelle inférieure, l'échelle microphysique (Figure 5).

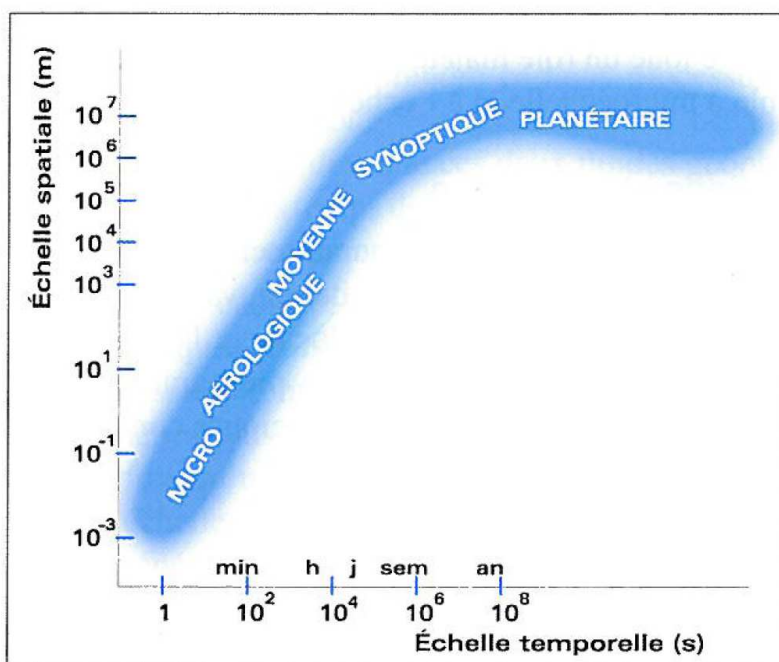


Figure 5 : Définition des échelles troposphériques (Malardel, 2009)

Théoriquement, ce taux de rabatement peut être calculé à partir des distributions granulométriques des gouttes de pluie et des aérosols et d'un paramètre nommé efficacité de collecte (notée $E(D_G, d_{AP})$ dans l'Équation 2).

Le taux de rabatement s'écrit alors de la manière suivante :

$$\text{Équation 2} \quad \Lambda(d_{AP}) = \int_{D_G=0}^{\infty} \frac{\pi}{4} D_G^2 U_{\infty}(D_G) E(D_G, d_{AP}) f_G(D_G) dD_G$$

Où D_G est le diamètre équivalent en volume des gouttes de pluie, $U_{\infty}(D_G)$ est la vitesse limite de chute d'une goutte de diamètre D_G et d_{AP} est le diamètre de l'aérosol étudié. $f_G(D_G)dD_G$ est la concentration numérique des gouttes de diamètre compris entre D_G et $D_G + dD_G$.

L'efficacité de collecte (Pruppacher and Klett, 1997), $E(D_G, d_{AP})$, est le rapport de la masse $m_{captée}$ d'aérosols (de diamètre d_{AP}) capturée par la goutte, de diamètre D_G , sur la masse $m_{rencontrée}$ d'aérosols présente dans le volume traversé par la goutte. L'hypothèse faite est que ce volume est le produit de la hauteur de chute de la goutte par la surface du disque de diamètre égal au diamètre équivalent à une sphère. L'efficacité de collecte est également fonction de l'humidité relative HR .

$$\text{Équation 3} \quad E(d_{AP}, D_G, HR) = \frac{m_{captée}(d_{AP}, D_G, HR)}{m_{rencontrée}(d_{AP}, D_G, HR)}$$

L'efficacité de collecte peut-être aussi décrite non pas comme un rapport de masse, mais aussi comme le rapport entre le nombre de particules collectées sur le nombre de particules rencontrées.

L'efficacité de collecte peut également s'exprimer comme étant le rapport entre le volume dans lequel seraient captées toutes les particules (*kernel*) et le volume traversé par la goutte. Néanmoins, toutes ces définitions sont équivalentes (voir Équation 4).

$$\begin{aligned} \text{Équation 4} \quad E(d_{AP}, D_G, HR) &= \frac{m_{captée}(d_{AP}, D_G, HR)}{m_{rencontrée}(d_{AP}, D_G, HR)} = \frac{\rho_{AP} N_{coll}(d_{AP}, D_G, HR)}{\rho_{AP} N_{renc}(d_{AP}, D_G, HR)} \\ &= \frac{N_{coll}(d_{AP}, D_G, HR)}{N_{renc}(d_{AP}, D_G, HR)} = \frac{V_{Kernel} f_G(d_{AP})}{V_{Balayé} f_G(d_{AP})} \\ &= \frac{V_{Kernel}}{V_{Balayé}} \end{aligned}$$

Pour Pruppacher et Klett (1997), l'efficacité est définie comme le rapport entre :

- la section πy_c^2 loin de la goutte qui comprend la trajectoire de toutes les particules qui vont être collectées par la goutte. Et inversement, toutes les particules dont la trajectoire passe par cette section vont être collectées par la goutte (voir Figure 6),
- et la surface πa_1^2 , la section projetée de la goutte en direction de sa chute (voir Figure 6).

D'où une efficacité de collecte définie comme :

$$\text{Équation 5} \quad E(d_{AP}, D_G, HR) = \frac{y_c^2}{(a_1 + a_2)^2}$$

Cette définition de l'efficacité de collecte est équivalente à la définition en rapport de volume, en cela qu'il suffit de multiplier les surfaces πy_c^2 et πa_1^2 par la hauteur de chute pour retrouver respectivement volume *kernel* V_{Kernel} et le volume balayé $V_{Balayé}$. Et donc, la définition de l'efficacité de collecte fournie par l'Équation 5 est équivalente à celle fournie par l'Équation 3.

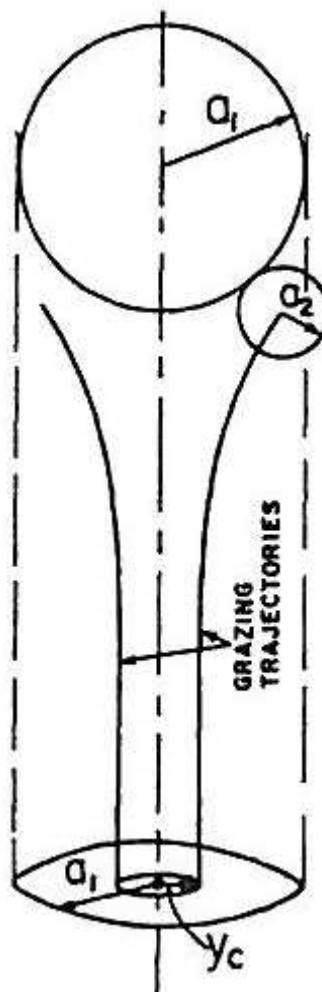


Figure 6 : Représentation schématique de la collecte d'une sphère par une autre

Tous les paramètres de l'Équation 2 peuvent être connus pour une application immédiate à un cas atmosphérique. Seule l'efficacité de collecte reste un paramètre à acquérir pour tous les couples de taille de gouttes et de taille d'aérosols.

3.1. Modèle de Slinn

Couramment, c'est le modèle de Slinn (1977) qui est le plus utilisé pour déterminer les efficacités de collecte des particules par les gouttes (Baklanov and Sørensen, 2001; Laakso, 2003).

Le modèle de Slinn considère l'efficacité de collecte comme la somme des effets diffusionnels (E_{Diffu}), d'interception (E_{Inter}) et d'impaction (E_{Impact}).

Slinn choisit les modèles semi-empiriques suivants pour chacun des trois mécanismes de collecte.

$$\text{Équation 6} \quad E_{Diffu} = \frac{4}{Pe} \left(1 + 0,4 Re^{\frac{1}{2}} Sc^{\frac{1}{3}} \right)$$

$$\text{Équation 7} \quad E_{Inter} = 4 \frac{d_{AP}}{D_G} \left(\frac{d_{AP}}{D_G} + \frac{1 + 2 \frac{\mu_{wat}}{\mu_{air}} \frac{d_{AP}}{D_G}}{1 + \frac{\mu_{wat}}{\mu_{air}} Re^{\frac{1}{2}}} \right)$$

$$\text{Équation 8} \quad E_{Impact} = \left(\frac{St - St^*}{\frac{2}{3} + St - St^*} \right)^{\frac{3}{2}}$$

Avec $St^* = \frac{1,2 + \frac{1}{12} \ln(1 + Re)}{1 + \ln(1 + Re)}$, μ_{wat} et μ_{air} les viscosités dynamiques de l'eau et de l'air.

Dans ces expressions on trouve les nombre de Reynolds (Re) et de Schmidt (Sc). Le nombre de Reynolds est un nombre adimensionnel qui caractérise le rapport entre les forces d'inertie et les effets de viscosité. Ce nombre est généralement utilisé pour déterminer le régime d'écoulement.

$$\text{Équation 9} \quad Re = \frac{D_G U_{\infty}(D_G)}{v_{air}}$$

Le nombre de Schmidt est aussi un nombre adimensionnel. Il caractérise le rapport entre la viscosité cinématique et diffusivité des particules dans l'air.

$$\text{Équation 10} \quad Sc = \frac{v_{air}}{D_{AP}}$$

Le coefficient de diffusion des particules D_{AP} est corrigé à l'aide du facteur de Cunningham. Le nombre de Peclet $Pe = Re Sc$ permet la comparaison de la vitesse de convection et de la

vitesse de diffusion. Le nombre de Stokes $St = \frac{\rho_{AP} d_{AP}^2 U_{\infty} (D_G) C_u}{9 \mu_{air} D_G}$ décrit la capacité qu'a

une particule à suivre les lignes de courants. Le nombre St^* est lui un nombre adimensionnel déterminé de manière empirique, et fonction du nombre de Reynolds.

A l'aide de la modélisation de l'efficacité de collecte, et l'Équation 2, il devrait donc être possible de calculer le taux de lessivage de l'atmosphère pendant une pluie. Mais il s'avère que les taux de lessivage mesurés dans la nature diffèrent des taux prédits par le modèle de Slinn avec un écart de plusieurs ordres de grandeurs (Davenport and Peters, 1978; Volken and Schumann, 1993; Laakso, 2003). Ce problème sera étudié dans les chapitres suivants.

3.2. Mesures ponctuelles (approche eulérienne)

Dans certaines publications expérimentales (Kerker and Hampl, 1974; Slinn, 1977; Radke et al., 1980; Slinn and Slinn, 1980; Volken and Schumann, 1993; Pranesha and Kamra, 1996a, 1997; Laakso, 2003; Chate and Pranesha, 2004; Duhanyan and Roustan, 2011) le lessivage par les précipitations est directement justifié comme équivalent à la diminution de la concentration de particules pendant un épisode de précipitations.

Cette approche expérimentale soulève un problème car elle occulte le phénomène de l'advection de l'air chargé avec des concentrations en particules différentes. Notamment dans le cas d'une pluie orageuse, où la subsidence (en météorologie, la subsidence est le déplacement d'air vers le sol) associée aux précipitations est très significative, ce qui transporte un air moins chargé en particules depuis des altitudes plus élevées. Ce transport se surimpose au processus pur de collecte, ne permettant pas d'attribuer la diminution de la concentration de particules au seul processus de lessivage.

3.3. Approche lagrangienne

Il a été évoqué ci-dessus que les mesures environnementales des taux de lessivages sont extrêmement délicates et sont difficiles à analyser à cause des phénomènes météorologiques non maîtrisables mais qui interviennent pourtant dans la variation de la concentration des aérosols en un point donné pour un observateur au sol. Ainsi, la mesure brute du taux de rabattement pour un point fixe de prélèvement atmosphérique est extrêmement difficile à interpréter (Flossmann and Wobrock, 2010).

La modélisation globale (Slinn, 1977; Slinn and Slinn, 1980) ne peut rendre compte correctement des mécanismes du rabattement de particules à cause de leur échelle

temporelle. Celle-ci est trop longue pour rendre compte des phénomènes météorologiques se déroulant pendant une pluie.

Comme solution, on propose de modéliser la pluie en tenant compte de tous les phénomènes se déroulant à l'échelle microphysique, ceci à une échelle temporelle raccourcie. En plus des paramètres tels que, la distribution granulométrique initiale des particules en un point, la distribution granulométrique des gouttes et de l'efficacité de collecte, il faut également tenir compte de l'hygroscopicité des aérosols, de l'activation et de la désactivation des particules, du séchage des gouttes (au cours de leur chute, les gouttes s'évaporent si l'humidité relative est trop basse, créant ainsi de nouvelles particules solides), et bien sûr l'advection des gouttes et des particules.

Pour modéliser tous ces mécanismes microphysiques, il faut donc également disposer d'un modèle qui calcule à chaque pas de temps et pour chaque maille les grandeurs thermodynamiques que sont la pression, la température et l'humidité relative.

CHAPITRE 2

MODÉLISATION DU LESSIVAGE DES PARTICULES ATMOSPHÉRIQUES PAR LA PLUIE

La modélisation est une étape essentielle pour comprendre tous les mécanismes autour du lessivage par la pluie des particules atmosphériques. Le lessivage se passe en partie sous le nuage, et c'est le nuage qui va gouverner l'évolution temporelle et spatiale de la pluie. L'utilisation d'un modèle de nuage va nous permettre une étude théorique plus complète du rabattement des particules d'aérosol par la pluie. Une des caractéristiques d'un modèle est son échelle spatiale, et comme nous étudions ici un processus précis, nous avons choisi d'utiliser un modèle à l'échelle du nuage.

La modélisation comprend à la fois un aspect dynamique et un aspect microphysique. Ces deux aspects sont intimement couplés et doivent être bien étudiés pour réaliser une modélisation représentative des phénomènes observés dans la nature et permettre leurs compréhensions.

Il existe plusieurs cadres dynamiques habituellement utilisés qui se différencient surtout selon le nombre de dimensions spatiales qu'ils utilisent : parcelle d'air, 1D½, 2D ou 3D.

En idéalisant le fait que le rabattement est un ensemble de mécanismes se déroulant seulement sur une colonne verticale, et en considérant l'énorme gain de temps de calcul réalisé en négligeant deux dimensions, une dynamique 1,5D est suffisante en première approche pour l'étude du lessivage de l'atmosphère par la pluie. Avec ce modèle moins précis spatialement mais plus rapide, un grand nombre de cas de sensibilités seront testés.

De même, les modèles microphysiques ont différents degrés de complexité : paramétrée, volumique ou détaillée. La modélisation de la microphysique peut se faire alors suivant trois approches de complexité différentes : les modèles paramétrés, les modèles à plusieurs moments (appelés aussi à *bulk*, ou volumique) et les modèles détaillés (nommés également modèles spectraux, par classe ou à *bin*). Les modèles paramétrés ne caractérisent que des variables très générales pour décrire la microphysique du nuage, par exemple le contenu en eau précipitante et en eau nuageuse. Ce sont alors des modèles 1-moment qui ne pronostiquent que le troisième moment de la distribution pour chaque hydrométéore : eau nuageuse, eau de pluie, cristaux de glace, neige. Les modèles à deux moments peuvent pronostiquer par exemple à la fois le premier et le troisième moment : le nombre et la masse des hydrométéores. Les modèles détaillés ne possèdent pas de forme prescrite de leurs spectres, ceux-ci sont discrétisés en classes de tailles, permettant une meilleure modélisation des phénomènes microphysiques en suivant le nombre des hydrométéores dans chaque classe de taille. DESCAM (DEtailed SCAvenging Model) est un modèle de microphysique détaillé.

Lessivage de l'atmosphère par la pluie : Approche microphysique

Chapitre 2

Modélisation du lessivage des particules atmosphériques par la pluie

Le but de ce travail est d'étudier précisément quel est l'impact d'une description améliorée des efficacités de collecte sur le lessivage des particules atmosphériques, le traitement détaillé de la microphysique étant primordial, nous avons donc choisi le modèle DESCAM. Ce modèle de nuages mixtes (gouttelettes et cristaux) est développé par Flossmann et coll. depuis 1986 (Leporini; Flossmann, 1986; Leroy, 2007; Flossmann and Wobrock, 2010). Il permet la modélisation du cycle des nuages de leur formation jusqu'aux précipitations.

Le modèle DESCAM détaille six variables toutes dépendantes de la taille: les distributions en nombre des particules humidifiées, des gouttes et des cristaux de glace ; ainsi que pour chacune de ces classes leur contenu moyen en masse particulaire.

Ces variables microphysiques sont calculées en même temps que les 5 variables dynamiques et thermodynamiques nécessaires à décrire l'air atmosphérique : les trois composantes du vecteur vitesse \vec{v} , la masse volumique ρ , la température T , la pression p et la quantité de vapeur q_v .

1. Description du modèle DESCAM

1.1. Modèle cylindrique

Pour le lessivage de l'atmosphère par la pluie, un processus physique primordial va être l'interaction entre les particules présentes dans l'atmosphère et les gouttes de pluies tombant du nuage. Une première approche consiste donc à ne s'intéresser qu'à la dimension verticale du problème. Un modèle à géométrie cylindrique peut alors être utilisé.

Ce type de géométrie a été introduite aux modèles météorologiques par Asai et Kasahara (1967). Ces auteurs font l'hypothèse d'un système radialement symétrique. La formation et l'évolution du nuage sont étudiées à l'aide de deux cylindres coaxiaux, avec le rayon du cylindre extérieur au moins 10 fois supérieur au rayon du cylindre intérieur. L'environnement, représenté par le cylindre extérieur, n'est ainsi pas affecté par les fluctuations microphysiques au sein du cylindre intérieur, et toutes les variables physiques, à l'exception de la vitesse, restent constantes durant la simulation. Les processus microphysiques du nuage ne se déroulent que dans le cylindre intérieur.

Les divergences (ou les convergences) verticales entraînent des échanges horizontaux entre les deux cylindres par le biais des vitesses. De plus, le mélange turbulent dû au cisaillement du vent vertical entre les deux cylindres est pris en compte. Ainsi, le modèle cylindrique n'est pas strictement unidimensionnel, il est alors nommé 1D $\frac{1}{2}$.

Ce modèle bi-cylindrique est schématisé par la Figure 7, sur laquelle sont représentées la vitesse \vec{u} représentant les échanges entre les deux cylindres, les vitesses verticales w , et la hauteur H d'atmosphère sur laquelle le modèle est appliqué.

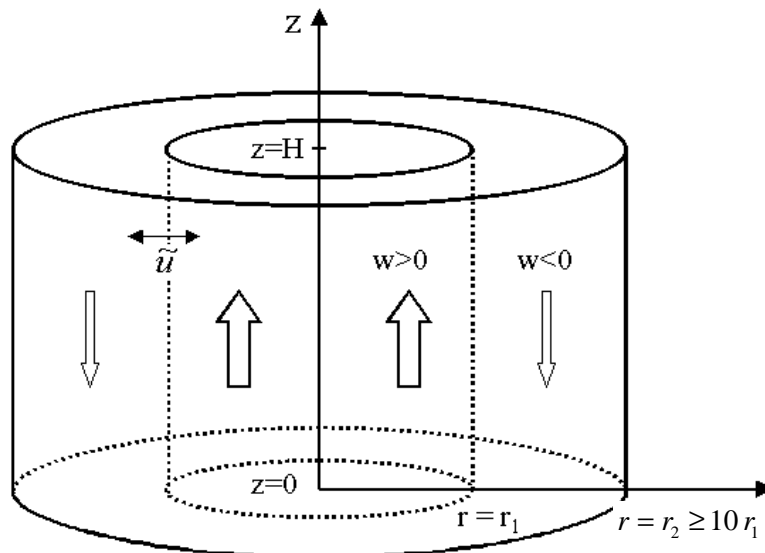


Figure 7 : Schéma du modèle cylindrique. Le cylindre intérieur représente le nuage, tandis que le cylindre extérieur représente l'environnement.

En supposant la loi des gaz parfaits, c'est un système à sept variables qu'il faut résoudre à un niveau donné : la température θ , le contenu en vapeur q_v de l'air nuageux, les vitesses verticales du cylindre intérieur w et extérieur w_e , les vitesses radiales à l'interface des deux cylindres \tilde{u} , la pression p et la masse volumique ρ .

En combinant l'équation de mouvement vertical, la première loi de la thermodynamique, l'équation de continuité, les équations de conservation pour la vapeur et les particules et la conservation de la masse, un système composé de cinq équations est obtenu.

- 1) En respectant l'équation de continuité, les vitesses radiales nécessaires entre les deux cylindres sont déterminées.
- 2) Les vitesses verticales du cylindre extérieur sont déterminées en conservant la masse.
- 3) L'équation de mouvement pour la composante verticale de la vitesse.
- 4) La première loi de la thermodynamique, oblige une conservation de l'énergie.
- 5) L'équation de conservation pour la vapeur d'eau.

$$\begin{cases}
(1) & 0 = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial(\rho w)}{\partial z} - \frac{2}{r_1} \tilde{u} \\
(2) & w_e = \frac{\left(\frac{r_1}{r_2}\right)^2}{\left(\frac{r_1}{r_2}\right)^2 - 1} w \\
(3) & \frac{\partial(\rho w)}{\partial t} = -\frac{\partial(w\rho w)}{\partial z} - \frac{2}{r_1} \rho \tilde{w} \tilde{u} + \frac{2}{r_1} \alpha^2 \rho |w_e - w| (w_e - w) + \left(\frac{\theta_v - \theta_{ve}}{\theta_{ve}} - (q_c + q_i) \right) \rho g \\
(4) & \frac{\partial(\rho \theta)}{\partial t} = -\frac{\partial(w\rho \theta)}{\partial z} - \frac{2}{r_1} \rho \tilde{\theta} \tilde{u} + \frac{2}{r_1} \alpha^2 \rho |w_e - w| (\theta_e - \theta) + \frac{L}{c_p} \frac{\partial \rho q_v}{\partial t} \Big|_{mic} + Q_{diab} \\
(5) & \frac{\partial(\rho q_v)}{\partial t} = -\frac{\partial(w\rho q_v)}{\partial z} - \frac{2}{r_1} \rho \tilde{q}_v \tilde{u} + \frac{2}{r_1} \alpha^2 \rho |w_e - w| (q_{ve} - q_v) + \frac{\partial \rho q_v}{\partial t} \Big|_{mic}
\end{cases}$$

Dans chacune des trois équations pronostiques (3 à 5), le premier terme après l'égalité représente l'évolution de la variable due à la divergence verticale du flux de cette variable ; le second terme représente les échanges latéraux de cette variable entre les deux cylindres ; et le troisième terme est le paramétrage des flux turbulents le long de l'interface. L'évolution de la vitesse verticale (3) est aussi influencée par la force de flottabilité. La température évolue avec les dégagements de chaleur latente dus aux processus microphysiques et avec les sources de chauffage diabatique. La vapeur d'eau et les distributions de particules évoluent également avec les processus microphysiques. Toute la description des différents processus microphysiques sera détaillée par la suite.

1.2. Équations de la microphysique

La modélisation de la dynamique du nuage est complétée par une description de sa microphysique. Les équations microphysiques vont représenter de manière détaillée l'évolution des particules et des gouttelettes (et de la glace dans le cas du givrage) et leur interaction entre eux avec l'atmosphère.

DESCAM détaille six paramètres, chacun en fonction de la taille :

- la fonction de distribution en nombre de particules humidifiées $f_{AP}(m_{AP})$,
- la fonction de distribution en masse de particules dans les particules humidifiées $g_{AP}(m_{AP})$; cette fonction permet de considérer que les particules peuvent grossir dans un environnement humide par déposition de la vapeur d'eau.
- la fonction de distribution en nombre des gouttes $f_d(m_d)$,

- la fonction de distribution en masse des particules d'aérosol dans les gouttes $g_{AP,d}(m_d)$,
- la fonction de distribution en nombre des cristaux $f_i(m_c)$,
- la fonction de distribution en masse des particules d'aérosol dans les cristaux $g_{AP,i}(m_c)$.

Chacun des six paramètres de la microphysique détaillée s'expriment par des équations décrivant leur évolution temporelle en fonction des phénomènes physiques qui décrivent leur évolution.

Par exemple, l'évolution de la fonction de distribution en nombre de particules est donnée par l'équation suivante :

$$\frac{\partial f_{AP}(r)}{\partial t} = \underbrace{\left. \frac{\partial f_{AP}(r)}{\partial t} \right|_{dyn}}_{\text{terme 1}} + \underbrace{\left. \frac{\partial f_{AP}(r)}{\partial s_{v,w}} \frac{\partial s_{v,w}}{\partial t} \right|_{Koe}}_{\text{terme 2}} + \underbrace{\left. \frac{\partial f_{AP}(r)}{\partial t} \right|_{act/desact}}_{\text{terme 3}} + \underbrace{\left. \frac{\partial f_{AP}(r)}{\partial t} \right|_{nucl,ice}}_{\text{terme 4}} + \underbrace{\left. \frac{\partial f_{AP}(r)}{\partial t} \right|_{coll}}_{\text{terme 5}}$$

Dans cette équation, le terme 1 représente le transport des particules sur le domaine dynamique. Le terme 2 (Pruppacher and Klett, 1997) traduit la situation d'équilibre des particules avec l'humidité environnante, c'est-à-dire la nouvelle taille de la particule à partir

des variations de $\frac{\partial s_{v,w}}{\partial t}$, sachant que $s_{v,w}$ sera négative hors du nuage. Le terme 3 illustre le

transfert des particules vers les gouttes (activation des particules) et le transfert des gouttes vers les particules (désactivation, c'est-à-dire évaporation complète de la goutte). Le terme 4 est l'équivalent du terme 3 pour les relations entre les particules et les cristaux. Le terme 5 représente la diminution du nombre de particules par leur collecte par les gouttes en chute libre (lessivage).

La Figure 8 schématise les différents mécanismes microphysiques pris en compte dans DESCAM. DESCAM modélise donc de nombreux phénomènes physiques. L'objet de cette thèse est d'étudier la collecte pour comprendre le lessivage de l'atmosphère par la pluie (processus encadré en vert sur le schéma).

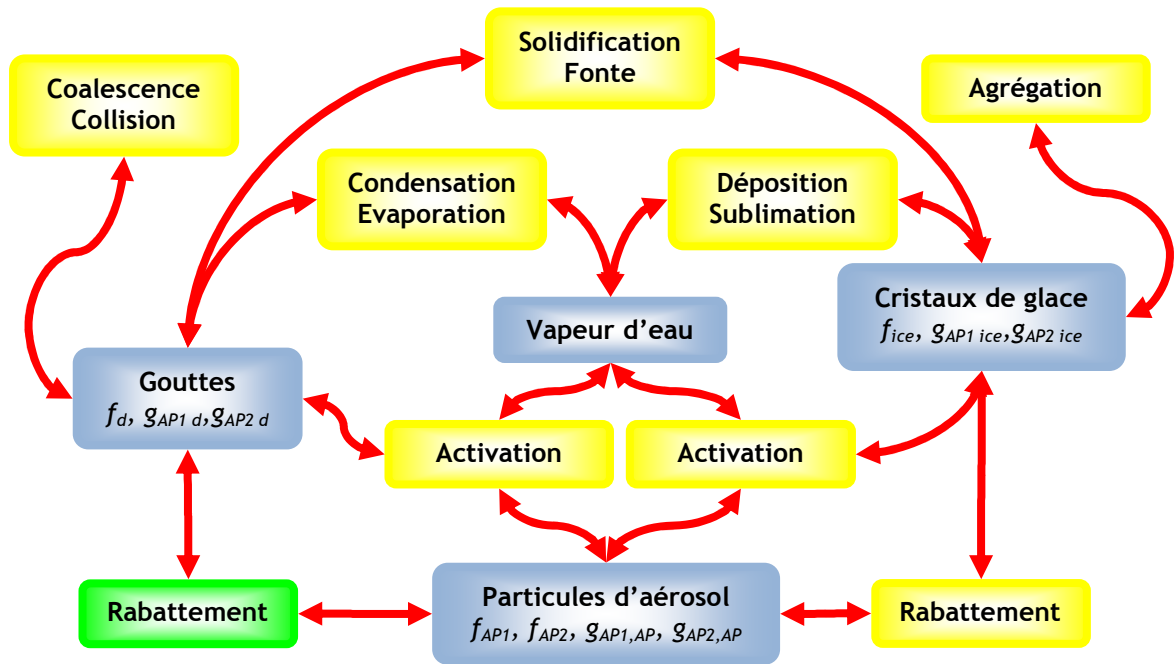


Figure 8 : Diagramme des modèles microphysiques impliqués dans DESCAM

2. Processus de collecte des particules par les gouttes

La réduction du nombre de particules dans l'air due aux effets de collecte est décrite par l'équation suivante :

$$\text{Équation 11} \quad \left. \frac{\partial f_{AP}(r_{AP})}{\partial t} \right|_{coll} = - \int_0^{\infty} f_{AP}(r_{AP}) f_d(r_{AP}) K_{AP}(r_{AP}, r_d) dr_d$$

La masse de particules dans l'air collectée par les gouttes est exprimée par l'équation suivante :

$$\text{Équation 12} \quad \left. \frac{\partial g_{AP}(r_{AP})}{\partial t} \right|_{coll} = - \int_0^{\infty} g_{AP}(r_{AP}) f_d(r_{AP}) K_{AP}(r_{AP}, r_d) dr_d$$

La masse de particules dans les gouttes est également affectée par le processus de collecte :

$$\text{Équation 13} \quad \left. \frac{\partial g_{AP,d}(r_d)}{\partial t} \right|_{coll} = f_d(r_d) \int_0^{\infty} g_{AP}(r_{AP}) K_{AP}(r_{AP}, r_d) dr_d - \frac{\partial}{\partial m} \left(\left. \frac{dm}{dt} \right|_{coll} g_{AP,d}(r_d) \right)$$

avec

$$\text{Équation 14} \quad \left. \frac{dm}{dt} \right|_{coll} = \int_0^{\infty} m_{AP}(r_{AP}) f_{AP}(r_{AP}) K_{AP}(r_{AP}, r_d) dr_d$$

Le premier terme de l'Équation 13 représente l'augmentation de la masse de la goutte due à la collecte des particules, tandis que le second membre figure le décalage dans la distribution des gouttes dû au grossissement des gouttes par la capture des particules.

Le terme $K_{AP}(r_{AP}, r_d)$ s'appelle le noyau de collecte (*collection kernel*) dans les Équation 11, Équation 12, Équation 13, et Équation 14. Ce noyau de collecte représente une probabilité de collecte dans un volume dans lequel toutes les particules seraient collectées. Cette probabilité peut être calculée à partir du volume réellement traversé par la goutte et de l'efficacité de collecte.

$$\text{Équation 15} \quad K_{AP}(r_{AP}, r_d) = \pi (r_d + r_{AP})^2 E(r_{AP}, r_d) |v_{\infty}(r_d) - v_{\infty}(r_{AP})|$$

En négligeant la vitesse de chute des particules par rapport à celle des gouttes, l'Équation 15 devient :

$$\text{Équation 16} \quad K_{AP}(r_{AP}, r_d) = \pi (r_d + r_{AP})^2 E(r_{AP}, r_d) v_{\infty}(r_d)$$

La vitesse limite de chute des gouttes $v_{\infty}(r_d)$ est paramétrée par Beard (1976), malgré une certaine dispersion des vitesses de chute des gouttes observée dans l'environnement (Montero-Martínez et al., 2009). Quant à l'efficacité de collecte E , elle est le paramètre pour lequel persistent les plus grandes incertitudes.

L'efficacité de collecte (Pruppacher and Klett, 1997) est le rapport de la surface balayée effectivement (ou toutes les particules seraient captées) par rapport à la surface géométrique de collision. Ce volume est défini par le produit de la hauteur de chute de la goutte et du disque de diamètre égal au diamètre équivalent à une sphère. L'efficacité de collecte est également fonction de l'humidité relative HR . Cette efficacité peut aussi être définie comme le rapport de la masse de particules effectivement captée par la goutte sur la masse de particules présente dans le volume traversé par la goutte au cours de sa chute.

$$\text{Équation 17} \quad E(d_{AP}, D_G, HR) = \frac{m_{\text{captée}}(d_{AP}, D_G, HR)}{m_{\text{rencontrée}}(d_{AP}, D_G, HR)}$$

Néanmoins, l'efficacité en nombre utilisée dans DESCAM est identique à celle calculée en masse, en considérant que l'efficacité est définie spectralement aussi bien pour les aérosols que pour les gouttes : $E(d_{AP}, D_G, HR)$.

L'efficacité de collecte est un paramètre physique qui est une combinaison de phénomènes hydrodynamique, aérodynamique et thermodynamique entre la goutte, l'écoulement d'air autour d'elle et le comportement des particules dans cet écoulement.

Les phénomènes régissant la collecte des particules par les gouttes, et donc le calcul d'une efficacité de collecte, sont divisibles en deux grandes familles : les effets mécaniques (impaction, interception, recirculation arrière, diffusion brownienne) et les effets phorétiques (thermophorèse, diffusiophorèse, électrophorèse).

Les efficacités de collecte sont bien modélisées pour les gouttes de diamètre inférieur à 500 μm (Wang and Pruppacher, 1977b). Pour des gouttes plus grosses, le nombre de

Reynolds est alors supérieur à 100, et compte tenu de la déformation de la goutte, des phénomènes de recirculation arrière (tourbillon) apparaissent, modifiant l'efficacité de collecte (Pruppacher and Klett, 1997). De plus, pour des gouttes supérieures à 1,5 mm, le nombre de Reynolds devient supérieur à 500, et l'écoulement autour de la goutte cesse alors d'être laminaire.

Pour une taille inférieure à 0,8 mm, la goutte commence à osciller entre une forme oblate et une forme prolate.

Toutes ces difficultés rendent impossible à l'heure actuelle la modélisation des efficacités de collecte pour des gouttes plus large que 0,8 mm.

Tandis que pour les gouttes de diamètres inférieurs à 0,8 mm, la modélisation et les mesures expérimentales sont en accord, seules les données issues de l'expérimentation peuvent permettre de déterminer les efficacités de collecte pour les gouttes de diamètre supérieur à 0,8 mm.

Dans DESCAM, les efficacités de collecte sont représentées sous la forme d'une matrice à trois dimensions. Chacune des coordonnées indiquant la taille de la particule, la taille de la goutte et l'humidité relative.

La Figure 9 représente les valeurs de la matrice des données d'efficacités de collecte utilisée par DESCAM (pour une humidité relative de 50 %).

La zone où les efficacités de collecte peuvent être modélisées est séparée sur la figure par un trait vert.

Sur la Figure 9 sont aussi localisées les mesures qui ont permis d'établir la matrice d'efficacité de collecte de DESCAM : (Grover et al., 1977; Wang and Pruppacher, 1977b; Lai et al., 1978; Wang et al., 1978; Radke et al., 1980; Carstens and Martin, 1982; Leong et al., 1982; Barlow and Latham, 1983) Wang et Pruppacher (1977b), Wang *et al* (1978), Lai *et al.* (1978) Radke *et al.* (1980), Leong *et al.*(1982), Barlow et Latham (1983), Carstens et Martin (1982) et Grover *et al.*(1977). Les points expérimentaux de Kerker et Hampl (1974) et Hampl *et al.* (1971) sont aussi placés sur la figure, en orange, malheureusement ces points correspondent à des gouttes n'atteignant pas leurs vitesses terminales de chute. Les données expérimentales de Pranesha (1996a, 1996b, 1997) et Vohl (2001) sont également ajoutées, même si étant postérieures à la création de la matrice des efficacités de collecte (Flossmann, 1986), elles n'étaient pas utilisées pour le calcul de celle-ci.

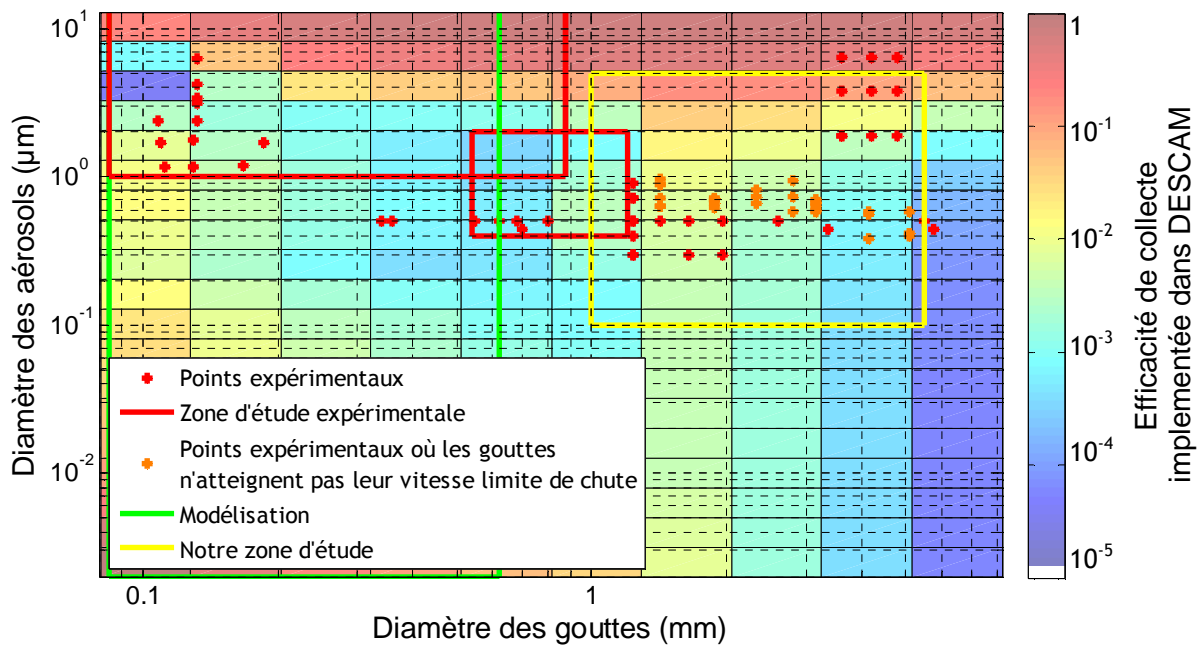


Figure 9 : Matrice des efficacités de collecte en fonction du diamètre des gouttes et des aérosols pour une humidité relative de 50 %

La Figure 9 permet de constater qu’une grande partie des valeurs présentes dans la matrice d’efficacité de collecte sont des extrapolations. Il s’agit surtout de valeurs qui concernent les gouttes d’un diamètre supérieur au millimètre.

Dans le chapitre suivant, l’importance des gouttes millimétriques pour le lessivage sera donc analysée.

3. Etude théorique de l’importance de l’impaction sous nuage

Ce sous-chapitre met en évidence les gammes de taille de particules et de taille de gouttes qui sont les plus importantes à considérer pour l’étude du rabattement sous le nuage. Pour cela, la sensibilité de la masse d’aérosols rabattue aux variations des efficacités de collecte pour des gammes de taille données est testée.

3.1. Initialisation du modèle

Pour isoler les effets du rabattement sous le nuage du reste du processus nuageux, le modèle est utilisé de façon simplifiée. Une pluie constante est prescrite qui lessive les mille premiers mètres d’une atmosphère « chaude » (c’est-à-dire sans glace), sans mouvements verticaux d’air, à humidité constante.

Les paramètres ainsi fixés sont l’humidité relative de 70 % et une température au sol de 20 °C, le profil vertical de la température est supposé adiabatique.

Les précipitations sont uniquement sous forme liquide, ce qui permet de s’affranchir du calcul des processus de la microphysique froide (glaciation des gouttes, capture des particules par les cristaux etc.).

Lessivage de l’atmosphère par la pluie : Approche microphysique

Chapitre 2

Modélisation du lessivage des particules atmosphériques par la pluie

Ne s'intéressant qu'aux processus de collecte sous le nuage, tous les autres processus nuageux (l'activation des particules par exemple) sont négligés. La pluie est simplement imposée au sommet de la couche de mille mètres, considérée comme une source constante. Les gouttes tombent sur le sol sous la seule action de leur propre poids, d'après le paramétrage exprimant la vitesse de chute des gouttes en fonction de leur taille. La distribution en taille des gouttes de pluie suit une loi Marshall et Palmer (1948) avec un taux de précipitation typique à nos latitudes égal à 10 mm/h.

L'évaporation des gouttes de pluie est également négligée entre l'altitude de 1000 mètres et le sol.

La distribution granulométrique de la pluie, de Marshall et Palmer (1948) propose une simple exponentielle décroissante de la distribution des gouttes de pluie (Équation 18) où $f_d(D_G) \delta D_G$ est le nombre de gouttes dont les diamètres sont compris entre D_G et $D_G + \delta D_G$

$$\text{Équation 18} \quad \begin{cases} f_d(D_G) \delta D_G = N_0 e^{-\Lambda D_G} \delta D_G \\ \Lambda = 4,1 R^{-0,21} \end{cases}$$

Dans la publication d'origine, les paramètres sont définis ainsi :

$N_0 = 0,08 \text{ cm}^{-4}$ et R est l'intensité de la pluie en mm/h.

Depuis, d'autres formes de paramétrages sont apparues, telle que, par exemple la distribution « gamma » (Ulbrich, 1983). La distribution type « gamma » a l'avantage par rapport à celle de Marshall et Palmer de couper vers les petites tailles l'augmentation exponentielle. Dans notre étude, nous traitons de la propagation de cette pluie dans les couches inférieures par sédimentation sur un laps de temps court. Donc le nombre surestimé des petites gouttes de pluie qui n'atteignent pas le sol pendant ce temps est faible.

La distribution de Marshall et Palmer est imposée à la couche située à 1000 m d'altitude. Toutefois, le calcul de l'intensité de la pluie consécutive à cette distribution ne correspond pas avec l'intensité paramétrée. En paramétrant une pluie de 10 mm/h (et en utilisant le modèle de vitesse limite de chute de Beard (1976)) avec la distribution de Marshall et Palmer, il en résulte au sol une intensité égale à 11,6 mm/h.

Ainsi, la distribution de Marshall-Palmer a été proposée par d'autres auteurs avec des constantes différentes. Uijlenhoet et Stricker (1999) proposent plusieurs jeux de constantes de la relation de Marshall-Palmer.

Dans le cas présent, le principal attrait de la distribution de l'Équation 18 est de modéliser au mieux l'intensité de la pluie, afin d'effectuer des comparaisons avec d'autres formes de pluies par une donnée d'entrée facile à maîtriser. Plusieurs formulations de la distribution de Marshall-Palmer de Uijlenhoet et Stricker (1999) sont ainsi testées. A chaque cas, l'intensité de la pluie est calculée à partir de la loi de distribution des vitesses de chute libre de Beard (1976)

Tableau 1 : Intensité de la pluie avec la distribution de type Marshall et Palmer (1948) et différents coefficients de Uijlenhoet et Stricker (1999) pour une valeur de R de 10 mm/h

Jeux	N_0 (mm ⁻¹ m ⁻³)	Λ (mm)	Intensité de la pluie obtenue (mm/h)
1 (Marshall-Palmer)	$8,00 \times 10^3$	$\Lambda = 4,1 R^{-0.21}$	11,61
2	$8,00 \times 10^3$	$\Lambda = 4,23 R^{-0.214}$	10,48
3	$8,00 \times 10^3$	$\Lambda = 4,34 R^{-0.229}$	10,93
4	$6,91 \times 10^3 R^{0,019}$	$\Lambda = 4,1 R^{-0.21}$	10,48
5	$5,41 \times 10^3 R^{0,130}$	$\Lambda = 4,1 R^{-0.21}$	10,59
6	$11,3 \times 10^3 R^{-0,203}$	$\Lambda = 4,55 R^{-0.258}$	10,59

Le Tableau 1 permet de mettre en évidence que la relation du type Marshall-Palmer qui résulte au mieux à une intensité de la pluie de 10 mm/h dans le modèle DESCAM, est la relation avec les paramètres $N_0 = 0,08 \text{ cm}^{-4}$ et $\Lambda = 4,23 R^{-0.214} \text{ mm}^{-1}$.

Les gouttes constituant cette pluie modélisée vont tomber au sol avec une vitesse décrite par Beard(1976). Pendant leurs chutes, ces gouttes rencontrent un aérosol possédant lui aussi une distribution granulométrique.

La distribution initiale de particules est considérée comme une somme de trois log-normales. Comme proposé par Jaenicke (Hobbs, 1993), en sélectionnant les paramètres décrivant une atmosphère dite « continentale ».

$$\text{Équation 19} \quad \frac{dN(r)}{d \log_{10}(r)} = \sum_{i=1}^3 \frac{n_i}{\sqrt{2\pi} \log \sigma_i} \exp \left\{ - \frac{\left(\log_{10} \left(\frac{r}{R_i} \right) \right)^2}{2 (\log_{10} \sigma_i)^2} \right\}$$

$$\text{Avec} \begin{cases} n_1 = 1,33 \times 10^2 \text{ cm}^{-3} & R_1 = 0,01 \mu\text{m} & \log_{10} \sigma_1 = 0,161 \\ n_2 = 2,90 \times 10^3 \text{ cm}^{-3} & R_2 = 0,058 \mu\text{m} & \log_{10} \sigma_2 = 0,217 \\ n_3 = 3,00 \times 10^{-1} \text{ cm}^{-3} & R_3 = 0,9 \mu\text{m} & \log_{10} \sigma_3 = 0,380 \end{cases}$$

La concentration des particules est initialement de $1,65 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-3}$. Cette distribution est initialement imposée constante sur les mille mètres d'atmosphère étudiée.

3.2. Résultats

3.2.1. Particules rabattues par la pluie

La contamination des sols est proportionnelle à la masse de particules contaminées rabattues. Il s'agit donc de déterminer au sens propre quelle est la gamme de particules qui est la plus massivement rabattue.

Une pluie d'une intensité de 10 mm/h (cf. Chapitre 2, partie 3.1) est placée à mille mètres d'altitude. L'évolution de la distribution des particules au niveau du sol est tracée pour différents temps (Figure 10). Il apparaît que ce sont les particules microniques qui représentent la masse la plus importante et sont les plus rabattues. Signalons que le maximum observé dans la dernière classe de la distribution est un artefact numérique. Il résulte du fait que les particules qui grossissent sous une humidité relative de 0 à 70 % ne peuvent pas sortir de la dernière classe.

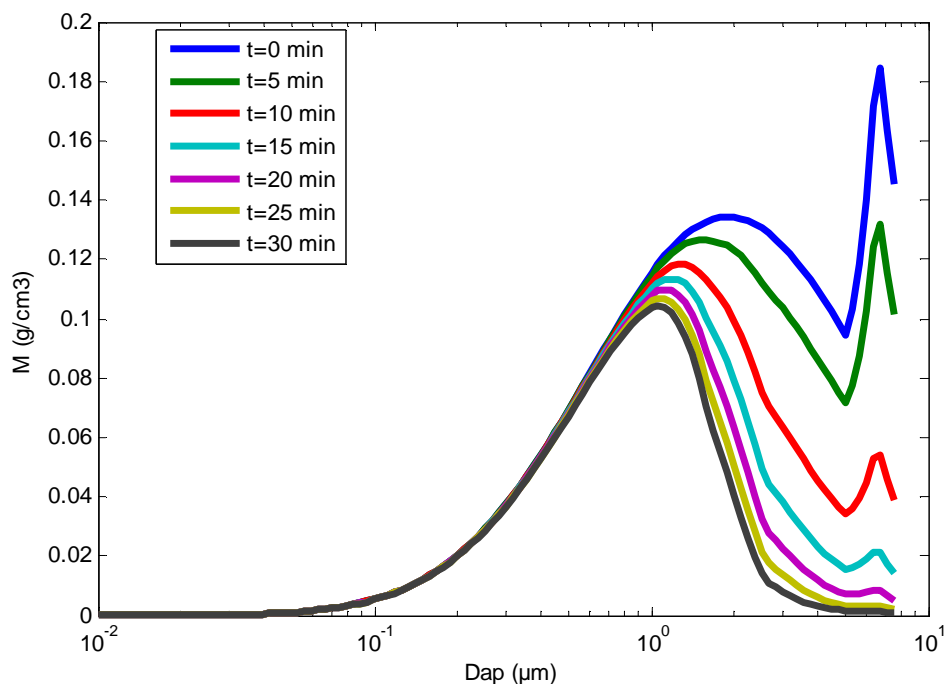


Figure 10 : Distribution massique des particules dans l'atmosphère à une altitude de 100 m pour différents temps

Pour déterminer plus précisément la gamme de particules qui est rabattue le plus massivement, la différence de masse est calculée en fonction de la taille des particules (Figure 11). Les masses rabattues les plus importantes correspondent aux particules de 2,25 µm. Près de 87 % de la masse rabattue l'est pour des particules dont le diamètre est compris entre 0,1 et 5 µm. Et plus de 99 % de la masse rabattue est constituée de particules de diamètre compris entre 0,1 et 10 µm.

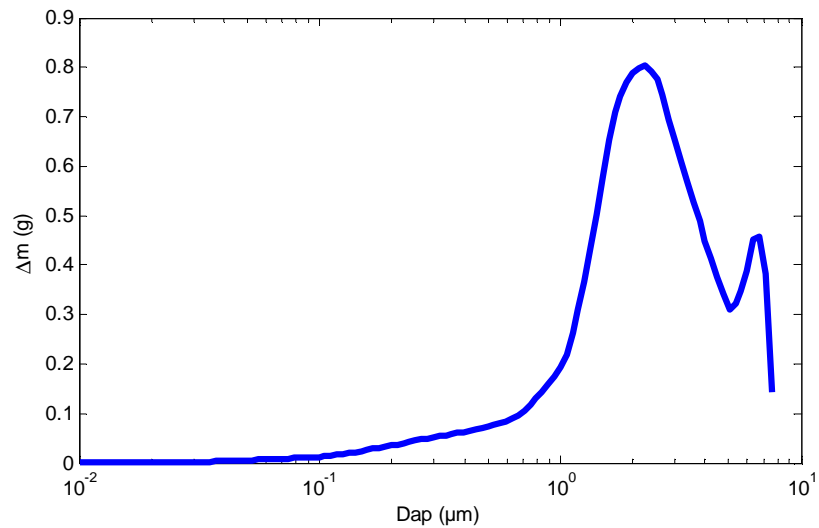


Figure 11 : Masse de particules soustrait de l'air en fonction de la taille des particules

Il est notable que les mêmes courbes calculées en nombre de particules sont extrêmement différentes. En nombre, ce sont les particules de diamètre compris entre 1 et 10 nm qui sont les plus rabattues par la pluie (66 %, voir Figure 12). Cependant, le nombre de particules n'est pas un critère significatif pour représenter la pollution des sols consécutive à l'interaction d'une pluie sur un panache radioactif. La contamination d'un sol est déterminée par son activité, qui est proportionnelle au nombre d'atomes radioactifs, et donc liée à la masse de ces radionucléides présents dans le sol.

