

UNIVERSITE CLERMONT AUVERGNE

**ECOLE DOCTORALE DES SCIENCES
FONDAMENTALES**

THESE

présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR D'UNIVERSITE

Spécialité : Physique de l'atmosphère

Par **DÉPÉE Alexis**

Master génie mécanique et diplôme d'ingénieur spécialité énergie et environnement

**Étude expérimentale et théorique des mécanismes
microphysiques mis en jeu dans la capture des
aérosols radioactifs par les nuages.**

Soutenue publiquement le 18 décembre 2019, devant la commission
d'examen :

M.	Schwarzenboeck Alfons	Président
M.	Bergametti Gilles	Rapporteur
M.	Soula Serge	Rapporteur
Mme.	Planche Céline	Examineur
M.	Rimbert Nicolas	Examineur
M.	Lemaitre Pascal	Co-encadrant
Mme.	Monier Marie	Co-encadrant
Mme.	Flossmann Andrea	Directeur de thèse

Security is mostly a superstition. It does not exist in nature, nor do the children of men as a whole experience it. God Himself is not secure, having given man dominion over His works! Avoiding danger is no safer in the long run than outright exposure. The fearful are caught as often as the bold. Faith alone defends. Life is either a daring adventure or nothing. To keep our faces toward change and behave like free spirits in the presence of fate is strength undefeatable.

Helen Keller, *The Open Door*

*À Maryse et Roger LIGERON,
des grands-parents formidables.*

REMERCIEMENTS

A l'heure de finaliser les dernières corrections et de tourner la page de ces trois années riches en émotions, j'ai la certitude que ce manuscrit est la résultante d'un travail d'équipe. Le moment est donc venu d'exprimer ma profonde gratitude envers les personnes qui ont œuvré avec bienveillance à l'acheminement de cette thèse et avec lesquelles j'ai beaucoup appris.

Premièrement, je remercie chaleureusement mes rapporteurs - Gilles Bergametti et Serge Soula - au même titre que mes examinateurs - Nicolas Rimbert et Céline Planche - et mon président de jury - Alfons Schwarzenboeck. Ces derniers ont formulé des remarques pertinentes et très élogieuses à l'égard de mon travail - faisant de ce jour un moment très particulier et une reconnaissance forte de mes heures passées au laboratoire.

Également, je formule mes remerciements à ma directrice, Andrea Flossmann, qui a toujours su garder un œil attentif à mes recherches, avec une gentillesse très prononcée. Je suis très fier d'avoir pu côtoyer une scientifique de cette envergure avec une telle simplicité. J'ai pris aussi beaucoup de plaisir à suivre quelques-uns de ses cours de master, comme ceux de Wolfram Wobrock, dans lesquels j'ai pu me former dans le domaine de la météorologie. Je remercie aussi Marie Monier qui possédait la double casquette co-directrice et co-encadrant. Marie m'a beaucoup aidé à me familiariser avec le modèle DESCAM et a toujours su garder un certain recul qui m'a parfois fait défaut. Elle m'a apporté des remarques très justes, des petits déclics aussi bien pour mes articles, mon manuscrit, mes présentations. Cela m'a permis d'avancer dans la qualité de mes rendus mais aussi en tant que chercheur junior. Son appel, la veille de la soutenance pour savoir comment j'allais, m'a touché.

Je dois beaucoup à la personne qui suit, si je devais écrire en proportion il me faudrait probablement un recueil - je pense évidemment à mon co-encadrant - Pascal Lemaitre. Pascal a été là dans tous les moments de ma thèse, il a su me pousser quand je piétinais, me ralentir quand je partais tête baissée (et Dieu sait que je suis buté). Il m'a partagé sa bonne humeur et ses conseils avisés. Pascal a été le meilleur encadrant que j'aurais pu espérer, il m'a permis d'exprimer mon total potentiel et m'a fait confiance. Aussi, il a toujours été présent pour faire face à mes problèmes, se questionnant avec moi - aussi bien sur des modèles qu'en retroussant ses manches pour travailler sur mon expérience. Pascal est un tuteur qui répond aux messages et aux appels durant ses vacances - ayant constamment à cœur que je ne sois pas bloqué et que je réussisse. Il a aussi été là quand le moral n'y était plus et a su me faire perdre patience en me cachant mon téléphone ou ma carte de restauration (Rrrrrhhhh !). J'ai énormément appris avec lui et si je devais être un jour un encadrant, je prendrais son exemple. À l'avenir, si l'opportunité se présente, je m'efforcerai de lui rendre la pareille.