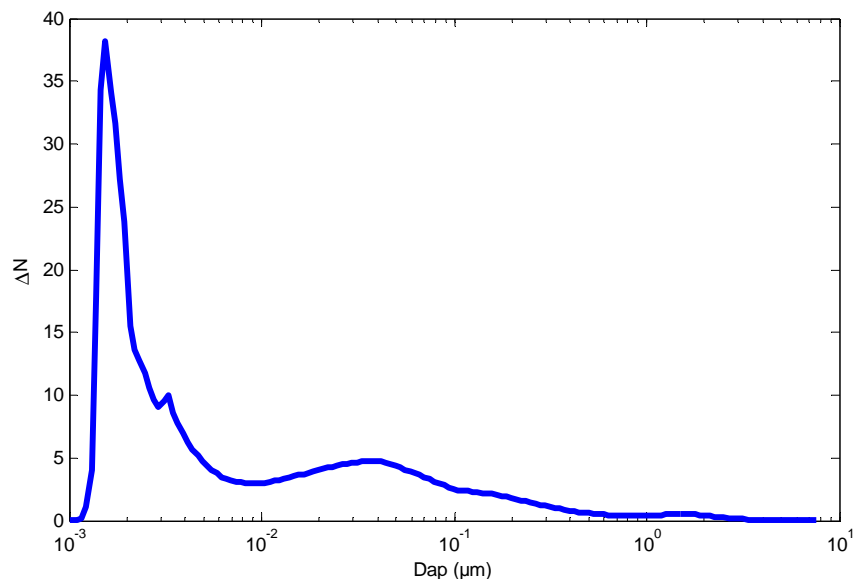


Figure 12 : Nombre de particules enlevées de l'air en fonction de la taille des particules

A ce stade, il est possible de conclure que ce sont les particules de diamètres compris entre 0,1 et 5-10 μm qui sont les plus responsables de la contamination des sols consécutive au lessivage sous le nuage par la pluie, d'une atmosphère chargée en particules contaminées.

3.2.2. Gouttes lessivant l'atmosphère

De la même manière que pour les particules, on peut déterminer la gamme des gouttes qui sont majoritairement responsable du rabatement des particules.

Toujours en utilisant la distribution de Marshall-Palmer à mille mètres, la distribution des masses de particules dans les gouttes, et la distribution des gouttes sont comparées.

La courbe verte de la Figure 13 représente la distribution granulométrique de la pluie à 0 m d'altitude. Cette courbe diffère de la fonction de type « exponentielle décroissante » offerte par la loi de Marshall et Palmer. En effet, les gouttes les plus petites ont une vitesse de chute si faible qu'elles ne rejoignent jamais le sol pendant les trente minutes simulées. Ainsi, la distribution granulométrique de la pluie retrouve naturellement une forme « log-normale » telle qu'elle est décrite par Ulbrich (1983).

La courbe bleue de la Figure 13 est l'intégrale des masses rabattues par chaque classe de taille de gouttes pour une durée de 1000 s.

Ce calcul effectué avec DESCAM permet de constater que, même si ce sont les gouttes de 1 mm de diamètre qui sont les plus nombreuses, ce sont bien les gouttes d'un diamètre autour de 2 mm qui rabattent la masse la plus importante de particules.

De manière quantitative, 95 % de la masse de particules est collectée par les gouttes dont les diamètres sont compris entre 1 et 5 mm. De la même manière, 66 % de la masse rabattue l'est par les gouttes dont les diamètres sont compris entre 2 et 5 mm.

Ceci s'explique par le fait que les plus grosses gouttes arrivent en premier au sol, compte tenu de leur vitesse de chute plus élevée. Ainsi, ce sont les gouttes les plus larges qui rencontrent le plus d'aérosols, étant les premières à lessiver l'atmosphère. Et du fait de leur efficacité de collecte relativement importante, l'atmosphère est tout d'abord balayée par ces gouttes millimétriques, ne laissant par la suite que peu d'aérosols pouvant être rabattus par les gouttes submillimétriques.

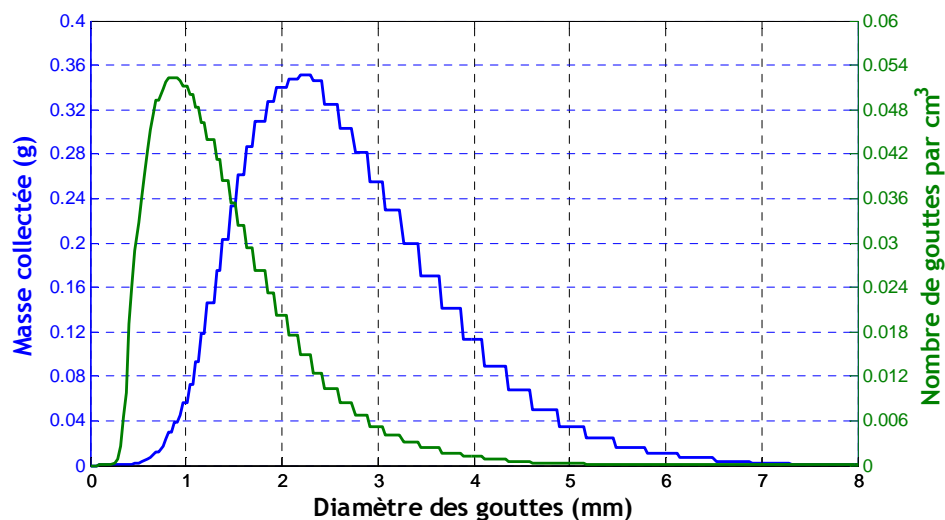


Figure 13 : Distribution intégrée sur 1000 s de la masse de particules dans chaque classe de gouttes (en bleu) et distribution granulométrique de la pluie au sol (en vert)

Ainsi, les gouttes qui jouent un rôle dans le lessivage vont être dans la gamme de diamètres compris entre 1 et 5 mm.

3.2.3. Efficacités de collecte pour les gammes de particules et de gouttes impliquées au lessivage

La représentation des efficacités de collecte (décrites dans la partie 2) est de nouveau proposée, mais cette fois-ci, les gammes de gouttes (entre 1 et 5 mm) et de particules (entre 0,1 et 5 μm) participant au lessivage y sont représentées (cadre jaune sur la Figure 14).

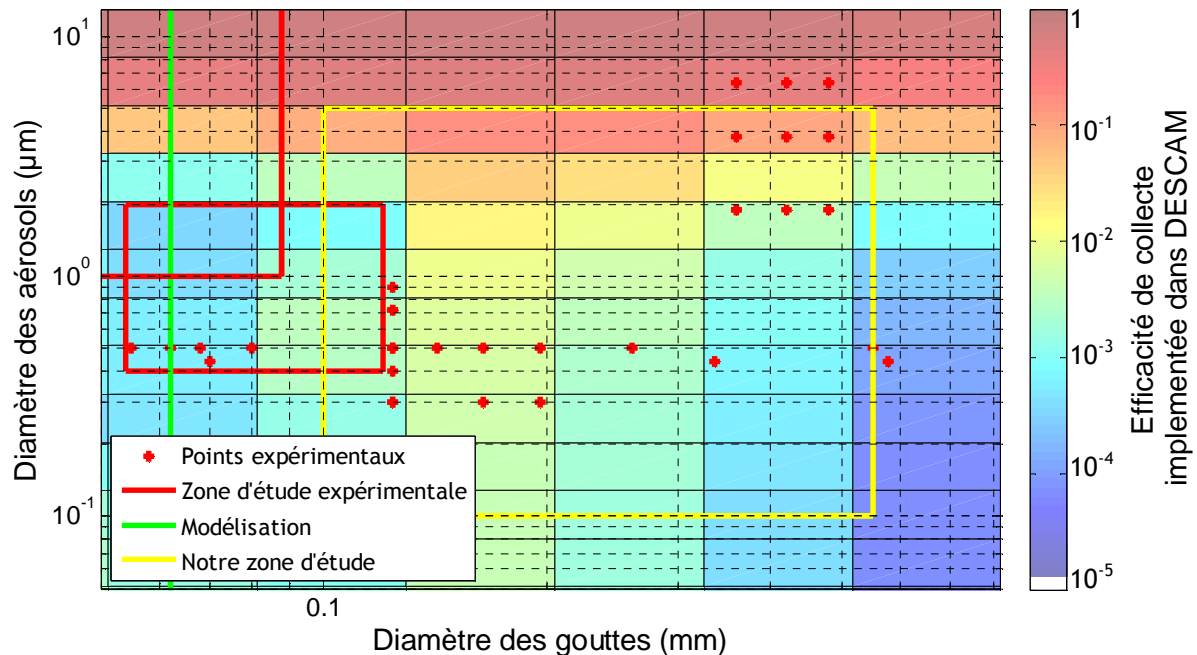


Figure 14 : Zoom sur la zone d'étude retenue, superposée aux valeurs d'efficacités de collecte présentes dans le modèle DESCAM

La Figure 14 permet de constater que la zone d'étude ne comporte qu'une quinzaine de données expérimentales. Une proportion non négligeable des efficacités de collecte de DESCAM impliquées dans la modélisation du lessivage sous le nuage est donc extrapolée, ce qui génère des erreurs potentielles. Il va donc subsister un doute majeur sur la fiabilité des résultats de la modélisation du lessivage obtenue avec le code DESCAM.

3.3. Sensibilité

Un test de sensibilité est effectué sur l'efficacité de collecte, afin de vérifier si des variations des valeurs de l'efficacité de collecte entraineront des modifications notables de la modélisation de la masse de particules rabattue au sol pendant un épisode pluvieux.

Le test consiste à modifier les valeurs d'efficacité de collecte sur une seule taille de goutte.

La modification des valeurs d'efficacité de collecte est suggérée par les travaux de Pranesha et Kamra (1996b). Ces mesures d'efficacités de collecte sont postérieures à la création de la

matrice d'efficacité de DESCAM, et concernent en partie des gouttes faisant partie de la zone d'étude.

Pranasha et Kamra (1996b) donnent des valeurs d'efficacité de collecte qui sont très différentes des valeurs inscrites dans DESCAM. Ces différences peuvent aller jusqu'à un facteur 200 (voir Tableau 2).

Tableau 2 : Efficacités de collecte de DESCAM et de la littérature

Couple taille de goutte/taille de particule	Efficacité de collecte de Pranasha et Kamra (1996)	Efficacité de collecte de DESCAM (valeurs interpolées)
$D_G = 3,6 \text{ mm} \ \& \ d_{AP} = 1,9 \ \mu\text{m}$	0,3	0,1
$D_G = 3,6 \text{ mm} \ \& \ d_{AP} = 3,8 \ \mu\text{m}$	0,5	2,2
$D_G = 4,8 \text{ mm} \ \& \ d_{AP} = 3,8 \ \mu\text{m}$	0,06	1,7

Il semble donc raisonnable de tester l'influence d'un facteur 10 sur les valeurs d'efficacité de collecte dans DESCAM pour des gouttes de 2 mm. Ce facteur n'est pas excessif au vu des différences largement plus importantes qui peuvent exister entre les mesures expérimentales et les valeurs originales du modèle.

C'est ainsi que l'efficacité de collecte a été multipliée par dix pour des valeurs correspondant à des gouttes de 2 mm de diamètre, des particules de diamètres compris entre 0,1 et 10 μm et ceci quel que soit le taux d'humidité. Ces modifications relativement modestes des efficacités de collecte entraînent un changement important dans le calcul de la masse de particules rabattue au sol par la pluie (Figure 15) : 22 % de masse supplémentaire est rabattue avec les efficacités ainsi modifiées.

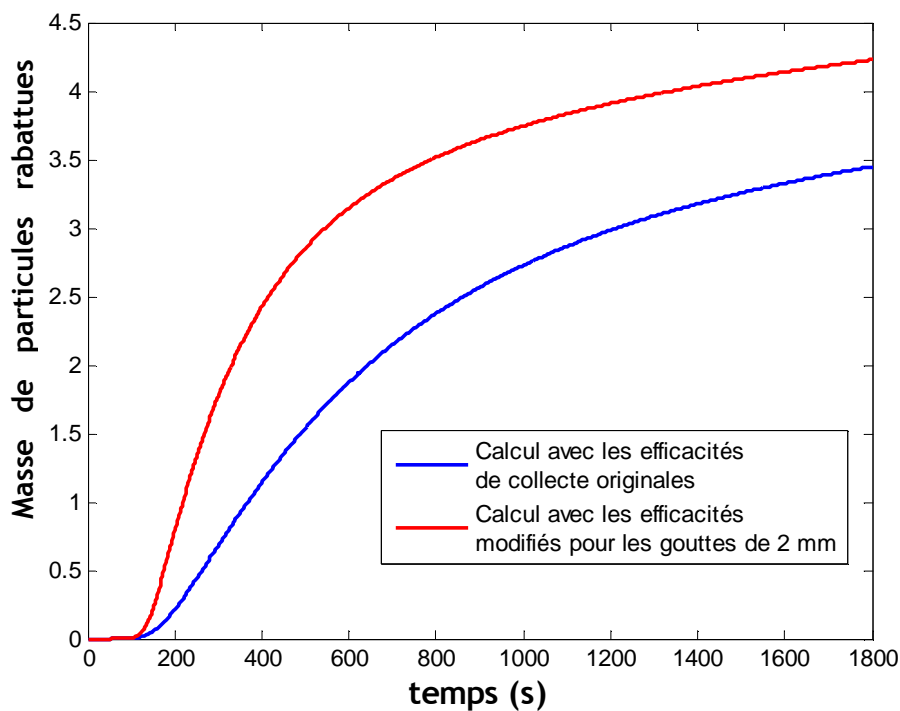


Figure 15 : Masse de particules rabattues au sol en fonction du temps

4. Conclusion : amélioration de la connaissance des efficacités de collecte

Le lessivage de l'atmosphère par la pluie sous le nuage est tout à fait modélisable, en utilisant un modèle microphysique détaillant les évolutions des granulométries de la pluie et des particules. Le modèle DESCAM répond à ces critères, et dans sa version unidimensionnelle, il offre un temps de calcul extrêmement court (de l'ordre de quelques minutes).

Cependant, ce modèle ne peut pas être appliqué dans l'état actuel des choses pour atteindre nos objectifs. Ce modèle nécessite la connaissance et la compréhension (parmi d'autres paramètres) de l'efficacité de collecte des particules par les gouttes en fonction de l'humidité relative.

Les efficacités de collecte actuellement dans le modèle sont extrapolées et entachées d'incertitudes importantes pour les gouttes de diamètre supérieur au millimètre, et la modélisation du lessivage est très sensible aux valeurs des efficacités de collecte pour ces gouttes millimétriques.

L'objectif de la thèse est alors d'améliorer la connaissance des valeurs des efficacités de collecte pour ces tailles de gouttes.

CHAPITRE 3

EXPÉRIENCE BERGAME

1. Objectifs et contraintes

Le dispositif expérimental, le Banc d'Etude du Rabattement Goutte/Aérosol et Mesure d'Efficacité, BERGAME, a été conçu pour mesurer les efficacités de collecte des aérosols entre 0,1 et 5 μm par les gouttes millimétriques.

Plusieurs contraintes de dimensionnement ont été imposées.

La contrainte principale était que les gouttes impactent les aérosols avec les mêmes caractéristiques que des gouttes de pluie naturelles, c'est à dire qu'elles atteignent la vitesse limite de chute et que leurs formes soient cohérentes avec des mesures faites lors d'une pluie naturelle.

Pour mener à bien les expérimentations, la taille des aérosols utilisés doit être connue le plus précisément possible : la distribution devra donc être mono-dispersée, si possible avec un écart-type géométrique inférieur à 1,3. De même, la granulométrie des gouttes doit être contrôlée autant que possible, afin d'obtenir des mesures d'efficacité de collecte pour un couple bien précise de taille de gouttes et de taille de particules.

La masse d'aérosols rencontrée par la goutte lors de sa chute doit pouvoir être déterminée.

La masse d'aérosols effectivement capturée par les gouttes doit également être mesurée.

Un système performant de confinement des particules doit être mis en place : les gouttes ne devront pas être contaminées avant qu'elles n'aient atteint leurs vitesses limites de chute.

2. Techniques pour obtenir des gouttes tombant à leurs vitesses limites de chute

2.1. Choix du puits de chute

Une contrainte est donc d'assurer que les gouttes atteignent leurs vitesses limites de chute. Trois options sont alors ouvertes.

Une option est de faire tomber les gouttes sur une hauteur suffisante. Cette voie a notamment été explorée par Kinzer et Gunn(1951), Hampl *et al* (1971), Wang et Pruppacher (1977b), Leong *et al* (1982), Barlow et Latham (1983), Pranesha et Kamra (1996b) et Lépinasse *et al* (2005), pour ne citer qu'une seule publication par dispositif expérimental construit.

Une autre possibilité est de conférer une vitesse initiale aux gouttes, de manière à réduire la hauteur nécessaire pour que celles-ci atteignent leurs vitesses limites de chute. Les tentatives effectuées dans ce sens montrent une très grande dispersion des trajectoires des gouttes, entravant considérablement l'applicabilité de la méthode. D'ailleurs, il existe

Lessivage de l'atmosphère par la pluie : Approche microphysique

extrêmement peu d'exemples dans la littérature utilisant cette méthode. Les auteurs ne disposant pas d'une hauteur suffisante pour atteindre la vitesse limite, préfèrent généralement se contenter de la vitesse atteinte par le seul effet de la gravité ((Hampl et al., 1971; Kerker and Hampl, 1974; Lai et al., 1978; Barlow and Latham, 1983).

La troisième option est d'offrir un flux ascendant d'air face à la chute de la goutte. Quand le flux d'air est suffisant pour maintenir la goutte en sustentation, le flux a atteint une vitesse égale à la vitesse limite de chute de la goutte. Cette méthode est particulièrement adaptée pour observer l'évolution temporelle d'une goutte au cours de sa pseudo-chute. Quatre souffleries verticales (*wind tunnel*) différentes sont utilisées dans les travaux de Beard et Pruppacher (1969), Bhalwankar *et al* (2004), Saylor et Jones (2005) et Mitra *et al* (1990, 1992). Pour les expériences de mesures d'efficacité de collecte dans le cas d'une soufflerie verticale, les volumes d'eau récoltés sont faibles et la quantité d'aérosols à injecter pour ensemencher le gaz est importante. De plus, les gouttes millimétriques ont des trajectoires très instables à cause notamment de la mise en résonance de la fréquence des oscillations de leurs formes (Tokay and Beard, 1996) avec les fréquences de lâcher tourbillonnaire (Szakáll et al., 2009). Ainsi, il est quasiment impossible de travailler sur des gouttes de 1 à 2 mm de diamètre, à moins d'imposer une forme à l'écoulement de l'air (Jones and Saylor, 2009), mais cette méthode annihile la présence des modes d'oscillations transverses, ce qui donne aux gouttes des formes différentes de celles des gouttes de pluie naturelle. Or, la morphologie de la goutte influe sur l'écoulement d'air autour d'elle. Une modification de l'écoulement d'air risque de mener à des efficacités de collecte différentes pour une même taille de goutte. De plus, une goutte de morphologie différente de celle des gouttes de pluie dans l'environnement va présenter une surface apparente différente, ce qui est susceptible de modifier l'efficacité de collecte.

Ainsi, l'option de construire un puits de chute pour effectuer nos expériences a été retenue pour sa capacité à reproduire au mieux les gouttes de pluie réelles.

2.2. Optimisation de la hauteur du puits de chute

La vitesse limite de chute d'un objet est atteinte lorsque les forces gravitationnelles et les forces de frottement se compensent.

Une contrainte forte de BERGAME est alors de donner aux gouttes générées assez de hauteur pour que celles-ci atteignent leurs vitesses limites de chute. Wang et Pruppacher (1977a) ont étudié expérimentalement la chute des gouttes à l'aide d'un puits de chute d'une trentaine de mètres de hauteur. Un de leurs résultats montre l'évolution de la vitesse des gouttes en fonction de leur hauteur de chute et de leur rayon (Figure 16).

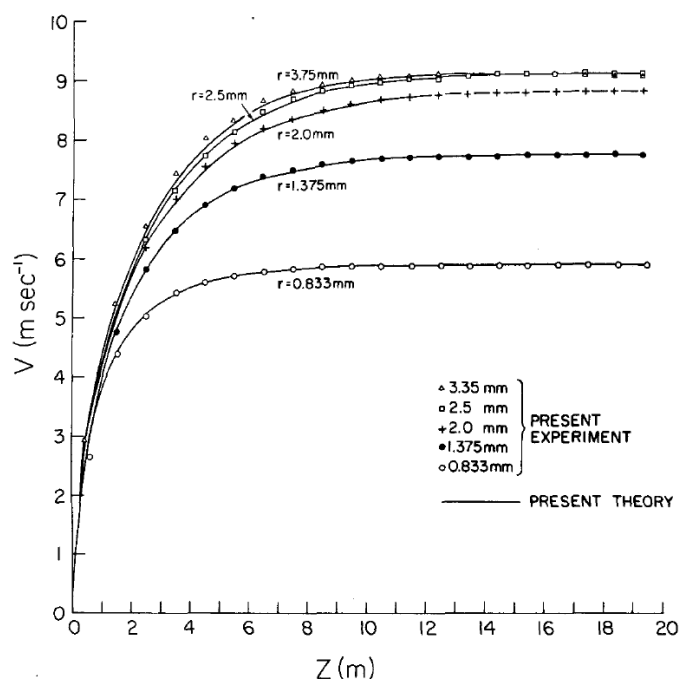


Figure 16 : Vitesse de la goutte en fonction de sa hauteur de chute (Wang and Pruppacher, 1977a)

La Figure 16 représente l'évolution de la vitesse des gouttes sous l'action de la gravité depuis une vitesse initiale nulle, ce qui est exactement le cas dans BERGAME. Par les résultats présentés sur cette figure, Wang prouve la validité de son modèle d'accélération des gouttes, quelle que soit leur taille. A partir des résultats de Wang et Pruppacher(1977a), il est possible d'établir un tableau qui donne le pourcentage de la vitesse limite atteinte au bout de 10 m de chute libre.

Tableau 3 : Pourcentage de la vitesse limite atteinte après 10 m de chute libre en fonction du diamètre des gouttes

Diamètre de la goutte (mm)	1,66	2,75	4,0	5,0	6,7
Pourcentage de la vitesse limite atteinte après 10 m de chute libre	100 %	99,5 %	97,3 %	97,4 %	98,5 %

Le Tableau 3 permet de constater qu'une goutte atteint au minimum 97 % de sa vitesse limite de chute sur 10 m de chute libre, quelle que soit sa taille.

Le Tableau 3 autorise de faire un constat *a priori* étonnant : ce ne sont pas les gouttes les plus grosses qui nécessitent le plus de hauteur pour atteindre leurs vitesses finales. En effet, ce tableau permet d'observer que ce sont les gouttes d'un diamètre équivalent de 4 mm qui sont les plus éloignées de leur état d'équilibre après 10 m de chute libre.

Une explication possible à ce phénomène est la déformation croissante des gouttes en fonction de leur taille. Plus elles grossissent, plus elles s'aplatissent, augmentant ainsi leurs traînées. Il semble ainsi que pour des gouttes plus larges que 4 mm, cet effet aérodynamique arrive à compenser l'inertie de la goutte. Ceci est illustré sur la Figure 17.

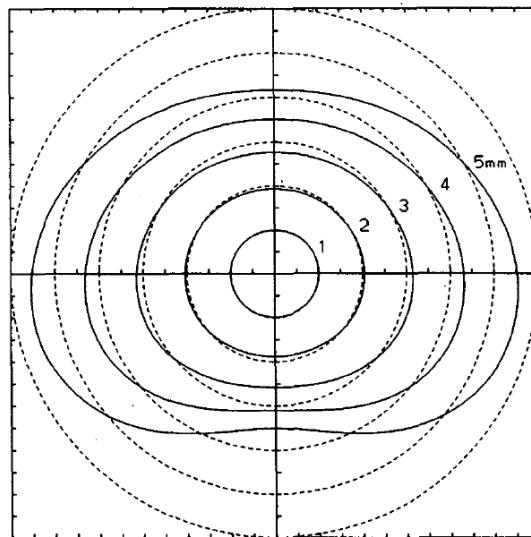


Figure 17 : Modélisation de forme de goutte (trait plein) par rapport à leur diamètre équivalent (pointillés) (Beard et al., 1989)

Il faut bien noter que ces calculs ne concernent qu'une forme moyenne ; à cause de l'oscillation de la forme des gouttes, celles-ci présentent une variété de formes bien plus grande.

Au vu de ces données, les expériences de mesures d'efficacité de collecte seront effectuées après un puits de chute d'une hauteur de 10 mètres. De plus amples investigations ont été menées, une fois l'installation achevée pour vérifier *in situ* la pertinence de ce choix. Ceci est l'objet de la partie suivante.

2.3. Validation expérimentale

2.3.1. A propos du rapport d'axes

La Figure 17 est l'occasion d'introduire un paramètre physique important pour la suite : le rapport d'axes.

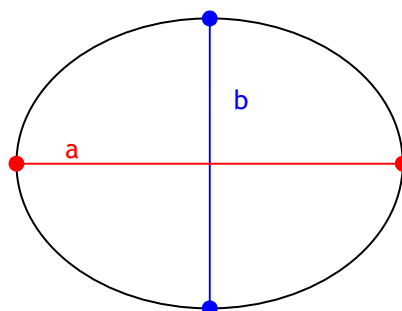


Figure 18 : Définition des axes de l'ellipse

En supposant que la goutte prenne une forme elliptique, le rapport d'axes est le rapport entre le petit axe (b) et le grand axe (a) de l'ellipse (voir Figure 18). Le rapport b/a est couramment utilisé dans la littérature pour décrire la forme d'une goutte (Andsager et al., 1999; Jones and

Saylor, 2009; Szakáll et al., 2009, 2010). La prise des images et le calcul du rapport d'axes dans le cas de cette étude sont développés dans la section 6.5.

2.3.2. Validation par l'utilisation du rapport d'axes

Au vu des travaux de Wang et Pruppacher (1977a), les gouttes générées dans BERGAME atteignent au moins 95 % de leur vitesse limite de chute. De plus, il faut s'assurer qu'elles chutent suffisamment longtemps pour que le temps de relaxation des oscillations soit atteint. Dans le cas contraire, les gouttes auraient des formes et des oscillations différentes des gouttes tombant depuis un nuage, entraînant un biais potentiel sur la mesure des efficacités de collecte.

Pour vérifier si les gouttes disposent d'une hauteur suffisante, la distribution des rapports d'axes obtenus dans BERGAME est comparée à la distribution des rapports d'axes mesurée dans la soufflerie verticale de Mayence (Szakáll et al., 2009), (cf. partie 6 de ce chapitre pour les détails sur la méthode de détermination des rapports d'axe).

D'après les résultats de Wang et Pruppacher (Wang and Pruppacher, 1977a), ce sont les gouttes d'un diamètre de 4,5 mm qui ont besoin du plus de hauteur de chute pour atteindre leur vitesse limite de chute (voir 2.2). Ce sont donc les rapports d'axes de ces gouttes, mesurés dans BERGAME, qui sont comparés à ceux mesurés par Szakáll *et al* (2009) pour des gouttes en sustentation.

La comparaison avec une soufflerie verticale est intéressante pour déterminer si le temps de relaxation a été atteint. Une goutte d'un diamètre de 4,5 mm peut rester en lévitation plusieurs minutes dans la soufflerie si la vitesse de l'air est égale à la vitesse limite de chute de la goutte. A 10 m.s^{-1} , plusieurs minutes correspondent à plusieurs centaines de mètres de chute, laissant le temps aux gouttes d'atteindre leur forme et leur fréquence d'oscillation d'équilibre.

La soufflerie verticale peut donc servir de référence pour déterminer si une goutte chute de suffisamment haut pour atteindre son état d'équilibre. Nous confrontons ainsi sur la Figure 19, les distributions de rapports d'axes mesurés dans BERGAME, pour des gouttes de 4,5 mm de diamètre équivalent, à des mesures réalisées dans la soufflerie de Mayence pour des gouttes de même taille.

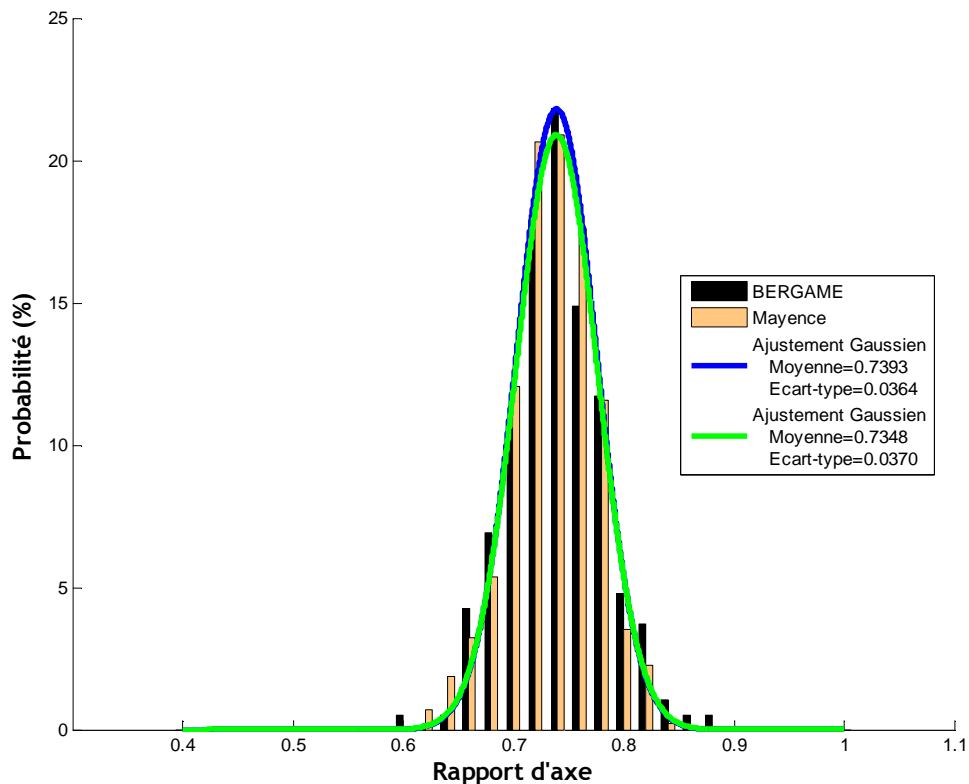


Figure 19 : Comparaison des rapports d'axes obtenus dans BERGAME et à Mayence pour des gouttes de 4,5 mm

Précisons que les mesures réalisées dans la soufflerie de Mayence sont elles-mêmes similaires aux distributions des rapports d'axes « naturels » (Bringi et al., 2003; Thurai et al., 2009). La Figure 19 montre une excellente correspondance entre les distributions des rapports d'axes obtenus entre la soufflerie de Mayence et BERGAME. Ces données sont suffisamment proches pour conclure que les gouttes arrivent dans la cuve de BERGAME dans des conditions représentatives d'une pluie, que ce soit du point de vue de leur vitesse de chute ou de leur distribution de rapports d'axes.

3. Génération des gouttes

3.1. Dispositif technique

Notre objectif est de produire des gouttes de diamètres compris entre 1 et 5 mm. Pour chaque expérience, les gouttes doivent toutes avoir exactement la même taille. La fréquence de génération doit être assez élevée pour éviter des expériences trop longues, mais aussi suffisamment faibles pour qu'une goutte ne soit pas perturbée par le sillage de la goutte précédente.

Un générateur inspiré de Lai *et al* (1978) et Andsager *et al* (1999) a été développé ; son principe de fonctionnement est illustré sur la Figure 20.

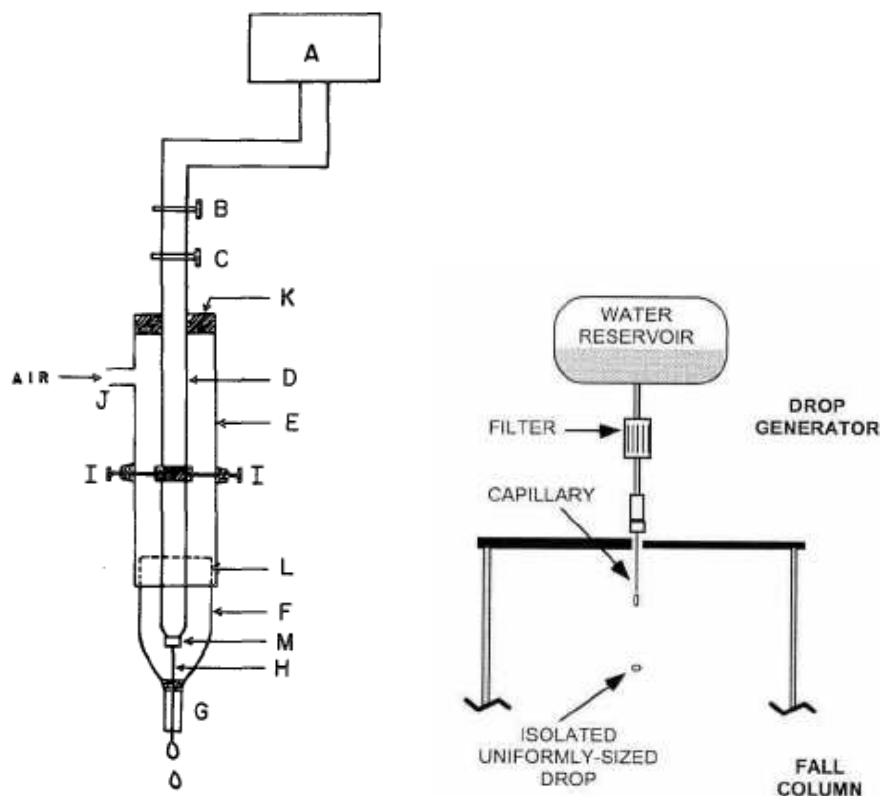


Figure 20 : A gauche le générateur de Lai *et al* (1978), à droite celui d'Andsager *et al* (1999)

Comme le montre la Figure 20, la génération des gouttes pour le système développé par Andsager *et al* (1999) se fait uniquement par gravité. La taille de l'aiguille commande le diamètre des gouttes, tandis que la hauteur d'eau (la pression d'eau dans l'aiguille) régule la fréquence de décrochage des gouttes.

Cette configuration permet d'obtenir des gouttes dont le diamètre est compris entre 2 mm (aiguille de 27 Gauss¹, soit un diamètre de 0,4 mm) et 2,9 mm (aiguille de 15 Gauss). Les gouttes de 4,5 mm sont générées à partir d'une aiguille à embout plat de 4 mm de diamètre. Les gouttes de 4,5 mm servent principalement à qualifier BERGAME ; en effet, ce sont elles qui nécessitent la hauteur de chute la plus importante (voir 2.2), et dont de nombreuses données morphologiques sont disponibles à partir des expériences en souffleries.

La distribution en taille des gouttes ainsi générées est mesurée par ombroscopie (voir section 6.5 pour les développements à propos de cette technique d'imagerie).

La Figure 21 montre la distribution de diamètre de gouttes générées avec une aiguille de 25 Gauss. Pour cette distribution, le diamètre moyen des gouttes est de 2,45 mm, l'écart-type de 0,04 µm et l'écart-type géométrique de 1,018.

La génération des gouttes par ce système est donc presque mono-dispersée, avec une variabilité extrêmement faible de la génération de ces gouttes.

¹ Le Gauss est l'unité de mesure des diamètres d'aiguilles. Plus la valeur est importante, plus l'aiguille est fine

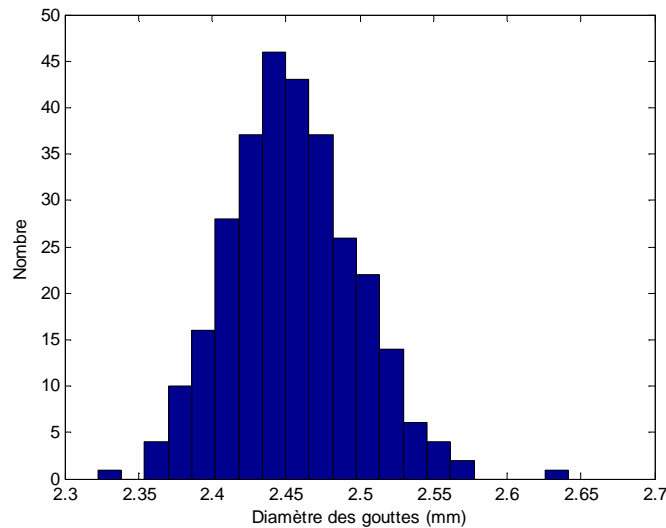


Figure 21 : Exemple de distribution de gouttes

Une distribution est considérée comme mono-dispersée dès lors que son écart-type géométrique est inférieur à 1,2 (la distribution est parfaitement mono-dispersée pour un écart-type géométrique de 1).

Donc notre générateur crée une distribution de gouttes qui peut être considérée mono-dispersée. Mais cette mono-dispersion est-elle suffisante pour considérer que toutes les gouttes générées ont exactement la même taille ? Il faut déterminer quelle serait l'erreur commise en considérant que toutes les gouttes sont générées avec un diamètre égal au diamètre moyen de la distribution.

3.2. Indications sur la performance du générateur de gouttes

Le dénominateur de l'équation définissant l'efficacité de collecte est la masse d'aérosols rencontrée par la goutte au cours de sa chute (Équation 17). Considérant la concentration massique de l'aérosol C_{mfluo} homogène dans le volume, et considérant que la goutte ne rencontre des particules que sur une hauteur H , la masse rencontrée est écrite comme :

$$\text{Équation 20} \quad m_{rencontrée} = C_{mfluo} H S$$

Où S est la section de la goutte définissant le cylindre balayé. Par soucis de simplification, la section est définie comme le disque de diamètre D_G .

Ce diamètre D_G est le diamètre de la sphère de volume égal au volume de la goutte.

Ainsi, pour une distribution quelconque de gouttes, la masse rencontrée s'écrit comme la somme des volumes balayés par la distribution des gouttes $f_G(D_G)$:

$$\text{Équation 21} \quad m_{rencontrée} = C_{mfluo} H \int_{D_G=0}^{\infty} \frac{\pi D_G^2}{4} f_G(D_G) dD_G$$

Pour une distribution de gouttes parfaitement mono-dispersée, on écrit :

$$\text{Équation 22} \quad m_{\text{rencontrée}} = C_{\text{mfluo}} H \frac{\pi D_G^2}{4}$$

Appliquée aux résultats de nos mesures expérimentales, la différence entre les deux modes de calcul des masses rencontrées est de l'ordre de 5 %. Dans un premier temps, c'est l'Équation 22 qui est utilisée pour calculer la masse de particules présente dans le volume balayé par la goutte lors de sa chute.

Dans un second temps, après une étude exhaustive des sources d'incertitudes expérimentales, nous aviserons s'il est nécessaire d'utiliser la formulation de l'Équation 21 pour diminuer significativement l'incertitude globale. Si l'incertitude engendrée par l'utilisation de l'Équation 22 s'avère négligeable par rapport aux autres sources d'incertitudes, alors cette équation continuera d'être utilisée.

3.3. Plan général de BERGAME

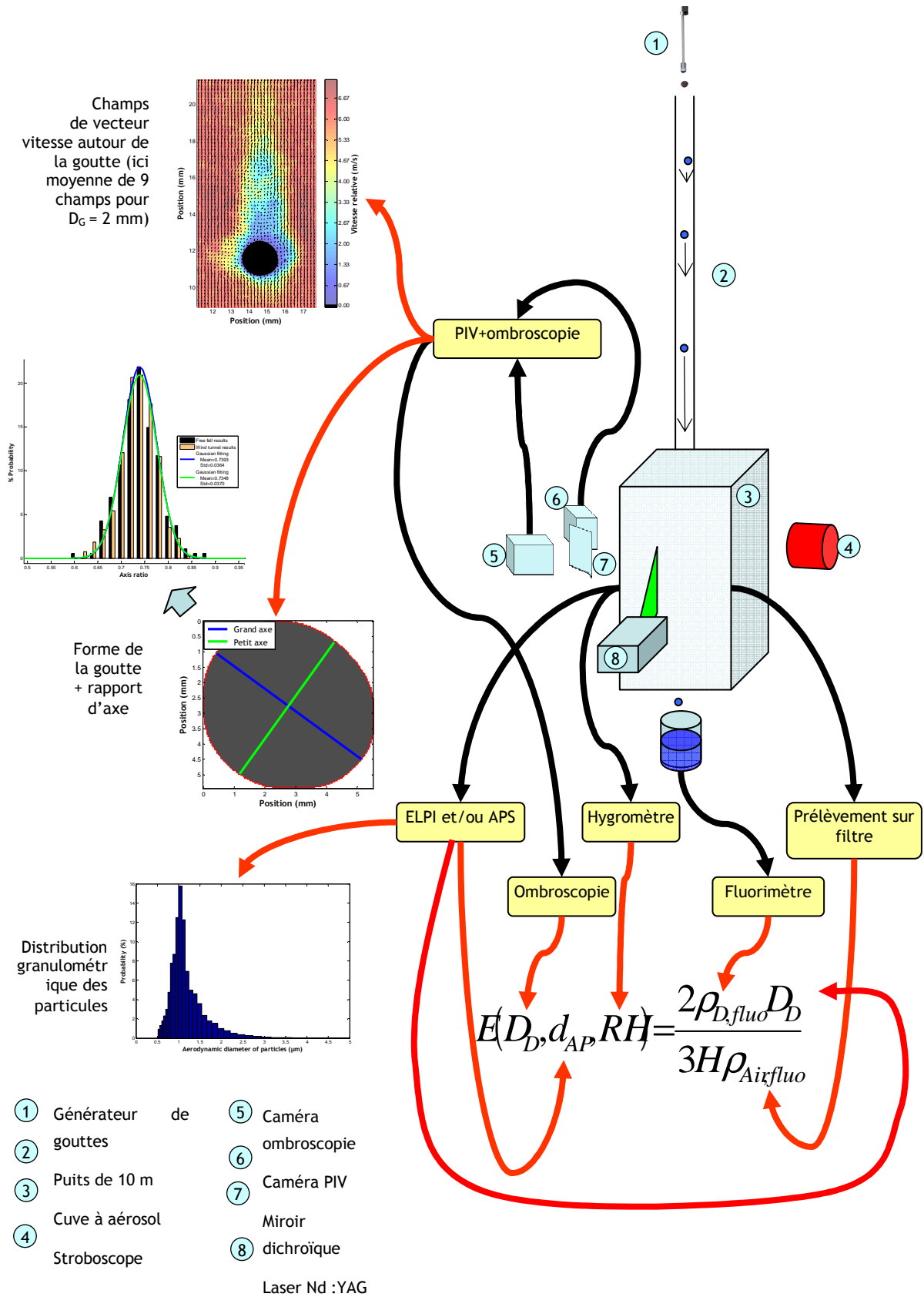


Figure 22 : Plan général de BERGAME

4. Choix de l'aérosol

4.1. Choix de la fluorescéine

Les gouttes générées sont photographiées durant leur chute à travers la cuve contenant les aérosols grâce au dispositif décrit dans la partie 6. Après avoir traversé le nuage de particules confinées dans la cuve de BERGAME, les gouttes sont récoltées. Puis la concentration massique des aérosols dans les gouttes est mesurée. La masse d'aérosols captée est ainsi obtenue en multipliant le volume moyen des gouttes par la concentration massique.

L'efficacité de collecte ne peut être déterminée que si la masse d'aérosols capturée par les gouttes est mesurable.

De par sa très grande détectabilité et sa facilité d'utilisation la molécule de fluorescéine a été choisie comme constituant de l'aérosol.

Les particules de fluorescéine captées par la goutte durant sa chute se dissolvent dans la goutte, rendant ces molécules potentiellement fluorescentes.

Pour mesurer la fluorescence d'un liquide avec les fluorimètres disponibles au laboratoire, un volume minimal de 1,2 ml est nécessaire. En conséquence, près de mille gouttes de 1 mm ou huit gouttes de 5 mm doivent être collectées pour procéder à la mesure de fluorescence. Ainsi, ce volume d'eau à récupérer conditionne fortement l'expérience.

Pour un nombre plus important de gouttes à récolter, il existe deux options :

- allonger la durée de l'expérience,
- augmenter la fréquence de chute des gouttes.

Une durée prolongée de l'expérience oblige à une performance accrue du confinement et oblige à s'assurer de l'homogénéité temporelle de la concentration de particules de fluorescéine sur une plus longue période. De plus, la fréquence de chute des gouttes ne peut pas être augmentée indéfiniment : d'une part les gouttes ne doivent pas se suivre de trop près pour éviter que le sillage d'une goutte perturbe la goutte suivante, d'autre part, quand la pression dans l'aiguille devient trop importante (en augmentant la pression dans l'aiguille du générateur, la fréquence de chute est augmentée), un jet d'eau continu sort de l'aiguille, et non plus un train de gouttes.

Il faut donc trouver expérimentalement le meilleur compromis pour collecter le plus d'eau possible dans le temps le plus court possible.

4.2. Intensité de fluorescence et concentration massique

Pour mesurer par fluorimétrie la concentration massique de la solution récoltée, celle-ci est soumise à un rayonnement d'une longueur d'onde de 488 nm. Les molécules de fluorescéine réagissent à cette longueur d'onde en réémettant un rayonnement d'une

longueur d'onde autour de 520 nm (phénomène de fluorescence). Une photodiode permet la mesure de l'intensité de ce rayonnement de fluorescence. L'intensité réémise est une fonction linéaire de la concentration de fluorescéine en solution. La Figure 23 présente la réponse de chacune des deux photodiodes du fluorimètre en fonction de la concentration massique en fluorescéine de la solution analysée. Ces mesures de calibration de l'instrument sont effectuées périodiquement.

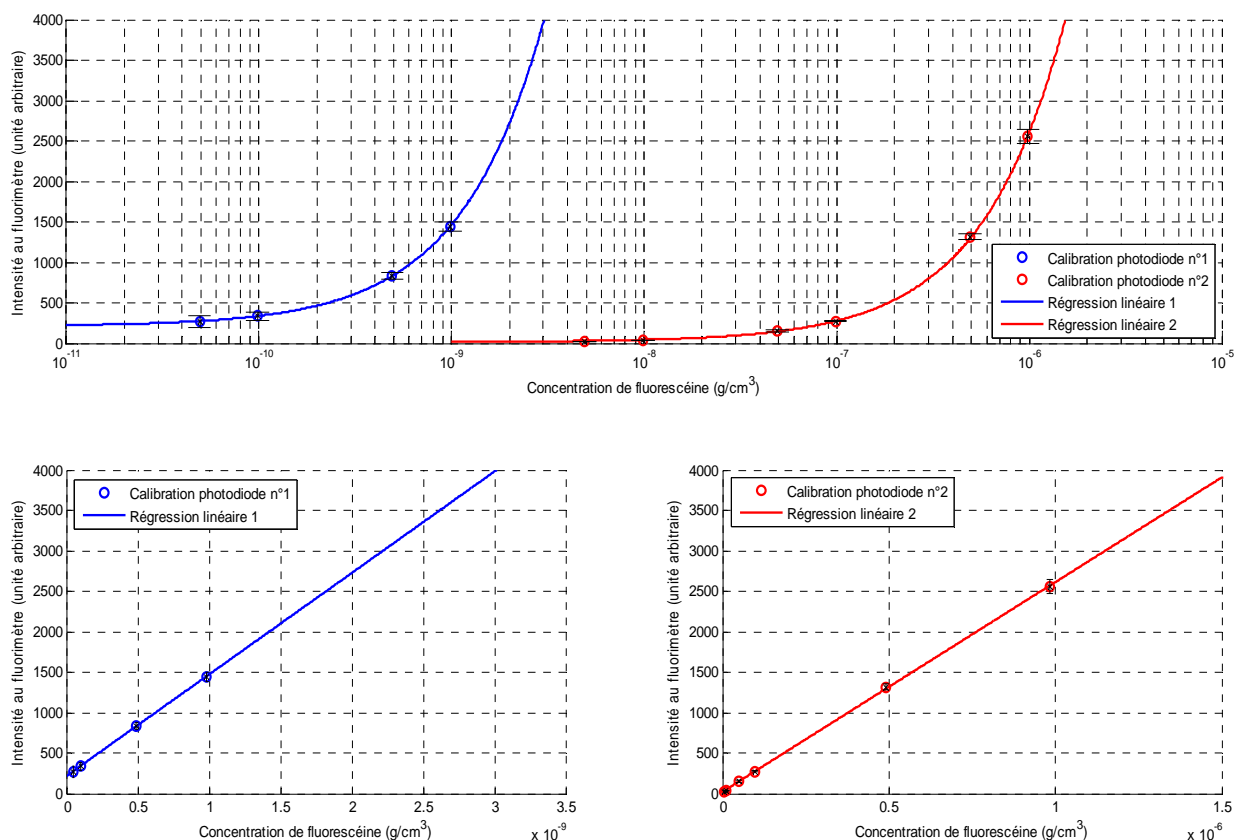


Figure 23 : Intensité de fluorescence mesurée en fonction de la concentration de fluorescéine

La Figure 23 montre l'intensité de fluorescence mesurée en fonction de la concentration de fluorescéine. Et on remarque que la réponse des photodiodes n'est pas parfaitement proportionnelle à l'intensité à laquelle elles sont soumises sur toute la gamme de concentration de fluorescéine mesurée (Figure 24).

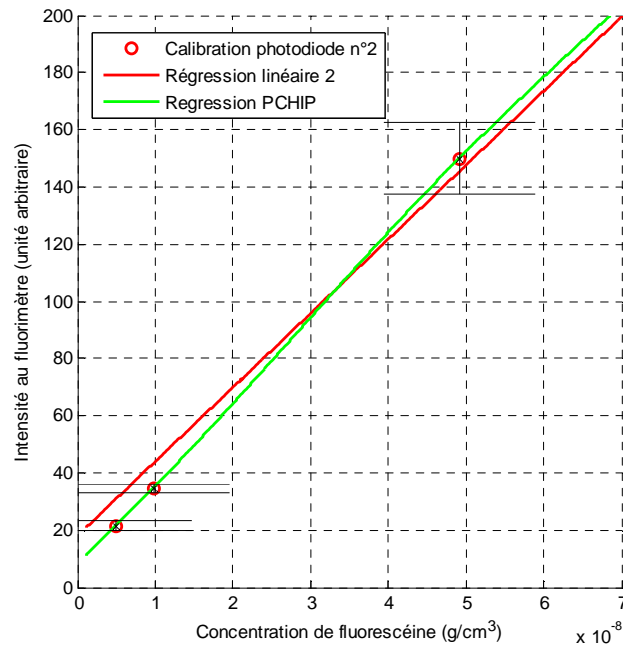


Figure 24 : Défaut de la régression linéaire

La Figure 24 montre qu'une régression linéaire va sous-estimer la concentration de fluorescéine en solution, pour une lecture d'intensité sur l'appareil avec une intensité inférieure à 60 sur la diode n°2. Pour éviter ce type d'erreur, une interpolation de Hermite du troisième degré est utilisée (*Piecewise Cubic Hermite Interpolating Polynomial*, PCHIP ; Fritsch et Carlson, 1980). Cette interpolation est également représentée sur la Figure 24.

La Figure 23 montre que la gamme de concentration mesurable va de $1.10^{-11} \text{ g.cm}^{-3}$ à $1,5.10^{-6} \text{ g.cm}^{-3}$. Cette limite de détection de la fluorescéine impose certaines contraintes sur la génération et le confinement des aérosols. Ces contraintes et leurs conséquences sur l'expérience BERGAME sont développées dans la partie 5.

4.3. Hygroscopicité des aérosols de fluorescéine

Le diamètre effectif des aérosols dépend de l'humidité de l'air qui les entoure lorsqu'ils sont hygroscopiques (Topping et al., 2005a, 2005b).

L'hygroscopicité d'un aérosol est décrite par son facteur de grossissement (*Growth Factor*) en fonction de l'humidité. Le facteur de grossissement est le rapport entre le diamètre d'une particule sous une humidité donnée et le diamètre de cette même particule dans un air totalement sec.

Il a donc fallu mesurer cette hygroscopicité pour les particules de fluorescéine. Pour cela, un *Hygroscopicity Tandem Differential Mobility Analysers* (HTDMA) construit au LaMP a été utilisé pour effectuer cette mesure. La Figure 25, extraite de la publication de Villani et al (2008) schématise le HTDMA qui a été développé au LaMP et dont les mesures ont été

validées par une série d'inter-comparaisons avec cinq autres HTDMA européens et australien dans le cadre du programme européen EUSAAR (Duplissy et al., 2009).

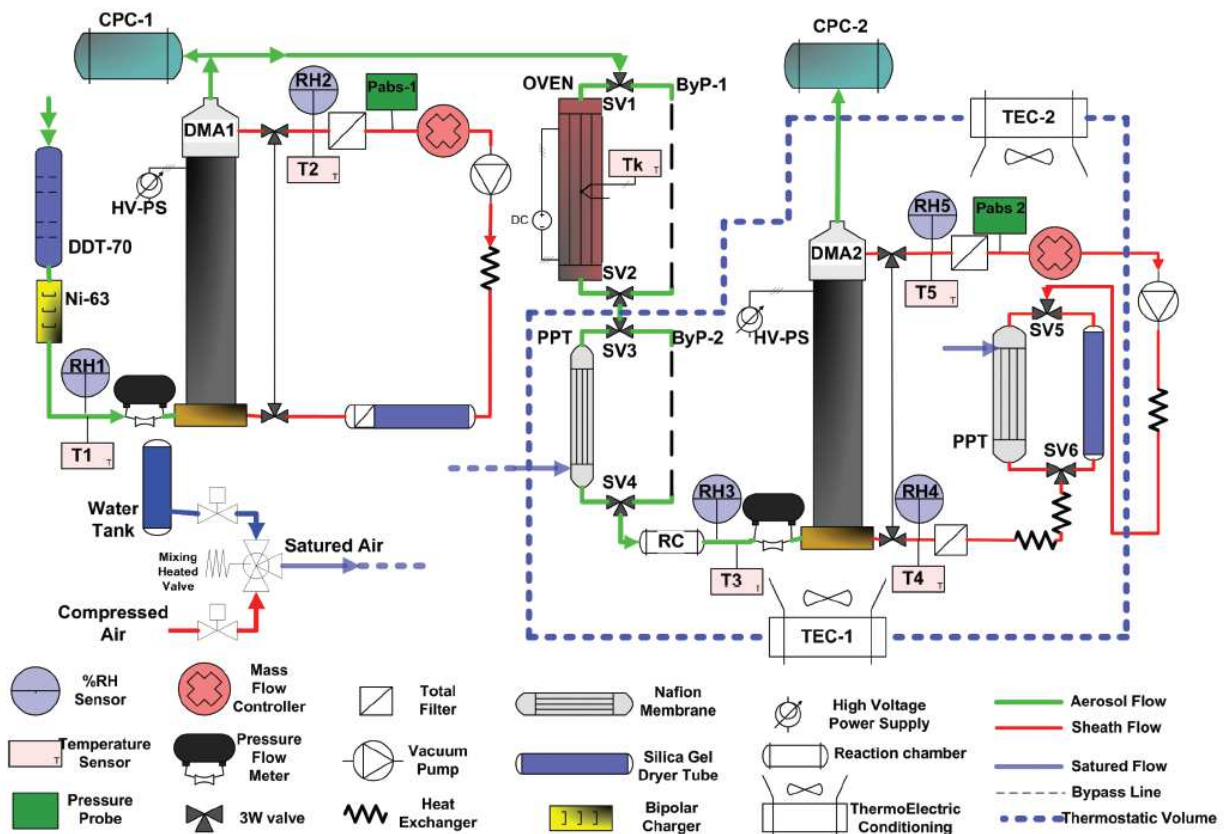


Figure 25 : Schéma de l'HTDMA du LaMP (Villani et al., 2008)

Tout d'abord, les aérosols dont on souhaite connaître le facteur de grossissement, sont mis en suspension à l'aide d'un atomiseur. Puis, l'air entraînant ces aérosols est séché (au travers d'un déshumidificateur au silicagel, DDT-70 sur la Figure 25), jusqu'à atteindre une humidité relative de 10 %. Cet aérosol sec passe ensuite par un premier DMA (*Differential Mobility Analyser* (Baron and Willeke, 2001) DMA1 sur la Figure 25) qui va sélectionner les aérosols de mobilité électrique identique. Les particules ainsi sélectionnées sont ensuite mélangées à un flux d'air dont l'humidité est imposée. La granulométrie des aérosols en suspension dans cet air humide est ensuite mesurée au travers d'un second DMA, dont l'humidité (via le flux de transport) interne est réglée à l'identique de l'humidité de l'air arrivant du premier DMA. Le deuxième DMA va sélectionner tour à tour différents diamètres de particules, dont le nombre correspondant est à chaque fois mesuré par un CPC (*Condensation Particle Counter*, TSI-3010, CPC-2 sur la figure). Ce scan permet d'établir la distribution granulométrique des aérosols soumis à l'humidité choisie.

Le rapport entre le diamètre moyen de l'aérosol humidifié et le diamètre sec sélectionné par le premier DMA donne le facteur de grossissement.

Compte tenu du fait que le diamètre de mobilité électrique est indépendant de la masse volumique de la particule, le facteur de grossissement est bien un rapport de diamètres

équivalents en volume, ce qui facilite le calcul du diamètre équivalent en volume dans BERGAME. En effet, à partir du diamètre aérodynamique des aérosols mesurés dans la cuve de BERGAME, de l'humidité relative, ainsi que du facteur de grossissement, il est possible de calculer le diamètre équivalent en volume des particules.

L'Équation 23 pose le diamètre équivalent à une sphère d'un aérosol d_{AP} en fonction du facteur de grossissement F_G et du diamètre sec d_{APsec} . Le diamètre sec est le diamètre de l'aérosol dans un air dépourvu d'humidité.

$$\text{Équation 23} \quad d_{AP}(RH) = d_{APsec} \cdot F_G(RH)$$

La masse totale d'une particule est la somme de sa masse sèche m_{APsec} et de sa masse d'eau m_{eau} . Sa masse volumique s'écrit donc :

$$\text{Équation 24} \quad \rho_{AP} = \frac{m_{APsec} + m_{eau}}{\frac{\pi}{6} d_{AP}^3}$$

La masse sèche et la masse d'eau peuvent être écrites en fonction des masses volumiques et des diamètres respectifs :

$$\rho_{AP} = \frac{\rho_{APsec} d_{APsec}^3 + \rho_{eau} (d_{AP}^3 - d_{APsec}^3)}{d_{AP}^3}$$

La masse volumique des particules de fluorescéine sèche est fournie par Stöber et Flachsbar (1973).

En intégrant la définition du facteur de grossissement dans l'équation, on obtient le résultat suivant :

$$\rho_{AP} = \frac{\rho_{APsec} d_{APsec}^3 + \rho_{eau} (d_{APsec}^3 \cdot F_G^3 - d_{APsec}^3)}{d_{APsec}^3 F_G^3}$$

Cette équation peut être simplifiée de la manière suivante :

$$\text{Équation 25} \quad \rho_{AP} = \frac{\rho_{APsec} + \rho_{eau} (F_G^3 - 1)}{F_G^3}$$

La Figure 26 présente les mesures réalisées, avec ce HTDMA et avec l'aide de Maxime Hervo (LaMP) pour caractériser le facteur de grossissement de l'aérosol de fluorescéine.

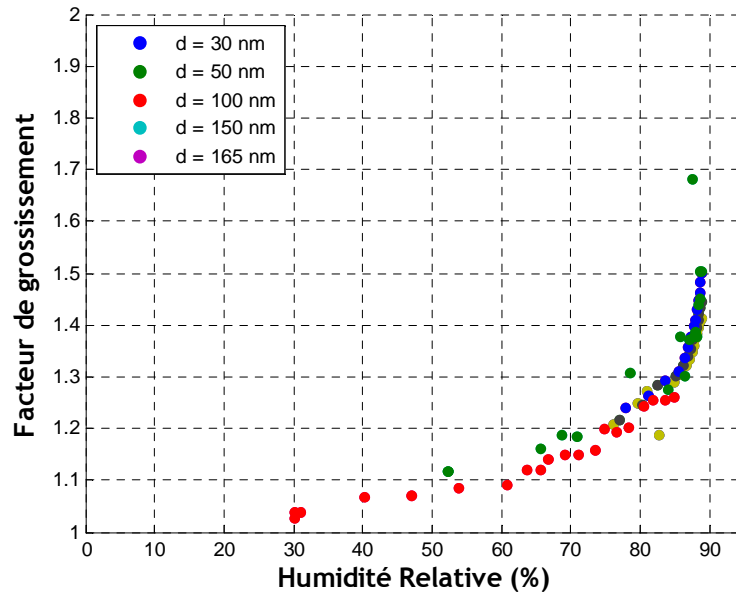


Figure 26 : Facteur de grossissement de la fluorescéine en fonction de l'humidité relative. Les diamètres des particules sont présentés en diamètre de mobilité électrique

Nous observons sur cette figure que le facteur de grossissement (*Growth Factor*) ne dépend pas de la taille de l'aérosol, ce qui est en accord avec les travaux de Topping (Topping et al., 2005b).

Ces résultats montrent également l'absence de point de déliquescence pour l'aérosol de fluorescéine, contrairement aux aérosols de chlorure de sodium par exemple. La fluorescéine est un aérosol organique ($C_{20}H_{10}Na_2O_5$). Topping *et al* (Topping et al., 2005a) montrent une absence de point de déliquescence pour de nombreux aérosols organiques. Ainsi, le résultat obtenu ici ne dénote pas du comportement commun des aérosols organiques.

L'enseignement à tirer de la Figure 26 est qu'il faut toujours tenir compte de ce facteur de grossissement pour le calcul de la masse volumique de l'aérosol, surtout pour des humidités relatives supérieures à 80 %. Au-delà de cette valeur, les variations de diamètres deviennent importantes en fonction de l'humidité. A 85 % d'humidité relative, une augmentation de 2 % de celle-ci entraîne un grossissement de 9 % de l'aérosol. C'est donc pour éviter ces écarts de diamètres importants, qui ne seront pas forcément maîtrisés, que les mesures dans un environnement trop humide sont évitées dans un premier temps.

Néanmoins, lors d'un épisode pluvieux, l'humidité de l'air va monter jusqu'à la saturation si l'épisode est suffisamment long. De plus, il est connu que l'efficacité de collecte décroît en fonction de l'humidité (Wang and Pruppacher, 1977b). Il faut donc également réaliser des expérimentations à des humidités plus élevées pour obtenir des courbes d'efficacité de collecte à des humidités plus proches des applications environnementales.

4.4. Influence du pH de la solution sur le rendement de fluorescence de la fluorescéine

La fluorescéine se prête très mal à une utilisation en milieu neutre (pH = 6-7) (Boutaric and Roy, 1939; Mota et al., 1991). Ceci impose de prendre des précautions dans son usage expérimental. En effet, son rendement de fluorescence se dégrade très rapidement. La Figure 27 montre que, dans des conditions de pH neutre, la molécule soumise à la longueur d'onde excitatrice, perd la moitié de sa capacité de fluorescence en 30 s. Ceci implique de conserver les échantillons à l'abri de la lumière du jour : le rayonnement solaire n'étant pas exempt de la longueur d'onde de 488 nm.

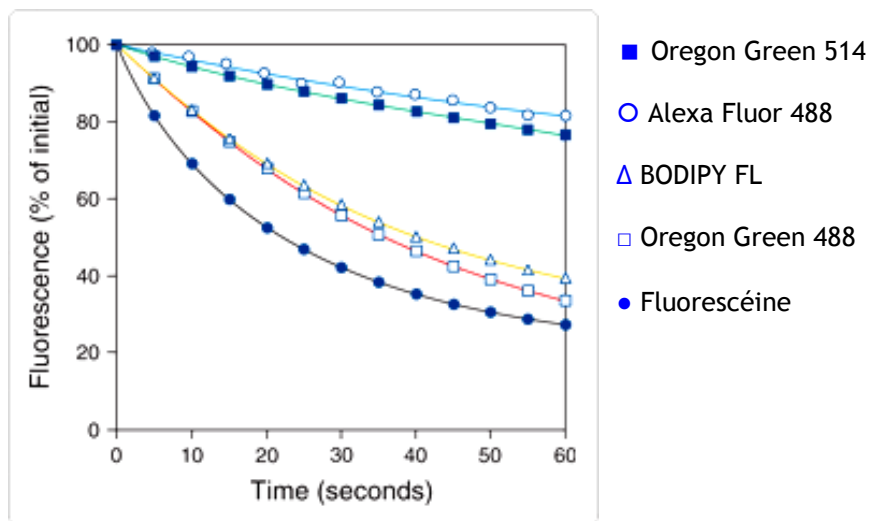


Figure 27 : Dégradation de différentes molécules fluorescentes soumises à leur longueur d'onde excitatrice sous pH neutre (Invitrogen.com)

Non seulement la fluorescéine n'est pas stable à pH neutre, mais, en plus, son rendement de fluorescence décroît fortement lorsque le pH de la solution diminue. La Figure 28 permet de voir qu'au-delà de pH = 8, la dépendance au pH devient beaucoup plus faible (Sjoberg et al., 1995).

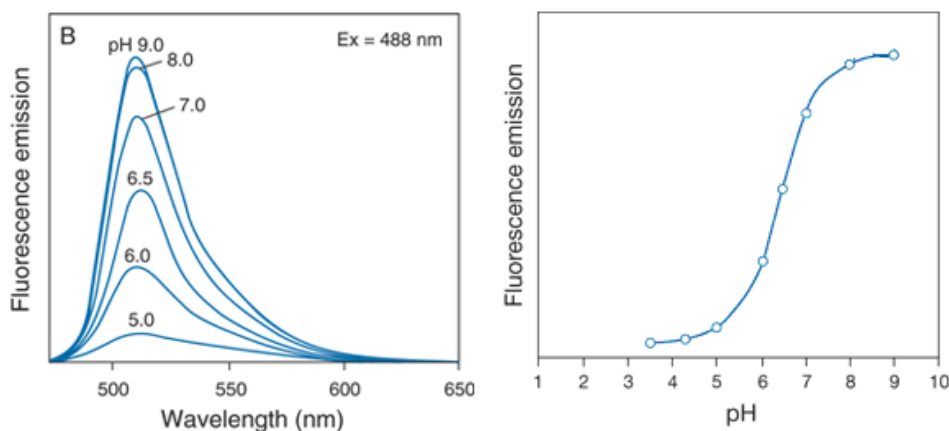


Figure 28 : Emission de la molécule de fluorescéine en fonction du pH (Invitrogen.com)

Il est donc nécessaire que les gouttes générées aient un pH supérieur ou égal à 9 pour que la fluorescence mesurée ne dépende que de la concentration en fluorescéine. Pour s'assurer

d'une solution suffisamment basique, les gouttes tombant dans BERGAME ne sont pas constituées d'eau pure. L'eau servant à générer les gouttes est en effet ammoniaquée à raison de quelques centilitres par litre pour que celle-ci atteigne un pH supérieur à 9.

5. Génération et confinement des aérosols

5.1. Objectifs à atteindre pour la concentration des particules

La description de la génération et du confinement des aérosols sont regroupés dans le même chapitre car ils tendent tous les deux vers le même objectif, à savoir que la goutte rencontre le plus grand nombre de particules durant sa traversée de la cuve afin que la mesure de la masse d'aérosols captée par les gouttes soit facilitée.

Tandis que la génération de particules doit être la plus importante possible, le confinement doit permettre de limiter au maximum les fuites hors de la cuve et, en particulier, dans le puits de chute.

En premier lieu, il faut donc calculer une concentration minimale à atteindre pour que les particules de fluorescéine capturées par les gouttes soient détectables.

L'équation décrivant l'efficacité de collecte E des aérosols par une goutte est rappelée. Il s'agit du rapport entre la masse d'aérosols captée par la goutte $m_{captée}$ et la masse d'aérosols rencontrée par la goutte $m_{rencontrée}$.

$$\text{Équation 26} \quad E = \frac{m_{captée}}{m_{rencontrée}}$$

La masse captée est mesurée grâce à la technique décrite dans la partie 4.2. La plus faible concentration de fluorescéine mesurable étant de $1.10^{-11} \text{ g.cm}^{-3}$, la masse captée minimale mesurable ne va dépendre que du volume de la goutte. Quant à la masse de particules rencontrée par la goutte, elle va dépendre de sa section, de la hauteur de chute et de la concentration massique d'aérosols sur son chemin.

L'Équation 26 développée donne :

$$\text{Équation 27} \quad E = \frac{C_{Gfluo} \frac{\pi}{6} D_G^3}{\frac{\pi}{4} D_G^2 H C_{mfluo}}$$

Où C_{Gfluo} est la concentration massique de fluorescéine dans la goutte, D_G le diamètre équivalent en volume de la goutte, H la hauteur de la cuve et C_{mfluo} la concentration massique de fluorescéine sous forme d'aérosols dans la cuve.

L'Équation 27 se simplifie en :

$$\text{Équation 28} \quad E = \frac{2 C_{Gfluo} D_G}{3 H C_{mfluo}}$$

La concentration N (en part/cm³) générée par les systèmes présentés dans la partie 5.2 est indépendante de la taille de l'aérosol produit. Il est donc intéressant de calculer cette efficacité en fonction d'une concentration en nombre, pour extraire la taille de l'aérosol et mettre en avant la taille de l'aérosol dans les limitations de la méthode.

La concentration massique se calcule ainsi en fonction de la masse volumique ρ_{AP} et du diamètre d_{AP} de la particule et de la fonction de distribution en nombre $f_{AP}(d_{AP})$ des particules de diamètre d_{AP} par unité de volume :

$$\text{Équation 29} \quad C_{Mfluo} = \int_{d_{AP}=0}^{\infty} \rho_{AP} \frac{\pi}{6} d_{AP}^3 f_{AP}(d_{AP}) dd_{AP}$$

Considérant la distribution granulométrique parfaitement mono-dispersée, l'Équation 28 s'écrit alors :

$$\text{Équation 30} \quad E = \frac{4 D_G C_{Gfluo}}{\pi H \rho_{AP} d_{AP}^3 N}$$

La concentration minimale de particules est tracée pour différentes efficacités de collecte. La Figure 29 montre les concentrations minimales à atteindre dans la cuve pour effectuer des mesures d'efficacité de collecte sur toute la gamme de taille des aérosols.

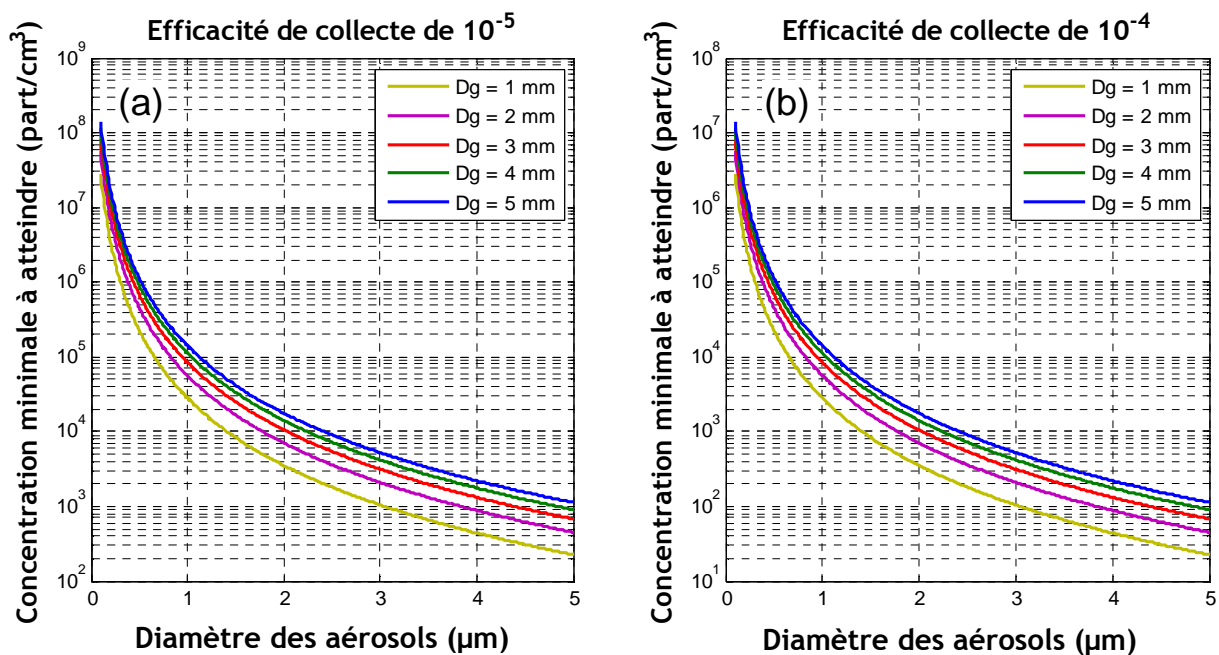


Figure 29 : Concentration minimale en fonction du diamètre des aérosols pour des efficacités de collecte de 10⁻⁵ (a) et 10⁻⁴ (b)

Nous observons sur ces figures que si l'efficacité de collecte est inférieure à 10^{-4} , il est nécessaire d'atteindre des concentrations supérieures à 10^5 part/cm³ pour des aérosols dont le diamètre est de 0,5 µm, sinon les concentrations de fluorescéine seront inférieures à la limite de détection du fluorimètre. Les efficacités de 10^{-5} et 10^{-4} ont été choisies car il semble que ce soit les efficacités les plus basses que l'on ait à rencontrer expérimentalement d'après les données de Wang et Pruppacher (1977b).

Il est permis de calculer la concentration massique minimale à atteindre pour mesurer l'efficacité de collecte à partir de l'équation précédente à partir de l'Équation 28 :

$$\text{Équation 31} \quad C_M = \frac{2 D_G C_{G\text{fluo}}}{3 H E}$$

L'Équation 31 permet d'étudier la concentration massique de fluorescéine à atteindre dans la cuve de BERGAME pour pouvoir mesurer la masse de particules captée par les gouttes. La concentration massique limite est indépendante de la taille de l'aérosol, ce qui rend plus facile son utilisation. Ces concentrations limites sont indicatives, l'efficacité elle-même restant à mesurer.

Il faut ajouter que la concentration en nombre de particules ne peut pas être augmentée à l'infini ; au-delà d'une certaine concentration, la coagulation des particules entre-elles va les faire grossir, et limiter d'autant le nombre d'aérosols en suspension.

Par exemple, pour une distribution d'aérosols mono-dispersée de 0,15 µm, il faudrait idéalement une concentration d'environ 1.10^7 part/cm³ pour pouvoir mesurer l'efficacité de collecte. Or, à une telle concentration, il suffit d'une durée de trois minutes pour diviser par deux la concentration (sans renouvellement des aérosols et dans un confinement parfait) et de vingt-trois minutes pour doubler le diamètre moyen des aérosols par coagulation (Baron and Willeke, 2001). Alors que pour une concentration seulement dix fois plus faible (1.10^6 part/cm³), il faut trente-trois minutes pour que la concentration retombe à 5.10^5 part/cm³, et près de quatre heures pour doubler la taille des particules.

Ainsi, même si le meilleur confinement de la cuve et la génération la plus dense possible sont recherchés, il est inutile de vouloir atteindre des concentrations de particules supérieures à 1.10^6 part/cm³, concentration à partir de laquelle les phénomènes de coagulation deviennent significatifs. Remarquons tout de même qu'il ne nous a jamais été possible d'approcher une telle concentration, la concentration de particules dans la cuve de BERGAME n'a jamais dépassé les 10^5 part/cm³.

Connaître la concentration en nombre par granulométrie (par un *Aerodynamic Particle Sizer*, APS ou un *Electrical Low Pressure Impactor*, ELPI pour nos expériences) est nécessaire pour décider en temps réel si la cuve contient une concentration suffisante de particules pour procéder aux expériences. Cependant, c'est la concentration massique d'aérosol dans la

cuve C_{mfluo} (Équation 28) qui est la donnée utilisée pour calculer l'efficacité de collecte. En effet, cette grandeur physique peut être mesurée aisément et de manière fiable par un prélèvement sur filtre. Le prélèvement sur filtre consiste à extraire l'atmosphère de la cuve (débit autour de 1 l/min). Cet air passe par un filtre THE (Très Haute Efficacité) qui va piéger tous les aérosols en suspension dans ce volume de gaz prélevé.

Mesurant la concentration massique c de fluorescéine dans le volume $V_{dilution}$ de 100 ml ayant servi à dissoudre la fluorescéine piégée sur le filtre, on en déduit la masse m_{fsf} de fluorescéine sur le filtre.

$$\text{Équation 32} \quad m_{fsf} = c \cdot V_{dilution}$$

Connaissant le débit volumique d'air $Q_{air-filtre}$ de filtration, ainsi que la durée Δt du prélèvement, on en déduit le volume d'air V_{tot} ayant traversé le filtre :

$$\text{Équation 33} \quad V_{tot} = Q_{air-filtre} \cdot \Delta t$$

La concentration massique de fluorescéine dans la cuve C_{mfluo} est donc le rapport entre la masse de fluorescéine présente sur le filtre et le volume d'air ayant transité par ce même filtre. Soit d'après l'Équation 32 et l'Équation 33 :

$$\text{Équation 34} \quad C_{mfluo} = \frac{m_{fsf}}{V_{tot}} = \frac{c \cdot V_{dilution}}{Q_{air-filtre} \cdot \Delta t}$$

Cette concentration massique permet de calculer la masse rencontrée par la goutte au cours de la chute.

5.2. Génération des aérosols

En plus de générer le plus grand nombre possible d'aérosols, il faut que la distribution granulométrique de ces particules soit mono-dispersée, ou du moins la plus centrée possible.

Pranisha et Kamra (1996a, 1996b, 1997) utilisent un générateur du type Berglund-Liu (Berglund and Liu, 1973) pour leurs expérimentations sur les mesures d'efficacité de collecte des aérosols par des gouttes.

Avec ce type de générateur, un jet d'une solution contenant l'aérosol à mettre en suspension passe au travers d'un orifice vibrant dont le diamètre varie entre 20 et 100 μm . Cet orifice est lui-même soumis à une fréquence de l'ordre de 50 kHz pour un orifice de 20 μm et de 5 kHz pour un orifice de 100 μm . La fréquence est réglée pour que le jet soit brisé de manière régulière, créant un train de gouttes de taille parfaitement identique. Ces gouttes n'ont plus qu'à être séchées pour obtenir des aérosols mono-dispersés.

Dans un premier temps, quelques essais ont été menés avec ce type de générateur à orifice vibrant. Mais si ce type de générateur fournit sans problème un aérosol mono-dispersé, sa grande faiblesse est la quantité de particules produites. Ainsi, il n'a jamais été possible d'atteindre des concentrations supérieures à 10^3 part/cm³, même dans une enceinte parfaitement close de volume réduit (160 l) par rapport à la cuve de BERGAME (490 l). Cette concentration maximale obtenue avec un générateur à orifice vibrant est insuffisante pour atteindre les objectifs expérimentaux tels qu'ils sont décrits dans la partie 5.1.

Un autre type de générateur d'aérosols a alors été utilisé, les générateurs ultrasonores. La pièce centrale de ce genre de générateur est une céramique piézoélectrique plongée au fond d'une solution. Cette céramique soumise à un courant électrique approprié vibre à une fréquence de 2 400, 500 ou 80 kHz selon les appareils utilisés. Soumise à cette oscillation, la surface du liquide se transforme en un brouillard de gouttelettes microniques. Ces gouttelettes ont la particularité d'avoir toutes un diamètre semblable, de sorte qu'une fois disséminées et séchées, les aérosols résultant ainsi générés ont donc des tailles très proches. Pour faire varier la taille des particules créées, il suffit de modifier la concentration de fluorescéine dissoute dans l'eau.

La Figure 30 montre que la distribution granulométrique mesurée par APS, obtenue avec un aérosol produit par un générateur ultrasonore n'est pas parfaitement mono-dispersée. Néanmoins, les distributions obtenues ont un écart-type géométrique de l'ordre de 1,3.

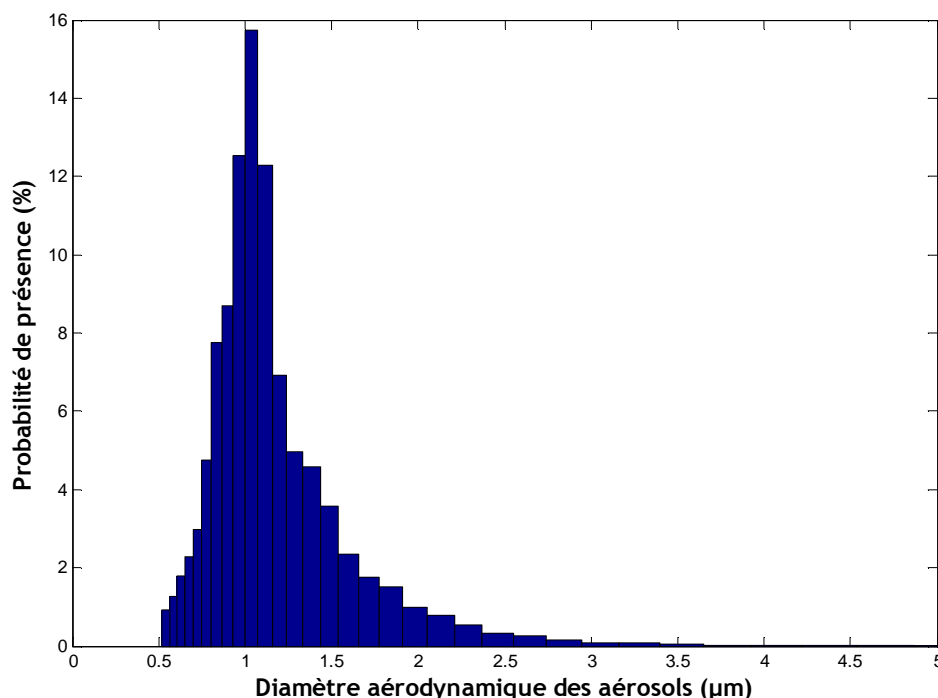


Figure 30 : Distribution granulométrique obtenue avec un générateur 2400 kHz et une concentration initiale de 60 g/l

Le grand avantage de cette catégorie de générateur est la grande quantité de particules produites. Par exemple, le générateur 2400 kHz peut remplir la cuve de BERGAME avec une concentration supérieure à $5 \cdot 10^4$ part/cm³, équivalent à une concentration massique de

l'ordre de $1.10^{-8} \text{ g.cm}^{-3}$ pour des aérosols autour de $1 \mu\text{m}$. Cet ordre de grandeur satisfait pleinement aux conditions de concentrations décrites dans la partie 5.1.

Il reste que l'exemple illustré par la Figure 30 n'est pas le cas le plus contraignant. Plus la taille désirée des aérosols sera faible, plus grande devra être la concentration en particules. Ainsi, nous avons été en mesure de générer des aérosols de fluorescéine pour des diamètres allant de $0,3 \mu\text{m}$ à $4 \mu\text{m}$.

5.3. Confinement des aérosols

Pour procéder à la mesure de l'efficacité de collecte des aérosols par les gouttes, il faut connaître la masse de particules rencontrée par la goutte durant sa chute. Ainsi dans BERGAME, la présence d'aérosols est proscrite en dehors de la cuve pour deux raisons. La première raison est que la goutte ne doit rencontrer des aérosols qu'une fois sa vitesse limite de chute atteinte afin de reproduire les conditions naturelles. La seconde raison est que connaissant parfaitement bien la hauteur de la cuve, il ne reste plus qu'à mesurer la concentration massique de particules dans la cuve pour mesurer de manière fiable l'efficacité de collecte. Tout aérosol capté en dehors de la cuve entraînera une surestimation de l'efficacité de collecte.

La priorité du confinement des aérosols dans la cuve de BERGAME est d'éviter leur diffusion à l'extérieur de celle-ci et particulièrement la contamination du puits de chute.

Le confinement des aérosols est complexe car il doit isoler les particules dans la cuve et laisser passer les gouttes sans les déformer. L'option d'un confinement mécanique (ouverture d'une trappe au passage de la goutte) a été abandonnée au profit d'un confinement dynamique : un flux d'air balayant en permanence les deux ouvertures de la cuve pour empêcher la dispersion d'aérosols au-delà de ce flux.

Pour limiter la fuite d'aérosols, les deux ouvertures faites à la cuve pour le passage des gouttes ont été réduites à un diamètre de 4 cm. Ce diamètre est un compromis entre une taille de goutte qui peut éventuellement atteindre 5 mm et la dispersion des trajectoires des gouttes lors de leurs chutes qui, elle, peut atteindre un diamètre d'une cinquantaine de centimètres pour des gouttes de moins de 2 mm. Cette large dispersion est due aux oscillations de la goutte qui entraînent une instabilité de l'écoulement d'air autour de la goutte, celle-ci étant d'autant plus sensible à ces instabilités que sa masse est faible. Ainsi, les gouttes aux trajectoires les plus instables sont les gouttes autour de 1 mm de diamètre, et en deçà, l'écoulement d'air autour de la goutte est laminaire, la goutte est alors de nouveau stable (Szakáll et al., 2009, 2010)

Ce diamètre d'ouverture permet de récupérer un nombre assez important de gouttes tout en limitant au maximum la perte d'aérosols par celle-ci. Ce diamètre de 4 cm a été établi de manière empirique.

Le confinement de la partie basse est assez simple à réaliser : une simple aspiration empêche les aérosols de contaminer le récipient situé sous la cuve qui récupère les gouttes. En revanche, au-dessus de la cuve, il est nécessaire de veiller à ce que le confinement ne modifie pas la forme des gouttes, autrement dit que la distribution des rapports d'axes reste inchangée avec ou sans confinement. Ainsi, ce flux est laminarisé par la mise en place de nids d'abeilles, puis le débit maximum est optimisé empiriquement pour ne pas modifier la distribution de rapport d'axes des gouttes.

La Figure 31 montre différentes vitesses d'écoulement d'air autour de l'ouverture supérieure de la cuve. Ces mesures de vitesses ont été réalisées à l'aide d'un anémomètre à fil chaud.

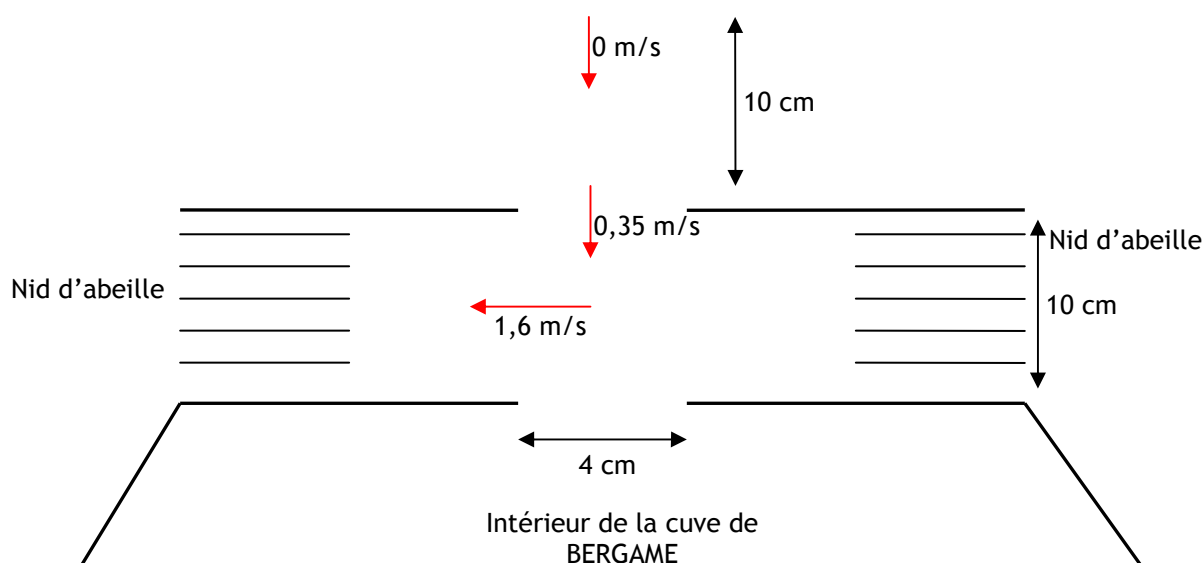


Figure 31 : Schéma de disposition du confinement dynamique du haut de la cuve de BERGAME et des vitesses d'écoulement associées

Le fait que l'air de la colonne s'engouffre dans le système de confinement tend à montrer l'efficacité de cette méthode de confinement, l'air de la cuve ne s'échappant pas dans la colonne.

Pour s'assurer définitivement de l'étanchéité de la cuve vis-à-vis des aérosols, des blancs de chute de gouttes sont réalisés. Les gouttes sont récoltées avant leur entrée dans la cuve, puis la concentration de fluorescéine dans l'échantillon est déterminée. Un échantillon vierge de toutes traces de fluorescéine est la preuve de l'absence de particules de fluorescéine dans le puits de chute.

En plus de confiner les aérosols dans la cuve, la perturbation créée par cette aspiration ne perturbe pas l'air autour de la cuve sur plus de 10 cm autour de l'ouverture supérieure (cf. Figure 31).

La Figure 32 superpose la distribution des rapports d'axes avec et sans le confinement (c'est à dire avec et sans courant d'air latéral). Celle-ci montre une influence quasiment nulle du confinement sur la déformation des gouttes.

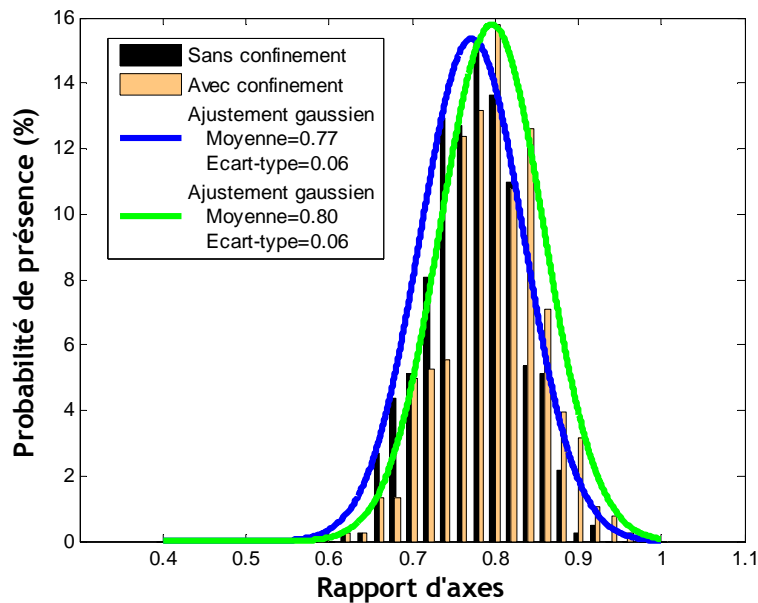


Figure 32 : Comparaison des distributions des rapports d'axes avec et sans confinement (courant d'air latéral)

Ainsi, la configuration du confinement choisie respecte pleinement les deux critères principaux qui sont d'éviter la fuite d'aérosols et de préserver la forme des gouttes.

Mais le choix de ce confinement dynamique présente le gros désavantage de limiter les concentrations en aérosols. En effet, un débit non négligeable est aspiré aux deux ouvertures de la cuve (environ une centaine de litres par minute) ce qui conduit à diminuer la concentration en fluorescéine au sein de la cuve.

6. Dispositif optique

6.1. Choix du dispositif

Un dispositif optique est installé et doit satisfaire à deux besoins distincts : déterminer la taille des gouttes traversant la cuve de BERGAME et mesurer les écoulements d'air autour de la goutte en fonction de sa forme et de sa taille.

A ces fins, les techniques d'ombroscopie et de PIV (*Particle Image Velocimetry*) sont couplées. D'autres auteurs ont déjà étudié la forme des gouttes en utilisant de l'ombroscopie (Bhalwankar et al., 2004; Testik et al., 2006; Jones and Saylor, 2009; Szakáll et al., 2009), par exemple. Cette technique a déjà fait ses preuves pour observer la forme des gouttes de pluie.

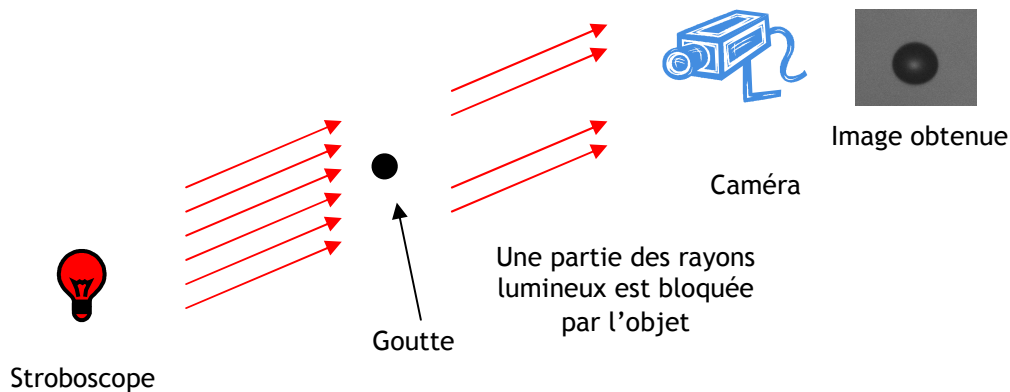


Figure 33 : Schéma de principe de l'ombroscopie

La source lumineuse utilisée pour pouvoir figer l'image d'une goutte durant sa chute doit avoir une impulsion courte. Et plus courte est cette impulsion, plus intense elle doit être pour sensibiliser le capteur de la caméra. Ainsi, la source utilisée pour l'observation des gouttes en chute libre est un stroboscope. Des sources cohérentes telles que des lasers sont à proscrire à cause des interférences qui se produisent aux interfaces. Néanmoins, un laser pulsé éclairant un écran diffusant ou fluorescent serait une option possible pour une utilisation en ombroscopie.

La PIV (Adrian, 1986; Willert and Gharib, 1991) est une technique d'imagerie utilisée pour caractériser des champs de vitesse. L'écoulement à caractériser estensemencé par des particules dont la taille doit être judicieusement choisie (Melling, 1997) : des particules trop petites ne seront pas visibles car elles diffusent trop peu de lumière, et des particules trop grosses ne suivront pas les fluctuations de l'écoulement du fait de leur inertie.

Les particules ensemençant cet écoulement sont éclairées par une nappe laser pulsée, d'où sont prises deux images successives du champ de particules. Les deux images sont ensuite divisées en petites surfaces (zones d'interrogations) qui sont corrélées entre une image et l'autre de manière à identifier le déplacement moyen des particules (voir la section 6.4 pour explication plus approfondie de la technique PIV).

Un défaut de la PIV est son application aux frontières de zones non ensemençées (une paroi, un obstacle, ou dans le cas présent, une goutte). Il y a alors dans les zones frontières l'apparition d'aberrations, le calcul des corrélations devenant impossible.

Pour surmonter cet obstacle, la technique des fenêtres adaptatives est appliquée. Cette méthode corrige les effets de parois, la taille et la forme des zones d'interrogations étant adaptées pour ne plus chevaucher ces zones dépourvues d'ensemencement. Encore faut-il être en mesure de délimiter ces zones non ensemençées (les gouttes en l'occurrence), surtout si les contours de celles-ci varient d'une paire d'images à l'autre, comme c'est le cas pour l'étude de la chute des gouttes.

Un certain nombre d'articles traite de la problématique de la PIV en milieu diphasique. Plusieurs auteurs (Lindken and Merzkirch, 2000, 2002; Khalitov and Longmire, 2002; Nogueira et al., 2002; Timgren et al., 2007; Sathe et al., 2008; Seol and Socolofsky, 2008) ont étudié les écoulements d'un liquide autour de bulles d'air. Dans leurs cas, le milieu tracé est l'eau (ou l'huile) et les zones à délimiter sont les bulles d'air.

Cette problématique est assez proche du problème qui nous intéresse, nous avons donc décidé d'adapter leurs solutions à notre problème, particulièrement celle de Sathe *et al* (2008). C'est ainsi que les images prises en ombroscopie serviront de masque aux images PIV pour que celles-ci ne soient traitées que sur les zonesensemencées, c'est-à-dire toute l'image en dehors des gouttes.

6.2. Montage optique

Un montage optique est réalisé de manière à prendre les quatre images nécessaires : deux images PIV et deux images correspondantes en ombroscopie, ces dernières servant de masque pour la PIV. Elles sont aussi utilisées pour étudier la forme des gouttes traversant la cuve de BERGAME et pour en déterminer le diamètre équivalent à une sphère (cf. partie 2.2 de ce chapitre).

Sathe *et al* (2008) utilisent deux caméras (une dédiée à la PIV et l'autre à l'ombroscopie) et des particules traçantes fluorescentes, et ils discriminent ensuite la lumière diffusée par ces particules de la lumière issue du stroboscope en utilisant un filtre passe-bande qui ne laisse passer que la longueur d'onde de fluorescence devant la caméra dédiée à la PIV.

Dans BERGAME, les particules ne se trouvent pas en milieu aqueux, il devient donc difficile de trouver des particules fluorescentes. Cependant, nous conservons cette idée de double caméra, chacune enregistrant les images correspondant à une technique optique. Pour les différencier, un filtre ne laissant passer que le rouge est placé devant les stroboscopes puis un filtre du même type est placé devant la caméra dédiée à l'ombroscopie. La nappe laser a une longueur d'onde de 532 nm (laser Nd :YAG) ; aussi, un filtre passe-bande autour de cette longueur d'onde est installé devant la caméra dédiée à la PIV. Ainsi, les deux imageries sont bien séparées, permettant la mise au point la plus fine possible des deux techniques, notamment pour tout ce qui concerne le réglage des puissances des stroboscopes et du laser.

Le premier élément du dispositif optique est le détecteur de gouttes, celui-ci est placé sur le dessus de la cuve de BERGAME. Il détecte la baisse d'intensité lumineuse reçue au passage d'une goutte au travers de la nappe laser, à la suite de quoi un signal électronique est envoyé vers le processeur pilotant l'ouverture des caméras, le déclenchement du laser et des stroboscopes.

La Figure 34 schématise le dispositif optique utilisé pour coupler les techniques de PIV et d'ombroscopie. L'originalité de notre montage est liée à l'utilisation de deux miroirs dichroïques : le premier permet aux deux stroboscopes d'éclairer la même zone de l'espace, tandis que le second permet aux deux caméras d'observer le même champ.

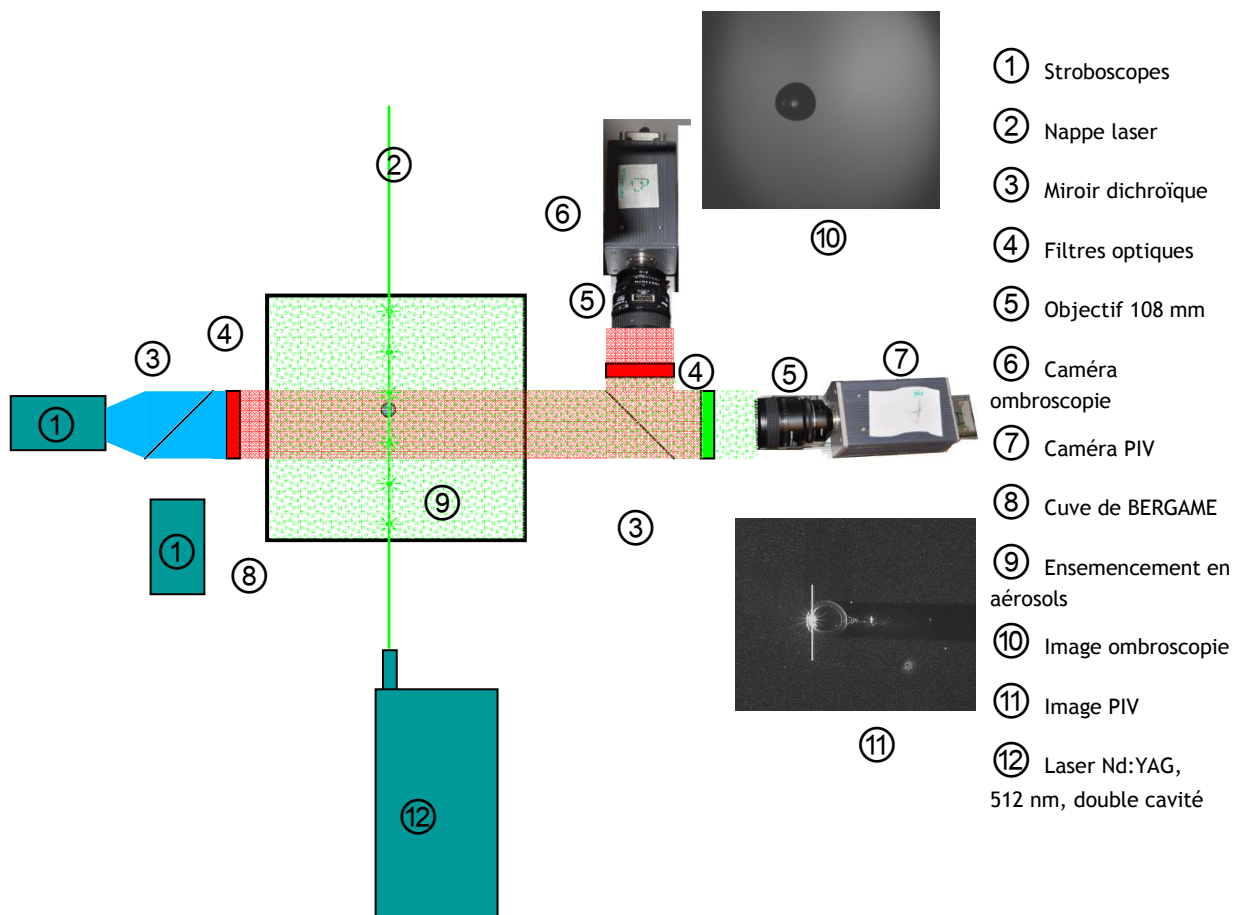


Figure 34 : Schéma global du dispositif optique autour de BERGAME

Chaque caméra dispose de deux obturateurs (pour simplifier), ce qui permet l'acquisition de deux images immédiatement l'une à la suite de l'autre.

La Figure 35 indique les temps de déclenchement des stroboscopes et des cavités du laser pour disposer en même temps des images de PIV et d'ombroscopie.