Je tiens à remercier également mon chef de service, Laurent Bouilloux, et mon chef de laboratoire, François Gensdarmes qui ont toujours été de bon conseil et qui m'ont fourni les ressources matérielles et financières pour mener à bien mes recherches. Je transmets aussi ma gratitude aux collaborateurs du service pour leur soutien et ce, dans une ambiance agréable de travail. Je pense notamment à François-Xavier - pour son aide sur le DMA, ses différentes relectures et sa bienveillance - Soleiman - pour ses conseils sur le DMA et ses leçons de savoir-vivre - Laurent (Ricciardi) - pour ses relectures dont le Chapitre 2 de ma thèse - Thomas - pour ses talents sur CFX - Nadia - la spécialiste des débitmètres Brooks.

Plus particulièrement, c'est avec grand plaisir que j'ai pu travailler et vivre avec l'équipe TOSQAN. Merci Yohan pour ton aide sur mon expérience, tu m'as beaucoup soulagé dans certaines parties du protocole, parfois très redondantes. Merci Claire pour toutes tes relectures et nos heures passées sur Skype à m'entraîner sur ma présentation de thèse. Avec Pascal déjà évoqué, il me reste Benjamin à qui souhaiter le meilleur pour sa soutenance à venir et pour la suite. Ayant commencé le même jour et dans le même bureau, nous avons pu nous épauler, échanger et relativiser durant ces années. Tu as d'ailleurs été un chouette colocataire.

Pour finir côté IRSN, je souhaite le meilleur à tous les doctorants - anciens ou actuels - que j'ai pu côtoyer durant ma thèse, notamment Amel, Benjamin, Gwen, Hantao, Jonathan (la machine), Laura, Lina, Samuel (le papa), Youssef. J'en profite pour remercier mon stagiaire Ziyi pour m'avoir fait avancer dans mon expérience, avec toute sa gentillesse et ses capacités énormes. Merci aussi à Arnaud Quérel qui, quelques années auparavant, était à ma place. Il m'a rassuré sur mes appréhensions de me lancer dans une thèse et répondu toujours dans la bonne humeur à mes sollicitations.

Je transmets ma sympathie à tous les membres du LaMP de Clermont-Ferrand où les séjours durant ma thèse étaient toujours un véritable plaisir. Je pense notamment aux parties de futsal, de basket ou de kart aussi bien avec les doctorants qu'avec l'ancien directeur Joël. Je remercie notamment Thibault pour son aide précieuse sur DESCAM, en plus de m'avoir fait répéter ma soutenance avec Pierre, que je remercie également.

Enfin, je n'oublie pas ma famille qui m'a permis d'arriver là où je suis - particulièrement ma mère, Evelyne, qui a toujours été là pour son chouchou durant toute sa vie d'étudiant. Elle a notamment eu le courage de relire une partie de ce manuscrit bien que totalement novice en sciences et m'a beaucoup fait rire à des moments où elle lisait, découragée, certains passages sans y comprendre leur sens. Je la remercie d'être venue assister à ma thèse, accompagnée de mon beau-père Yves, mes sœurs Laura et Aurélia - ma jumelle qui m'a fait la surprise de sa présence - ainsi que mon frère Mathias. J'en profite pour souhaiter la bienvenue à mon neveu Eliott, arrivé dans nos vies le 22 septembre 2019 et j'associe deux personnes chères à mon cœur - mes grands-parents Maryse et Roger.

Pour clôturer ces remerciements, j'ai été ravi que mes amis aient pu se libérer et braver les grèves pour se rendre à Clermont-Ferrand - Matthieu, Morgane, Elena et Abdurrahman. Merci particulièrement à ce dernier d'avoir toujours été présent pour me faire relativiser, m'écouter et même m'aider sur certains aspects de ma thèse - des relectures de mon anglais en passant par le débogage de mes algorithmes. J'ai des amis formidables et j'oublie parfois de leur en faire part.