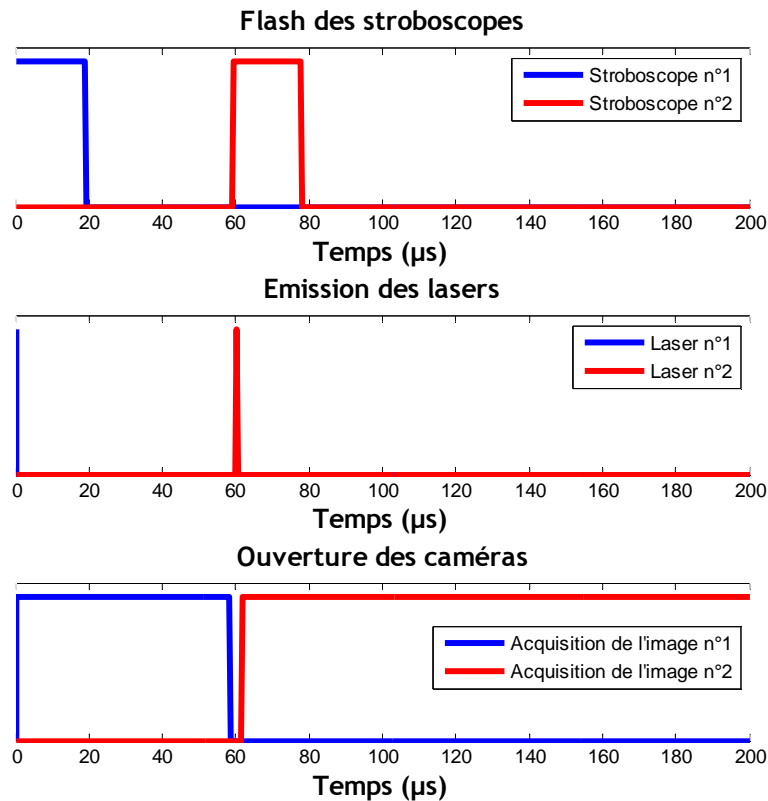
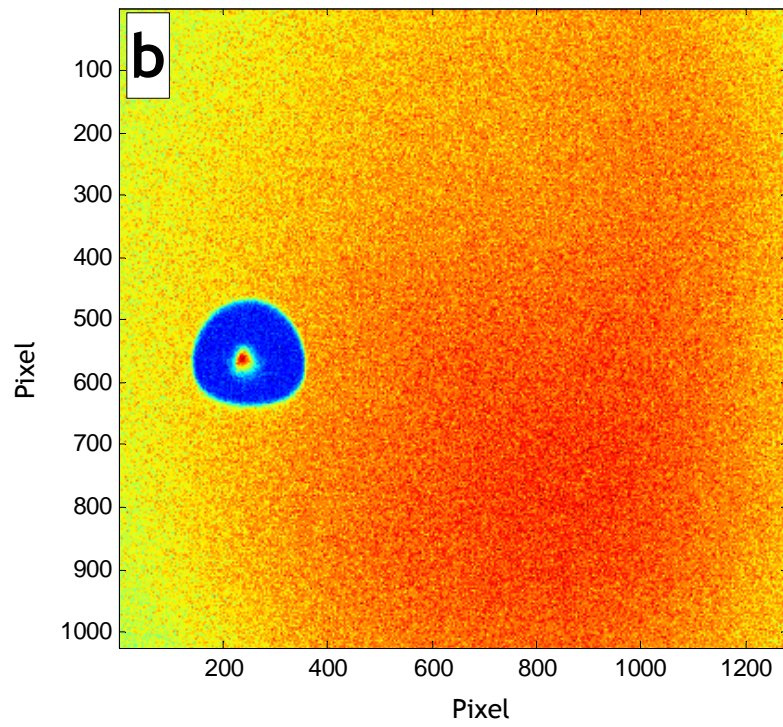
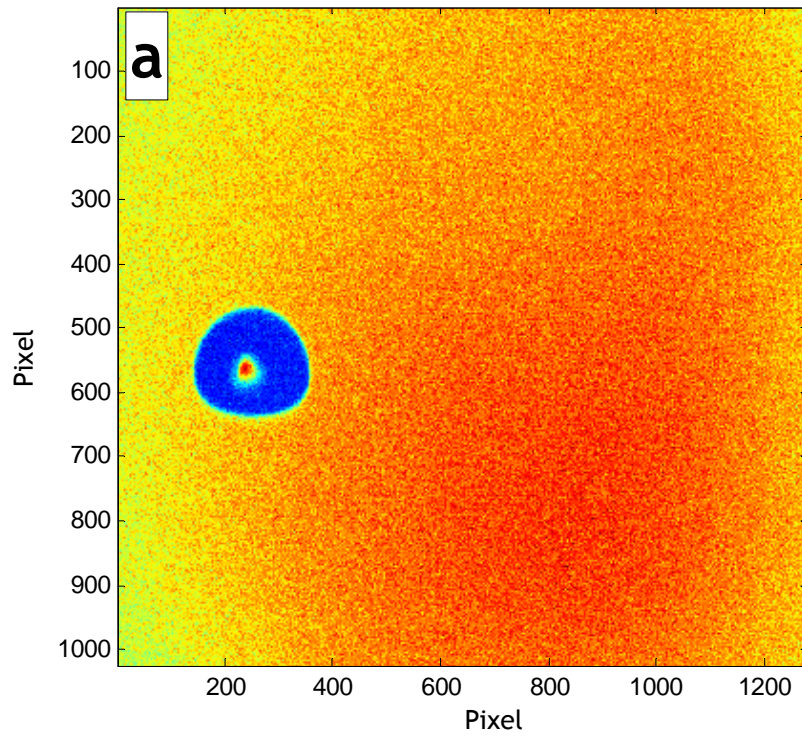


Figure 35 : Temps de déclenchement des différents appareils autour de la cuve de BERGAME

Environ 200 ms après le passage de la goutte devant le détecteur de gouttes, le premier stroboscope et la première cavité du laser se déclenchent simultanément. Dans le même temps, les deux premiers obturateurs des deux caméras s'ouvrent. Tandis que la durée de déclenchement du laser est extrêmement courte (9 ns), le stroboscope reste allumé environ 20 μ s. Un temps cependant suffisamment court pour figer l'image de la goutte sur la caméra dédiée à l'ombroscopie : aucun flou dû au déplacement de la goutte n'est observé. Les obturateurs n°1 et n°2 ne se ferment qu'au second déclenchement, 60 μ s après le premier. Ainsi, 60 μ s après le déclenchement débute l'acquisition des images n°2, accompagnée du pulse de la deuxième cavité du laser (qui dure 9 ns) et du flash du deuxième stroboscope. Les obturateurs n°2 ne se referment au minimum que 0,1 s plus tard. Ainsi, pour que ne soient enregistrées que les images de la goutte et du champ de particules sur leurs caméras respectives, il faut procéder aux enregistrements dans l'obscurité : toute lumière parasite se superposera aux images durant ce très long temps de pose des images n°2. Ainsi, pour chaque goutte passant devant le détecteur, quatre images sont enregistrées. La Figure 36 montre un exemple de quatre images obtenues le 24 mars 2011 autour d'une goutte.



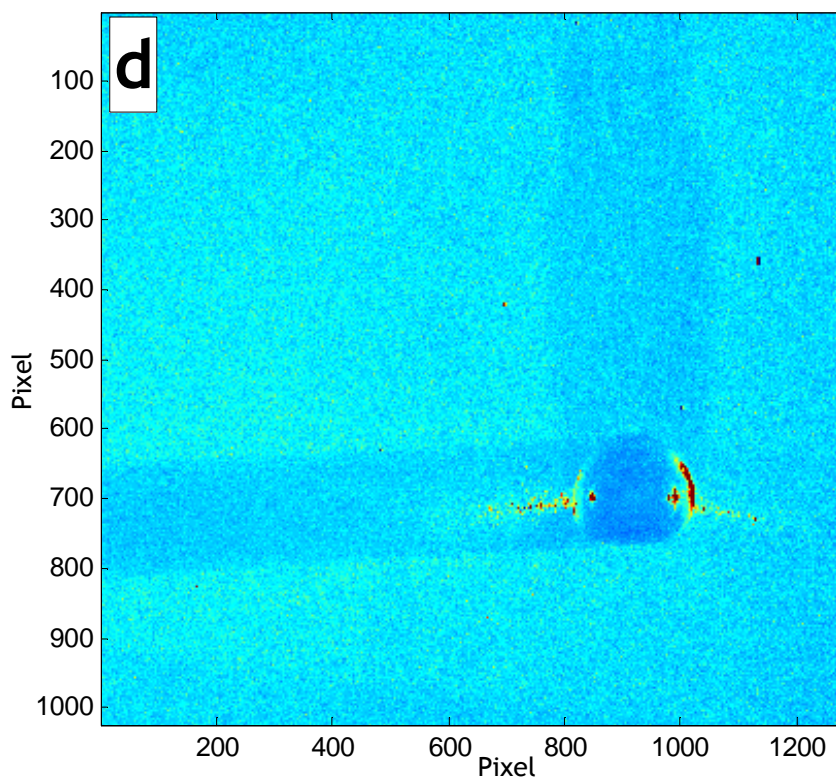
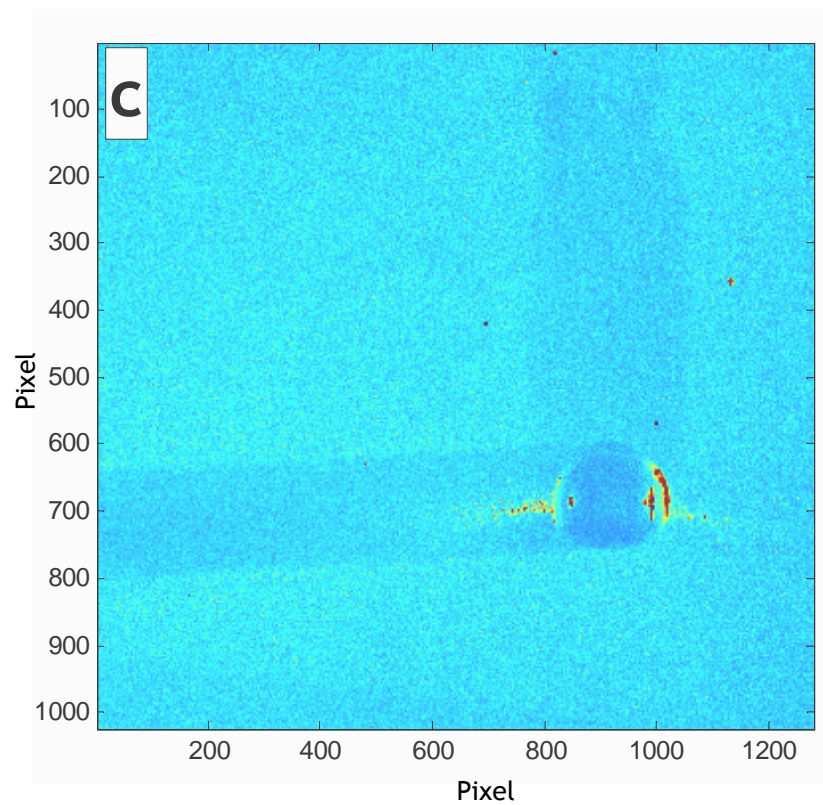


Figure 36 : Quatre images enregistrées autour d'une goutte. a et b sont les images obtenues en ombroscopie. c et d sont les images obtenues en PIV

Les images PIV montrent deux zones autour de la goutte qui sont plus sombres, une à gauche de la goutte, et une au-dessus de la goutte.

La présence de zones non-éclairées sur une image PIV risque d'induire des erreurs importantes lors du calcul des vecteurs vitesse. Il faut donc comprendre l'origine de ces zones d'ombres, et si possible les éliminer.

En ce qui concerne la zone au-dessus de la goutte, elle correspond au sillage de la goutte dans le nuage d'aérosols. La diminution de la concentration en particules dans le sillage de la goutte est la conséquence de l'écartement des lignes de courant derrière la goutte et de la capture des particules par la goutte. Il n'y a donc rien à faire pour en diminuer l'importance, seulement émettre l'hypothèse que l'efficacité de collecte de la goutte et l'écartement des lignes de courant ne soient pas importantes jusqu'au point de ne pas laisser assez d'aérosols dans son sillage pour effectuer les mesures PIV. Un tel cas ne s'est jamais présenté.

La zone d'ombre à gauche de la goutte est due à la projection de l'ombre de la goutte sur le champ de particules, la source laser venant de la droite de l'image.

La Figure 37 présente un exemple d'ombre projetée. Dans de telles conditions, il est impossible de faire un calcul PIV sur toute la partie gauche de la goutte. Il a donc fallu imaginer un système pour éclairer cette zone d'ombre, malgré l'obstacle que constitue la goutte.

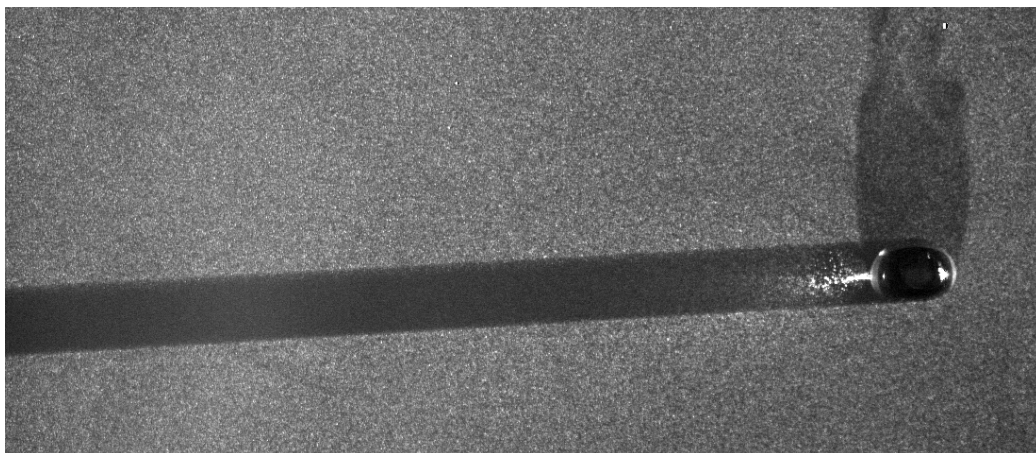


Figure 37 : Exemple d'ombre projetée sans dispositif de rétro-éclairage

Nous pouvons remarquer que, dans la zone d'ombre, il y a des particules qui sont extrêmement bien éclairées. Celles-ci sont en fait situées sur la focalisation de la nappe laser au passage de la goutte, cette dernière faisant office de lentille. La distance focale apparaît comme étant extrêmement courte (environ 1/10 de diamètre), entraînant une importante divergence (environ 45°) des rayons derrière la goutte. On pourra noter que c'est cette distance focale très courte derrière la goutte qui permet l'observation précise de sa forme par ombroscopie malgré la nature transparente de l'eau. Du fait de cette divergence importante, l'intensité lumineuse qui traverse la goutte pour arriver jusqu'à la caméra est négligeable par rapport à l'intensité lumineuse passant à côté de la goutte.

La Figure 38 schématise le montage optique qui a été réalisé pour que le côté de la goutte opposé au laser soit lui aussi éclairé. Un miroir incliné, placé hors du trajet reliant la source laser à la goutte, permet de réfléchir la lumière jusqu'au côté masqué par la goutte. La difficulté de ce montage réside dans l'alignement des nappes émises et réfléchies : celles-ci doivent être parfaitement superposées.

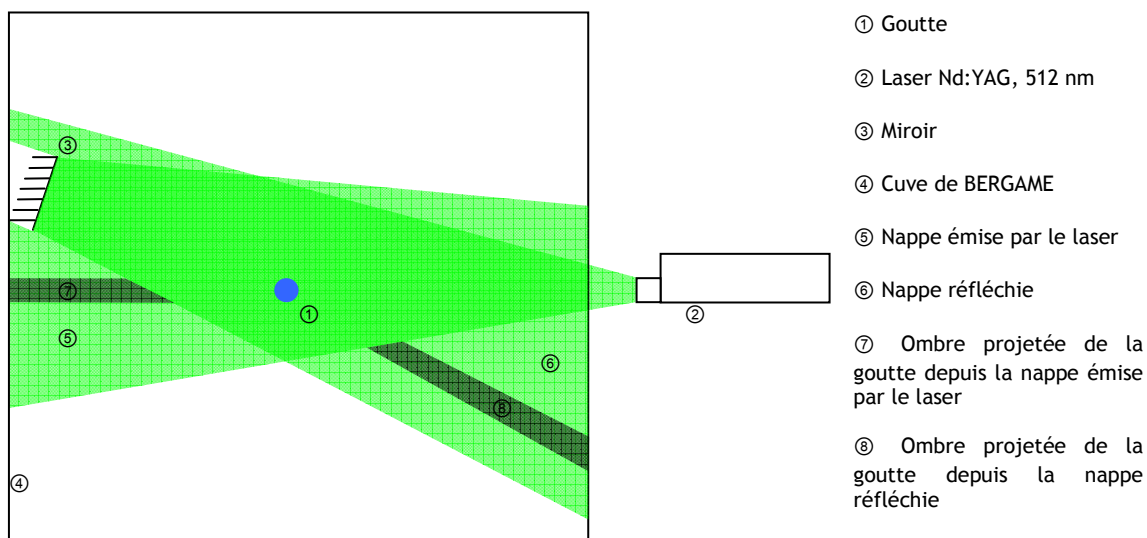


Figure 38 : Schéma du dispositif de rétro-éclairage

La Figure 39 illustre le montage. La nappe laser émise est visible par un trait vert vertical qui passe par le centre du miroir. La nappe réfléchie partant du miroir est très visible sur la photographie. La baisse de l'intensité lumineuse en fonction de la distance parcourue est aussi clairement observable. Cette baisse de l'intensité est due à la forme divergente de la nappe laser ; plus la distance à la source est importante, plus la surface éclairée par le laser est grande, diminuant d'autant la densité d'énergie en un point donné.



Figure 39 : Photographie du miroir placé dans la cuve de BERGAME, réfléchissant la nappe laser

Cette baisse de l'intensité en fonction de la distance ne permet pas une compensation totale de l'ombre projetée. La Figure 40 permet d'observer que le dispositif de rétro-éclairage ne compense pas parfaitement la présence de l'ombre projetée.

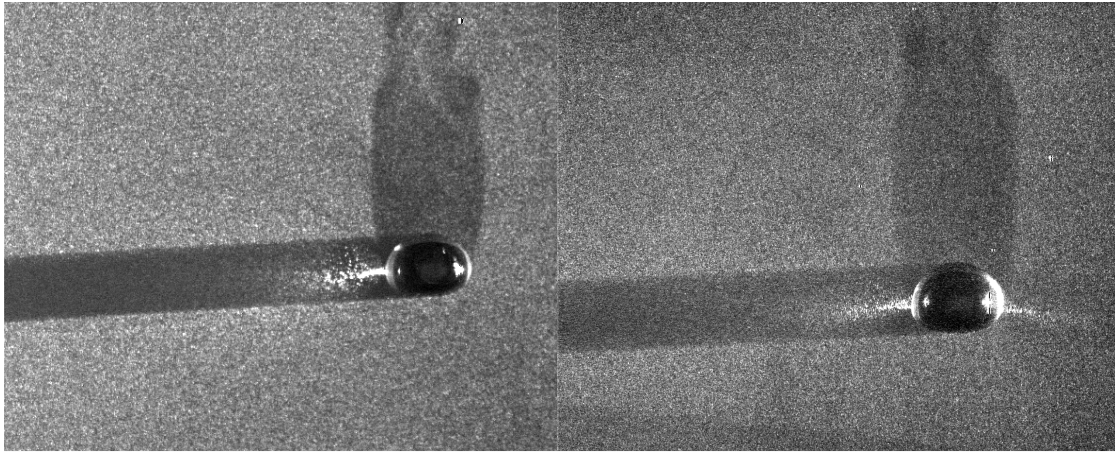


Figure 40 : Ombre projetée sans dispositif de rétro-éclairage (gauche) et avec dispositif (droite)

Néanmoins, ce dispositif d'éclairage des particules situées dans cette zone d'ombre suffit à rendre le calcul PIV réalisable des deux côtés de la goutte. Ce montage optique remplit ainsi correctement son rôle.

6.3. Traitement préparatoire à la PIV

Les images obtenues en ombroscopie sont inversées horizontalement pour compenser l'effet du miroir dichroïque. En effet, la caméra dédiée à l'ombroscopie étant placée du côté réfléchissant du miroir, les images en ombroscopie sont inversées par rapport aux images PIV. La première image obtenue en ombroscopie est ensuite binarisée, puis superposée à la première image PIV. La même opération est effectuée sur les secondes images respectivement obtenues.

L'étape suivante consiste à décaler les images pour se placer dans le référentiel de la goutte. La goutte se déplace d'une dizaine de pixels entre les deux images ; ce décalage est optimal pour les traitements PIV lorsque les zones d'interrogations font 32 pixels de largeur. Ce déplacement idéal est induit par le réglage du temps que nous imposons entre les deux pulses laser. Ainsi, 60 μ s sont nécessaires dans l'exemple présenté sur la Figure 35 entre les deux pulses laser et les deux flashes des stroboscopes.

En traitant les images PIV (avec désormais la goutte masquée par les images d'ombroscopie), c'est surtout le déplacement de la goutte qui serait observé, ainsi que l'entraînement des particules dans son sillage, ce qui présente peu d'intérêt. Alors qu'en se plaçant dans le référentiel de la goutte, celle-ci va par définition rester fixe, et les comportements des particules autour de celle-ci (contournement, impaction, diminution de la vitesse, accélération, couches limites, ...) seront alors mis en évidence.

La position des gouttes est calculée à partir des images obtenues en ombroscopie, puis les images sont décalées verticalement pour que les positions des gouttes correspondent exactement.

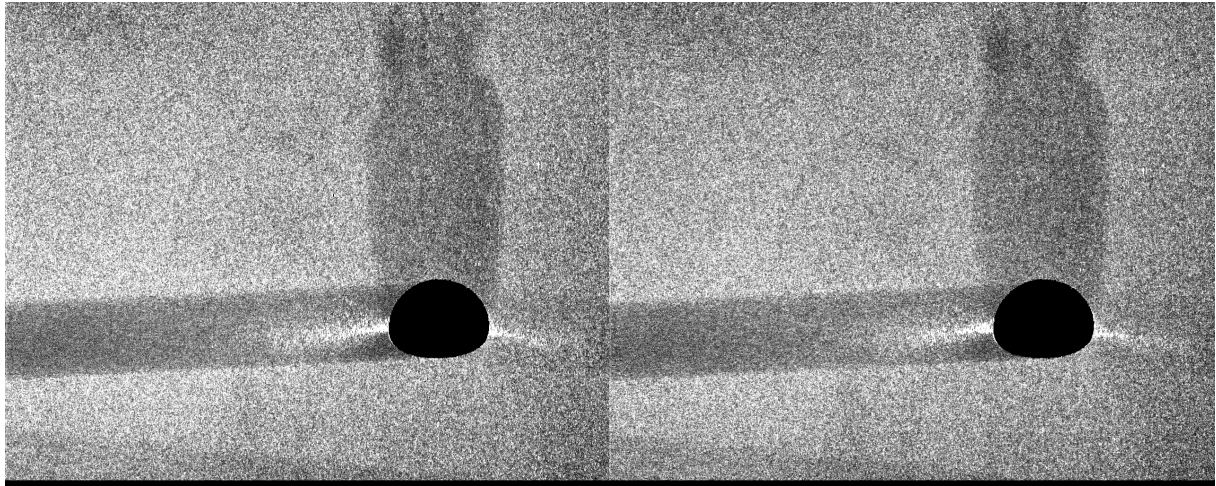


Figure 41 : Les deux images préparées pour le calcul PIV

La Figure 41 permet d'observer les deux images qui sont ainsi obtenues après superposition du masque venant de l'ombroscopie aux images PIV et après le remplacement des images dans le référentiel de la goutte.

6.4. Traitement et post-traitement PIV

Les articles d'Adrian (1986) et Willert et Gharib (1991) sont souvent cités comme référence pour décrire la technique de PIV. La première étape est la division des deux images en multiples zones appelées zones d'interrogations.

Utilisant le logiciel *FlowManager* de Dantec, la taille des fenêtres d'interrogations peut être de 8x8, 16x16, 32x32 ou 64x64 pixels² de côtés. Il est aussi possible d'utiliser des fenêtres rectangulaires.

La Figure 42 reprend les étapes qui mènent ensuite jusqu'au calcul du vecteur vitesse.

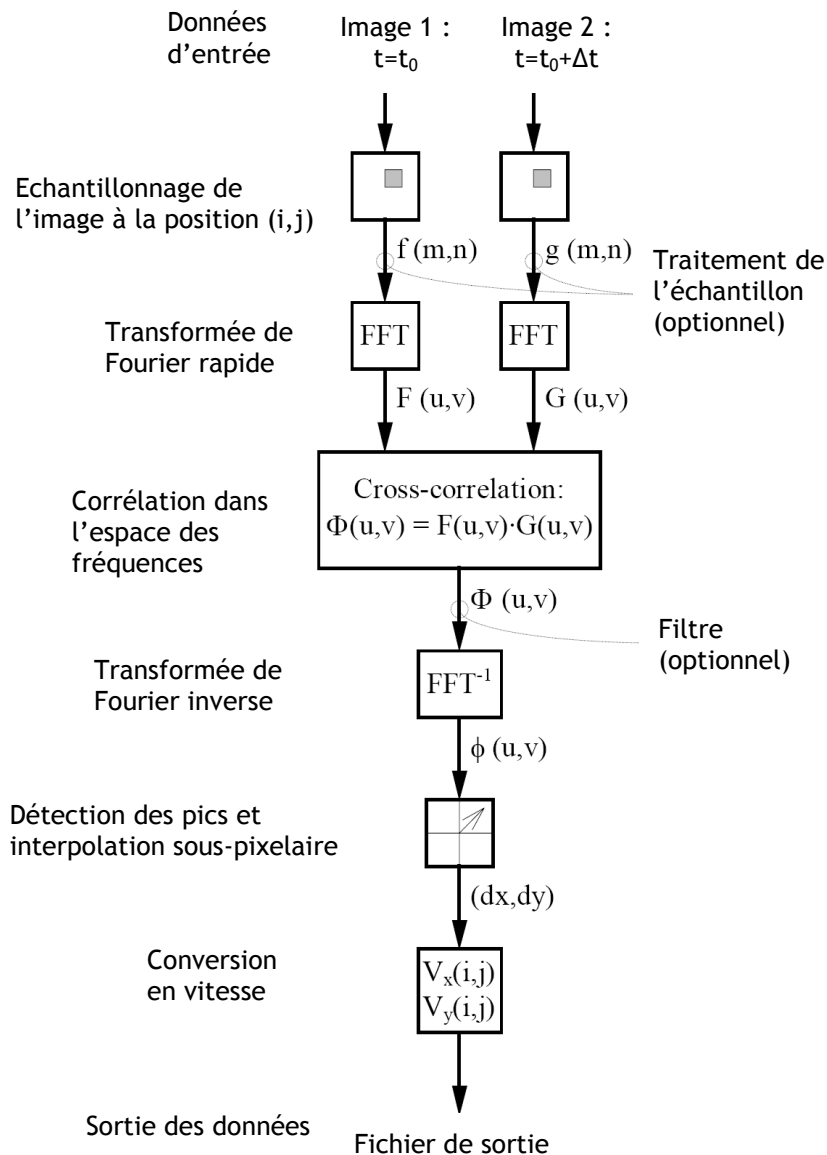


Figure 42 : Schéma représentant le traitement PIV (Willert and Gharib, 1991)

Chaque fenêtre subit une transformée de Fourier, en même temps que la zone d'interrogation aux mêmes coordonnées sur la deuxième image. Les deux objets sont corrélés et le produit obtenu est soumis à une transformée de Fourier inverse. De cette transformée inverse ressort un pic qui correspond à un déplacement moyen des particules entre les deux images dans cette zone d'interrogation. Connaissant le déplacement moyen (en pixel, convertible en une longueur physique en utilisant une mire) et le temps entre les deux pulses du laser, le vecteur vitesse moyen de cette fenêtre est calculé. Ces opérations sont répétées pour chaque fenêtre. Compte tenu de la présence du masque de la goutte, les zones d'interrogations tombant en présence du masque ne sont pas calculées. Ainsi, le calcul de vecteurs faux est évité.

Une subtilité est ajoutée au calcul du champ des vecteurs vitesses : l'utilisation de fenêtres adaptatives (Astarita, 2009). Les vitesses décrivant l'écoulement de l'air autour des gouttes vont de 9 m.s^{-1} (loin de la goutte) à 0 m.s^{-1} à l'interface entre la goutte et l'air. Ainsi, le

déplacement des particules entre deux fenêtres peut être soit plus important que la taille même des fenêtres, soit au contraire, trop petit. Dans tous les cas, le calcul du vecteur devient impossible.

L'utilisation de fenêtres adaptatives permet de surmonter ce problème : les zones à fort déplacement (9 m.s^{-1}) utilisent des fenêtres de 64 pixels de côté, tandis que les zones autour de la goutte utilisent des fenêtres jusqu'à 8 pixels de côté. En fait, l'algorithme de traitement PIV impose de diminuer la taille de la fenêtre jusqu'à atteindre la taille idéale : que le déplacement des particules soit environ égal au quart du côté de la zone d'interrogation. Le champ de vecteur ainsi obtenu est superposé à l'image de la goutte obtenue en ombroscopie. La Figure 43 montre un exemple de champ de vecteur vitesse obtenu avec la méthode décrite dans cette partie consacrée à la PIV pour une goutte de 4,5 mm de diamètre.

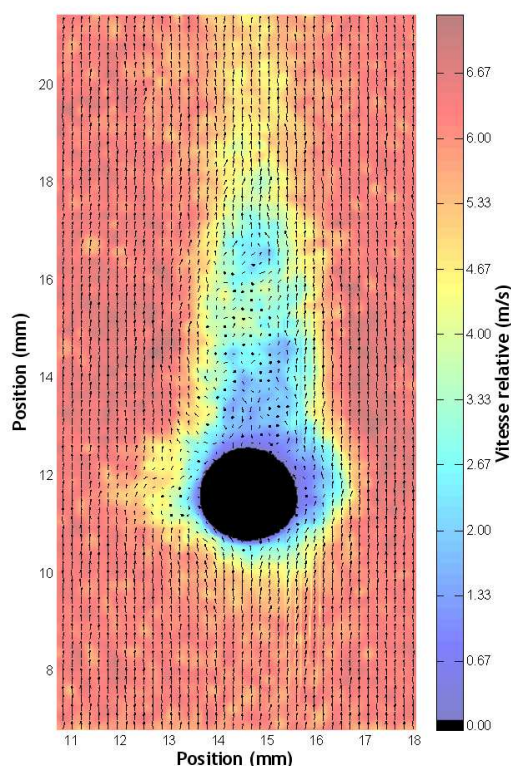


Figure 43 : Exemple d'écoulement d'air autour d'une goutte de 4,5 mm de diamètre, mesuré par la combinaison PIV/ombroscopie

On observe sur cet exemple un écartement des lignes de courant et une diminution de la vitesse du gaz en amont de la goutte, ainsi qu'un sillage très chaotique (sans doute lié à des écoulements tridimensionnels). Nous notons tout de même sur la partie gauche de la goutte des marques de l'imperfection de la technique de rétro-éclairage décrite dans la partie 6.2.

6.5. Exploitation des données d'ombroscopie

Les images prises en ombroscopie sont utiles pour un autre point important de l'étude qui concerne la caractérisation de la forme des gouttes. Un programme spécifique a été écrit

avec *matlab* pour exploiter au mieux les informations contenues dans les images d'ombroscopie.

6.5.1. Calcul de la position du centre de la goutte

La première tâche du programme est de calculer les coordonnées de la goutte sur l'image. Ces coordonnées sont utilisées par le programme qui va superposer les images de PIV et d'ombroscopie pour placer les images dans le référentiel de la goutte (partie 6.3).

Après avoir binarisé l'image, le rectangle encadrant au plus près les bords de la goutte est calculé. Les coordonnées du centre de la goutte sont prises comme étant le centre de ce rectangle.

6.5.2. Calcul du diamètre de la goutte équivalent à une sphère

Une autre tâche indispensable est le calcul du diamètre de la goutte. En effet, sans la connaissance de ce diamètre, il est impossible de déterminer le volume traversé par la goutte, et donc impossible de calculer une efficacité de collecte.

Compte tenu de l'oscillation des gouttes de diamètre supérieur à 1 mm et de leurs formes lenticulaires, il est commode d'utiliser la définition du « diamètre équivalent ». Ce diamètre équivalent est défini comme le diamètre d'une sphère de même volume (Pruppacher et Klett, 1997).

Ici, nous utilisons un abus de langage en parlant de diamètre de goutte équivalent à une sphère puisque les images d'ombroscopie ne peuvent pas nous fournir une vision en trois dimensions de la goutte. En fait, il faut ici se contenter de calculer le diamètre équivalent à un disque.

Ainsi, la surface de la goutte S_{goutte} est déterminée par l'image obtenue en ombroscopie, simplement en comptant le nombre de pixels définissant la goutte sur l'image (après que l'image a été binarisée). Le diamètre équivalent D_{eq} est alors aisément calculable.

$$\text{Équation 35} \quad D_{eq} = \sqrt{\frac{4 S_{goutte}}{\pi}}$$

D_{eq} est le diamètre équivalent qui sert de référence pour le calcul du volume balayé par la goutte, et donc pour le calcul de l'efficacité de collecte.

6.5.3. Calcul du rapport d'axes (axis ratio)

La partie 2.3.1 contient une brève description de la définition du rapport d'axes. Seulement, cette définition ne convient que si la goutte prend une forme parfaitement elliptique, ce qui n'est pas le cas avec des gouttes de pluie. Il faut donc adopter une définition applicable du

rapport d'axes. La définition la plus simple, celle adoptée par Szakáll *et al* (2009) par exemple, consiste à définir les deux axes de la goutte comme étant égaux à la longueur et la largeur du rectangle contenant la goutte (même rectangle que celui servant à déterminer les coordonnées du centre de la goutte). Le rapport d'axes est alors égal au rapport largeur/longueur du rectangle.

Cette définition a l'avantage d'être très simple à utiliser, mais elle est incapable de prendre en compte l'inclinaison que prennent de nombreuses gouttes durant leur chute. En conséquence, le rapport d'axes tel que défini est sous-estimé en cas d'inclinaison de la goutte.

Une autre définition a été adoptée. Elle consiste à définir le grand axe comme la plus grande distance possible entre deux points du périmètre. Le petit axe est défini comme le segment le plus court entre deux points du périmètre et passant par le point central du grand axe.

La Figure 44 montre un exemple des axes obtenus par cette dernière définition. L'inclinaison du grand axe peut être notée ici.

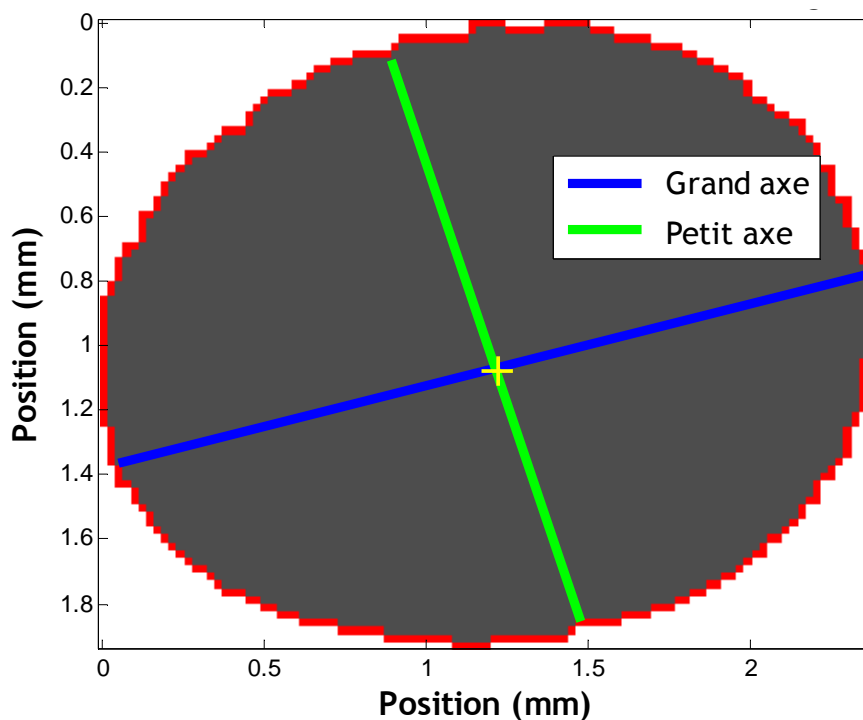


Figure 44 : Exemple de rapport d'axes

Sur les milliers de gouttes dont les axes ont été calculés, cette définition n'a jamais présenté d'aberrations. Cette définition des axes, et donc du rapport d'axes, est celle qui est utilisée comme référence pour cette étude.

7. Protocole expérimental

7.1. Introduction

L'objectif de ce protocole est de pouvoir mesurer les efficacités de collecte de manière fiable, reproductible et en grand nombre. En général, une série de mesures se décompose en une succession de trois mesures d'efficacités entrecoupées de blancs destinés à vérifier l'état de contamination du puits de chute.

7.2. Préparatifs

La première étape de l'expérience est la mise en place de la chute des gouttes. Après avoir sélectionné une aiguille neuve (celles-ci ont tendance à se boucher régulièrement), la seringue est alimentée en eau ammoniacuée. La hauteur d'eau dans celle-ci est réglée pour que la fréquence de chute des gouttes soit la plus importante, tout en évitant la formation d'un jet continu à la sortie de l'aiguille. Lorsque cette hauteur est atteinte et que la génération des gouttes est stabilisée, le générateur de gouttes est positionné pour que les gouttes pénètrent au centre de l'ouverture circulaire de 4 cm situé 10 m plus bas. Cette opération peut s'avérer impossible si les conditions thermiques à l'extérieur de BERGAME sont inadéquates (présence d'un gradient thermique important entre le haut et le bas de BERGAME par exemple).

7.3. Mesure du diamètre des gouttes

Une fois que les gouttes pénètrent régulièrement dans la cuve, le dispositif optique développé dans la partie 6 afin de capturer des images de gouttes traversant la cuve de BERGAME est mis en œuvre. La partie PIV du montage est sans intérêt ici, seules les images obtenues par ombroscopie sont sauvegardées. Ces images sont ensuite traitées par le programme *matlab* développé spécifiquement afin d'extraire le diamètre équivalent, le rapport d'axes et les autres caractéristiques calculées par cette application. Typiquement, au moins 200 prises sont nécessaires pour établir une statistique correcte sur la taille et la forme des gouttes traversant la cuve. Cette étape de mesure systématique s'est avérée nécessaire. Tandis qu'au cours d'une même journée, il n'a jamais été mesuré d'écart significatif du diamètre des gouttes entre le début et la fin d'une expérience, des écarts significatifs ont été constatés d'un jour à l'autre pour une même aiguille.

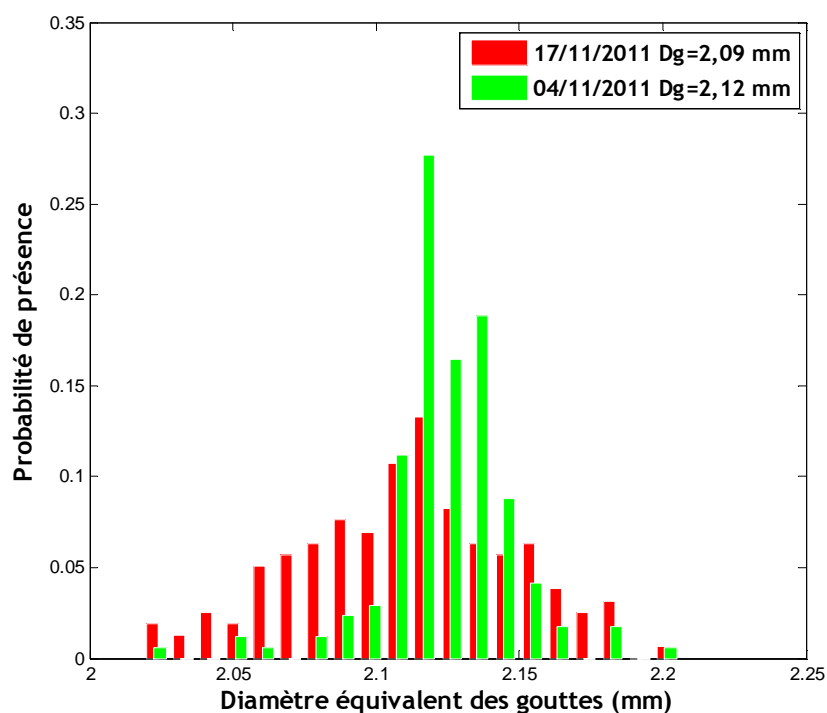


Figure 45 : Distributions de gouttes pour une même aiguille constatées les 04 et 17 novembre 2011

Un exemple de la variabilité de la distribution de taille des gouttes est présenté sur la Figure 45 : les diamètres les plus probables sont identiques, en revanche les distributions autour de ce maximum sont très différentes, entraînant un diamètre moyen différent (2,12 mm et 2,09 mm) entre ces deux journées d'expérience.

Les relations entre les diamètres moyens des gouttes en fonction de la température et de l'humidité relative dans le champ proche de la génération n'ont montré aucune corrélation.

Une explication possible est la manière dont est disposé le générateur au-dessus de l'entonnoir laissant passer les gouttes. Prenons l'hypothèse que la distribution spatiale des gouttes au-dessus de la cuve de BERGAME prenne une forme gaussienne, dont l'écart-type est estimé à une dizaine de centimètres pour des gouttes de 2 mm. Il est difficile de positionner exactement le générateur de manière à ce que la distribution spatiale des gouttes soit exactement centrée sur l'ouverture donnant sur la cuve. Si jamais la distribution granulométrique des gouttes n'est pas uniforme dans la répartition spatiale de celles-ci, alors un positionnement légèrement différent de l'ouverture dans la répartition spatiale des gouttes pourrait expliquer cette différence observée de distribution granulométrique.

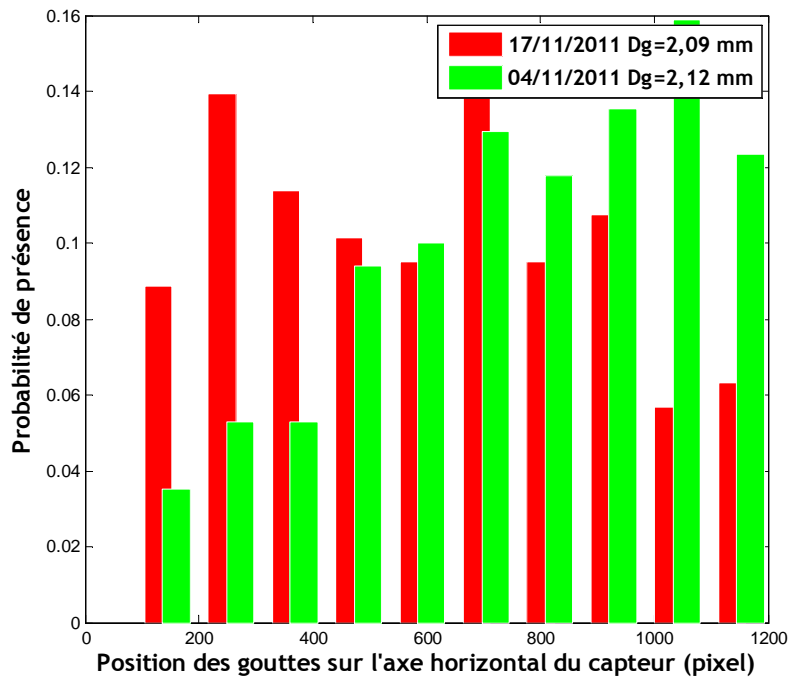


Figure 46 : Statistique de la position horizontale des gouttes

La Figure 46 représente la répartition des gouttes sur l'axe horizontal des images d'ombroscopie. Il semble qu'ici les gouttes de 2,12 mm aient tendance à tomber favorablement sur la « droite » des images, tandis que celles centrées autour de 2,09 semblent plutôt se répartir équiprobablement sur l'axe horizontal des images.

La Figure 47 représente une répartition spatiale fictive de la chute des gouttes au-dessus de la cuve de BERGAME. Sur cette distribution sont superposées les deux positions hypothétiques des ouvertures donnant sur la cuve, respectivement le 04 et le 17 novembre 2011. Ceci permet d'illustrer l'hypothèse selon laquelle une distribution non-uniforme de la granulométrie des gouttes en fonction de leur répartition spatiale serait la cause des différences de granulométrie observées autour d'une même taille d'aiguille.

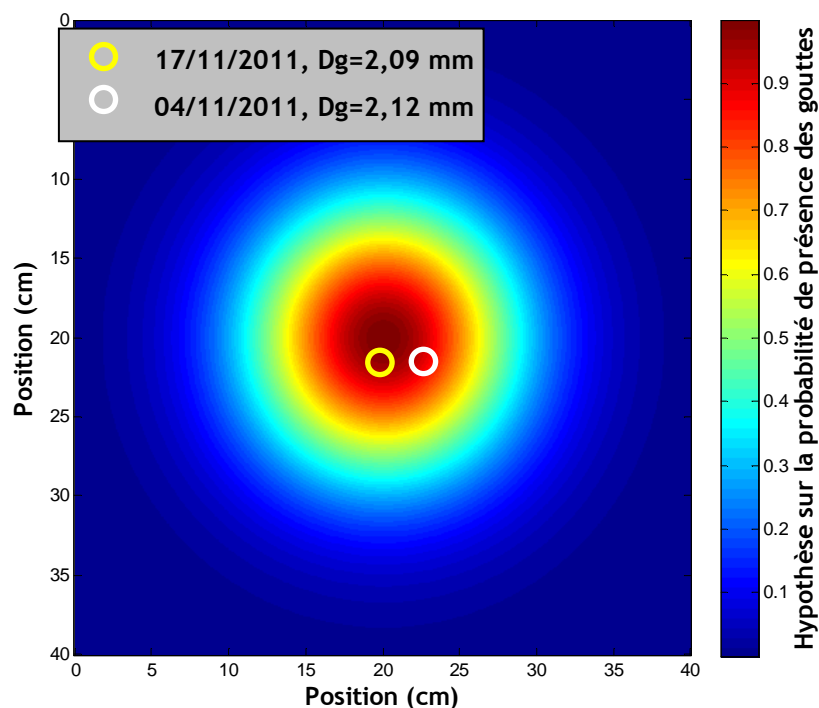


Figure 47 : Figuration de l'hypothèse d'une granulométrie dépendante de la localisation

Néanmoins, cela ne constitue pas une preuve formelle, une carte 2D des positions des gouttes après les 10 m de chute n'ayant pas pu être établie ; de plus la non-uniformité spatiale de la granulométrie des gouttes n'est pas formellement démontrée.

Du reste, chaque modification journalière potentielle de la forme de la distribution spatiale des gouttes (gaussienne plus large, asymétrie,...) peut être la cause d'une distribution granulométrique différente.

7.4. Vérification du niveau de contamination de BERGAME

Les gouttes qui servent à déterminer le diamètre du jour sont récoltées, puis analysées au moyen du fluorimètre. Si jamais une concentration de fluorescéine supérieure à $5 \cdot 10^{-11} \text{ g.ml}^{-1}$ est mesurée dans cette eau, la procédure est entièrement arrêtée, puis un nettoyage complet de la cuve est réalisé (et du puits si nécessaire). Après ce nettoyage, la méthode expérimentale est reprise depuis son début.

7.5. Collecte des gouttes

Dès que la concentration en aérosols dans la cuve est stable (5 à 6 min après la mise en service du générateur), un pot est inséré sous la cuve pour y collecter les gouttes venant de traverser celle-ci. En même temps que le début de la collecte des gouttes, la vanne séparant la cuve du prélèvement sur filtre est ouverte. Lorsqu'une masse égale à 1,2 g de gouttes est collectée (masse déterminée par une balance de précision), le pot est retiré et la vanne du filtre refermée, puis celui-ci est extrait et plongé dans 100 ml d'eau ammoniacuée. Le plus souvent, trois collectes de gouttes sont ainsi effectuées avant de procéder à la mesure d'un

nouveau blanc : un pot est placé alors juste au-dessus de la cuve. La quantité de gouttes ainsi récupérée est mesurée au fluorimètre, pour déterminer le niveau de contamination du puits de chute en aérosols. Si la contamination est toujours négligeable, une nouvelle série de trois mesures est effectuée, et ainsi de suite jusqu'à l'arrêt de l'expérience.

Chaque pot contenant les gouttes récupérées (et son filtre de prélèvement correspondant) donnera un point de mesure d'efficacité de collecte. Entre chaque série de trois mesures, la solution dans le générateur ultrasonore peut être changée pour accéder à une taille différente d'aérosols.

Pendant tout ce temps, la distribution granulométrique des aérosols dans la cuve est enregistrée à l'aide d'un APS (*Aerodynamic Particle Sizer*, TSI-3321) et/ou d'un ELPI (*Electrical Low Pressure Impactor*, (Keskinen et al., 1992; Marjamäki et al., 2005)). L'APS n'est utilisable que pour des particules d'un diamètre supérieur à 0,5 μm mais possède une meilleure résolution spectrale (52 canaux) que l'ELPI (12 plateaux) qui a l'avantage de couvrir un spectre beaucoup plus large de taille de particules (de 7 nm à 10 μm).

7.6. Arrêt de l'expérience

Une fois la dernière collecte de gouttes effectuée, un dernier pot est placé au-dessus de la cuve pour déterminer une toute dernière fois le niveau de contamination du puits. Pendant ce temps, l'injection d'aérosols est arrêtée et le registre d'évacuation de la cuve ouverte ; la cuve de BERGAME contenant une évacuation est directement branchée sur la ventilation de la pièce. Une fois cette vanne de vidange ouverte, l'air de la cuve se renouvelle rapidement, ce qui permet d'éliminer les aérosols de fluorescéine encore présents en fin d'essais. Ensuite, les différents confinements sont à leur tour arrêtés, ainsi que les différents enregistrements. Enfin les données sont exportées pour être compilées par le programme adéquat.

7.7. Mesures par fluorimétrie

Les mesures de fluorimétrie sur les gouttes récoltées sont en général effectuées le jour même pour éviter les risques de dégradation de la molécule de fluorescéine. Quant aux mesures sur les filtres, elles sont réalisées le lendemain dans la mesure du possible, afin de laisser le temps à la fluorescéine de se dissoudre dans les 100 ml de solution tout en minimisant les risques de dégradation.

Avec les données granulométriques des gouttes et des aérosols, et avec la concentration massique dans les gouttes (C_{Gfluo}) et dans l'air (C_{mfluo}), et la hauteur H de la cuve de BERGAME, toutes les données expérimentales sont désormais réunies pour calculer l'efficacité de collecte. On rappelle l'Équation 28, permettant de calculer l'efficacité de

collecte pour une taille de goutte D_G , pour une taille d'aérosol d_{AP} et pour une humidité relative HR , où D_G est le diamètre des gouttes équivalent à une sphère :

$$E(D_G, d_{AP}, HR) = \frac{2C_{Gfluo} D_G}{3H C_{mfluo}}$$

Le calcul des efficacités de collecte est ainsi réalisé en utilisant une sphère équivalente de même volume que la goutte, de manière à intégrer les phénomènes de déformations de gouttes.

CHAPITRE 4

RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Les contraintes expérimentales n'ont permis la réalisation que de 399 mesures d'efficacité de collecte. Sur ces 399 mesures, 361 sont des efficacités de collecte non-nulles. Le plus souvent, une efficacité de collecte est égale à zéro quand la quantité de fluorescéine captée par la goutte est trop faible pour être mesurée. La masse de particule captée est alors considérée comme nulle.

La Figure 48 montre l'ensemble brut des mesures effectuées, sans aucune sélection réalisée. La distribution brute des points expérimentaux met en avant les forces et les faiblesses de la procédure expérimentale. Les mesures sont effectuées pour des tailles de particules allant de 0,3 μm à 4 μm en diamètre et des tailles de gouttes allant de 2 à 2,8 mm de diamètre. Sur la Figure 48, nous pouvons voir que pour deux mêmes tailles de particules et de gouttes, les efficacités de collecte mesurées peuvent varier de plusieurs ordres de grandeur. Ceci est particulièrement vrai pour les particules submicroniques. Une attention particulière doit être portée sur la sélection des données expérimentales.

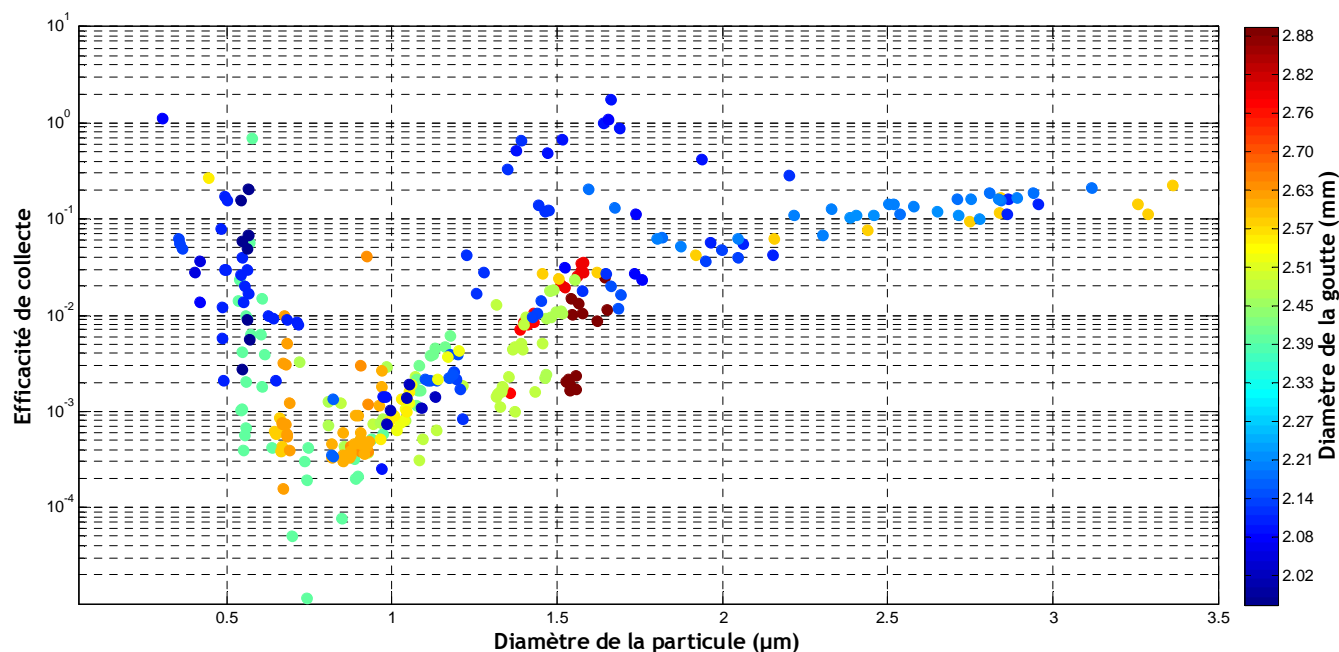


Figure 48 : Distribution brute des points expérimentaux

La détermination d'une efficacité de collecte est réalisée à partir de six ou sept mesures, à savoir les mesures:

- ELPI et/ou APS pour connaître la concentration et la granulométrie des particules d'aérosol balayées par la goutte (seul l'ELPI est capable de mesurer des particules de diamètre inférieurs à 0,5 μm , d'où le « et/ou »),
- d'ombroscopie pour connaître la taille de la goutte,

- de fluorimétrie à partir du filtre pour connaître la concentration massique de particules,
- de fluorimétrie à partir des gouttes récoltées pour déterminer la masse de particules collectée par celle-ci,
- et les temps définissant le début et la fin de chaque expérience.

Chacune de ces mesures est soumise à une sélection automatique, cette sélection permettant de ne conserver que les mesures valables *a priori*.

Dans ce chapitre, nous présenterons tout d'abord les critères utilisés pour sélectionner les mesures. Ces mesures étant entachées d'incertitudes, les calculs des incertitudes qui accompagnent les valeurs des efficacités de collecte sera présenté. Ce n'est qu'après toutes ces étapes préliminaires que l'exploitation et l'analyse des valeurs d'efficacités de collecte seront présentées. La dernière partie montrera le lien entre efficacité de collecte et écoulements d'airs autour des gouttes, de manière à adapter le modèle semi-empirique de Slinn (1977) au vu de nos mesures expérimentales.

1. Critères de sélection

Les critères de sélection ont été définis sur 4 données, ces critères ont été automatisés dans l'analyse des données.

Un des critères est basé sur les valeurs de la concentration de fluorescéine, aussi bien pour la mesure issue de la dissolution du filtre que pour la mesure issue des gouttes récupérées sous la cuve. La limite de détection du fluorimètre ESE est fixée à de $1 \cdot 10^{-11} \text{ g.ml}^{-1}$, les valeurs mesurées inférieures à cette valeur sont donc écartées. A l'opposé, une concentration trop haute de fluorescéine va empêcher la détermination d'une efficacité de collecte car les photodiodes qui déterminent l'intensité du signal de fluorescence vont être saturées avec une intensité trop importante. Dans un tel cas, une dilution est effectuée. Le facteur de dilution est pris en compte dans les données d'entrée du programme de calcul et de compilation des efficacités de collecte.

Le deuxième critère systématique utilisé est le niveau relatif de pollution en fluorescéine du puits de chute. D'après le protocole expérimental (voir Chapitre 4, partie 7), la mesure de la quantité de fluorescéine captée par la goutte avant son entrée dans la cuve est effectuée au minimum toutes les cinq mesures et appelée mesure du blanc. Une interpolation linéaire en fonction du temps est réalisée sur ces données afin d'obtenir une valeur du blanc pour chacune des mesures effectuées. Si la concentration de fluorescéine mesurée dans les gouttes ayant traversées la cuve est inférieure au quintuple de la concentration déterminée par le blanc, alors les résultats de cette expérience particulière sont rejetés.

Un troisième critère est basé sur la différence entre la concentration massique de particules de fluorescéine dans la cuve, mesurée à l'aide du prélèvement sur filtre, et la concentration

massique déduite des mesures granulométriques effectuées à l'aide de l'APS et/ou de l'ELPI. Les concentrations massiques déduites des granulomètres ne sont pas aussi fiables que les mesures réalisées à l'aide du prélèvement sur filtre, en revanche, ces mesures doivent être du même ordre de grandeur. Une différence trop accentuée entre ces deux approches révèle la présence non-négligeable d'impuretés dans les particules, les granulomètres ne permettant pas de discriminer la nature physico-chimique des particules. Les résultats restent parfaitement valables tant que la proportion de fluorescéine est identique pour chaque classe de particules. Cette hypothèse est justifiée puisque que la distribution granulométrique des aérosols de fluorescéine est quasi-mono-dispersée. Cependant, la nature hygroscopique et la masse volumique des particules risquent fortement d'être modifiées si la présence de fluorescéine dans la particule n'est plus dominante. Nos mesures perdent alors en fiabilité. Le seuil d'acceptabilité est fixé à un facteur 100 entre la concentration massique mesurée par prélèvement sur filtre et par granulométrie.

Le quatrième critère utilisé est basé sur la mesure de l'humidité relative dans la cuve de BERGAME. Seules les mesures avec une humidité relative inférieure à 90 % sont retenues. En effet, au-delà, de cette valeur les granulomètres ont des comportements erratiques.

L'ensemble de ces critères induit une sélection drastique et permet l'élimination des mesures d'efficacité de collecte erronées. C'est ainsi que seulement 41 % des mesures réalisées respectent ces quatre critères, soit 163 mesures d'efficacité de collecte qui sont retenues. Ce chiffre de 163 mesures retenues sur 399 effectuées peut paraître très faible. Cependant, il faut plutôt le mettre en rapport avec les seules 12 mesures d'efficacité de collecte qui ont été relevées dans la littérature. Il s'agit donc bien d'un progrès très significatif qui a été réalisé en termes de quantité de valeurs expérimentales pour les efficacités de collecte de gouttes de diamètres supérieurs à 1 mm.

La Figure 49 présente les points retenus de mesures d'efficacité de collecte en fonction du diamètre des aérosols et des gouttes. Une fois les quatre filtres expérimentaux appliqués, la dispersion des mesures est beaucoup moins importante. On peut noter que pour les aérosols de diamètre proche de 1,5 μm , les mesures d'efficacité de collecte qui variaient de plusieurs ordres de grandeur ont désormais des valeurs bien plus cohérentes. Pour cette gamme de tailles, les points aberrants étaient essentiellement dus aux effets de l'humidité relative sur les granulomètres. Pour les aérosols submicroniques, la variabilité est réduite mais reste importante. Dans cette gamme, la réduction est principalement due au premier et troisième critère. Une autre conséquence de ce filtrage est la réduction de la gamme du diamètre de goutte testée, puisqu'il ne reste que deux tailles de gouttes (2 mm et 2,6 mm). En effet, les autres tailles de gouttes correspondent chronologiquement aux plus anciennes mesures, et de nombreuses procédures visant à améliorer la qualité de nos expériences n'étaient pas encore au point. Citons par exemple le confinement de la cuve, qui a entraîné

au début des expérimentations des pollutions intempêtes du puits de chute. De fait, rare sont les plus anciennes mesures qui satisfont aux critères de sélection des données mis en œuvre.

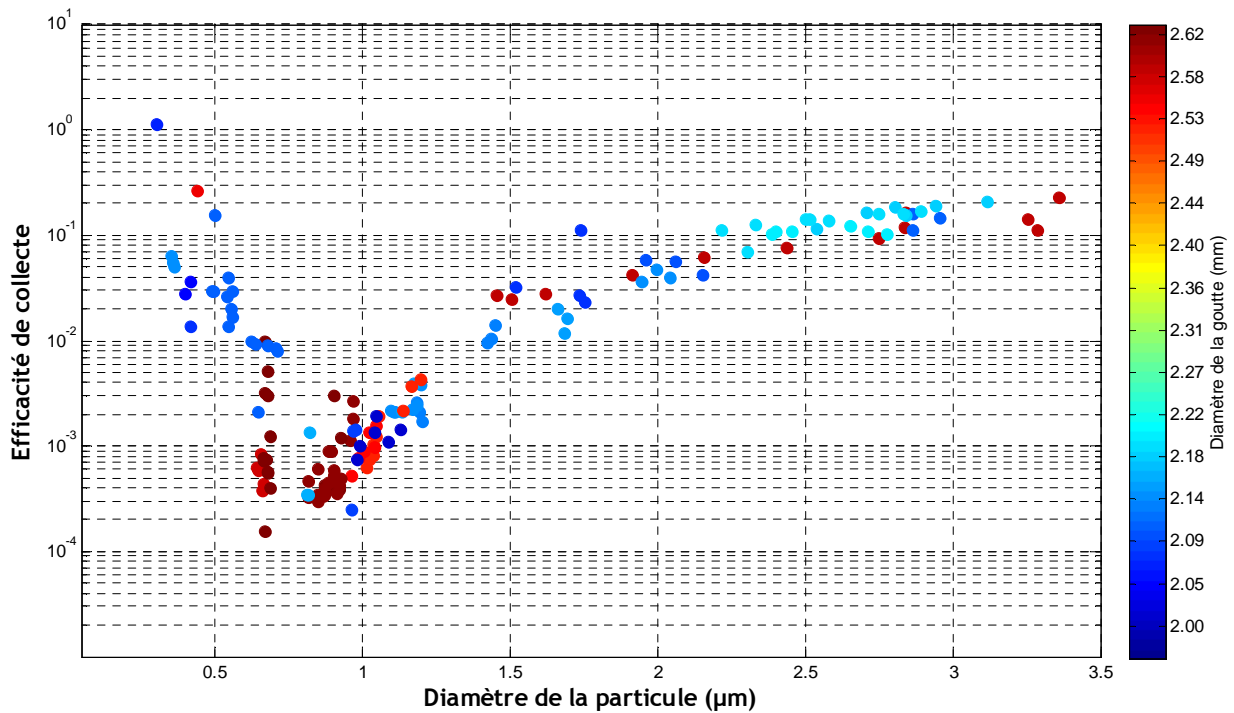


Figure 49 : Mesure d'efficacité de collecte après sélection (163 mesures expérimentales retenues)

2. Incertitudes et erreurs expérimentales

Une fois les mesures expérimentales sélectionnées, il faut leur associer à chacune une incertitude.

Les incertitudes des efficacités de collecte sont déterminées par la propagation des incertitudes individuelles de chacune des six ou sept mesures nécessaires au calcul.

Rappelons que l'efficacité de collecte pour une taille donnée de goutte, d'aérosol et une humidité donnée est calculée à partir de l'Équation 28, soit :

$$E(D_G, d_{AP}, HR) = \frac{2 C_{Gfluo} D_G}{3 H C_{mfluo}}$$

Il faut donc déterminer l'incertitude de chacun des membres de l'Équation 28 pour accéder à l'incertitude expérimentale des efficacités de collecte mesurées. Il faut également évaluer les incertitudes sur les coordonnées de l'efficacité de collecte : la taille de la goutte et la taille de l'aérosol.

La partie 2 de ce chapitre est consacrée à la détermination de chacun des éléments composant l'Équation 41.

2.1. Incertitude sur le diamètre des gouttes

D'après les mesures réalisées en ombroscopie, l'écart relatif maximal entre les différents diamètres des gouttes est inférieur ou égal à 5 %. Nous avons donc, $\frac{\Delta D_G}{D_G} = 0,05$.

2.2. Incertitude sur la taille des aérosols

La principale incertitude est due au fait que tous les aérosols n'ont pas exactement la même taille mais suivent une distribution proche d'une log-normale. Pour évaluer la dispersion de taille autour de la valeur moyenne, nous avons décidé de prendre l'écart-type de la distribution pour la valeur de variabilité mesurée. Il aurait été plus direct de calculer l'écart-type de la distribution. Ce choix s'explique par le fait que les paramètres de la loi log-normale sont nécessaires au calcul de l'efficacité de collecte, ils étaient donc disponibles.

La densité de probabilité d'une loi log-normale est définie de la manière suivante :

$$\text{Équation 36} \quad f(x, \mu, \sigma) = \frac{1}{x \sigma \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(\ln x - \mu)^2}{2\sigma^2}\right)$$

Par un programme informatique spécifique développé sous *matlab*, nous réalisons un fit des distributions mesurées par l'APS et/ou par l'ELPI, pour calculer les paramètres μ et σ (respectivement moyenne et d'écart-type du logarithme des valeurs de la statistique) des distributions log-normales correspondants à chaque expérience.

Les paramètres μ et σ sont déterminés par le calcul de l'espérance (E_{sp}) et de la variance (Var) des distributions expérimentales. Etant donné que nous mesurons les masses de particules collectées par les gouttes, nous présentons les distributions granulométriques en masse (ou en volume). Soit $M_{AP}(i)$ la masse de particules présente dans la classe i autour du diamètre $d_{AP}(i)$. L'espérance correspond à la moyenne de la distribution expérimentale, elle est donc calculée d'après l'expression de l'Équation 37. Quant à la variance, elle est calculée d'après la formulation de l'Équation 38.

$$\text{Équation 37} \quad E_{sp} = \frac{\sum_i M(i) d_{AP}(i)}{\sum_i M(i)}$$

$$\text{Équation 38} \quad Var = \sum_i M(i) (d_{AP}(i) - E_{sp})^2$$

Connaissant l'espérance et la variance, les moyennes et les écart-types sont calculés d'après les équations Équation 39 et Équation 40.

$$\text{Équation 39} \quad \mu = \ln(Esp) - \frac{1}{2} \ln\left(1 + \frac{Var}{Esp^2}\right)$$

$$\text{Équation 40} \quad \sigma = \sqrt{\ln\left(\frac{Var}{Esp} + 1\right)}$$

Une base de données des paramètres définissant les distributions pour chaque expérience est ainsi établie. La Figure 50 présente un exemple de loi log-normale obtenue par cette méthode. Dans ce cas-ci la distribution de référence possède une moyenne égale à 0,89 μm , et un écart-type de 0,19 μm .

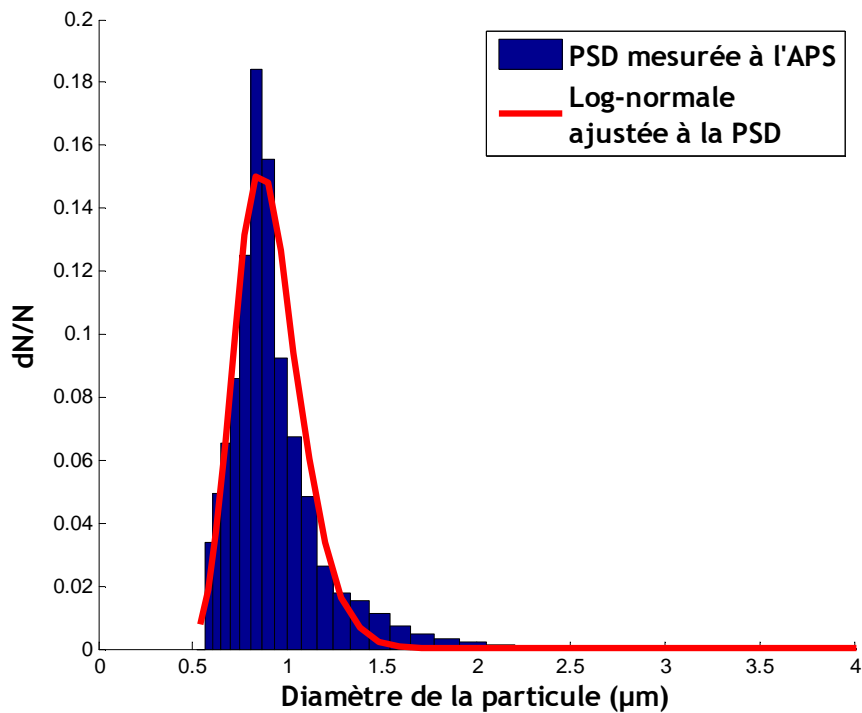


Figure 50 : Ajustement de distribution de type log-normale sur une distribution granulométrique mesurée

Sur la Figure 51, sont représentés tous les points de mesures auxquels ont été adjoint des barres horizontales qui représentent la distribution des écarts-type en fonction du diamètre des particules. Attention, il ne s'agit pas de l'incertitude sur le diamètre des particules qui est représentée, mais bien l'écart-type. Quoiqu'il en soit, un fort recouvrement des distributions est observé.

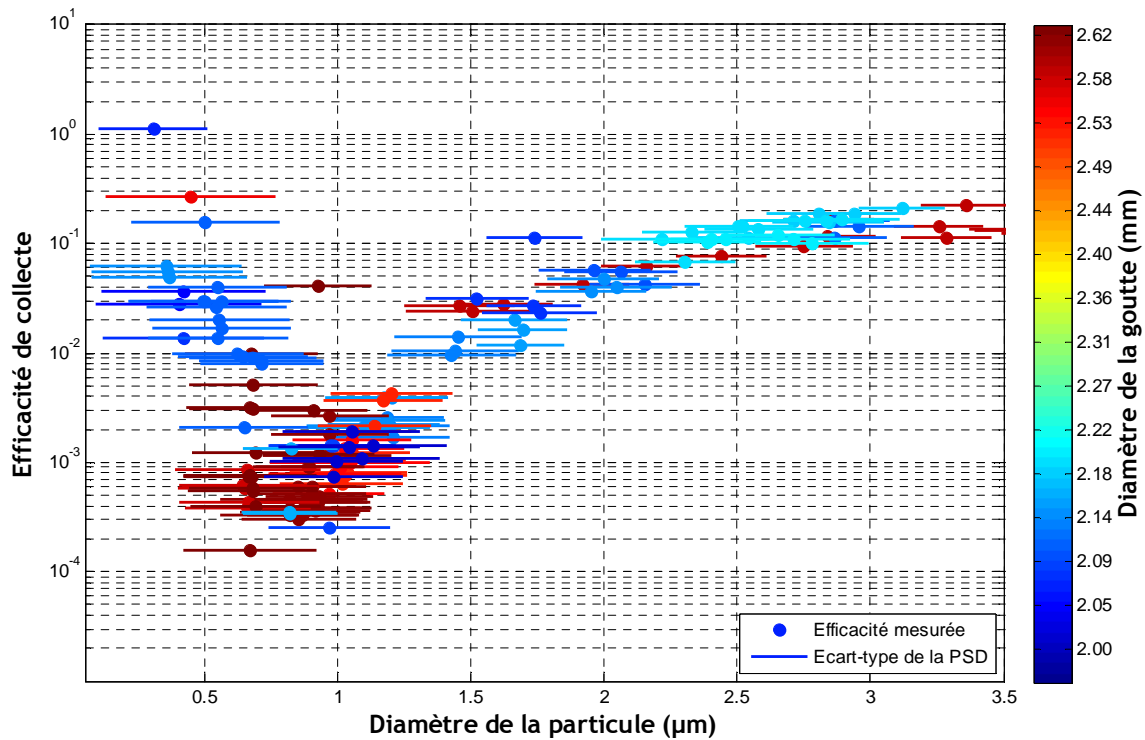


Figure 51 : Efficacités de collecte mesurée expérimentalement, avec les écart-types des distributions granulométriques associées

Ces écart-types relativement importants induisent une imprécision sur la localisation des points de mesures par rapport à la taille de l'aérosol. Ils induisent une seconde erreur. Dans notre stratégie expérimentale, nous avons fait l'hypothèse que nous mesurons comment des gouttes d'une taille donnée lessivaient des particules d'aérosol d'une taille donnée. Or, les gouttes rencontrent des particules qui ont une distribution en taille. Si cette efficacité de collecte varie fortement pour une variation de la taille des particules (et c'est le cas), la valeur mesurée sera faussée par la présence de quelques particules de tailles différentes. Cet aspect est discuté dans le paragraphe 2.4.

2.3. Incertitude sur l'efficacité de collecte due à la précision des mesures

En suivant l'expression de l'efficacité de collecte (Équation 28), son incertitude s'écrit :

$$\text{Équation 41} \quad \frac{\Delta E}{E} = \sqrt{\left(\frac{\Delta D_G}{D_G}\right)^2 + \left(\frac{\Delta C_{Gfluo}}{C_{Gfluo}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta C_{mfluo}}{C_{mfluo}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta H}{H}\right)^2}$$

2.3.1. Incertitude sur la concentration de fluorescéine dans les gouttes

L'incertitude sur la concentration de fluorescéine dans les gouttes est directement fournie par la calibration du fluorimètre. Cette incertitude va dépendre de la gamme de concentration de l'appareil utilisé étant donné que chacune d'elle est mesurée par une photodiode distincte. La Figure 52 représente les valeurs des incertitudes mesurées lors de la calibration du

fluorimètre. Ces valeurs sont interpolées de manière à déterminer l'incertitude qui va correspondre à chaque mesure de concentration. Ainsi, l'incertitude induite par la mesure en fluorimétrie va varier entre 2 % et 30 %.

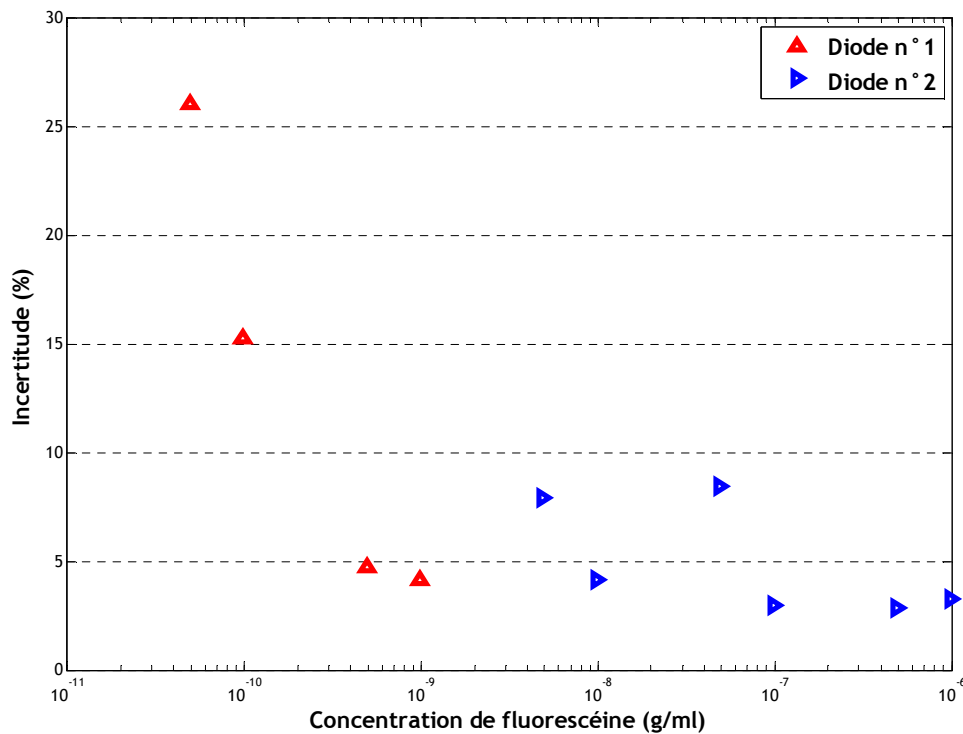


Figure 52 : Incertitudes induites par le fluorimètre

2.3.2. Incertitude sur la dimension verticale de la chambre contenant l'aérosol

La hauteur de la cuve est exactement d'un mètre (au millimètre près), ainsi l'incertitude sur la distance parcourue par les gouttes dans l'atmosphère de la cuve,ensemencée en particules, dépend du confinement dynamique qui est utilisé pour confiner l'aérosol. En l'occurrence, ce confinement se réalise sur une hauteur de 8 cm en partie haute de la cuve, et sur une hauteur de 4 cm en partie basse de la cuve. La hauteur H est donc déterminée avec une incertitude de 6 cm, soit $H = (106 \pm 6)$ cm.

2.3.3. Incertitude sur la concentration massique de particules dans la cuve

La concentration massique de l'aérosol de fluorescéine dans la cuve est mesurée à l'aide d'une technique de prélèvements sur filtre. L'Équation 42 rappelle que cette concentration C_{mfluo} est déterminée par le biais de la concentration C_{fvd} de fluorescéine dans le volume de dilution $V_{dilution}$, le débit d'air dans le filtre $Q_{air-filtre}$ et la durée du prélèvement Δt .

$$\text{Équation 42} \quad C_{mfluo} = \frac{C_{fvd} V_{dilution}}{Q_{air-filtre} \Delta t}$$

Le principe de la détermination de l'incertitude de la concentration de fluorescéine dans le volume de dilution est identique à celui mis en œuvre pour la concentration de fluorescéine dans les gouttes.

Le volume de la solution dans lequel est dilué le filtre est toujours de 100 ml, à 5 ml près.

Le débit d'air passant dans le filtre est stable et est mesuré avec une incertitude de 0,01 l.min⁻¹.

L'incertitude liée à la durée de l'expérience est inférieure à 5 s.

2.3.4. Bilan sur les incertitudes de mesure de l'efficacité de collecte

En somme, le calcul des incertitudes peut donc être exprimé à l'aide de l'équation suivante :

Équation 43

$$\frac{\Delta E}{E} = \sqrt{\left(\frac{\Delta D_G}{D_G}\right)^2 + \left(\frac{\Delta C_{Gfluo}}{C_{Gfluo}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta H}{H}\right)^2 + \left(\frac{\Delta C_{fvd}}{C_{fvd}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta V_{dilution}}{V_{dilution}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta Q_{air-filtre}}{Q_{air-filtre}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta(\Delta t)}{\Delta t}\right)^2}$$

La Figure 53 représente l'incertitude relative calculée à partir de l'Équation 43 pour chacune des expériences qui répondent aux critères de sélection. La majorité des points (60 %) ont une incertitude inférieure à 30 %, et une très large majorité (81 %) ont une incertitude inférieure à 35 %. Les seules expériences qui sont entachées d'une incertitude relative supérieure à 35 % concernent des particules qui ont des diamètres moyens compris entre 0,6 et 1 µm. En effet, c'est dans cette gamme de diamètres que l'efficacité de collecte est la plus faible, ce qui entraîne une augmentation de l'incertitude relative sur la détermination de la concentration de fluorescéine, compte tenu des faibles masses de particules captées. Il s'en suit une augmentation de l'incertitude globale pour ces tailles de particules.

Il faut remarquer que ces incertitudes restent extrêmement faibles par rapport aux variations que subit l'efficacité de collecte dans cette gamme de diamètre de particules. Il est possible d'affirmer que l'ordre de grandeur de l'efficacité de collecte est bien mesuré par notre système expérimental.

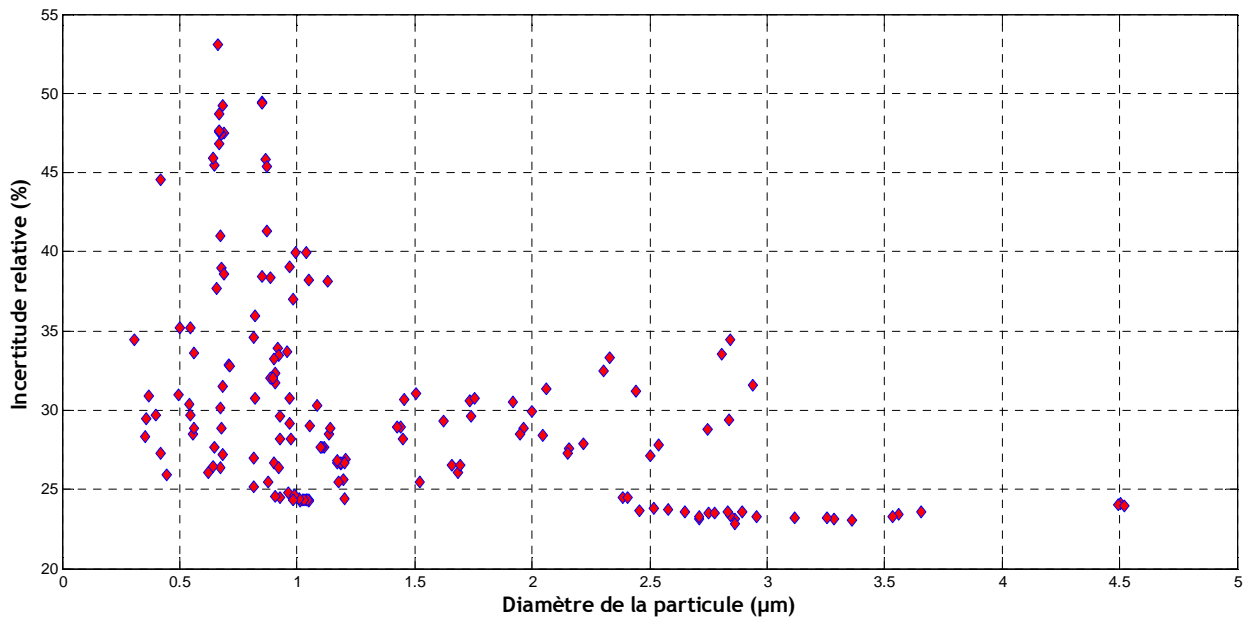


Figure 53 : Incertitude relative en fonction du diamètre des particules pour chacune des expériences sélectionnées

2.4. Erreur due à la dispersion des tailles de particules dans l'estimation de l'efficacité de collecte

L'efficacité de collecte montre de très fortes variations suivant la taille des particules d'aérosol étudiées. Si nous considérons, par exemple, la mesure effectuée pour des aérosols de 800 nm de diamètre, c'est une valeur minimale qui peut être fortement surestimée avec la présence de quelques particules de 1,2 μm de diamètre pour lesquelles l'efficacité de collecte est dix fois plus importante. Maintenant que la valeur des efficacités de collecte est connue en fonction de la taille, il est possible d'évaluer, à l'aide d'une convolution, quel est l'impact de la présence d'aérosols avec une distribution granulométrique sur l'estimation de l'efficacité de collecte. Une méthode de correction de l'efficacité de collecte est proposée en fin de paragraphe.

En supposant les particules de taille identique (ou de distributions parfaitement monodispersées), nous avons supposé dans nos calculs d'efficacités que la masse de particules collectées par la goutte se définissait ainsi :

$$\text{Équation 44} \quad m_{\text{CollMono}} = E(d_{AP}) N_{AP} \rho_{AP} \frac{4}{3} d_{AP}^3$$

Or, expérimentalement, la masse de particules en suspension dans la cuve de BERGAME se distribue sur plusieurs classes de tailles et N_{AP} est une fonction de d_{AP} . L'expression rigoureuse de la masse de particules m_{CollPoly} captée par la goutte (pour une distribution polydispersée) est donnée par l'Équation 45, avec $M_{AP}(d_{AP})$ la fonction de distribution massique des particules donnée par les données expérimentales (ELPI et/ou APS).

Équation 45

$$m_{CollPoly} = \int_{d_{AP}} E(d_{AP}) M_{AP}(d_{AP}) dd_{AP}$$

Pour déterminer l'erreur commise sur l'efficacité de collecte, nous comparerons la masse de particules captée dans le cas d'une distribution poly-dispersée avec celle collectée dans le cas d'une distribution parfaitement mono-dispersée. La Figure 54 présente le

rapport $\frac{m_{CollPoly}}{m_{CollMono}}$.

Ce rapport est évalué pour chacune des 85 mesures expérimentales d'efficacité de collecte pour des gouttes d'un diamètre égal à 2 mm. Les résultats sont présentés sur la Figure 54. Le rapport tend vers 1 pour des diamètres de particules de diamètres supérieurs à 3 μm et les particules de diamètres inférieurs à 0,3 μm , ce qui indique que l'erreur des efficacités de collecte pour ces gammes de particules est relativement minimale. C'est un comportement auquel nous pouvions nous attendre puisque dans ces gammes de taille, l'efficacité de collecte varie peu avec la taille des aérosols. Comme exprimé dans la motivation de ce paragraphe, l'écart relatif maximal est observé pour les particules dont le diamètre est compris entre 0,7 et 1,0 μm , ce qui correspond à la localisation du minimum d'efficacité de collecte. Pour ces diamètres, la largeur de la distribution des aérosols s'étend de part et d'autre du minimum d'efficacité, causant une surestimation du nombre de particules captées, à la fois vers les plus petits diamètres et vers les plus gros diamètres. Dans ce cas, le calcul du biais renvoie une erreur sur l'efficacité de collecte proche d'un facteur dix pour les aérosols dont le diamètre est proche du minimum d'efficacité de collecte.

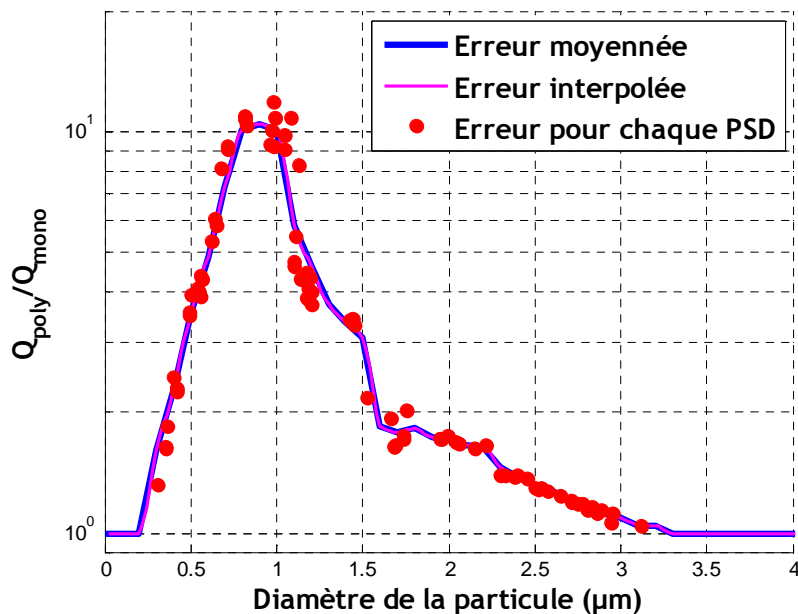


Figure 54 : Evaluation du biais dû à la poly-dispersion des particules

Pour corriger cette erreur, il faut réaliser une déconvolution de l'efficacité de collecte par les distributions granulométriques. Ceci est décrit sur le diagramme de la Figure 55.

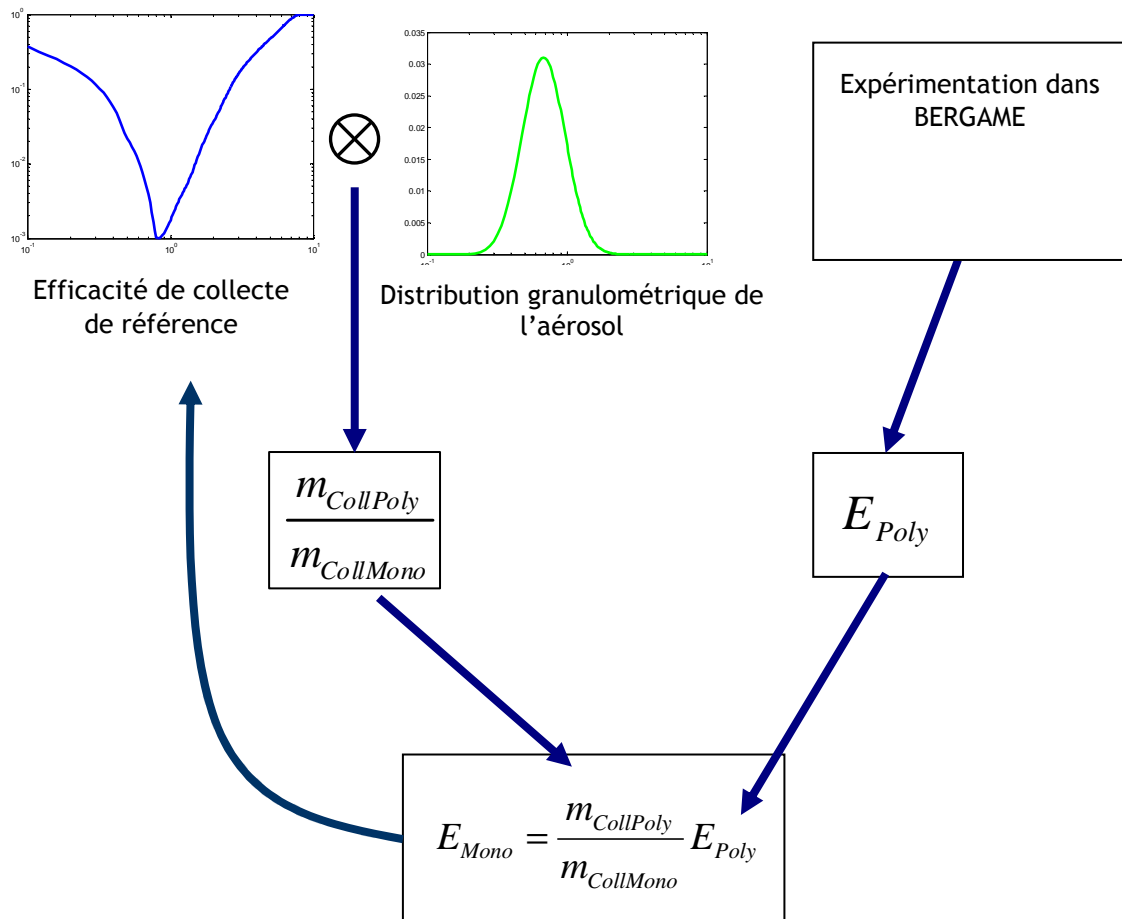


Figure 55 : Diagramme de la correction des distributions de particules

Comme la courbe d'efficacité de collecte n'est pas connue *a priori*, il faut réaliser plusieurs itérations de ce cycle et utiliser des méthodes numériques qui assurent une convergence alors que les fonctions utilisées varient fortement dans la zone d'étude. Cette convergence n'a pas été possible.

Si les résultats exprimés sur la Figure 54 ne peuvent servir de facteur de correction aux résultats expérimentaux, ils fournissent cependant un indicateur précieux sur la fiabilité de ceux-ci.

Deux informations importantes peuvent être déduites des calculs faits en tenant compte de la distribution granulométrique des particules. Premièrement les résultats expérimentaux sont relativement justes pour des particules de diamètres supérieurs à 1,5 μm (à un facteur 2 près) et pour des particules de diamètres inférieurs à 0,4 μm (toujours à un facteur 2 près).

Deuxièmement, le rapport $\frac{m_{CollPoly}}{m_{CollMono}}$ est toujours supérieur à un, et par conséquent la valeur

de l'efficacité de collecte est systématiquement surestimée. Il est donc possible d'estimer une incertitude sur la position de l'efficacité de collecte. Mais cette incertitude ne peut-être qu'indicative, et il n'est pas possible de fournir une incertitude enveloppe. La Figure 56

représente la position potentielle des valeurs des efficacités de collecte. La principale incertitude demeure autour du minimum d'efficacité.

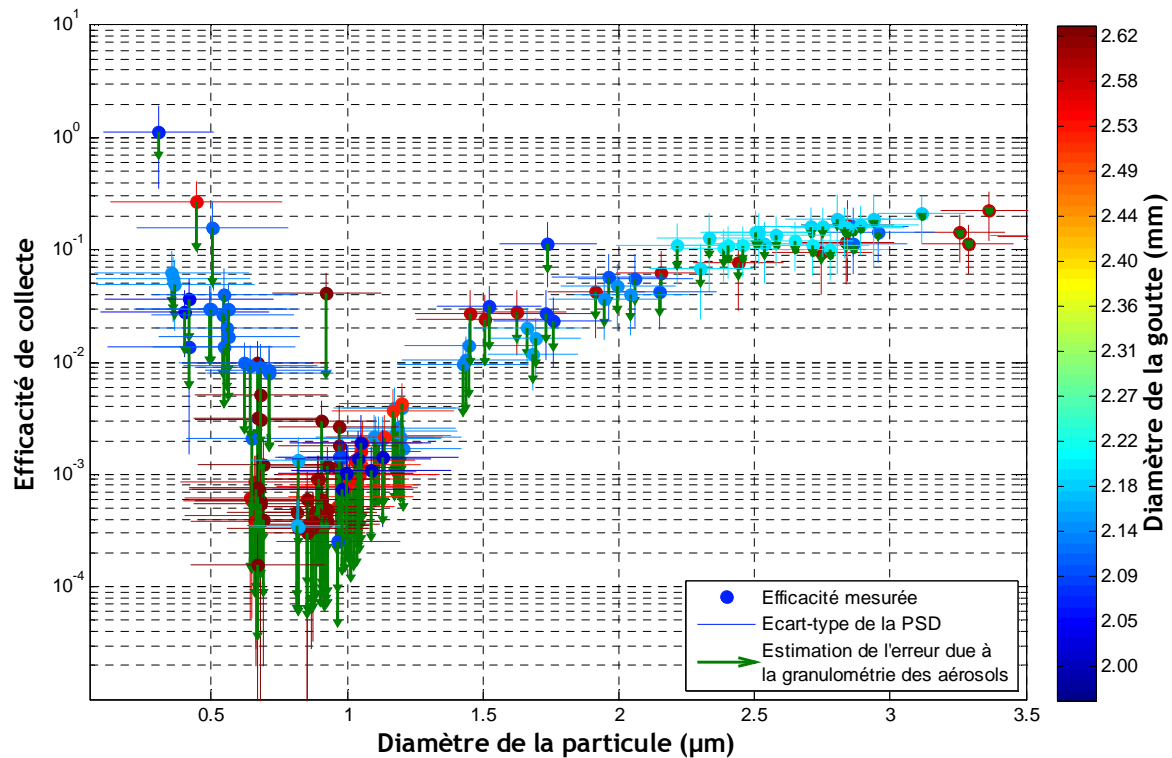


Figure 56 : Efficacités de collecte mesurées, avec les estimations de l'erreur due à la PSD associée

Dans les paragraphes qui suivent, toutes les incertitudes de mesures ne seront plus représentées dans un souci de lisibilité. Mais il faut garder en tête que la taille des particules est résolue dans une gamme d'environ 0,3 μm, celles des gouttes dans une gamme d'environ 0,1 mm. Dans tous les cas, les efficacités de collecte sont surestimées. De plus, pour les aérosols de diamètre inférieur à 1,5 μm, s'ajoute une incertitude de l'ordre de 30 %. Et enfin, pour les particules de diamètre inférieur, seul l'ordre de grandeur de l'efficacité de collecte est résolu.

3. Analyse des résultats expérimentaux

3.1. Gamme explorée jusqu'à aujourd'hui

BERGAME a permis de réaliser 163 mesures d'efficacités de collecte. Les coordonnées de ces mesures sont reportées sur la Figure 57.

Les mesures réalisées sont concentrées sur une gamme de taille d'aérosols allant de 0,3 à 4 μm et sur des gouttes dont les distributions granulométriques sont centrées sur des diamètres de 2 mm et de 2,6 mm. Cette gamme de taille de gouttes a été mesurée en premier, car la Figure 13 du Chapitre 2, a montré que ces gouttes rabattent le plus de particules lors d'une pluie. A ce jour, seules des humidités relatives inférieures à 65 % ont été testées.

Les expérimentations se sont heurtées à un certain nombre de difficultés :

- faire tomber les gouttes en nombre suffisant dans la cuve, principalement à cause du caractère aléatoire de la trajectoire des gouttes,
- obtenir des aérosols plus petits que $0,3 \mu\text{m}$ avec des concentrations assez grandes pour pouvoir mesurer la masse de particules captée par les gouttes,
- générer des gouttes plus petites que 2 mm ,
- générer des aérosols plus gros que $5 \mu\text{m}$ (des solutions existent, mais les aérosols de cette gamme de diamètre présentent moins d'intérêts),
- garder le banc d'essai propre de toutes traces de fluorescéine ; une attention toute particulière a dû être apportée au nettoyage très régulier de la cuve, et de toute l'instrumentation associée,
- le maintien d'une humidité stable et contrôlée d'une expérimentation à l'autre.

Ainsi, il n'a pas encore été possible d'explorer toute la zone d'étude qui a été définie à la fin du Chapitre 2, que ce soit en taille de gouttes, en taille d'aérosols et en humidité (voir Figure 57).

Cependant, un nombre assez important de mesures ont été effectuées pour pouvoir observer, dans notre zone d'étude, des variations de l'efficacité de collecte en fonction de la taille des gouttes et de la taille des aérosols.

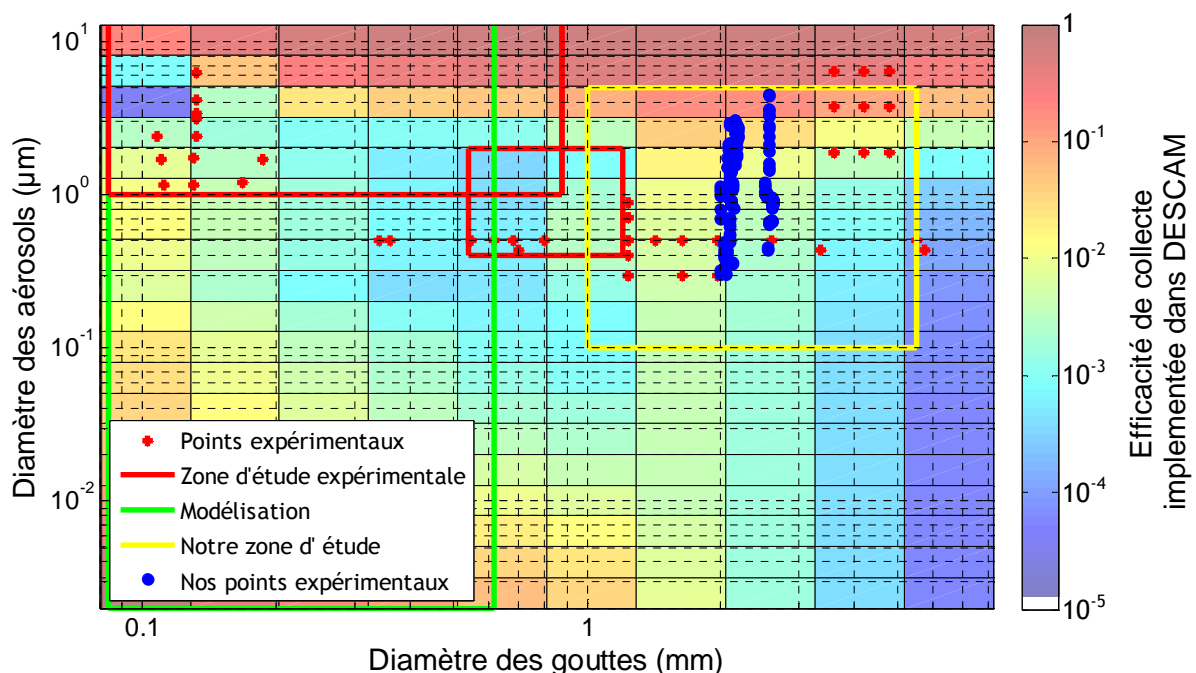


Figure 57 : Localisation des points de mesures d'efficacité de collecte dans la matrice de DESCAM

3.2. Influence de la taille des gouttes sur l'efficacité de collecte

La Figure 58 présente les mesures d'efficacité de collecte qui ont été réalisées, auxquelles ont été ajoutées les valeurs interpolées et extrapolées de la base de données d'efficacité de collecte utilisée avant ce travail dans DESCAM : la courbe correspondant aux gouttes de

2,05 mm et celle correspondant aux gouttes de 3,25 mm. La matrice originelle ne possède pas d'information sur les tailles de gouttes intermédiaires. En effet, suivant la résolution en taille choisie pour une simulation, le modèle interpole de manière logarithmique ces données.

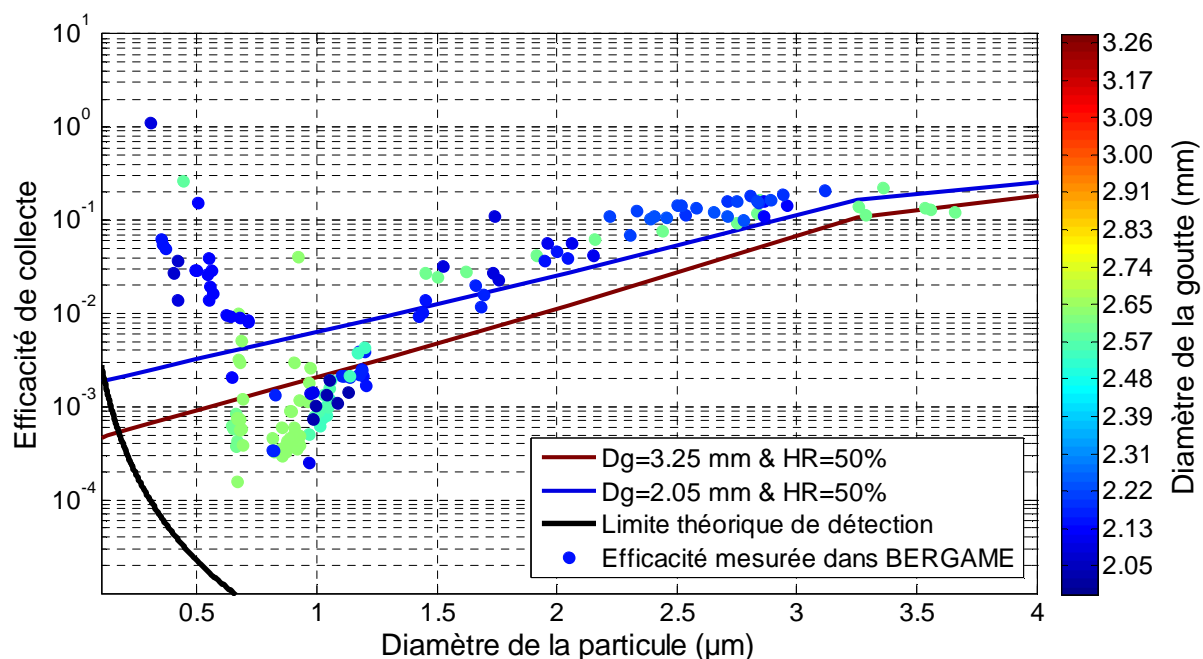


Figure 58 : Efficacités de collecte originales utilisées dans DESCAM et efficacités de collecte mesurées pour des gouttes de 2 mm et des gouttes de 2,6 mm

D'après nos mesures expérimentales, il n'apparaît pas de différences d'efficacité de collecte entre les gouttes de 2 et 2,6 mm sur la gamme de particules allant de 0,8 à 3,5 μm . Ce résultat est cohérent avec les données déjà intégrées dans DESCAM car elles montrent aussi une évolution de l'efficacité de collecte relativement peu dépendante de la taille des gouttes (pour ces tailles de gouttes seulement). Néanmoins, la gamme de taille de gouttes explorée est trop faible pour tirer des conclusions sur le comportement de l'efficacité de collecte en fonction de la taille des gouttes sur une gamme plus importante.

3.3. Influence de l'humidité relative sur l'efficacité de collecte

Les calculs de Wang et Pruppacher (1977b) montrent que, pour des gouttes dont le diamètre est inférieur à 1 mm, l'efficacité de collecte est une fonction de l'humidité. La Figure 59 extraite de cette publication exprime l'efficacité de collecte en fonction de la taille des gouttes pour quatre humidités différentes pour des particules de 0,5 μm de diamètre.

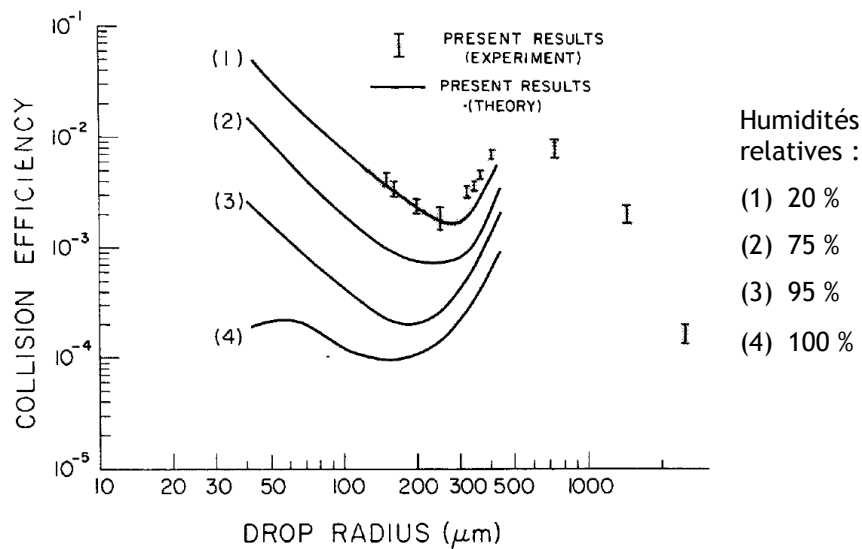


Figure 59 : Evolution de l'efficacité de collecte en fonction de l'humidité relative (Wang and Pruppacher, 1977b)

Comme le montre la Figure 59, l'efficacité de collecte décroît significativement en fonction de l'humidité relative. Pour une goutte de 100 μm de diamètre, l'efficacité de collecte est de 0,4 pour une humidité relative de 20 % et de $2 \cdot 10^{-4}$ sous une humidité relative de 100 %.

Cette différence d'efficacité de collecte est attribuée au phénomène de diffusiophorèse. La diffusiophorèse est un mécanisme intervenant dans un milieu présentant des gradients de concentration des différentes espèces le constituant. Dans le cas d'une goutte tombant dans un air faiblement chargé en humidité, le flux de vapeur émanant de la goutte est compensé par un écoulement, appelé flux de Stefan (Pruppacher and Klett, 1997), de même direction mais de sens contraire et compensant ce flux de vaporisation. Dans le cas qui nous concerne, c'est-à-dire l'évaporation d'une goutte dans un mélange constitué d'air et de vapeur, il apparaît donc que la vitesse de dérive de l'aérosol a le même sens que le flux de Stefan, car la masse molaire du mélange formant le flux de Stefan (mélange air/vapeur) est supérieure à celle des molécules d'eau formant le flux de vaporisation (vapeur pure).

Plus l'humidité relative de l'air va être importante, moins le flux de vapeur sera important, diminuant d'autant le transport des particules vers la goutte ; ainsi l'efficacité de collecte va diminuer pour une humidité de l'air croissante.

Lors d'un événement pluvieux, l'humidité relative de l'air va tendre vers 100 %. Il faut donc vérifier si cette dépendance de l'efficacité de collecte à l'humidité est toujours vraie pour les gouttes millimétriques, ce que nos expérimentations n'ont pas démontré à ce jour.

La Figure 60 présente une courbe d'efficacité de collecte pour une goutte d'un diamètre de 2 mm pour des humidités relatives variant entre 20 % et 85 %.

On observe sur la Figure 60 que les humidités relatives de nos expériences se concentrent dans une gamme comprise entre 21 et 85 %. Pour les aérosols de diamètre autour de 3 μm , les efficacités mesurées sont identiques pour des humidités relatives variant entre 25 % et 60 %. Pour des aérosols autour de 0,5 μm , l'humidité relative étudiée s'étend de 44 % à

60 %, et l'on n'observe toujours pas de variation associée de l'efficacité de collecte en fonction de l'humidité. Et enfin, pour les particules dont le diamètre est autour de 1 μm , on n'observe pas d'influence réelle de l'humidité relative sur l'efficacité de collecte pour une humidité variant entre 50 % et 85 %.

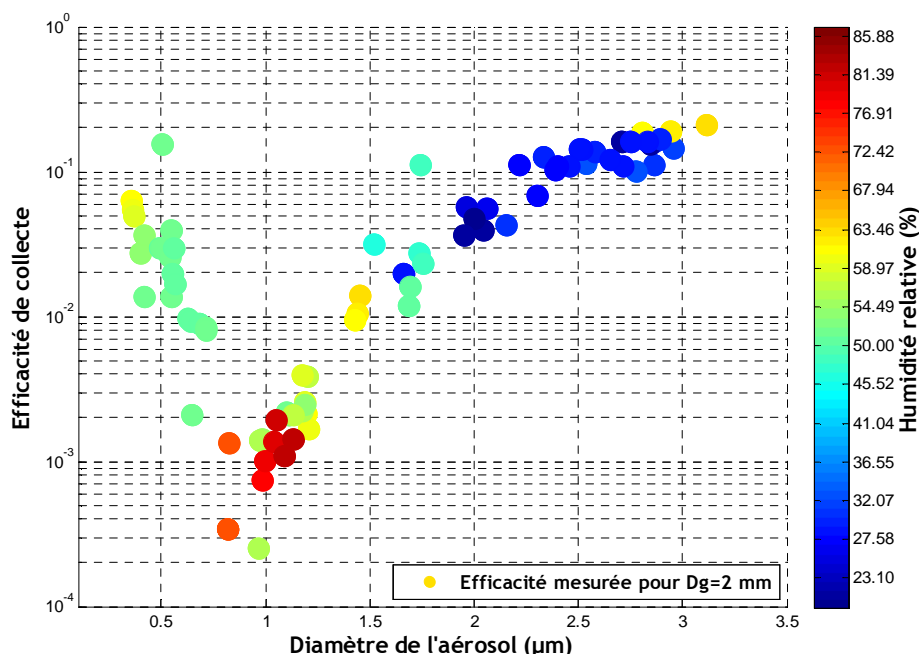


Figure 60 : Efficacité de collecte pour des gouttes de 2 mm en fonction de l'humidité relative de l'air

Les humidités relatives supérieures à 90 % n'ont pu être atteintes en raison des limitations des granulomètres ELPI et APS. En plus, il faut ajouter que pour une humidité relative supérieure à 90 %, les vitres de la cuve se couvrent de condensation, ce qui rend très difficile l'observation des tailles des gouttes par ombroscopie.

Ainsi, la conclusion à tirer de cette série d'expériences est la non-influence de l'humidité relative sur l'efficacité de collecte pour une gamme d'humidité comprise 20 et 85 %, pour des gouttes d'un diamètre de 2 mm.

3.4. Influence de la taille de l'aérosol sur l'efficacité de collecte

Pour apporter plus de clarté au propos, on limite l'étude aux gouttes de 2 mm de diamètre.

La Figure 61 présente l'efficacité de collecte d'une goutte d'un diamètre moyen de 2 mm, mesurée en fonction du diamètre de l'aérosol.

La courbe de la Figure 61 montre d'abord que nos résultats sont significativement supérieurs à la limite de détection, de plus ils sont cohérents avec les résultats obtenus par Lai et al. (1978) (goutte d'un diamètre de 2 mm pour ces auteurs) qui s'intègrent dans notre nuage de mesures.

Entre 0,3 et 1,4 μm , les efficacités de collecte mesurées suivent une courbe en U, dont le minimum se situe pour des particules d'un diamètre proche de 0,85 μm . Cette courbe en U

est due à la somme de différents mécanismes de collecte des particules par les gouttes, ces mécanismes n'ayant pas la même importance en fonction de la taille des particules. Typiquement, pour les gouttes submicroniques, deux mécanismes sont mis en avant : la diffusion brownienne (responsable de la branche gauche du U ; plus les particules ont des diamètres faibles, plus l'efficacité de collecte est grande) et l'impaction (branche droite du U, plus les particules sont massives, plus l'inertie de celle-ci est importante, plus elles auront tendance à ne pas suivre les lignes de courant qui contournent la goutte, plus iront s'impacter sur cette dernière, plus l'efficacité de collecte est grande). Entre les deux, l'efficacité de collecte est minimale (appelé le Greenfield gap), d'où cette forme typique en U. En revanche, dans cette gamme de taille d'aérosols, les efficacités de collecte inscrites dans DESCAM n'adoptent pas la courbe en U et croissent linéairement. Ainsi, pour les particules les plus fines dont l'efficacité de collecte a été mesurée ($d_{AP} = 0,3 \mu\text{m}$), une efficacité de collecte d'environ un ordre de grandeur supérieur aux données inscrites dans le modèle est observée. De plus, autour du minimum d'efficacité, les mesures effectuées dans BERGAME sont d'un ordre de grandeur inférieur à celles inscrites dans le modèle. Pour les plus grosses particules, il existe aussi une divergence importante. Tandis que l'allure générale est identique, entre 2 et 3,5 μm , avec des croissances linéaires de l'efficacité de collecte. Notons que les efficacités inscrites dans le modèle (dans cette gamme) sont en moyenne dix fois supérieures à celles mesurées.

Au vu de la précision des mesures discutées dans le paragraphe précédent, nous pouvons affirmer que cette différence est significative et que cette correction est importante.

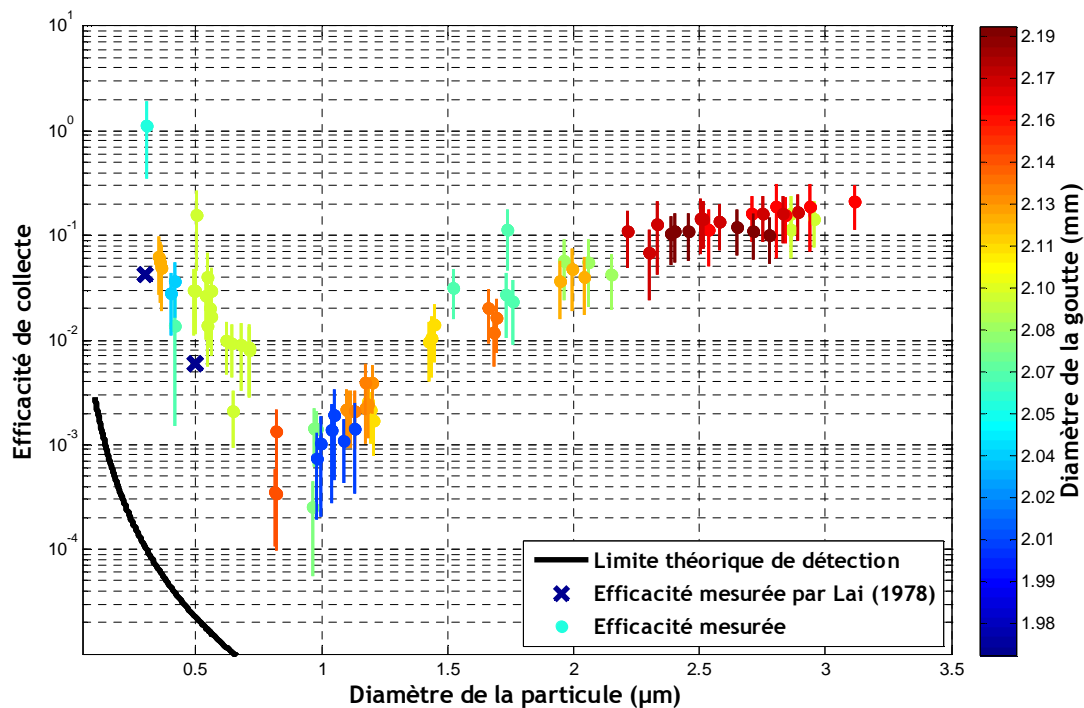


Figure 61 : Efficacité de collecte mesurée pour des gouttes autour de 2 mm de diamètre

4. Paramétrage des efficacités de collecte mesurées

Comme indiquée dans le chapitre 2, il existe deux méthodes pour déterminer les efficacités de collecte : la méthode expérimentale et le calcul théorique de ces efficacités. De nombreux modèles de nuage préfèrent utiliser une description théorique qui permet de calculer l'efficacité de collecte pour chaque taille de particules et de gouttes.

Dans ce paragraphe nous représenterons de manière succincte le modèle semi-empirique de Slinn (1977) qui est le plus couramment utilisé pour déterminer les efficacités de collecte des particules par les gouttes (Baklanov and Sørensen, 2001; Laakso, 2003). Puis les prévisions du modèle de Slinn sont comparées à nos résultats expérimentaux (de même que les données interpolées et extrapolées de DESCAM d'efficacité de collecte). Au vu des différences très importantes entre les résultats expérimentaux et les modèles (Slinn et DESCAM), nous proposerons une correction des paramétrisations utilisées pour une meilleure adéquation entre les mesures expérimentales et le modèle semi-empirique.

4.1. Confrontation des résultats expérimentaux au modèle de Slinn et à la base de données de DESCAM

Le modèle de Slinn, qui propose la modélisation des efficacités, est présenté en détail au cours du chapitre 2. En résumé, celui-ci fait l'hypothèse que la collecte des particules par les gouttes est la somme de trois mécanismes de collecte, indépendant les uns des autres : la diffusion brownienne (particulièrement efficace pour des particules de diamètre inférieurs à $0,1 \mu\text{m}$), l'interception et l'impaction (ces deux derniers étant particulièrement efficaces pour des particules de diamètre supérieurs à $1 \mu\text{m}$). Ce modèle est semi-empirique, c'est-à-dire qu'un certain nombre de paramètres décrivant ces trois mécanismes sont directement déduits des mesures expérimentales.

Les données originelles d'efficacité de collecte dans DESCAM sont une extrapolation des valeurs issues de la littérature, en particulier du modèle de Wang et al (1978).

Les efficacités issues de ces deux sources sont confrontées à nos résultats expérimentaux (Figure 62). On observe que le modèle d'efficacité de collecte des particules par la pluie établi par Slinn (1977) offre des résultats à la fois différents des données originales de DESCAM et différents de nos mesures expérimentales. Ce modèle sous évalue systématiquement l'efficacité de collecte (sauf entre $0,7$ et $1 \mu\text{m}$), et le minimum d'efficacité est situé pour des diamètres d'aérosols autour de $0,1 \mu\text{m}$, au lieu d'un minimum situé autour $0,7 \mu\text{m}$ d'après les mesures expérimentales.

Quant aux données d'efficacité de collecte de DESCAM, elles offrent des résultats également non conformes aux expériences. D'une part ces données surestiment d'un facteur allant de 1 à 10 les efficacités de collecte pour les particules autour de $1 \mu\text{m}$, et d'autre part, ces données ne correspondent aucunement avec les mesures expérimentales pour les

particules submicroniques (principalement parce que les données de DESCAM ignorent complètement l'existence d'un minimum d'efficacité pour les gouttes d'un diamètre de 2 mm). Les valeurs sont également légèrement sous-estimées pour les particules d'un diamètre supérieur à 0,8 μm , jusqu'à un facteur deux.

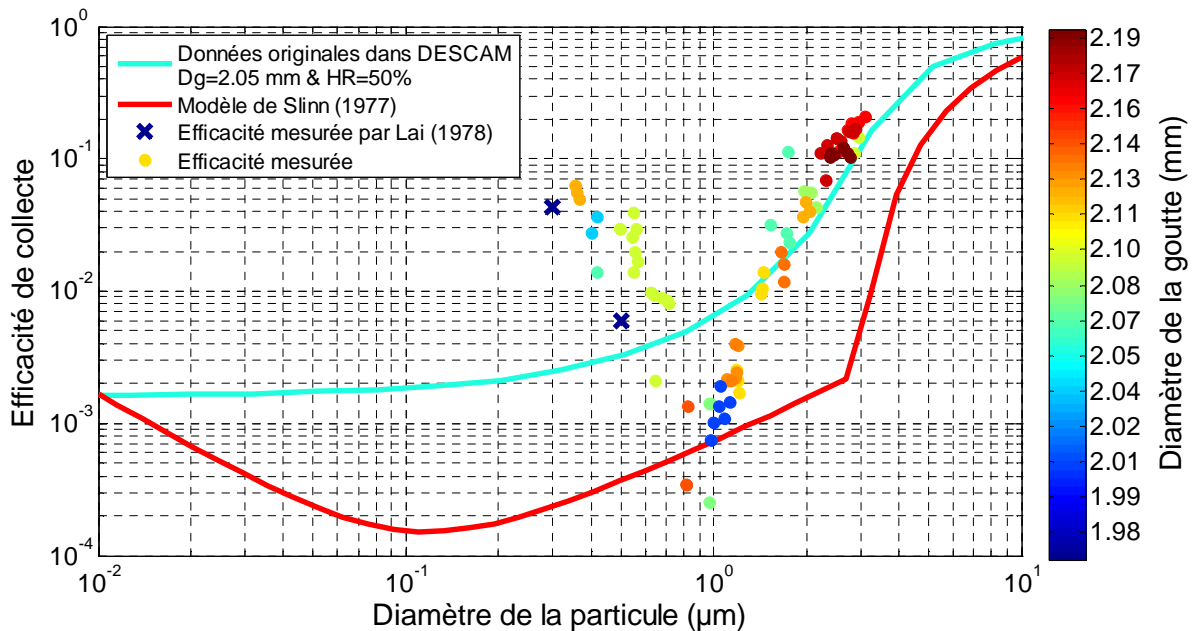


Figure 62 : Efficacités de collecte expérimentales confrontées aux modèles de Slinn et aux données originales de DESCAM

Les mesures expérimentales permettent de conclure que ni les données d'efficacité de collecte originales de DESCAM, ni le modèle de Slinn ne sont en mesure de modéliser de façon fiable l'efficacité de collecte pour les gouttes d'un diamètre de 2 mm et des particules d'un diamètre compris entre 0,3 et 3 μm . Or, comme noté précédemment (Chapitre 2), ces gammes de taille de gouttes sont les plus importantes pour la modélisation du lessivage de l'atmosphère par la pluie. Il faut donc améliorer la modélisation de l'efficacité de collecte pour les tailles de gouttes qui ont été mesurées dans BERGAME. Ceci est l'objet du paragraphe suivant.

4.2. Modifications apportées au modèle de Slinn et justifications expérimentales des hypothèses

Pour paramétrer les efficacités de collecte des gouttes de 2 mm, nous nous basons sur le modèle de Slinn. Deux problèmes assez distincts se dégagent pour une adaptation du modèle de Slinn : la collecte pour les particules de diamètre supérieur à 1 μm (celles qui sont les plus sensibles à l'impaction) et la collecte pour les particules de diamètre inférieur à 1 μm .

4.2.1. Mécanismes phorétiques non pris en compte par le modèle de Slinn

Il est certain que le modèle de Slinn « classique » (impaction, interception et diffusion brownienne) ne prend pas en compte tous les mécanismes de collecte. En effet, il existe les effets phorétiques : thermophorèse, diffusiophorèse et électrophorèse. Davenport et Peters (1978) se sont chargés d'ajouter ces effets au modèle de Slinn (1977) lorsqu'ils ont constaté que ce modèle ne permettait pas de retrouver leurs mesures expérimentales de taux de lessivage. Cependant, pour des gouttes de diamètres supérieurs à 1 mm, il s'avère que les effets phorétiques sont faibles par rapport aux trois mécanismes du modèle de Slinn.

Ainsi, l'efficacité de collecte due à la diffusiophorèse pour une goutte de 2 mm varie de 0 à $2 \cdot 10^{-6}$ (l'efficacité de collecte due à la diffusiophorèse est indépendante de la taille des particules). Or, la valeur du minimum d'efficacité de collecte calculé sans cet effet phorétique est de 10^{-4} , donc la diffusiophorèse n'est pas un mécanisme important pour ces tailles de gouttes.

Tableau 4 : Efficacité de collecte due à la diffusiophorèse en fonction de l'humidité relative

Humidité relative	0	5	20	50	80	95	100
Efficacité de collecte	0	$2,93 \cdot 10^{-7}$	$9,87 \cdot 10^{-7}$	$1,542 \cdot 10^{-6}$	$9,87 \cdot 10^{-7}$	$2,93 \cdot 10^{-7}$	0

Il en va de même pour la thermophorèse, que l'on peut même considérer nulle si nos gouttes tombent dans un air à la même température que ces gouttes.

Quant aux effets électrophorétiques, il est difficile de fournir une réponse définitive. En effet, aucunes mesures de charge des gouttes et des aérosols n'ont été effectuées dans BERGAME. Cependant, tout a été réalisé dans BERGAME pour limiter au maximum la présence de charges : chacun des éléments de BERGAME est relié électriquement à la terre, et aucun élément en plastique ne compose l'expérience. A cela, il faut ajouter qu'il a été observé dans la littérature un comblement du minimum d'efficacité de collecte (Grover and Beard, 1975) en présence de charges électriques. Cet effet ne semble pas avoir été observé avec nos expérimentations. Malgré tout, ces effets électrostatiques devront au minimum être mesurés, pour s'affranchir du doute dû à ce mécanisme de collecte.

4.2.2. Modification à propos du mécanisme d'impaction

La Figure 63 représente le modèle d'efficacité de collecte confronté à des mesures réalisées dans BERGAME. La part due à la modélisation des effets d'impaction et d'interception n'est pas très éloignée des mesures expérimentales, et une simple retouche de l'équation décrivant l'impaction résous la différence. Cette modification apportée au modèle de Slinn s'explique par le fait que ce modèle a été établi pour des sphères rigides. Or, les gouttes d'un diamètre de 2 mm se déforment et offrent ainsi à l'écoulement une surface collectrice

plus importante. Il est important de noter que le coefficient 0,14 ajouté à l'équation décrivant les mécanismes d'impaction (voir Chapitre 1) n'est valable que pour des gouttes d'un diamètre de 2 mm. Ainsi, pour ces gouttes, l'équation modifiée de l'impaction peut s'écrire de la manière suivante :

$$\text{Équation 46} \quad E_{ImpactMod} = \left(\frac{0,14 + St - St^*}{\frac{2}{3} + St - St^*} \right)^{\frac{3}{2}}$$

La nouvelle efficacité de collecte modélisée est tracée sur la Figure 64. Le modèle répond désormais fidèlement aux mesures pour les particules soumises à l'interception et à l'impaction, c'est-à-dire pour les particules de diamètre supérieur à 1 µm.

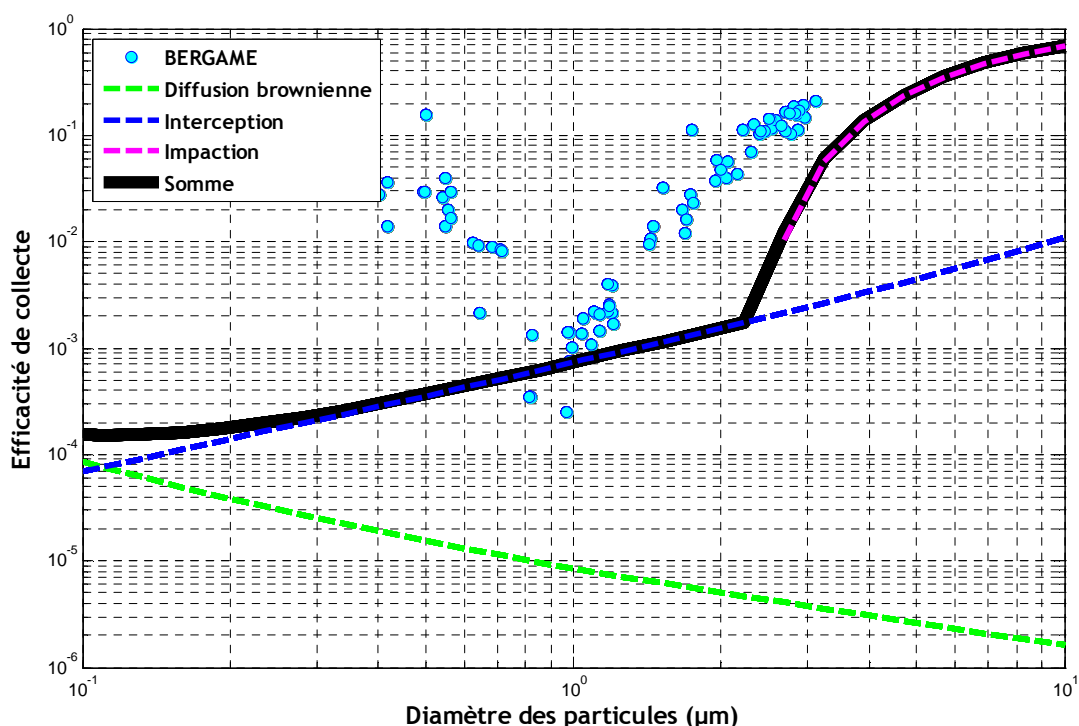


Figure 63 : Modèle de Slinn et mesures expérimentales

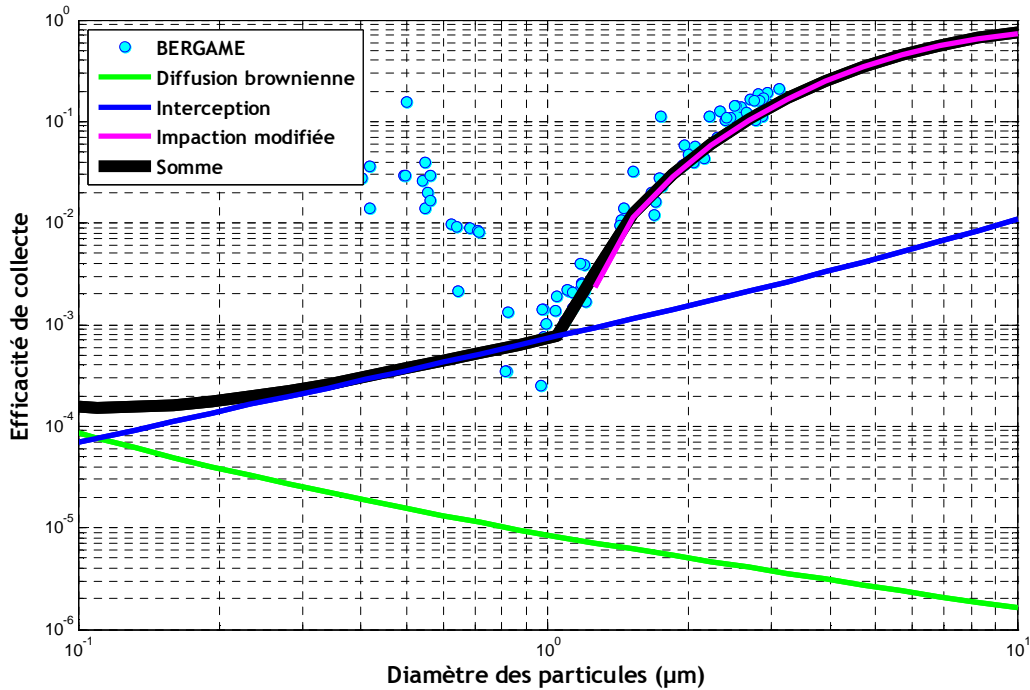


Figure 64 : Modèle de Slinn modifié

4.2.3. Modification apportée au modèle de Slinn pour la collecte des particules submicroniques

La remontée de l'efficacité de collecte pour les particules de diamètre inférieur à 1 µm est extrêmement mal modélisée pour les gouttes d'un diamètre de 2 mm.

Expérimentalement, on observe le minimum d'efficacité autour de 0,8 µm. Or, avec la seule diffusion brownienne pour collecter les particules submicroniques, le minimum se situe plutôt vers 0,1 µm, et surtout la pente est très différente. Il nous apparaît alors qu'il doit exister un autre mécanisme de collecte des particules submicronique qui n'est pas pris en compte dans le modèle de Slinn.

Nous allons tenter de comprendre ce qui n'est pas pris en compte dans la modélisation de l'efficacité de collecte établie par Slinn (1977) pour les particules de diamètre inférieur à 1 µm, pour cette gamme de taille de gouttes. Ainsi, pour comprendre ce comportement, les champs de vitesse sont mesurés autour de gouttes de 2 mm, par le couplage des techniques de PIV et d'ombroscopie (Chapitre 3, partie 6).

Ces observations sont effectuées pour de nombreux diamètres de gouttes et il apparaît une forte zone de vorticit  dans le sillage des gouttes, un volume important dans lequel les vitesses relatives du gaz par rapport   la goutte sont tr s faibles. La Figure 65 pr sente l' volution du module de la vitesse du gaz, dans l'axe de la goutte, et dans son r f rentiel. Sur cette figure, chaque profil mesur  correspond   un profil instantan , mesur  sur une goutte diff rente et la moyenne est alors la moyenne arithm tique de neuf profils exp rimentaux. Les neuf profils s lectionn s sont ceux o  la goutte est tomb e exactement au centre de la nappe laser (nappe d'une  paisseur d'un millim tre). Il a fallu acqu rir

plusieurs centaines de champs de vitesse pour atteindre cette petite dizaine de profils de vitesse.

L'aire rosée sur la Figure 65 (où les vitesses sont nulles) correspond à la position de la goutte.

En amont de la goutte, à une distance supérieure à un demi-diamètre, la vitesse du gaz est égale à 95 % de la vitesse limite de chute, puis pour des distances plus proches de la goutte, les vitesses diminuent très rapidement.

La situation est plus complexe en aval de la goutte (son sillage, partie droite du graphique, $x > 5,5$ mm). Tout d'abord, l'écoulement apparaît comme étant extrêmement turbulent avec de fortes fluctuations aussi bien spatialement que d'un champ à l'autre, et d'intensité très variable suivant les gouttes étudiées. Cependant, sur au moins trois-quarts de diamètre derrière la goutte, la vitesse relative de l'air ne dépasse pas 2 m.s^{-1} , et cette zone de basses vitesses peut se prolonger jusqu'à 2,5 diamètres dans son sillage dans les cas les plus extrêmes mesurés.

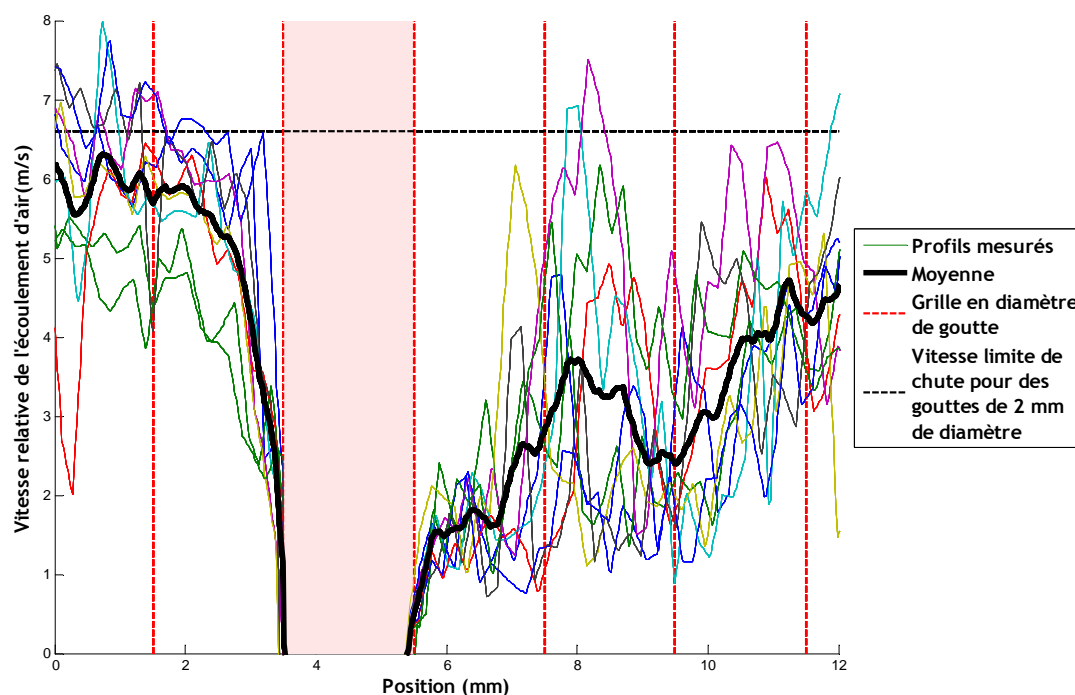


Figure 65 : Moyenne des vitesses relatives dans l'axe de la goutte

Dès lors, trois hypothèses apparaissent, concernant l'influence de la morphologie d'un tel écoulement sur les mécanismes de collecte.

La première hypothèse est que la diffusion brownienne serait influencée dans le sens d'une plus grande efficacité de collecte du fait du volume très important animé de faible vitesse relative dans le sillage de la goutte.

La deuxième hypothèse est qu'à la diffusion brownienne, l'impaction, et l'interception, s'ajoute un quatrième mécanisme d'importance, la diffusion turbulente. Toujours dans le

sillage de la goutte, cette diffusion peut jouer un rôle majeur pour la collecte des particules pour des gouttes de 2 mm de diamètre et plus.

Enfin, la troisième hypothèse qui peut expliquer ce comportement de l'efficacité de collecte observé pour les particules de diamètres compris entre 0,3 et 1 µm est la présence d'une recirculation arrière dans le sillage de la goutte.

Ces trois hypothèses sont maintenant développées et critiquées.

4.2.3.1. Hypothèse sur la diffusion brownienne arrière

Le modèle classique de dépôt des particules sur une goutte par diffusion brownienne peut-être décrit de la manière suivante :

$$E_{Diffu} = \frac{4}{Pe} \left(1 + 0,4 Re^{\frac{1}{2}} Sc^{\frac{1}{3}} \right)$$

Le nombre de Schmidt ($Sc = \frac{\nu_{air}}{D}$) est un rapport entre viscosité et diffusivité, il est indépendant de la vitesse du fluide. Ainsi, seul le nombre de Reynold est influencé par cette zone de faible vitesse de l'air présente derrière la goutte.

La nouvelle efficacité de collecte par diffusion brownienne est considérée comme la somme des efficacités de collecte sur la face amont de la goutte (avec un Reynolds calculé avec la vitesse limite de chute) et les efficacités de collecte de la face aval (avec un Reynolds correspondant à une vitesse de 1,5 m.s⁻¹).

Équation 47

$$E_{Diffu} = \frac{1}{2} \frac{4}{Pe(v=U_{\infty})} \left(1 + 0,4 Re^{\frac{1}{2}}(v=U_{\infty}) Sc^{\frac{1}{3}} \right) + \frac{1}{2} \frac{4}{Pe(v=U_{sillage})} \left(1 + 0,4 Re^{\frac{1}{2}}(v=U_{sillage}) Sc^{\frac{1}{3}} \right)$$

Mais cette modification n'apporte pas de changements dans l'ordre de grandeur de l'efficacité de collecte lié à la diffusion brownienne, et ce n'est donc pas cette modification qui va rapprocher les résultats issus de la modélisation de ceux issus de nos expériences.

4.2.3.2. Hypothèse de la diffusion turbulente

La turbulence peut être un moyen très efficace de transport de particules, et par conséquent de collecte de particules.

Cependant, la diffusion turbulente suit une loi inversement proportionnelle au diamètre des aérosols (Ounis and Ahmadi, 1990). Or il se trouve que les mesures d'efficacité de collecte réalisées dans BERGAME montrent plutôt une évolution de l'efficacité de collecte suivant

une loi en $\frac{a}{d_{AP}^b}$ avec $b > 1$.

Pour déterminer ce coefficient b , la courbe du logarithme de l'efficacité de collecte est tracée pour les particules de diamètre inférieur à $0,9 \mu\text{m}$ (voir Figure 66). Cette approximation linéaire en échelle logarithmique permet de déduire l'approximation suivante pour l'efficacité de collecte des particules de diamètre inférieur à $0,9 \mu\text{m}$ (Équation 48).

$$\text{Équation 48} \quad E(d_{AP}) = \frac{6,13 \cdot 10^{-4}}{d_{AP}^{5,22}}$$

Une pente aussi importante ne peut être expliquée simplement par des mécanismes de diffusion, même turbulente. D'autres phénomènes doivent expliquer cette forte remontée de l'efficacité de collecte pour les petites particules.

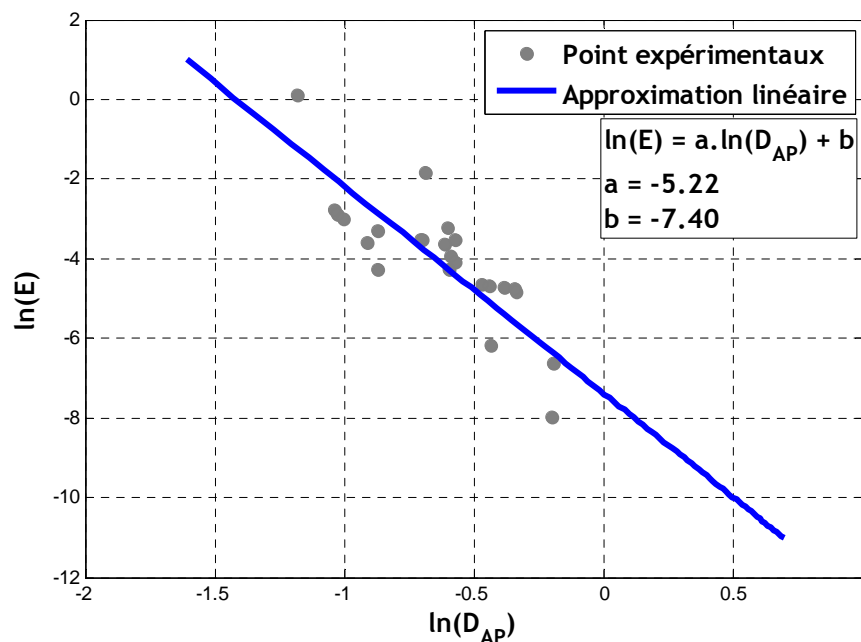


Figure 66 : Estimation de la loi de décroissance de l'efficacité de collecte pour des particules de diamètre inférieur à $0,8 \mu\text{m}$

4.2.3.3. Hypothèse de la recirculation arrière

Une possible explication pour décrire cette forte remontée des efficacités de collecte est fournie par Beard (1974). Beard modélise la collecte des particules par les gouttes à partir du modèle décrit par Beard et Grover (1974), lui-même basé sur le modèle de Langmuir et Blodgett (1946). Beard (1974) met en avant les effets inertiels de capture dans le sillage de la goutte. Plus une particule est massive, moins elle aura tendance à être entraînée dans le sillage arrière de la goutte et captée par cette dernière. Les résultats de Beard sont présentés sur la Figure 67. Beard ne présente ces calculs que pour des gouttes de diamètre compris entre $0,28$ et $1,24 \text{ mm}$, une extrapolation linéaire de ses résultats étant effectuée pour obtenir une efficacité de collecte pour des gouttes de 2 mm de diamètre. Cette approche est très artificielle car les gouttes de diamètres supérieurs à $1,2 \text{ mm}$ se mettent à osciller (Szakáll et al., 2010). Les résultats obtenus sont relativement proche de nos mesures

expérimentales, du moins les ordres de grandeur sont respectés dans la gamme de particules comprises entre 0,4 et 1 µm. De plus un minimum d'efficacité proche de 1 µm est retrouvé.

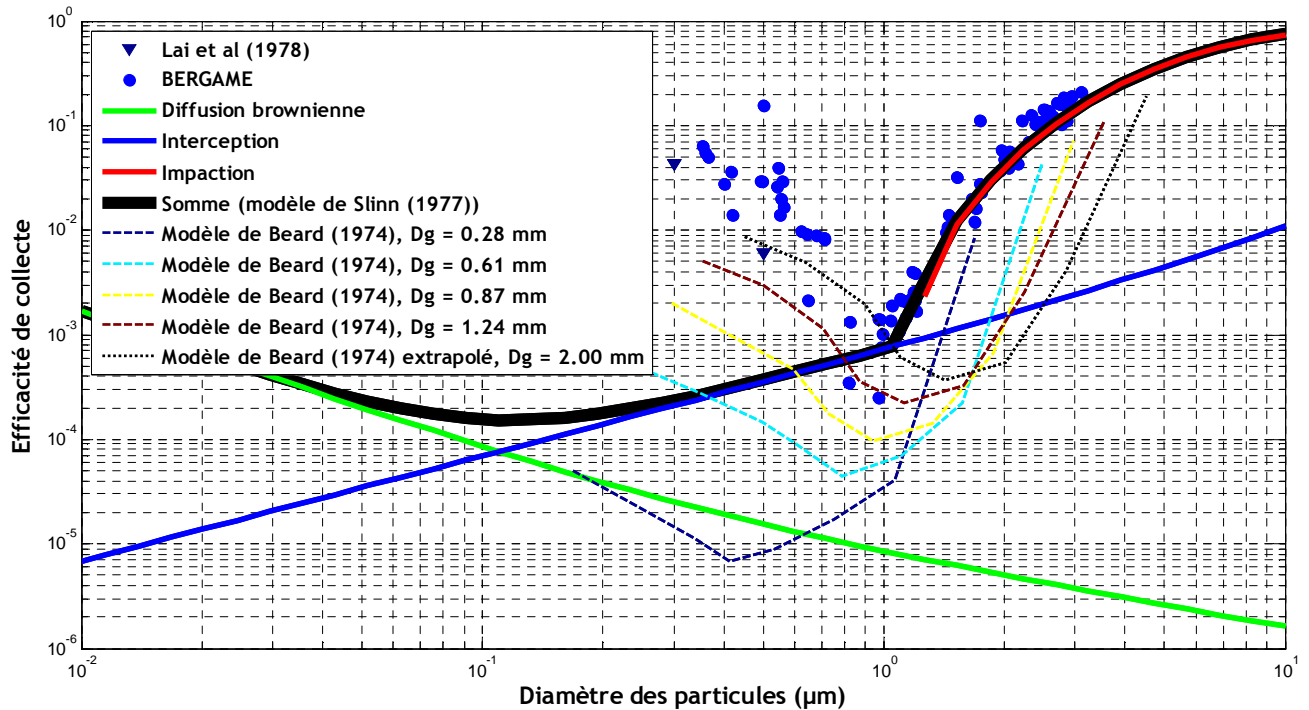


Figure 67 : Les modèles de Slinn et de Beard comparés

La pente correspondant au modèle de Beard (1974) est calculée de la même manière que celle des points expérimentaux sur la Figure 66. Ce calcul est présenté sur la Figure 68. La loi de décroissance obtenue pour des particules submicroniques est de la forme suivante :

$$\text{Équation 49} \quad E(d_{AP}) = \frac{5,03 \cdot 10^{-2}}{d_{AP}^{1,54}}$$

La pente de la décroissance obtenue avec le modèle de Beard est trois fois plus faible que celle obtenue avec nos résultats expérimentaux.

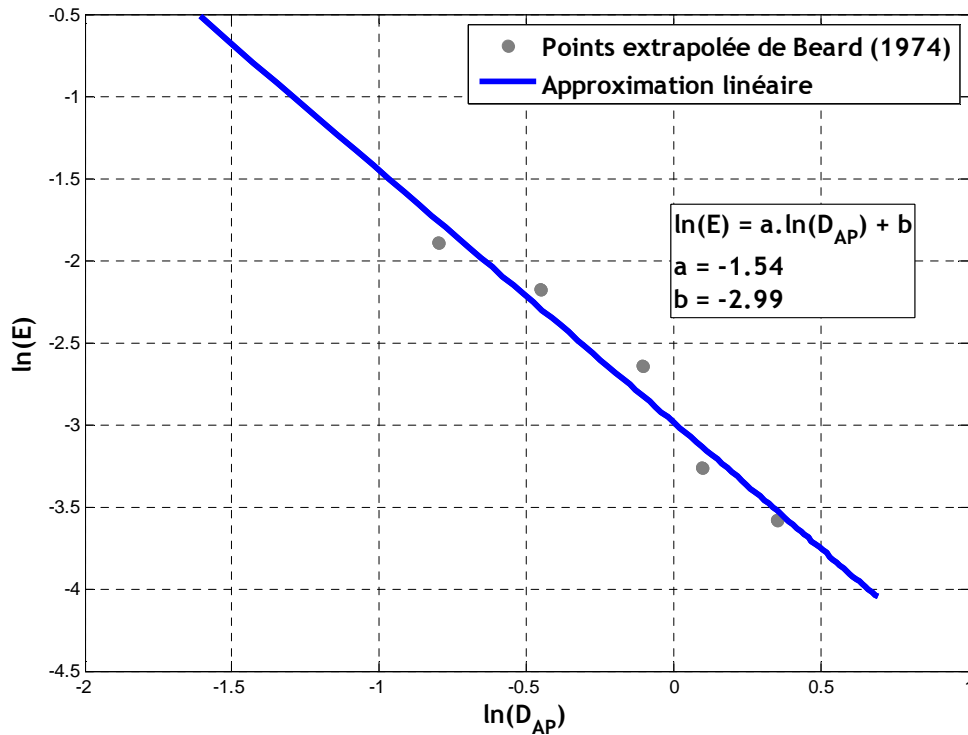


Figure 68 : Estimation de la loi de décroissance de l'efficacité de collecte pour des particules de diamètre inférieur à $0,8 \mu\text{m}$ dans le modèle de Beard (1974)

Les effets de capture dans le sillage de la goutte ne peuvent être caractérisés à l'aide de nos mesures PIV/ombroscopie à cause du manque de statistiques (9 images fiables seulement) : les lignes de courant déterminées ne représentent pas encore une moyenne généralisable pour des gouttes de 2 mm de diamètre.

Cependant, nous disposons de résultats préliminaires pouvant indiquer une évolution relative des effets de la capture arrière.

Les écoulements mesurés autour de neuf gouttes de 2 mm de diamètre sont moyennés (Figure 69, Figure 70), puis les lignes de courant correspondantes à cette écoulement moyen sont déterminées. Ces résultats sont présentés sur la Figure 71.

Les écoulements présentent la caractéristique d'une recirculation arrière remarquable.

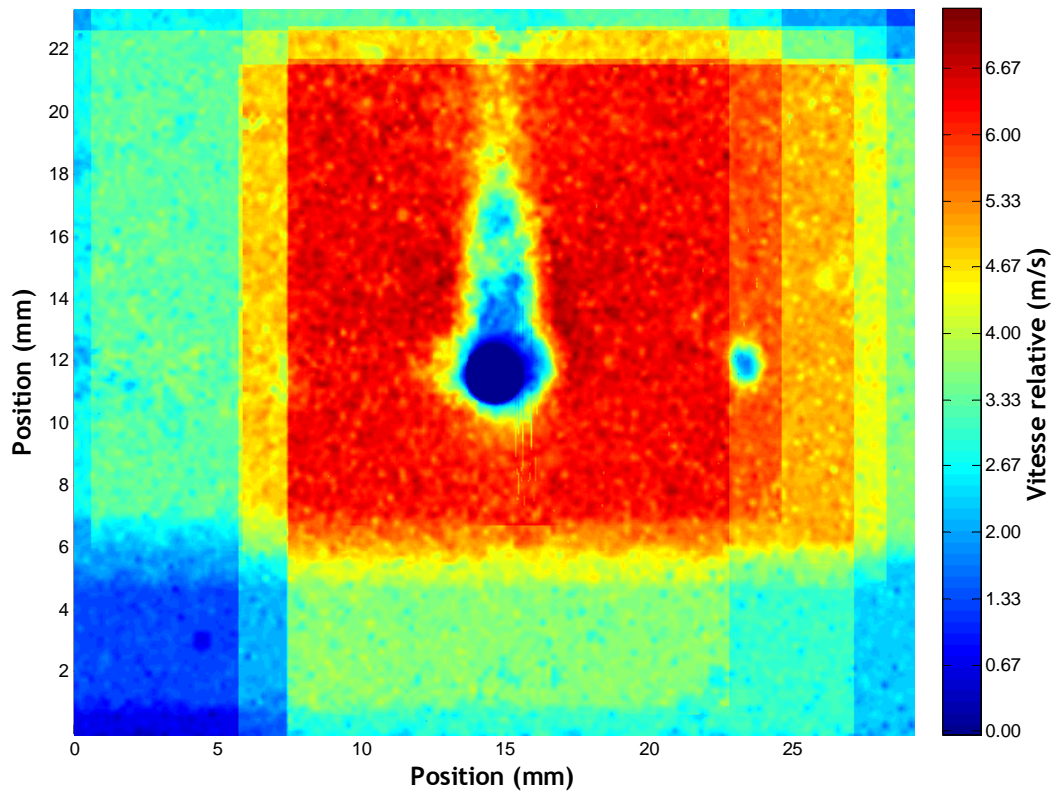


Figure 69 : Présentation des neuf cartes de vitesses superposées pour des gouttes de 2 mm de diamètre

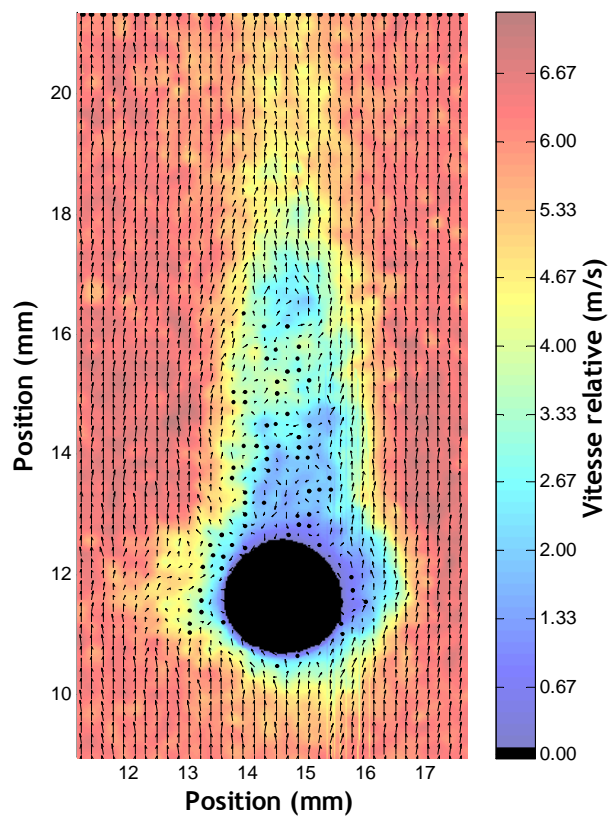


Figure 70 : Moyenne de neuf champs de vitesses pour une goutte de 2 mm de diamètre

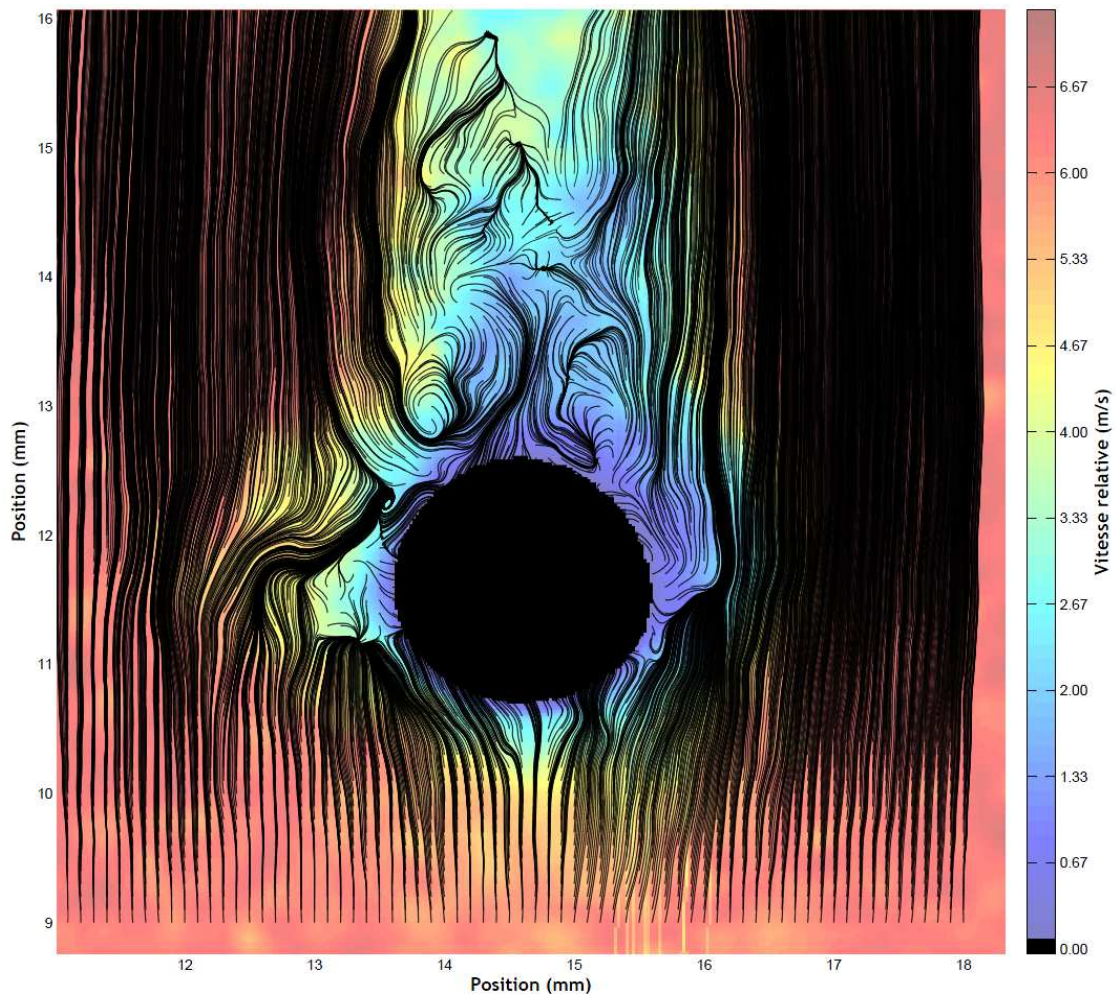


Figure 71 : Ecoulement moyen autour de gouttes de 2 mm

Maintenant, il faut comparer ce résultat avec des simulations numériques proches des mêmes conditions d'écoulement, à savoir une sphère dans un écoulement caractérisé par un nombre de Reynolds de 855 (le diamètre de la goutte est de 2 mm, et sa vitesse limite de chute de $6,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$).

Johnson et Patel (1999) présentent des calculs également de recirculation arrière similaire dans le sillage de sphère (mais pour un nombre de Reynolds de seulement 300, correspondant à une goutte de 1 mm de diamètre). Cependant, le sillage derrière une goutte de 2 mm est beaucoup plus important que derrière une goutte d'un diamètre de 1 mm : nos mesures PIV/ombroscopie donnent un sillage étendu sur 6 mm derrière la goutte (trois diamètres de goutte), alors que les simulations pour une goutte de 1 mm ne montre un sillage que sur un diamètre et demi derrière la goutte (soit 1,5 mm).

Ces constatations permettent d'évaluer une importance relative du sillage dans la collecte des particules. En considérant schématiquement que le sillage de la goutte occupe une géométrie cylindrique, il est possible d'estimer que le volume occupé par le sillage d'une goutte d'un diamètre de 1 mm est d'environ $1,2 \text{ mm}^3$, le volume passe à 600 mm^3 pour une

goutte de 2 mm. Le rapport de la surface d'échange entre le sillage et l'air au repos autour de la goutte est également 8 fois plus important pour une goutte de 2 mm.

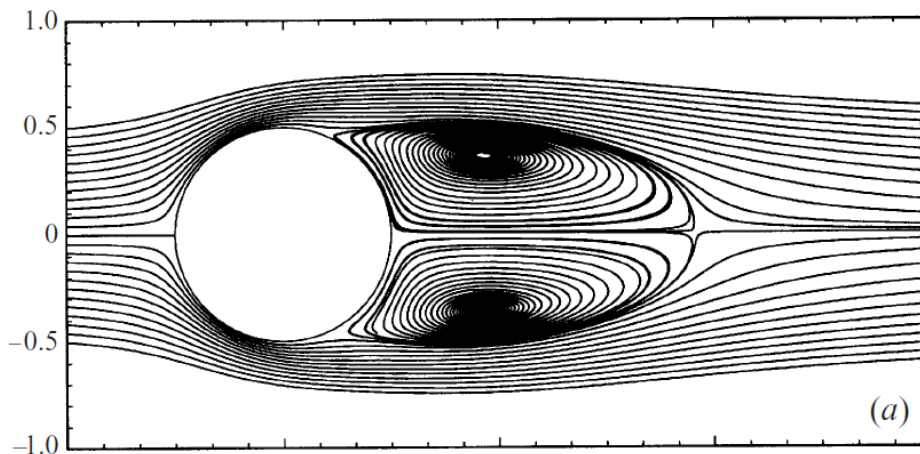


Figure 72 : Lignes de courant calculées par Johnson et Patel (1999) autour d'une sphère rigide pour $Re = 300$

Ainsi, si l'hypothèse avancée par Beard (1974) est juste, alors les effets de collecte par le sillage arrière vont être proportionnellement beaucoup plus importants pour une goutte de 2 mm de diamètre que pour une goutte de 1 mm. Une telle montée en puissance du rôle du sillage arrière pourrait se traduire par une pente d'efficacité de collecte plus forte que celle obtenue par une simple extrapolation des données modélisées par Beard. Cette hypothèse de recirculation arrière mériterait d'être modélisée par un suivi lagrangien de particules le long des lignes de courant mesurées expérimentalement. Mais il faudra bien sûr disposer d'une statistique plus importante pour accéder à un champ de vitesse autour de la goutte statistiquement fiable, avec moins de discontinuité que celui obtenu ici avec seulement neuf champs de vitesse autour d'une goutte d'un diamètre de 2 mm.

Nous allons considérer l'hypothèse de la recirculation arrière comme étant la plus réaliste, et paramétrer empiriquement nos mesures expérimentales. Le temps de relaxation de la particule (et donc sa capacité à changer de ligne de courant) est régi par le nombre de Stokes.

Ainsi, la variation de l'efficacité de collecte pour les particules de diamètre compris entre 0,3 et 0,8 μm est paramétrée en fonction du nombre de Stokes. La méthode utilisée pour déterminer la loi décrivant l'efficacité de collecte en fonction du diamètre des particules (résultats de la Figure 68) est également utilisée pour déterminer empiriquement la loi décrivant cette variation de l'efficacité de collecte (Figure 73).

La loi empirique déterminée par cette méthode est la suivante :

$$\text{Équation 50} \quad E(d_{AP}) = \frac{A_{RA}}{St^{B_{RA}}}$$

Où $A_{RA} = 7,87 \cdot 10^{-9}$ et $B_{RA} = 3,17$

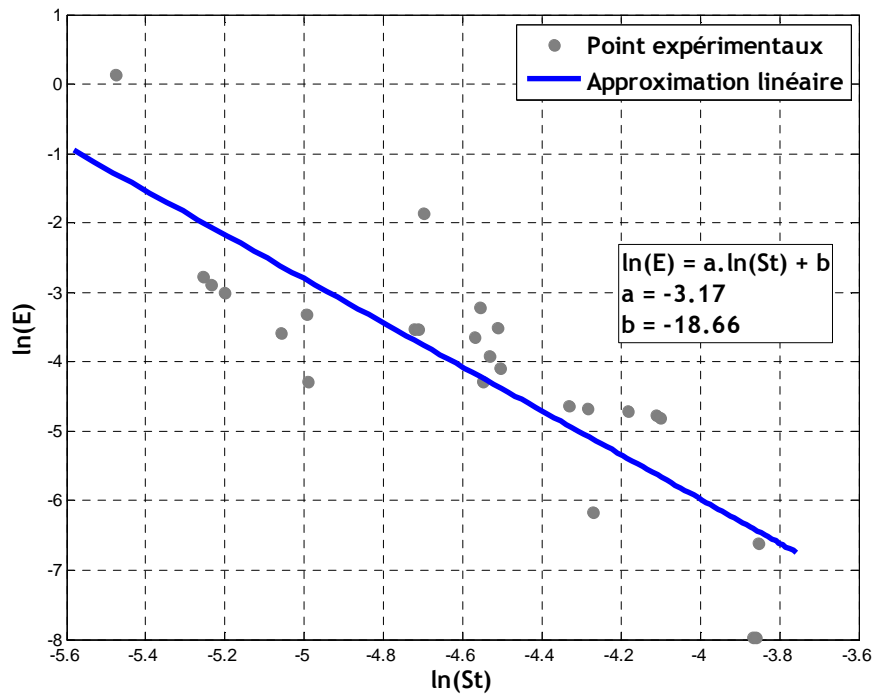


Figure 73 : Paramétrage de la pente descendante de l'efficacité de collecte par le nombre de Stokes

L'obtention de ce paramétrage permet d'établir un modèle semi-empirique décrivant les efficacités de collecte pour des gouttes d'un diamètre de 2 mm. Les résultats de ce modèle sont présentés sur la Figure 74. Ce modèle semi-empirique est donc utilisé pour modifier la base de données des efficacités dans le modèle DESCAM pour la gamme de particules entre 0,3 et 10 μm .

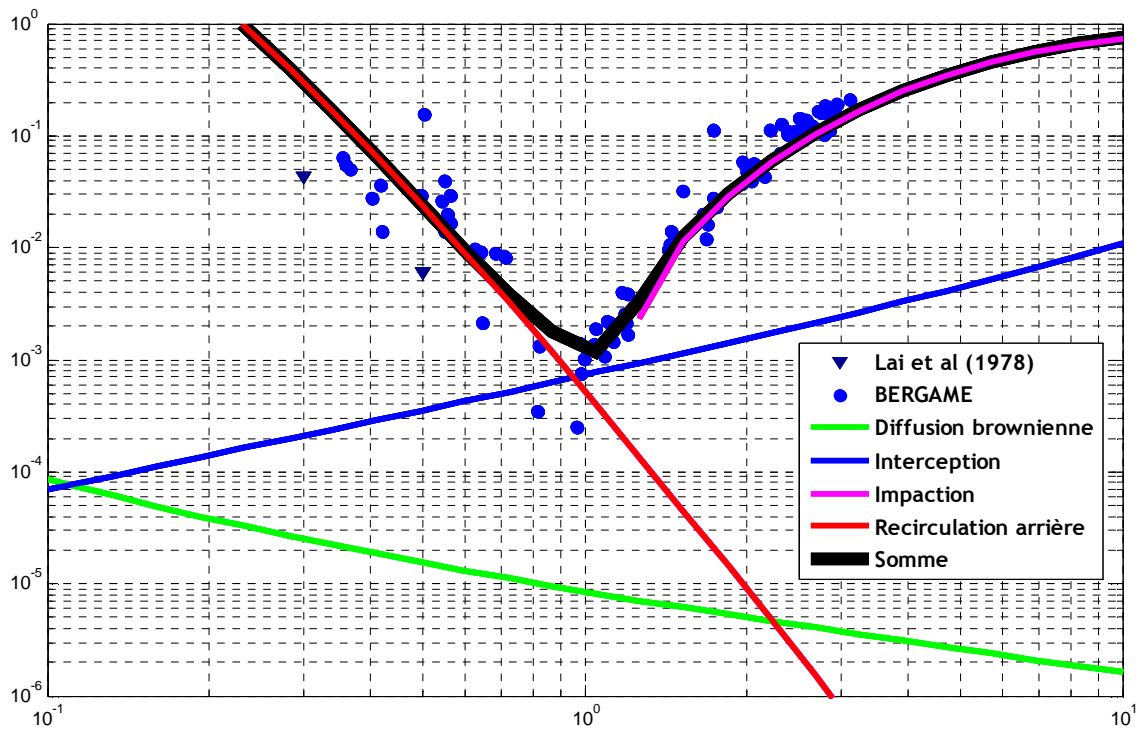


Figure 74 : Modèle semi-empirique décrivant l'efficacité de collecte pour des gouttes d'un diamètre de 2 mm

CHAPITRE 5

APPLICATION À LA MODÉLISATION DU LESSIVAGE

La prise en compte de nouvelles mesures d'efficacités de collecte devrait changer les quantités d'aérosols rabattues par la pluie dans les simulations. L'objet de ce chapitre est de quantifier, non pas sur un cas idéalisé comme au chapitre 2, mais sur un cas réaliste, quel est l'apport de nos mesures sur la quantification du lessivage. Le cas d'étude choisi est la campagne de mesures CCOPE (*Cooperative Convective Precipitation Experiment*) (Knight, 1982; Dye et al., 1986). Cette campagne avait pour objectif d'étudier la formation de cumulonimbus en zone continentale et le développement des précipitations associées. Cette campagne a déjà été modélisée avec DESCAM pour le cas du 27 juillet et le modèle a démontré son aptitude à reproduire l'évolution temporelle de la cellule orageuse (Leroy, 2007).

1. Modifications apportées à la base de données d'efficacités de collecte

Dans DESCAM, la base de données des efficacités de collecte est définie pour 20 tailles de particules (diamètres répartis de manière logarithmique de 2 nm à 13 μm), 19 tailles de gouttes (diamètres répartis de manière logarithmique de 20 μm à 4 mm) et 4 humidités relatives (50 %, 75 %, 95 % et 100 %). Au cours de nos expériences, l'efficacité de collecte a été mesurée pour une seule taille de goutte, et pour une gamme de diamètres de particules comprise entre 0,3 et 4 μm (voir Figure 57). L'ensemble de nos mesures expérimentales ne recouvrent ainsi que 24 des 1520 points composant la base de données des efficacités de collecte. Mais il s'agit des points les plus sensibles pour le lessivage de l'atmosphère par la pluie d'après nos calculs du Chapitre 2. Ainsi, l'impact sur le lessivage de l'atmosphère devrait être significatif.

Le Tableau 5 et la Figure 75 donnent les valeurs des efficacités de collecte initiales et modifiées dans DESCAM. Les principales observations sur les différences entre les données originales et modifiées vont être les mêmes que dans le chapitre 4, à savoir que les écarts les plus importants s'observent pour les particules autour de 0,3 μm , et qu'il y a une absence d'un minimum d'efficacité de collecte pour les données originelles.

Tableau 5 : Les efficacités de collecte modifiées dans la matrice d'efficacité de collecte, pour une humidité relative de 50 %, entre parenthèses les anciennes valeurs

Diamètre des particules (μm) \n Diamètre des gouttes (mm)	0,322	0,512	0,812	1,290	2,048	3,251
2,05	$1,00 \cdot 10^{-1}$ ($2,55 \cdot 10^{-3}$)	$2,00 \cdot 10^{-2}$ ($3,27 \cdot 10^{-3}$)	$1,00 \cdot 10^{-3}$ ($4,90 \cdot 10^{-3}$)	$5,00 \cdot 10^{-3}$ ($9,40 \cdot 10^{-3}$)	$4,00 \cdot 10^{-2}$ ($2,77 \cdot 10^{-2}$)	$2,00 \cdot 10^{-1}$ ($1,65 \cdot 10^{-1}$)

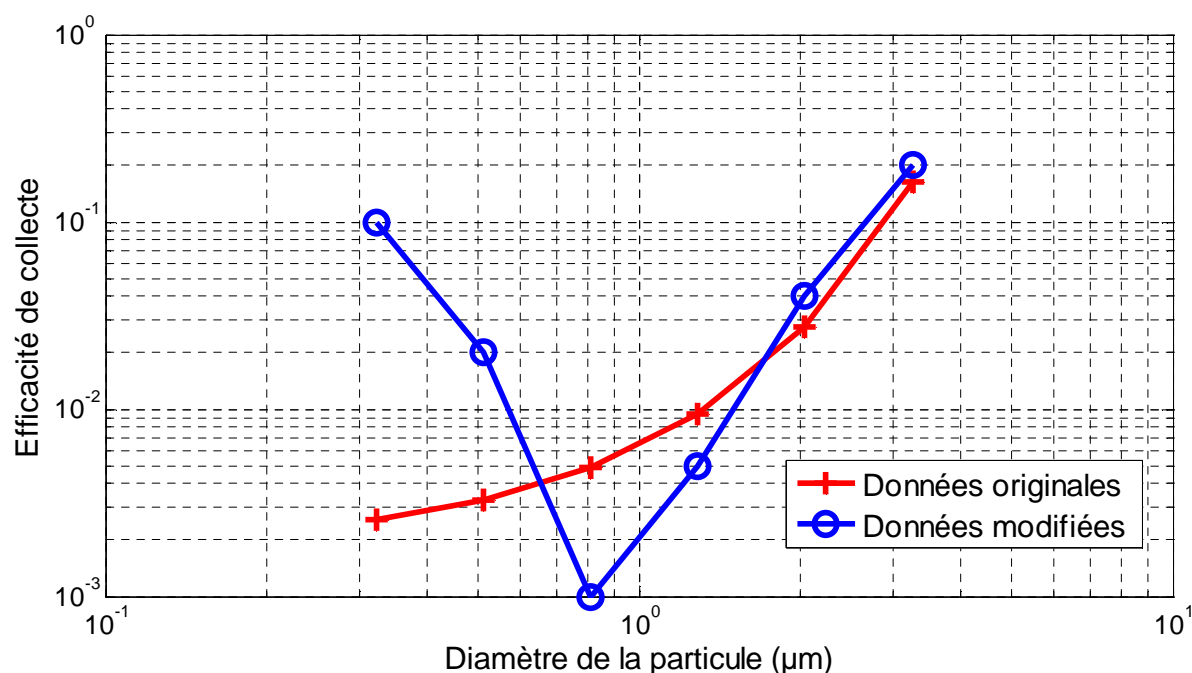


Figure 75 : Efficacités de collecte modifiées et les originales correspondantes

Il faut ici remarquer que les données originales d'efficacités de collecte de DESCAM ne dépendent pas de l'humidité relative pour les gouttes de diamètre supérieur à 1 mm. Ceci est en accord avec nos propres observations sur l'influence de l'humidité relative sur l'efficacité de collecte. Ainsi, les modifications affichées sur le Tableau 5 et la Figure 75 sont appliquées pour les quatre humidités relatives de la base de données des efficacités de collecte de DESCAM.

Le modèle DESCAM ainsi modifié va être utilisé pour modéliser le cas d'étude de CCOPE, et les taux de lessivage consécutifs seront comparés avec les taux calculés par DESCAM avec les données originelles.

2. Description de l'expérience CCOPE

Le cas réel qui va être modélisé par DESCAM est l'expérience CCOPE (*Cooperative Convective Precipitation Experiment*). CCOPE est une campagne de mesures réalisées aux alentours de Miles City dans le Montana (USA) durant l'été 1981 (Knight, 1982). Durant cette

campagne, un épisode a particulièrement retenu l'attention : l'orage du 19 Juillet 1981. Ce jour-là, l'évolution d'un cumulonimbus a pu être observée de sa formation, par de forts courants ascendants, jusqu'à la fin des précipitations.

Cet événement météorologique particulier a été observé par un ensemble de cinq aéronefs et deux radars Doppler. Ils ont permis la mesure des grandeurs thermodynamiques, des vitesses des vents, des champs électriques, des taux de précipitations et de réflectivités, et d'un certain nombre de grandeurs microphysiques (teneur en eau liquide par exemple).

Ces moyens de mesures ont permis d'observer l'évolution de cette cellule orageuse. Pour résumer cette évolution, des vents ascendants ont provoqué la formation d'un nuage qui a atteint l'altitude de 10,5 km, tandis que la base du nuage est restée stable, légèrement en deçà de 4 km d'altitude. Ensuite, l'eau liquide présente dans le nuage s'est solidifiée, accélérant le processus de grossissement des hydrométéores, jusqu'à leurs précipitations.

3. Application de DESCAM à l'expérience CCOPE

Les distributions granulométriques des aérosols n'ont pas été mesurées lors de la campagne CCOPE. Ainsi, par défaut, ce sont les spectres continentaux de Jaenicke (Hobbs, 1993) qui sont utilisés. Les particules sont supposées être du sulfate d'ammonium (masse volumique de $1,77 \text{ kg.m}^{-3}$). La concentration des particules diminue exponentiellement avec une hauteur d'échelle de 3000 m. Ces particules d'aérosol seront dans la suite du paragraphe identifiées comme particule de type 1.

En effet, pour mettre en avant le phénomène du lessivage par la pluie sous le nuage, nous utilisons une seconde classe d'aérosols appelée aérosol de type 2. Ces particules possèdent les mêmes propriétés physico-chimiques que l'aérosol de type 1, mais sont libérées sous le nuage quelques temps avant le déclenchement de la pluie. La concentration est constante sur les 1000 premiers mètres d'altitude, nulle ailleurs. Ce scénario peut ainsi simuler l'atmosphère polluée en basses couches par les rejets dus à un accident nucléaire. Avec un tel scénario, les retombées de l'aérosol de type 2 seront majoritairement dues à la pluie et le taux de rabattement de l'aérosol de type 2 sera un marqueur direct de l'influence des nouvelles données d'efficacité de collecte sur la modélisation du dépôt humide sous le nuage.

Le modèle est initialisé par le radiosondage effectué à Miles City le 19 juillet à 16h05, puis la convection est déclenchée par un chauffage du sol de $2,3 \text{ °C}$ pendant les dix premières minutes de simulation. Le sol est considéré comme une source constante d'humidité, de particules et de chaleur. Les conséquences du chauffage sont clairement observables pendant les 600 premières secondes au niveau du sol sur la Figure 76 : une advection verticale d'air depuis le sol a lieu lors de ce chauffage. L'air chaud monte en altitude grâce à la poussée d'Archimède, et la vitesse d'ascension de l'air augmente en fonction de l'altitude

du fait de la différence de température de plus en plus importante avec celle de l'atmosphère au repos. Après 10 minutes d'intégration, la parcelle d'air chaud atteint le niveau de condensation à 3000 m d'altitude : la formation du nuage débute alors par la condensation de l'eau, ce qui engendre un dégagement de chaleur latente. La nouvelle source de convection devient ainsi la base du nuage et le forçage diabatique au sol est stoppé. Les vitesses verticales ainsi générées sont très importantes, puisque les vents ascendants atteignent des vitesses de l'ordre de $15-20 \text{ m.s}^{-1}$ autour de 4 km d'altitude, environ 800 s après le début du chauffage du sol.

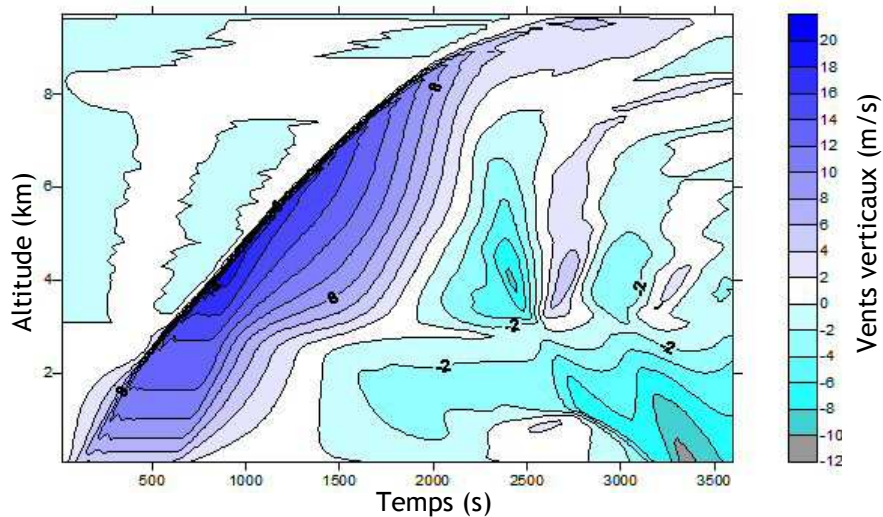


Figure 76 : Distribution spatio-temporelle des vents verticaux

L'humidité est transportée par les courants ascendants. Le nuage se forme dès 500 s, et gagne en épaisseur (sa base restant toujours aux alentours de 3 km durant toute la modélisation). Ainsi, 2 500 s après le début de la modélisation, le cumulonimbus s'est développé sur une épaisseur de 7 km. Cette altitude est cohérente avec les observations effectuées lors de la campagne (Figure 77 et Figure 80).

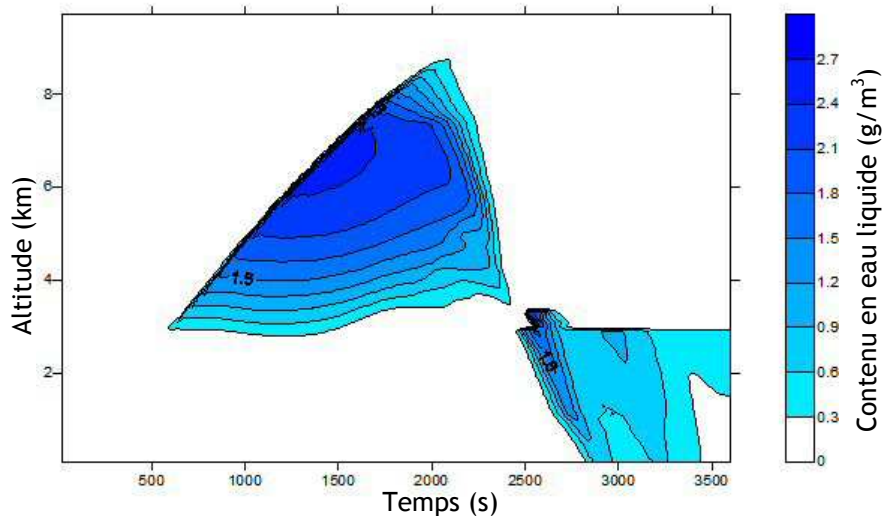


Figure 77 : Distribution spatio-temporelle du contenu en eau liquide

Le fort courant ascendant observé sur la Figure 76 entraîne avec lui de l'humidité et des particules. La Figure 78 permet d'observer le soulèvement des aérosols de type 1 vers le haut par la convection de l'air. Cependant, cette augmentation de la concentration des aérosols en altitude en fonction du temps n'est valable que pour les altitudes inférieures à 3 km, car au-dessus, le nuage commence sa formation, et les particules sont capturées par les gouttelettes formant le nuage : on observe alors des phénomènes de collecte dans le nuage (*in-cloud scavenging*). Le résultat de cette collecte des particules par les gouttes (ou bien la formation des gouttelettes autour des particules) est visible sur la Figure 79 où les masses de particules incluses ou dissoutes dans les gouttes sont en augmentation au cours du temps, du moins jusqu'à la fin de la phase ascendante de l'air depuis les basses couches de l'atmosphère (aux alentours de 1500 s après le début du chauffage).

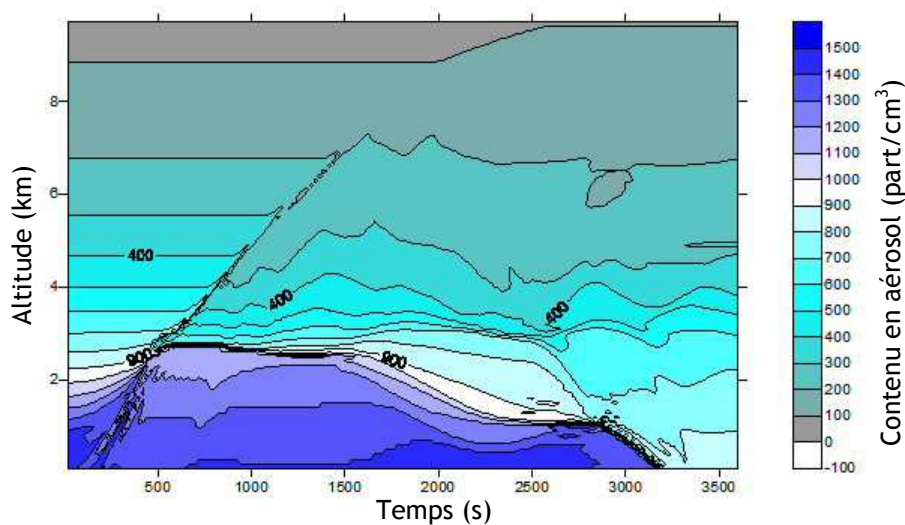


Figure 78 : Distribution spatio-temporelle du contenu en aérosols de type 1

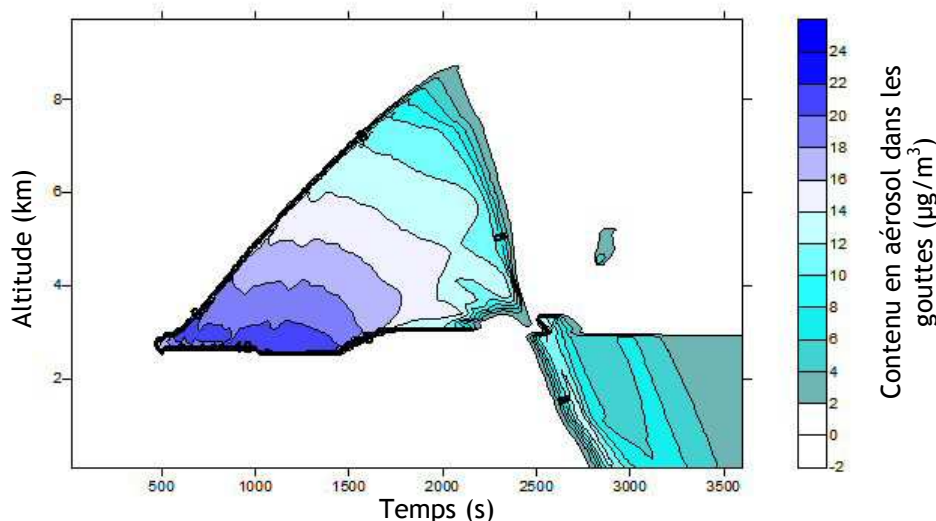


Figure 79 : Distribution spatio-temporelle du contenu en aérosol de type 1 dans les gouttes

Après 30 minutes (1800 s), le nuage est suffisamment développé verticalement pour que l'eau liquide atteigne des altitudes où la température passe sous -35°C . C'est dans ce

régime thermodynamique (humidité relative proche de 100 % et température inférieure à -35°C) que la nucléation homogène ou congélation spontanée des hydrométéores liquides est possible. Au-dessus de cette température seul le processus de nucléation hétérogène est capable de former des cristaux de glace. Une fois les cristaux de glace formés, ils font décroître de façon significative le contenu en eau liquide par effet Bergeron. Devenu rapidement massifs, les cristaux commencent à précipiter et à collecter l'eau liquide par givrage. On observe sur la Figure 77 la disparition du contenu en haut liquide dans le nuage, tandis qu'on observe sur la Figure 80 l'apparition d'un contenu en glace.

Lorsque les grêlons atteignent l'isotherme 0°C à 3 000 m d'altitude (aux environs de 2400 s), ils commencent à fondre. Il faut noter que dans cette version du modèle, la fonte est considérée comme immédiate, et ainsi toute l'eau qui commence à précipiter sous les 3 km est entièrement liquide. La pluie touche le sol à 45 minutes après le début du chauffage (soit 2 700 s, voir Figure 77).

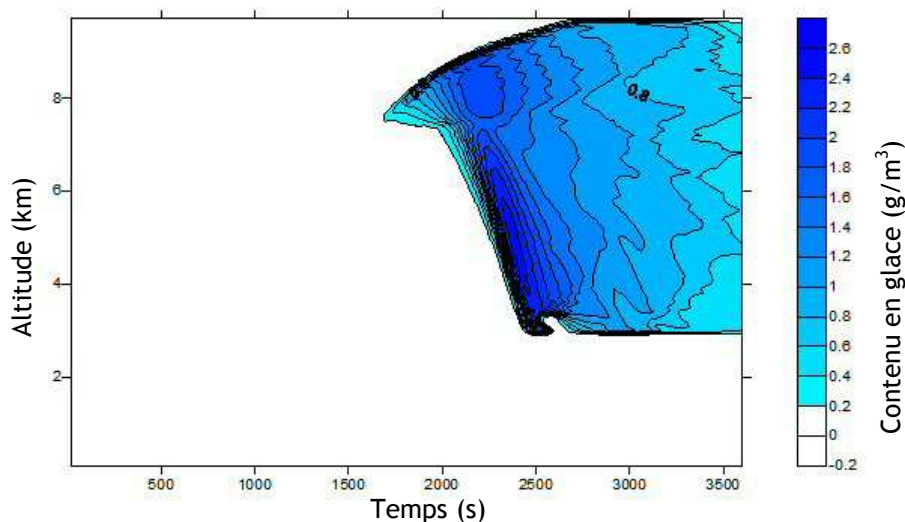


Figure 80 : Contenu en glace

Tandis que commence la précipitation sous la base du nuage, l'aérosol de type 2 est mis en suspension pour simuler un potentiel rejet lié à un accident nucléaire.

La Figure 81 représente l'évolution de la masse de particules de type 2, et la Figure 82 représente la masse de particule de type 2 qui se trouve collectée par les gouttes de pluie.

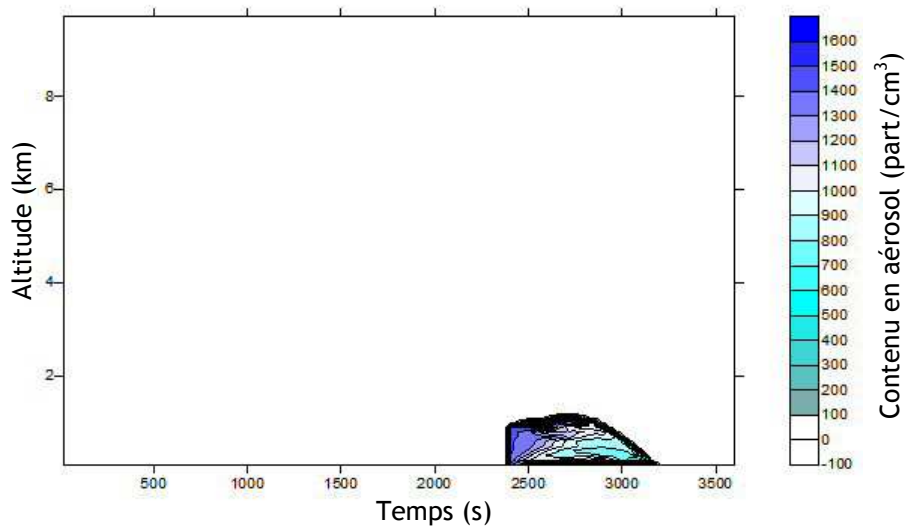


Figure 81 : Contenu en aérosols de type 2

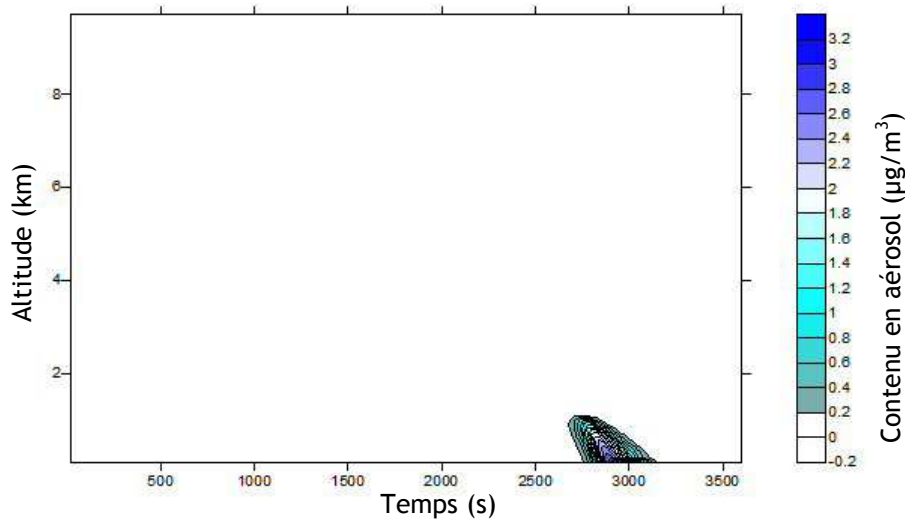


Figure 82 : Contenu en aérosols de type 2 dans les gouttes

L'un des grands avantages qu'une simulation complète telle que celle-ci, par rapport à la simulation simplifiée du chapitre 2, est la meilleure modélisation de la variabilité temporelle de la pluie qui est ici réalisée. En effet, dans le chapitre 2 la pluie est stratiforme, selon une distribution inspirée de Marshall et Palmer (1948), avec une intensité des précipitations qui tend vers une valeur constante au cours du temps dans une atmosphère calme. Tandis que dans le cas CCOPE, nous avons à faire à une pluie convective, hautement instationnaire et de forte intensité. Ainsi, les résultats de cette nouvelle simulation montrent une pluie présentant une variabilité temporelle importante en terme d'intensité (voir Figure 83) en plus de posséder une forte subsidence de l'air qui accompagne la pluie (voir Figure 76). Cette variabilité est plutôt en accord avec des observations environnementales sur des pluies convectives (Smith et al., 2009).

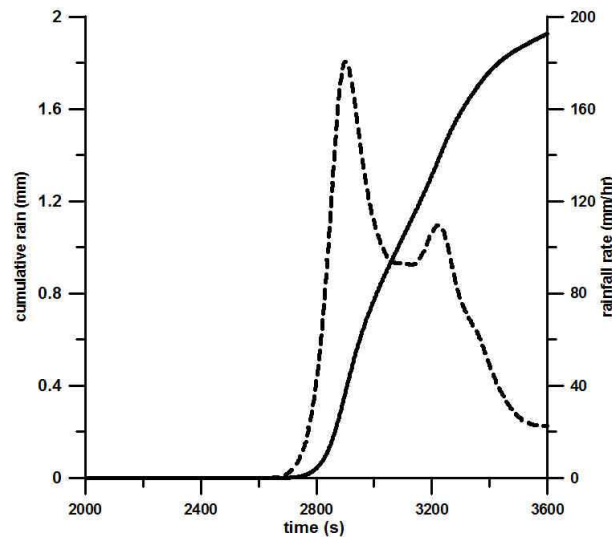


Figure 83 : Intensité (ligne pointillée, axe droit) et cumul de pluie (ligne continue, axe gauche)

4. Résultats obtenues avec la base de données d'efficacité de collecte modifiée

Le cas CCOPE est calculé avec l'ancienne et la nouvelle base de données des efficacités de collecte. Cette comparaison va d'abord permettre de mettre en avant l'importance des modifications apportées au modèle DESCAM à propos du lessivage de l'atmosphère par la pluie. Ces comparaisons amènent ensuite à s'interroger sur la détermination des taux de lessivage Λ . Ce taux est utilisé pour les modèles de dispersions de la radioactivité, la présence d'aérosols après une pluie et les effets de la subsidence par rapport aux déterminations des taux de lessivages à partir d'observations réalisés lors de pluie réelles.

4.1. Importance des nouvelles efficacités de collecte sur le rabattement

Du point de vue de la contamination des sols, due à la présence de polluants dans l'atmosphère, la masse de particules rabattue par les gouttes est le paramètre primordial. Ainsi, nous comparons les masses de particules rabattues au sol par les gouttes de pluie avec l'ancienne et la nouvelle base des données d'efficacité de collecte pour observer l'influence de nos mesures expérimentales sur la modélisation de ces masses de particules lessivées.

La Figure 84 présente les évolutions des masses de particules rabattues au sol en fonction du type de particules (aérosol de fond, ou aérosol mis en suspension juste avant les précipitations) et de la base de données des efficacités de collecte (originelles ou modifiées). Concernant les aérosols de fond, une augmentation de 14 % de la masse de particules rabattues est observée avec la matrice des efficacités de collecte modifiée. Une augmentation, qui sans être extraordinaire, est remarquable, car une part très importante (Flossmann and Wobrock, 2010) de la masse de particules rabattue est due aux mécanismes de collecte dans le nuage (*in-cloud scavenging*) qui ne sont absolument pas

touchés par les modifications apportées aux efficacités de collecte. Quant aux aérosols de type 2, une augmentation de 33 % de la masse de particules rabattues est obtenue avec les nouvelles valeurs d'efficacité de collecte. Cette augmentation plus forte que pour les aérosols de type 1 s'explique largement par le fait que les aérosols de type 2 sont exclusivement rabattus au sol sous le nuage par la pluie, les modifications apportées aux données d'efficacités de collecte prenant alors toute leur importance.

Cette augmentation de la masse rabattue peut paraître surprenante au vu des modifications apportées à la base de données des efficacités de collecte, étant donné que l'efficacité de collecte des particules d'un diamètre supérieur à $1\ \mu\text{m}$ a été diminuée. Mais l'augmentation de l'efficacité de collecte apportée aux particules submicronique (augmentation de l'efficacité de collecte d'un facteur 100 pour les particules de $0,3\ \mu\text{m}$) semble plus que compenser les variations d'efficacités de collecte des particules les plus grosses.

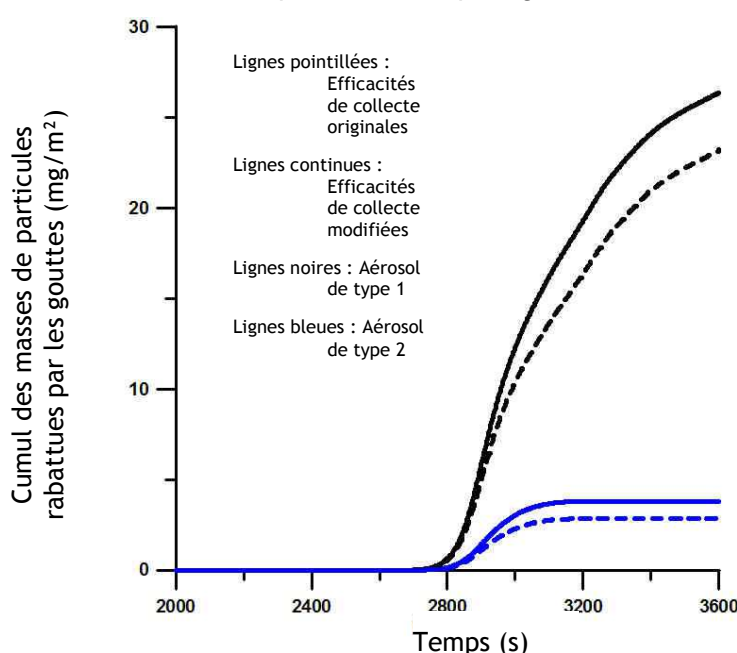


Figure 84 : Masse de particules rabattues par les gouttes en fonction du temps

Cette simulation CCOPE avec nos nouvelles efficacités de collecte permet de calculer un taux de rabattement.

Les résultats sur les aérosols de type 2 (courbe bleu sur la Figure 84, aérosols injectés juste avant le début de la pluie) montrent que la masse rabattue atteint un palier après 3200 s, ce qui laisse à penser que toute la masse de particules est rabattue à partir de ce moment. Or, ce palier est différent pour les calculs réalisés avec l'ancienne et la nouvelle base de données des efficacités de collecte. Ceci laisse deux options : soit toute la masse de l'aérosol n'est pas rabattue, et à ce moment la masse de l'aérosol « survivant » à une pluie est drastiquement différente, soit les effets de la subsidence s'expriment différemment du fait d'un taux de lessivage différent. Nous allons donc explorer les effets de la subsidence sur

l'évolution de l'aérosol et les caractéristiques de l'aérosol atmosphérique après avoir subi une pluie.

4.2. Taux de lessivage

Le taux de lessivage (Λ (s^{-1}), synonyme de taux de rabattement, voir Équation 1, Chapitre 1, partie 3) est le paramètre qui est utilisé dans les modèles de l'IRSN pour calculer la contamination des sols en fonction de la contamination de l'atmosphère et de l'intensité de la pluie aux échelles synoptiques. Le taux de lessivage sert également à calculer la masse d'aérosols restante dans l'atmosphère après une pluie. Ce taux peut maintenant être calculé à l'aide d'un modèle méso-échelle tel que DESCAM pour une pluie convective telle celle du cas CCOPE. La Figure 85 représente la masse de particules de type 1 (fond atmosphérique) et de type 2 (injectées juste avant la pluie, simulant le rejet du polluant) en fonction du temps. La décroissance de la concentration des particules du fond apparaît comme étant très faible (à peine une baisse de moitié de la concentration massique des particules dans l'atmosphère) au regard de la pluie extrêmement violente qui s'est abattue. Les phénomènes de subsidences et d'évaporation des gouttes peuvent ici être avancés pour expliquer ce faible lessivage. Cependant, les particules de type 2 sont très bien lessivées pendant l'épisode pluvieux.

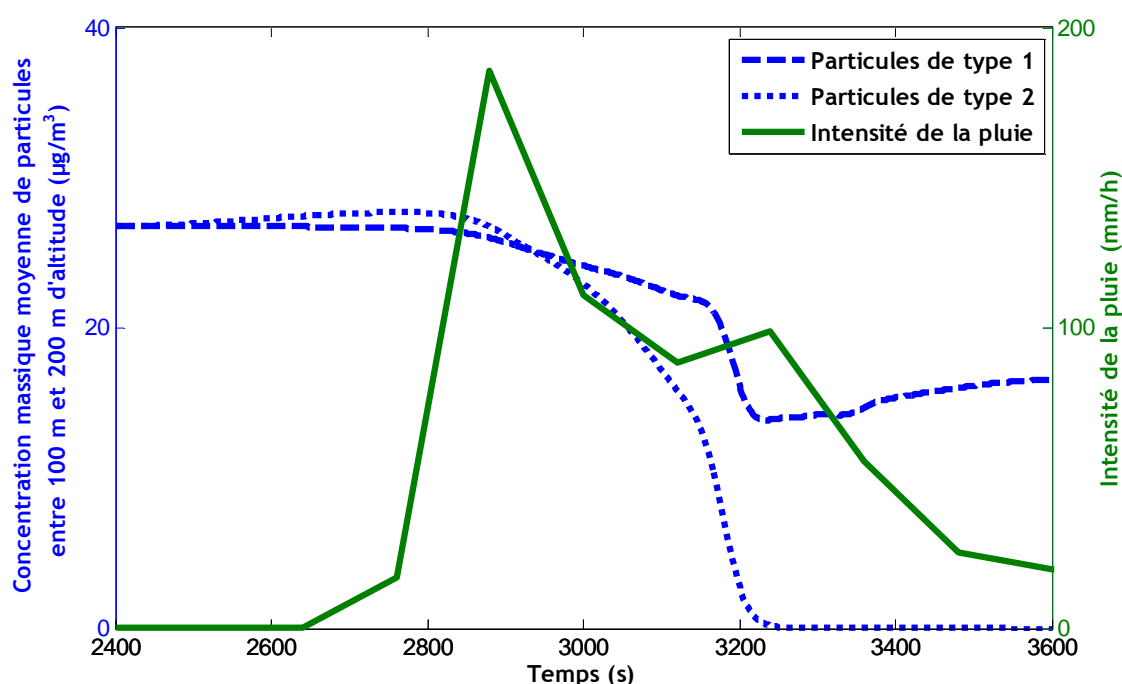


Figure 85 : Concentration massique de particules entre 100 m et 200 m et intensité de la pluie en fonction du temps

Le taux de lessivage en masse est décrit comme la proportion de particules qui est rabattue au sol à chaque unité de temps, où $C_m(t)$ est la concentration massique de particules dans la couche étudiée à un instant donné. Dans la nature, ce taux est déterminé en mesurant la

décroissance temporelle de la concentration de particules en un point donné, spatialement fixe (Équation 51).

$$\text{Équation 51} \quad \Lambda = -\frac{1}{C_m(t)} \frac{\partial C_m(t)}{\partial t}$$

Nous calculons donc ce taux de lessivage à partir des résultats de DESCAM suivant cette définition expérimentale, à partir de la seule décroissance de la concentration massique des particules de type 2 durant la pluie (Figure 86) au-dessus du sol (2^{ème} couche du modèle, point spatialement fixe). Le taux de lessivage instantané apparaît alors comme extrêmement variable au cours de la pluie, variant sur trois ordres de grandeur, de 10^{-4} à 10^{-1} .

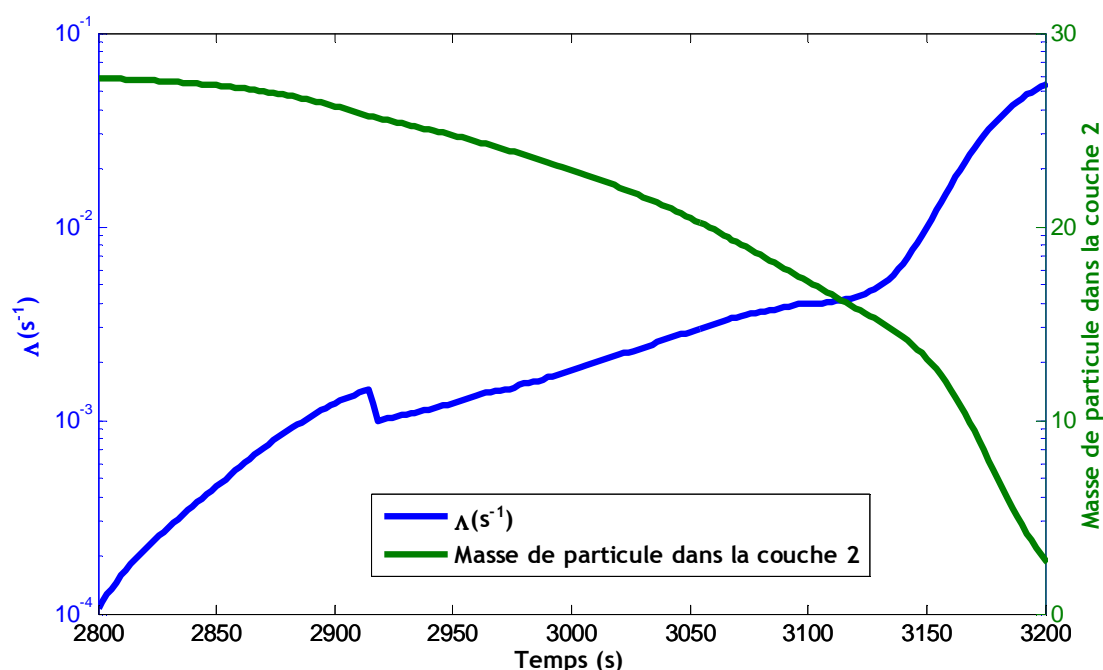


Figure 86 : Taux de lessivage de la masse de particules de type 2 en fonction du temps

Au vu de la très grande variabilité de ce taux de rabattement, on doit se contenter de calculer un taux de rabattement intégré sur toute la pluie Équation 52

$$\text{Équation 52} \quad \Lambda = -\frac{1}{t_2 - t_1} \ln\left(\frac{C_m(t_2)}{C_m(t_1)}\right)$$

Ainsi calculé, le taux de lessivage est égal à $5,7 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. Ce taux est du même ordre de grandeur que le taux des modèles de l'IRSN ($\Lambda = I \times 5.10^{-5}$, avec I l'intensité de la pluie en mm/h), ou au taux mesurés dans l'environnement. Mais toutes les comparaisons sont ici très délicates à réaliser, compte tenu de la nature extrême de l'épisode pluvieux modélisé ici.

4.3. Masse de particules dans l'atmosphère après une pluie

Après une pluie, la totalité des particules n'est pas rabattue au sol. La Figure 87 présente les spectres des particules de type 1 et de type 2 (particules du fond et particules émises juste

avant le début de la pluie). Le spectre des particules de type 1 (en cercle sur la Figure 87) n'as pas été significativement modifié par le passage de l'évènement pluvieux. Ce résultat ne peut s'expliquer que par l'apport par subsidence de particules depuis les couches supérieures de l'atmosphère. Malgré tout, on observe que la concentration de particules de type 1 augmente pour les particules d'un diamètre inférieur à 0,1 μm . Ce fait peut s'expliquer par l'évaporation des gouttes et la remise en suspension de particules par ces gouttes. Car dans le même temps, les particules de type 2 ont été largement rabattues, mais la forme du spectre massique des particules reste quasiment inchangée.

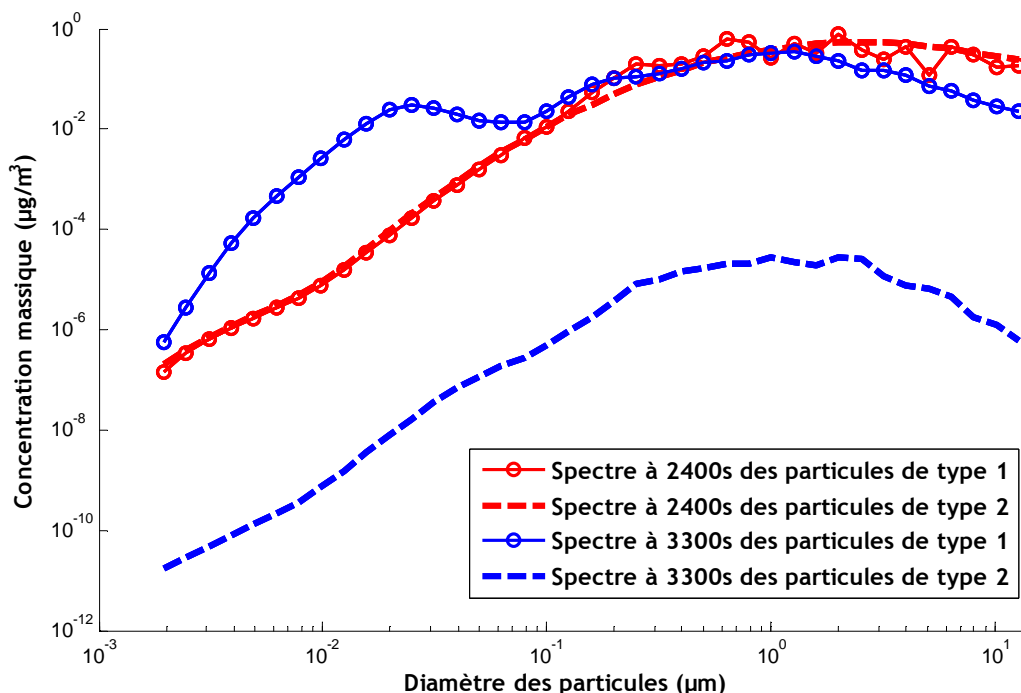


Figure 87 : Spectres des particules avant et après la pluie

4.4. Importance relative de la subsidence par rapport au lessivage

La Figure 87 suggère que la subsidence est un phénomène majeur dans l'évolution des concentrations en aérosols dans l'atmosphère. On cherche donc à estimer l'importance relative de la subsidence par rapport à la collecte pour la variation de la concentration de particules dans l'atmosphère.

Dans le cadre de DESCAM, cette analyse peut être réalisée en imposant une base de données d'efficacités de collecte nulle quel que soit les diamètres des gouttes et des aérosols. La Figure 88 permet de comparer les évolutions des masses de particules dans l'atmosphère avec et sans collecte des particules par les gouttes. Les évolutions des masses sans collecte sont donc exclusivement consécutives des effets de la subsidence. On observe bien que la modélisation avec la collecte offre un lessivage plus important de l'atmosphère. Cependant, les effets dus à la collecte des particules semblent relativement peu importants par rapport à la seule subsidence en ce qui concerne la baisse de la concentration massique de particules dans l'atmosphère. Ainsi, pour les particules de type 2, la dynamique de la

décroissance de la concentration des particules semble assez similaire, indépendamment du fait que le mécanisme de collecte soit activé ou non.

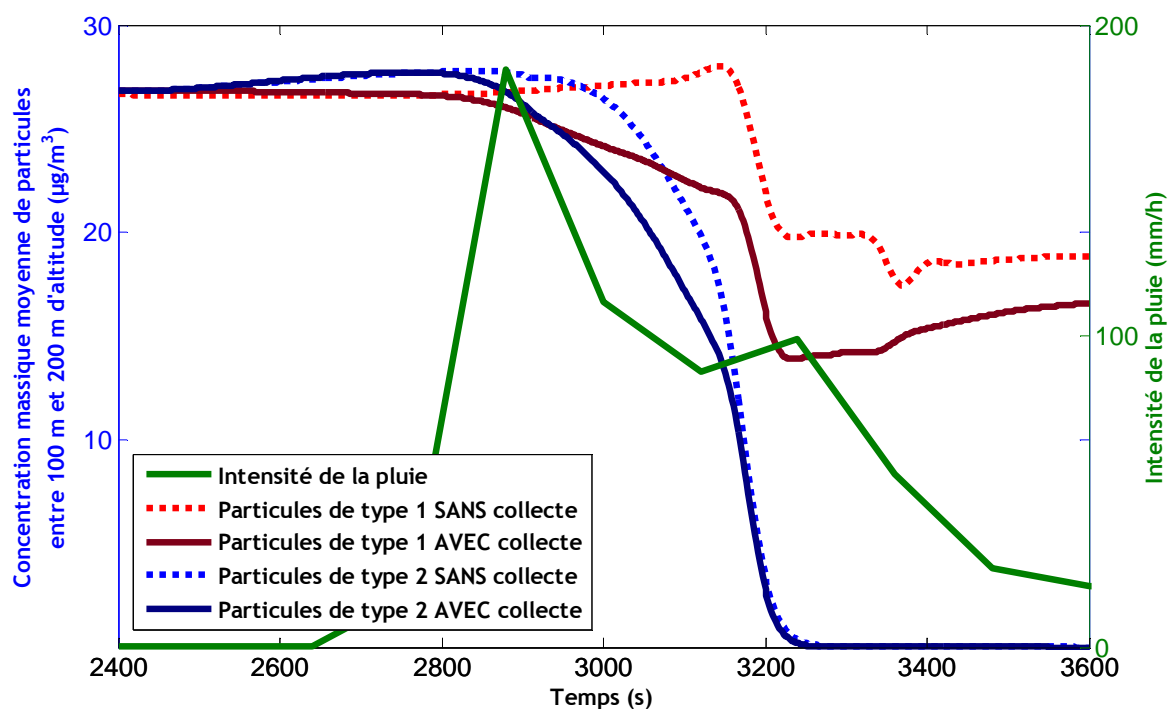


Figure 88 : Evolution des masses en suspension dans l'atmosphère avec et sans collecte

Le rapport entre la masse de particules dans l'atmosphère sans collecte et la masse de particules dans l'atmosphère avec collecte est calculé en fonction du temps et présenté sur la Figure 89. Cette figure permet de confirmer que la concentration massique des aérosols de type 1 dans l'atmosphère n'est guère influencée par l'activation ou non du mécanisme de collecte des particules par les gouttes. En effet, l'activation du mécanisme de collecte ne va diminuer la concentration de particules au maximum que d'un facteur de l'ordre de 40 %. A la fin de la pluie, on remarque que la masse de particules présente dans l'atmosphère n'est que 15 % plus faible avec l'activation du mécanisme de collecte. Ainsi, pour les particules du fond atmosphérique, la subsidence est le mécanisme qui domine très largement l'évolution de leur masse dans les basses couches de l'atmosphère.

A l'opposé, pour les particules de type 2 (courbe rouge sur la Figure 89), l'activation du mécanisme de collecte des particules par les gouttes a une influence très importante, puisque qu'une fois ce mécanisme activé, la masse de particules restante dans l'atmosphère après la pluie est 18 fois moins importante qu'avec le seul effet de la subsidence.

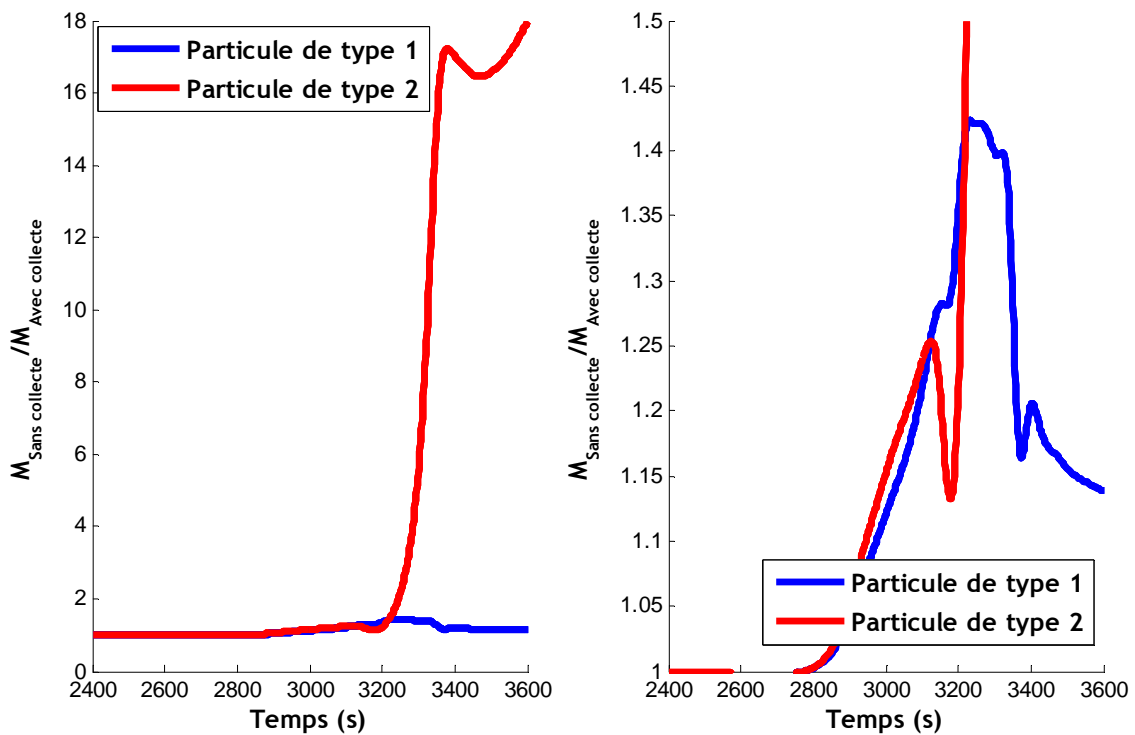


Figure 89 : Effets de la collecte sur la masse de particule restante dans l'atmosphère

Bien que la dynamique du lessivage semble relativement similaire (voir Figure 88), la collecte des particules par les gouttes est bien le principal mécanisme qui va piloter la baisse de la concentration des particules injectées dans l'atmosphère juste avant le début de la pluie, même dans le cas d'une pluie convective extrême, avec des courants de subsidence de l'ordre de la dizaine de mètres par seconde.

Cependant, pour un aérosol distribué sur toute la colonne, l'importance du mécanisme de collecte a une importance plus relative sur l'évolution de la concentration de particules dans la couche inférieure de l'atmosphère.

4.5. Effets comparés de la collecte des aérosols et de la subsidence sur la distribution granulométrique des aérosols après une pluie

Maintenant que l'influence des mécanismes de collecte est apparue clairement sur la détermination de la concentration massique des particules après une pluie, il faut déterminer si la distribution granulométrique des deux types d'aérosols étudiés ici va être influencée de manière significative par le mécanisme de collecte des particules par les gouttes.

La Figure 90 représente le spectre des deux types de particules après la pluie du cas CCOPE, avec et sans la collecte des particules par la pluie. Il apparaît que le spectre des particules de type 1 n'est pas influencé par la collecte des particules par la pluie, sauf de manière anecdotique pour les particules microniques, où on observe trois fois moins de particules avec l'activation de la collecte (pour les particules d'un diamètre supérieur à $5 \mu\text{m}$). Pour les particules de type 2, la forme du spectre est identique que ce soit avec ou sans

collection. La baisse de la concentration en particules due à la collection est répartie de manière homogène sur le spectre des particules, sauf là encore pour les particules microniques, où les effets de la collecte se font légèrement plus ressentir : si pour les particules autour de 0,01 μm la masse de particules restante avec l'activation de la collecte est 4 fois plus faible, elle est 15 fois plus faible pour les particules de 10 μm .

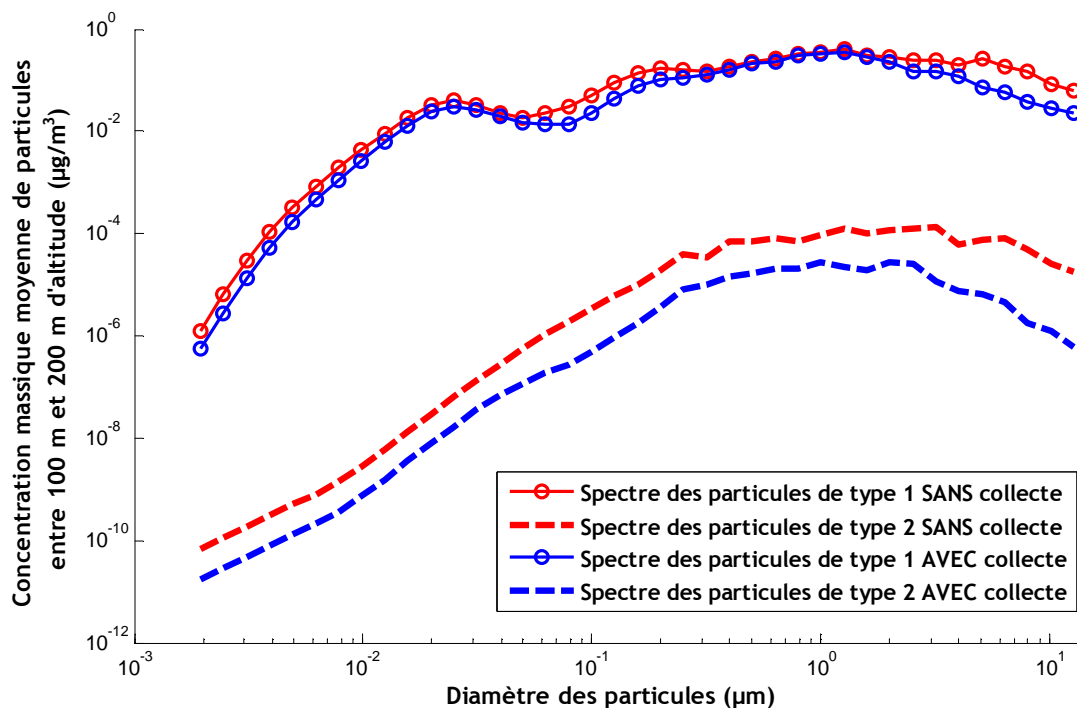


Figure 90 : Distribution granulométrique des aérosols de type 1 et 2 après la pluie du cas CCOPE avec et sans activation du mécanisme de collecte des particules par les gouttes de pluie

Ces résultats, tout comme ceux issus de la Figure 87 montrent que la forme de la distribution granulométrique n'est influencée qu'à la marge par les mécanismes de collecte et les effets de la subsidence. Seule la masse totale de particules est influencée par ces deux effets. Ce résultat est particulièrement intéressant pour la modélisation de la dispersion de polluants atmosphériques.

5. Conclusion

Les taux de lessivages actuels sont largement mesurés dans l'environnement et la compréhension de ce paramètre peut-être très largement améliorée grâce à un modèle atmosphérique tel que DESCAM. Usuellement, le taux de lessivage et la contamination des sols sont assimilés à la décroissance de la concentration de particules dans l'air. Or, il est apparu dans cette modélisation du cas CCOPE que pour un aérosol présent sur toute la colonne de l'atmosphère, il est faux de ne pas considérer les effets dynamiques de l'atmosphère, tels qu'ici, en particulier, de la subsidence, car ceux-ci sont le principal moteur de la variation de la concentration en particules dans l'atmosphère. Bien que la masse de particule effectivement rabattue au sol soit importante ($35 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-2}$), la baisse de la

concentration de ces particules n'est pas corrélée pour le cas de pluie convective étudiée ici. Il revient à dire que si on doit considérer un aérosol présent dans toute la colonne de l'atmosphère, mesurer la baisse de la concentration en particules dans l'atmosphère pour en déduire une contamination des sols est inexact dans le cas d'une pluie convective avec de forts effets de subsidences.

A l'opposé, pour des particules dont la dispersion serait limitée aux basses couches de l'atmosphère, la collecte des aérosols par les gouttes (le rabatement) est un mécanisme majeur de la variation de la concentration de particules.

Déterminer un taux de lessivage dans les mêmes conditions que pour les observations réalisées dans la nature est apparu difficile, car la présente modélisation n'a été réalisée que sur une seule dimension, et compte tenu de la prééminence des effets de subsidence, une modélisation 3D serait plus adaptée pour tenir compte des déplacements des masses d'air. De plus, avec une modélisation 3D, il serait ainsi possible de calculer un taux de lessivage pour un nuage entier.

Au vu de ces résultats, l'approche basée exclusivement sur l'observation de la détermination du rabatement des particules par la pluie semble difficile à généraliser sans l'utilisation d'un modèle à méso-échelle, tout comme le modèle ne peut être utilisé de manière fiable sans une base observationnelle solide.

A l'avenir, un modèle fiabilisé par des mesures complètes d'efficacités de collecte devrait être en mesure de fournir une base de données de taux de lessivage en fonction du type de pluie, de la distribution spatiale des aérosols, etc.

Un des résultats intéressants de cette étude est de constater globalement le peu d'effets de la pluie sur la forme du spectre des particules atmosphériques. Ce qui est un résultat potentiellement intéressant pour les modèles de dispersion des aérosols à l'échelle synoptique. Une explication possible est que les efficacités de collecte de la base de données proposent des variations assez limitées en fonction de la taille des particules (hormis les gouttes d'un diamètre de 2 mm qui ont été modifiées suite à nos expériences), variant de manière quasi-linéaire, sans présence de minimum d'efficacité pour les gouttes millimétriques (cf Figure 58). Ce résultat demandera donc à être vérifié avec une base de données d'efficacité de collecte plus complète expérimentalement.

Et pour la modélisation de la dispersion des particules à méso-échelle, on peut ajouter que les calculs DESCAM permettent d'établir la masse de particules restant en suspension dans l'atmosphère après une pluie. Cette masse restante est apparue comme très sensible aux efficacités de collecte et à la distribution verticale des aérosols.

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

L'objectif de cette thèse était d'améliorer la connaissance du dépôt des particules atmosphériques, en particulier la collecte des aérosols atmosphériques par la pluie sous le nuage, pour contribuer à l'amélioration de la modélisation des conséquences environnementales et sanitaires d'une éventuelle émission de particules radioactives dans l'atmosphère.

En effet, dans l'éventualité d'une libération de matière radioactive dans l'atmosphère, l'IRSN dispose de modèles de dispersion et de dépôt de la radioactivité. Aujourd'hui, la modélisation de la dispersion des gaz et des aérosols ne permet pas une estimation fine des dépôts de particules (dépôt sec et dépôt humide). Parmi les études menées à l'IRSN pour améliorer la compréhension des dépôts, les travaux présentés dans ce mémoire concernent exclusivement la problématique de la collecte des particules atmosphériques par la pluie sous le nuage. Plus précisément, l'approche microphysique est utilisée pour étudier le rabatement des aérosols atmosphériques par la pluie. C'est-à-dire que la collecte des particules est analysée depuis l'échelle de la goutte, pour ensuite être modélisée à l'échelle d'un événement pluvieux.

Après avoir fait un point sur l'état de l'art sur le lessivage des radioéléments, le modèle DESCAM (Flossmann and Wobrock, 2010) a été choisi pour modéliser le lessivage. Après avoir étudié la modélisation du lessivage, il est apparu indispensable de déterminer expérimentalement un paramètre physique méconnu pour les gouttes de pluie : l'efficacité de collecte pour les gouttes de diamètres supérieurs à 1 mm.

L'expérience BERGAME a alors été construite pour mesurer ces efficacités de collecte. Les gouttes générées dans BERGAME se sont révélées parfaitement représentatives des gouttes de pluies mesurées en souffleries verticales et dans l'environnement (vitesses de chute et rapports d'axe). Un grand nombre d'efficacités de collecte a pu être déterminé.

Ainsi, 163 mesures d'efficacités de collecte pour des gouttes millimétriques ont été obtenues, tandis que jusqu'alors seulement une petite douzaine de mesures d'efficacités de collecte étaient présente dans la littérature. Les mesures d'efficacités de collecte obtenues se sont révélées en désaccord avec les modèles couramment utilisés dans la littérature (modèle de Slinn (1977) et base de données utilisée par DESCAM). Un nouveau modèle semi-empirique a donc été établi. De plus, des hypothèses ont pu être avancées pour expliquer l'évolution des efficacités de collecte obtenues grâce à un système innovant de mesures des formes des gouttes et de mesure des écoulements d'air autour de celles-ci.

La combinaison de l'ombroscopie et de la PIV a permis une première caractérisation *in-situ* des écoulements autour de gouttes d'un diamètre de 2 mm. Ensuite, disposant de nouvelles efficacités de collecte, celles-ci ont pu être appliquées dans le modèle DESCAM. Avec sa

nouvelle base de données d'efficacités de collecte, le modèle DESCAM a été appliqué à un cas classique de formation d'un cumulo-nimbus, le cas CCOPE. Ce cas aux mouvements de convections extrêmes peut être considéré à bien des égards comme un cas test révélateur du comportement d'un modèle pour des événements météorologiques extrêmes. Au final, une influence très importante de nos mesures d'efficacités de collecte a été constatée sur le taux de rabattement et la masse de particules dans les gouttes de pluie modélisée par DESCAM.

Malgré ces résultats, ces travaux laissent de nombreuses questions en suspens, et de nombreuses voies de recherche sont encore envisageables pour améliorer la connaissance et la modélisation du lessivage.

Pour commencer, il persiste un doute lié au fait que les efficacités de collecte mesurées dans l'expérience BERGAME sont effectuées pour des atmosphères au repos. C'est-à-dire qu'une atmosphère turbulente ou une advection d'air horizontale auraient éventuellement pu modifier la forme de la goutte et des écoulements autour de celle-ci, et ainsi auraient potentiellement eues une influence sur l'efficacité de collecte. Ainsi, dans le futur, il serait intéressant d'étudier les effets de l'advection horizontale sur la forme des gouttes, leurs écoulements d'air relatifs, et surtout sur l'efficacité de collecte.

Deuxièmement, les efficacités de collecte mesurées ne concernent malheureusement que deux tailles de goutte, et encore ces deux tailles sont-elle extrêmement proches (2 et 2,7 mm). Cette proximité empêche d'observer une différence de comportement de l'efficacité de collecte en fonction de la taille des gouttes. De plus, ces efficacités n'ont été mesurées que pour une gamme de particules comprise entre 0,3 et 4 μm , alors qu'une gamme entre 0,1 et 10 μm avait été visée initialement.

Enfin, l'influence de l'humidité relative sur l'efficacité de collecte a été explorée, mais uniquement pour des humidités relatives inférieures à 90 %. Ainsi, il reste donc une très grande quantité de mesures d'efficacités de collecte à couvrir pour modéliser de façon fiable le lessivage de l'atmosphère par la pluie. Des mesures complémentaires d'efficacités de collecte sont donc indispensables à réaliser, mais de nombreux obstacles se dressent encore pour atteindre cet objectif. Les principales difficultés seront de trois ordres : d'abord réussir à générer des gouttes d'un diamètre autour de 1 mm, ensuite, générer des particules entre 0,1 et 0,3 μm , et enfin, être en mesure de déterminer la masse captée de particules les gouttes. Une approche totalement différente de la technique de fluorimétrie sera peut-être nécessaire pour atteindre ces deux derniers objectifs.

Troisièmement, les efficacités de collecte mesurées ont été différentes de celles prévues par des modèles actuels d'efficacités de collecte. Il a fallu mettre en place un système de mesures optiques pour observer le comportement des gouttes et des écoulements d'air pour pouvoir établir des hypothèses justifiant le comportement des efficacités de collecte pour les

gouttes millimétriques. Les mesures d'écoulements d'air autour des gouttes se sont avérées difficiles à réaliser, et relativement peu de champs de vitesses ont pu être mesurés. Si la faisabilité de la technique a été largement démontrée, les statistiques obtenues sont trop faibles pour comprendre définitivement les mécanismes physiques à l'œuvre dans la collecte des particules par les gouttes millimétriques. De prochaines études à ce sujet devront compléter les mesures d'écoulement, et surtout augmenter de façon très significative la statistique des mesures. Avec une base de données complète des écoulements, il sera possible d'adapter l'approche de Beard (1974) pour évaluer les efficacités de collecte à partir de champs de vitesse moyens autour des gouttes en fonction de leur taille. Cette possibilité serait une approche très intéressante pour déterminer toutes les efficacités de collecte impliquées dans le lessivage de l'atmosphère par la pluie, sans passer par de fastidieuses mesures d'efficacités de collecte dans l'expérience BERGAME, pour chaque taille de goutte et d'aérosol.

Quatrièmement, les mesures d'efficacité de collecte réalisées dans l'expérience BERGAME ont été effectuées de sorte que les gouttes générées portent un minimum de charges électriques. Ainsi, la collecte des aérosols du fait d'effets électrostatiques est minimisée. Cependant, aucune mesure des éventuelles charges électriques portées par les gouttes n'a été réalisée. Ainsi le rôle de la charge des gouttes sur l'efficacité de collecte n'a pas pu être quantifié. Pourtant, le rôle des charges électriques sur l'efficacité de collecte a été mis en avant à de nombreuses reprises (Grover and Beard, 1975; Barlow and Latham, 1983; Wang et al., 1983, 1986; Tripathi and Harrison, 2001; Beard et al., 2002; Andronache, 2004; Tinsley et al., 2006). En conséquence, une adaptation de BERGAME à l'étude des effets électrostatique est d'ores-et-déjà prévue.

Enfin, la modélisation du cas CCOPE a été le seul effort pour généraliser le lessivage de l'atmosphère par la pluie. En effet, la campagne CCOPE ne comporte pas de mesures de concentration de particules, les taux de lessivages déterminés ne peuvent donc pas être confrontés à des données environnementales pour ce cas précis. A l'avenir, il va falloir modéliser des cas environnementaux plus variés avec DESCAM. Seulement, pour modéliser de manière fiable une mesure environnementale de la décroissance de la concentration de particules pendant une pluie, il faut disposer d'informations sur les conditions initiales qui sont extrêmement délicates à obtenir. Car en plus des conditions thermodynamiques et du contenu en eau sur toute la colonne, il faut en plus connaître les distributions granulométriques initiales des aérosols. C'est cette dernière information qui est particulièrement délicate à obtenir, et qui rend si difficile la modélisation du lessivage pour un événement précis. Pourtant cette dernière étape de validation sera la clé d'une modélisation du dépôt des particules, depuis la microphysique jusqu'à l'échelle continentale. Mais de la même manière, la subsidence atmosphérique entraîne l'advection de masses d'air plus

propre provenant d'altitude plus élevée, et entraîne donc une décroissance de la concentration de particules au niveau du sol indépendamment de la collecte des particules par la pluie. Il faut donc faire preuve de prudence dans l'interprétation des mesures de variation de concentration de particules au niveau du sol et des taux de lessivage qui peuvent en être déduits, car ces décroissances de concentrations particulières ne sont pas synonymes de contamination des sols. Il apparaît qu'un effort convergent du travail de terrain, du travail de laboratoire et de la modélisation est nécessaire pour atteindre la compréhension totale du lessivage de l'atmosphère par les pluies convectives et stratiformes.

RÉFÉRENCES

- Adrian, R.J. (1986). Multi-point optical measurements of simultaneous vectors in unsteady flow—a review. *International Journal of Heat and Fluid Flow* 7, 127–145.
- Andronache, C. (2004). Diffusion and electric charge contributions to below-cloud wet removal of atmospheric ultra-fine aerosol particles. *Journal of Aerosol Science* 35, 1467–1482.
- Andsager, K., Beard, K.V., and Laird, N.F. (1999). Laboratory Measurement of Axis Ratios for Large Raindrops. *Journal of the Atmospheric Sciences* 56, 2673–2683.
- Ansoborlo, E., and Stather, J. (2000). Review of the characterisation of hot particles released into the environment and pathways for intake of particles. *Radiation Protection Dosimetry* 92, 139.
- Asai, T., and Kasahara, A. (1967). A theoretical study of the compensating downward motions associated with Cumulus clouds. *Journal of the Atmospheric Sciences* 24, 487–496.
- Astarita, T. (2009). Adaptive space resolution for PIV. *Experiments in Fluids* 46, 1115–1123.
- Baklanov, A., and Sørensen, J.H. (2001). Parameterisation of radionuclide deposition in atmospheric long-range transport modelling. *Physics and Chemistry of the Earth, Part B: Hydrology, Oceans and Atmosphere* 26, 787–799.
- Barlow, A.K., and Latham, J. (1983). A laboratory study of the scavenging of sub-micron aerosol by charged raindrops. *Quart. J. R. Met. Soc.* 109, 763–770.
- Baron, P.A., and Willeke, K. (2001). *Aerosol Measurement, Principles, Techniques, and Applications* (New York/Chichester/Weinheim/Brisbane/Singapore/Toronto).
- Beard, K.V. (1974). Experimental and numerical collision efficiencies for submicron particles scavenged by raindrops. *Journal of the Atmospheric Sciences* 31, 1595–1603.
- Beard, K.V. (1976). Terminal velocity and shape of cloud and precipitation drops aloft. *Journal of the Atmospheric Sciences* 33, 851–864.
- Beard, K.V., Durkee, R.I., and Ochs III, H.T. (2002). Coalescence efficiency measurements for minimally charged cloud drops. *Journal of the Atmospheric Sciences* 59, 233–243.
- Beard, K.V., Feng, J.Q., and Chuang, C. (1989). A simple perturbation model for the electrostatic shape of falling drops. *Journal of the Atmospheric Sciences* 46, 2404–2418.
- Beard, K.V., and Grover, S.N. (1974). Numerical Collision Efficiencies for Small Raindrops Colliding with Micron Size Particles. *Journal of the Atmospheric Sciences* 31, 543–550.
- Beard, K.V., and Pruppacher, H.R. (1969). A determination of the terminal velocity and drag of small water drops by means of a wind tunnel. *Journal of the Atmospheric Sciences* 26, 1066–1072.
- Berglund, R.N., and Liu, B.Y. (1973). Generation of monodisperse aerosol standards. *Environmental Science & Technology* 7, 147–153.
- Bhalwankar, R.V., Sathe, A.B., and Kamra, A.K. (2004). The evaporation of the charged and uncharged water drops suspended in a wind tunnel. *Journal of Earth System Science* 113, 129–138.

- Bourcier, L. (2009). Transport et dépôt de particules et radionucléides au puy de Dôme, France. Université Blaise Pascal.
- Boutaric, A., and Roy, M. (1939). Fluorescence - Pouvoir fluorescent des solutions d'uranine en fonction de leur concentration en ions H⁺. *Comptes Rendus Hebdomadaire Des Séances De l'Académie Des Sciences* 209, 162–164.
- Bringi, V.N., Chandrasekar, V., Hubbert, J., Gorgucci, E., Randeu, W.L., and Schoenhuber, M. (2003). Raindrop size distribution in different climatic regimes from disdrometer and dual-polarized radar analysis. *Journal of the Atmospheric Sciences* 60, 354–365.
- Carstens, J.C., and Martin, J.J. (1982). In-cloud scavenging by thermophoresis, diffusiophoresis, and brownian diffusion. *Journal of the Atmospheric Sciences* 39, 1124–1129.
- Chate, D.M., and Pranesha, T.S. (2004). Field studies of scavenging of aerosols by rain events. *Journal of Aerosol Science* 35, 695–706.
- Chate, D.M., Rao, P.S.P., Naik, M.S., Momin, G.A., Safai, P.D., and Ali, K. (2003). Scavenging of aerosols and their chemical species by rain. *Atmospheric Environment* 37, 2477–2484.
- Davenport, H.M., and Peters, L.K. (1978). Field studies of atmospheric particulate concentration changes during precipitation. *Atmospheric Environment* 12, 997–1008.
- Dorrian, M.-D. (1997). Particle size distributions of radioactive aerosols in the environment. *Radiation Protection Dosimetry* 69, 117–132.
- Duhanyan, N., and Roustan, Y. (2011). Below-cloud scavenging by rain of atmospheric gases and particulates. *Atmospheric Environment* 45, 7201–7217.
- Duplissy, J., Gysel, M., Sjogren, S., Meyer, N., Good, N., Kammermann, L., Michaud, V., Weigel, R., dos Santos, S.M., Gruening, C., et al. (2009). Intercomparison study of six HTDMAs: results and recommendations. *Atmospheric Measurement Techniques*.
- Dye, J.E., Jones, J.J., Winn, W.P., Cerni, T.A., Gardiner, B., Lamb, D., Pitter, R.L., Hallett, J., and Saunders, C.P.R. (1986). Early electrification and precipitation development in a small, isolated Montana cumulonimbus. *Journal of Geophysical Research* 91, 1231–1247.
- Flossmann, A.I. (1986). A theoretical investigation of the removal of atmospheric trace constituents by means of a dynamic model. *Johannes Gutenberg-Universität*.
- Flossmann, A.I. (1998). Interaction of aerosol particles and clouds. *Journal of the Atmospheric Sciences* 55, 879–887.
- Flossmann, A.I., and Wobrock, W. (2010). A review of our understanding of the aerosol–cloud interaction from the perspective of a bin resolved cloud scale modelling. *Atmospheric Research* 97, 478–497.
- Garland, J.A. (1967). The adsorption of iodine by atmospheric particles. *Journal of Nuclear Energy* 21, 687–700.
- Grover, S.N., and Beard, K.V. (1975). A numerical determination of the efficiency with which electrically charged cloud drops and small raindrops collide with electrically charged spherical particles of various densities. *Journal of the Atmospheric Sciences* 32, 2156–2165.
- Grover, S.N., Pruppacher, H.R., and Hamielec, A.E. (1977). A numerical determination of the efficiency with which spherical aerosol particles collide with spherical water drops

- due to inertial impaction and phoretic and electrical forces. *Journal of the Atmospheric Sciences* 34, 1655–1663.
- HAMPL, V., KERKER, M., COOKE, D.D., and MATIJEVIC, E. (1971). Scavenging of aerosol particles by a falling water droplet. *Journal of the Atmospheric Sciences* 28, 1211–1221.
- HOBBS, P.V. (1993). *Aerosol-Cloud-Climate Interactions* (San Diego/New York/Boston/London/Sydney/Tokyo/Toronto).
- JOHNSON, T.A., and PATEL, V.C. (1999). Flow past a sphere up to a Reynolds number of 300. *Journal of Fluid Mechanics* 378, 19–70.
- JONES, B.K., and SAYLOR, J.R. (2009). Axis Ratios of Water Drops Levitated in a Vertical Wind Tunnel. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 26, 2413–2419.
- KERKER, M., and HAMPL, V. (1974). Scavenging of aerosol particles by a falling water drops and calculation of washout coefficients. *Journal of the Atmospheric Sciences* 31, 1368–1376.
- KESKINEN, J., PIETARINEN, K., and LEHTIMAKI, M. (1992). Electrical low pressure impactor. *J. Aerosol Sci.* 23, 353–360.
- KHALITOV, D.A., and LONGMIRE, E.K. (2002). Simultaneous two-phase PIV by two-parameter phase discrimination. *Experiments in Fluids* 32, 252–268.
- KINZER, G.D., and GUNN, R. (1951). The evaporation, temperature and thermal relaxation-time of freely falling waterdrops. *Journal of Meteorology* 8, 71–83.
- KNIGHT, C.A. (1982). The cooperative convective precipitation experiment (CCOPE), 18 May - 7 August 1981. *Bulletin American Meteorological Society* 63, 386–398.
- LAAKSO, L. (2003). Ultrafine particle scavenging coefficients calculated from 6 years field measurements. *Atmospheric Environment* 37, 3605–3613.
- LAI, K.-Y., DAYAN, N., and KERKER, M. (1978). Scavenging of aerosol particles by a falling water drop. *Journal of the Atmospheric Sciences* 35, 674–682.
- LANGMUIR, I., and BLODGETT, K.B. (1946). *Mathematical investigation of water-droplet trajectories* (US Army Air Force).
- LEMAITRE, P., NUBOER, A., and PORCHERON, E. (2009). Plan d'action du programme d'étude du rabatement des aérosols atmosphériques par les précipitations : procédés, niveau d'instrumentation, principe et procédure des essais (Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire).
- LEONG, K.H., BEARD, K.V., and OCHS III, H.T. (1982). Laboratory measurements of particle capture by evaporating cloud drops. *Journal of the Atmospheric Sciences* 39, 1130–1140.
- LÉPINASSE, E., MARION, M., GUELLA, S., ALEXANDROVA, S., and SABONI, A. (2005). Absorption et désorption du dioxyde de soufre par des gouttes d'eau de fort diamètre en chute. *Revue Des Sciences De L'eau* 18, 5–23.
- LEPORINI, M. Développement et évaluation d'un modèle tridimensionnel de nuage chaud à microphysique détaillée. Université Blaise Pascal.
- LEROY, D. (2007). Développement d'un modèle de nuage tridimensionnel à microphysique détaillée - Application à la simulation de cas de convection moyenne et profonde. Université Blaise Pascal.
- LINDKEN, R., and MERZKIRCH, W. (2000). Velocity measurements of liquid and gaseous phase for a system of bubbles rising in water. *Experiments in Fluids* 29, 194–201.
- LINDKEN, R., and MERZKIRCH, W. (2002). A novel PIV technique for measurements in multiphase flows and its application to two-phase bubbly flows. *Experiments in Fluids* 33, 814–825.

- Malardel, S. (2009). *Fondamentaux de Météorologie* (Toulouse: Cépaduè éditions).
- Marjamäki, M., Lemmetty, M., and Keskinen, J. (2005). ELPI Response and Data Reduction I: Response Functions. *Aerosol Science and Technology* 39, 575–582.
- Marshall, J.S., and Palmer, W.M. (1948). The distribution of raindrops with size. *Journal of Meteorology* 5, 165–166.
- Masson, O., Baeza, A., Bieringer, J., Brudecki, K., Bucci, S., Cappai, M., Carvalho, F.P., Connan, O., Cosma, C., Dalheimer, A., et al. (2011). Tracking of Airborne Radionuclides from the Damaged Fukushima Dai-Ichi Nuclear Reactors by European Networks. *Environmental Science & Technology* 45, 7670–7677.
- Melling, A. (1997). Tracer particles and seeding for particle image velocimetry. *Measurement Science and Technology* 8, 1406.
- Mitra, S.K., Brinkmann, J., and Pruppacher, H.R. (1992). A wind tunnel study on the drop-to-particle conversion. *Journal of Aerosol Science* 23, 245–256.
- Mitra, S.K., Vohl, O., Ahr, M., and Pruppacher, H.R. (1990). A wind tunnel and theoretical study of the melting behavior of atmospheric ice particles. IV : experiment and theory for snow flakes. *Journal of the Atmospheric Sciences* 47, 584–591.
- Montero-Martínez, G., Kostinski, A.B., Shaw, R.A., and García-García, F. (2009). Do all raindrops fall at terminal speed? *Geophysical Research Letters* 36,.
- Mota, M.C., Carvalho, P., Ramalho, J., and Leite, E. (1991). Spectrophotometric analysis of sodium fluorescein aqueous solutions. Determination of molar absorption coefficient. *International Ophthalmology* 15, 321–326.
- Nogueira, S., Sousa, R., Campos, J.B.L.M., Pinto, A.M.F.R., and Riethmuller, M.L. (2002). Simultaneous PIV and shadowgraphy measurements in slug flow in newtonian and non-newtonian liquids. (Lisboa - Portugal),.
- Ounis, H., and Ahmadi, G. (1990). A Comparison of Brownian and Turbulent Diffusion. *Aerosol Science and Technology* 13, 47–53.
- Penner, J.E., and Molenkamp, C.R. (1989). Predicting the Consequences of Nuclear War: Precipitation Scavenging of Smoke. *Aerosol Science and Technology* 10, 51–62.
- Pöllänen, R., Valkama, I., and Toivonen, H. (1997). Transport of radioactive particles from the Chernobyl accident. *Atmospheric Environment* 31, 3575–3590.
- Pranisha, T.S., and Kamra, A.K. (1996a). Scavenging of aerosol particles by large water drops 1. Neutral case. *Journal of Geophysical Research* 101, 23373–23380.
- Pranisha, T.S., and Kamra, A.K. (1996b). Scavenging of aerosol particles by large water drops 1. Neutral case. *Journal of Geophysical Research* 101, 23373–23380.
- Pranisha, T.S., and Kamra, A.K. (1997). Scavenging of aerosol particles by large water drops 3. Washout coefficients, half-lives, and rainfall depths. *Journal of Geophysical Research* 102, 23947–23953.
- Pruppacher, H.R., and Klett, J.D. (1997). *Microphysics of Clouds and Precipitation* (Dordrecht/Boston/London).
- Radke, L.F., Hobbs, P.V., and Eltgroth, M.W. (1980). Scavenging of aerosol particles by precipitation. *Journal of Applied Meteorology* 19, 715–722.
- Renaud, P. (2008). *Les retombées radioactives de l'accident de Tchernobyl sur le territoire français : conséquences environnementales et exposition des personnes*.
- Renoux, A., and Boulaud, D. (1998). *Les aérosols, Physique et Métrologie* (Londres/Paris/New York).

- Sathe, M.J., Thaker, I.H., Strand, T.E., and Joshi, J.B. (2008). An advanced PIV/LIF and shadowgraphy system to visualize flow structure in two-phase bubbly flows. (Lisboa - Portugal),.
- Saylor, J.R., and Jones, B.K. (2005). The existence of vortices in the wakes of simulated raindrops. *Physics of Fluids* 17, 031706.
- Seol, D.-G., and Socolofsky, S.A. (2008). Vector post-processing algorithm for phase discrimination of two-phase PIV. *Experiments in Fluids* 45, 223–239.
- Sjoback, R., Nygren, J., and Kubista, M. (1995). Absorption and fluorescence properties of fluorescein. *Spectrochimica Acta Part A* 51, L7–L21.
- Slinn, S.A., and Slinn, W.G.N. (1980). Predictions for particles deposition on natural waters. *Atmospheric Environment* 14, 1013–1016.
- Slinn, W.G.N. (1977). Some approximations for the wet and dry removal of particles and gases from the atmosphere. *Water, Air, & Soil Pollution* 7, 513–543.
- Smith, J.A., Hui, E., Steiner, M., Baeck, M.L., Krajewski, W.F., and Ntelekos, A.A. (2009). Variability of rainfall rate and raindrop size distributions in heavy rain. *Water Resources Research* 45,.
- Sportisse, B. (2007). A review of parameterizations for modelling dry deposition and scavenging of radionuclides. *Atmospheric Environment* 41, 2683–2698.
- Stöber, W., and Flachsbarth, H. (1973). An evaluation of nebulized ammonium fluorescein as a laboratory aerosol. *Atmospheric Environment* 7, 737–748.
- Szakáll, M., Diehl, K., Mitra, S.K., and Borrmann, S. (2009). A Wind Tunnel Study on the Shape, Oscillation, and Internal Circulation of Large Raindrops with Sizes between 2.5 and 7.5 mm. *Journal of the Atmospheric Sciences* 66, 755–765.
- Szakáll, M., Mitra, S.K., Diehl, K., and Borrmann, S. (2010). Shapes and oscillations of falling raindrops — A review. *Atmospheric Research* 97, 416–425.
- Testik, F.Y., Barros, A.P., and Bliven, L.F. (2006). Field observations of multimode raindrop oscillations by high-speed imaging. *Journal of the Atmospheric Sciences* 63, 2663–2668.
- Thurai, M., Bringi, V.N., Szakáll, M., Mitra, S.K., Beard, K.V., and Borrmann, S. (2009). Drop Shapes and Axis Ratio Distributions: Comparison between 2D Video Disdrometer and Wind-Tunnel Measurements. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 26, 1427–1432.
- Timgren, A., Trägårdh, G., and Trägårdh, C. (2007). Application of the PIV technique to measurements around and inside a forming drop in a liquid–liquid system. *Experiments in Fluids* 44, 565–575.
- Tinsley, B.A., Zhou, L., and Plemmons, A. (2006). Changes in scavenging of particles by droplets due to weak electrification in clouds. *Atmospheric Research* 79, 266–295.
- Tokay, A., and Beard, K.V. (1996). A field study of raindrop oscillations. Part I; Observation of size spectra and evaluation of oscillation causes. *Journal of Applied Meteorology* 35, 1671–1687.
- Topping, D.O., McFiggans, G.B., Coe, H., and others (2005a). A curved multi-component aerosol hygroscopicity model framework: Part 1 - Inorganic compounds. *Atmospheric Chemistry and Physics* 5, 1205–1222.
- Topping, D.O., McFiggans, G.B., Coe, H., and others (2005b). A curved multi-component aerosol hygroscopicity model framework: Part 2 - Including organic compounds. *Atmospheric Chemistry and Physics* 5, 1223–1242.

- Tripathi, S.N., and Harrison, R.G. (2001). Scavenging of electrified radioactive aerosol. *Atmospheric Environment* 35, 5817–5821.
- Uijlenhoet, R., and Stricker, J.N.M. (1999). A consistent rainfall parametrization based on the exponential raindrop size distribution. *Journal of Hydrology* 218, 101–127.
- Ulbrich, C.W. (1983). Natural variations in the analytical form of the raindrop size distribution. *Journal of Climate and Applied Meteorology* 22, 1764–1775.
- Villani, P., Picard, D., Michaud, V., Laj, P., and Wiedensohler, A. (2008). Design and Validation of a Volatility Hygroscopic Tandem Differential Mobility Analyzer (VH-TDMA) to Characterize the Relationships Between the Thermal and Hygroscopic Properties of Atmospheric Aerosol Particles. *Aerosol Science and Technology* 42, 729–741.
- Volken, M., and Schumann, T. (1993). A critical review of below-cloud aerosol scavenging results on Mt Rigi. *Water, Air, & Soil Pollution* 68, 15–28.
- Wang, H.C., Leong, K.H., Stukel, J.J., and Hopke, P.K. (1983). Collection of hydrophilic and hydrophobic charged submicron particles by charged water droplets. *Journal of Aerosol Science* 14, 703–712.
- Wang, H.C., Stukel, J.J., and Leong, K.H. (1986). Charged Particle Collection by an Oppositely Charged Accelerating Droplet. *Aerosol Science and Technology* 5, 409–421.
- Wang, P.K., Grover, S.N., and Pruppacher, H.R. (1978). On the effect of electrical charges on the scavenging of aerosol particles by clouds and small raindrops. *Journal of the Atmospheric Sciences* 35, 1735–1743.
- Wang, P.K., and Pruppacher, H.R. (1977a). Acceleration to terminal velocity of cloud and raindrops. *Journal of Applied Meteorology* 16, 275–280.
- Wang, P.K., and Pruppacher, H.R. (1977b). An experimental determination of the efficiency with which aerosol particles are collected by water drops in subsaturated air. *Journal of the Atmospheric Sciences* 34, 1664–1669.
- Willert, C.E., and Gharib, M. (1991). Digital particle image velocimetry. *Experiments in Fluids* 10, 181–193.
- Yu, V., Sivintsev, V.L., and Danilyan, V.A. (1994). Radioecological consequences of a radiation accident in a nuclear-powered submarine in Chazhma cove. *Atomic Energy* 76, 157–160.