SOMMAIRE

ABREVIATIONS	11
NOTATIONS	12
INTRODUCTION	17
CHAPITRE 1 Aérosol atmosphérique, radionucléide et nuage	21
1.1 Caractérisation de l'aérosol	21
1.1.1 Granulométrie de l'aérosol	21
1.1.1.1 Aérosol atmosphérique	21
1.1.1.2 Radionucléides émis à la suite de rejets accidentels dans l'atmosphère	21
1.1.1.2.1 Accident du CNPE-T (1986)	21
1.1.1.2.2 Accident du CNPE-FD (2011)	22
1.1.1.2.2.1 Mesures lors des premiers rejets de l'accident du CNPE-FD (2011) :	23
1.1.1.2.2.2 Mesures tardives de l'accident du CNPE-FD (2011) :	23
1.1.2 Charge électrique de l'aérosol	23
1.1.2.1 Aérosol atmosphérique	23
1.1.2.2 Aérosol radioactif	24
1.1.2.2.1 Principe de charge d'un aérosol radioactif	24
1.1.2.2.2 Évaluation de la charge électrique des radionucléides émis à la suite de l'accident du CNPE-FD (2011)	25
1.2 Caractérisation des gouttes de nuage	26
1.2.1 Granulométrie des gouttes de nuage	26
1.2.2 Charge électrique des gouttes de nuage	27
1.2.2.1 Principe de chargement d'une goutte de nuage	27
1.2.2.2 Mesures de la charge électrique des gouttes de nuage (Takahashi, 1973)	28
1.3 Capture de l'aérosol atmosphérique par les nuages - mécanisme de collecte	28
1.3.1 Définition de l'efficacité de collecte	28
1.3.2 Effets microphysiques impliqués dans la collecte d'aérosol par une goutte de nuage	30
1.3.2.1 Mécanisme d'interception	30
1.3.2.2 Mécanisme d'impaction inertielle	31
1.3.2.3 Diffusion brownienne des particules	31
1.3.2.4 Force de thermophorèse	32
1.3.2.5 Force de diffusiophorèse	33
1.3.2.6 Milieu sous-saturé - forces de diffusiophorèse et de thermophorèse	34
1.3.2.7 Forces électrostatiques - théorie de la charge ponctuelle image	36
1.3.2.8 Autres effets	38
1.4 Revue des études sur l'efficacité de collecte	39
1.4.1 Approches théoriques	39
1.4.2 Mesures d'efficacité de collecte réalisées en laboratoire	42
1.5 Résumé du CHAPITRE 1	46
CHAPITRE 2 Modèle microphysique de capture de particules par une goutte micronique - influence des charges électriques et de l'humidité relative	49
2.1 Introduction	49
2.1.1 Hypothèses de modélisation	49
2.2 Description du modèle	50
2.2.1 Description générale du modèle	50
2.2.2 Modélisation de l'écoulement d'air autour de la goutte	51
2.2.2.1 Résolution analytique	51

2.2.2.2	Simulation numérique	52
2.2.3	Modèle de capture unitaire 3D	53
2.2.3.1	Suivi lagrangien des particules	53
2.2.3.2	Conditions initiales et conditions aux limites	55
2.2.3.2.1	Disque d'injection	55
2.2.3.2.2	Nombre de particules injectées	55
2.2.3.2.3	Conditions de collecte	56
2.2.3.3	Pas de temps	56
2.2.3.4	Calcul de l'efficacité de collecte	57
2.2.3.5	Logigramme de l'algorithme de calcul	58
2.3	Validations et performances du modèle	59
2.3.1	Génération des nombres aléatoires	59
2.3.2	Modélisation du mouvement brownien	59
2.3.3	Optimisation du disque d'injection	61
2.3.4	Convergence statistique de l'efficacité de collecte	62
2.3.5	Confrontation avec le modèle de Tinsley et Zhou (2015)	63
2.4	Résultats numériques et discussions	65
2.4.1	Préambule	65
2.4.1.1	Données d'entrée du modèle	65
2.4.1.2	Illustration de trajectoires	66
2.4.2	Résultats de simulation - aérosol et goutte électriquement neutres, air saturé	68
2.4.3	Résultats de simulation - influence de l'humidité relative	71
2.4.4	Résultats de simulation - influence des charges électriques	72
2.4.4.1	Contribution du terme Image-Attractif-Faible-Distance (IAFD)	72
2.4.4.2	Contribution du terme Coulombien-Longue-Distance (CLD)	72
2.4.4.3	Transition entre la domination du terme IAFD et CLD	73
2.4.4.4	Influence de la taille de la goutte sur les effets électrostatiques	74
2.4.5	Résultats de simulation - effets couplés	78
2.5	Résumé du CHAPITRE 2	79

CHAPITRE 3 Étude expérimentale de la capture de particules submicroniques par des gouttes microniques - influence des charges électriques et de l'humidité relative ----- 81

3.1	Objectifs et contraintes	81
3.2	Expérience In-CASE	81
3.2.1	Séparation des gouttes et du flux d'aérosol	83
3.2.1.1	Géométrie de l'impacteur	83
3.2.1.2	Retention des gouttes dans le volume de contrôle	84
3.2.1.3	Pollution du volume de contrôle par le flux d'aérosol	85
3.2.2	Contrôle et caractérisation des gouttes	85
3.2.2.1	Dispositif de génération des gouttes	85
3.2.2.2	Fréquence de génération	86
3.2.2.3	Taille des gouttes	88
3.2.2.4	Température dans la chambre de In-CASE	88
3.2.2.5	Evaporation des gouttes dans la chambre de In-CASE	89
3.2.2.6	Contrôle de la charge de la goutte - principe d'induction	89
3.2.2.7	Évaluation de la charge de la goutte	91
3.2.2.7.1	Principe et dispositif expérimental	91
3.2.2.7.2	Détermination de la charge	91
3.2.2.7.3	Confrontation des deux méthodes de mesure de la taille des gouttes	93
3.2.2.7.4	Validation du système	94
3.2.2.7.5	Loi de charge des gouttes	94
3.2.3	Production et caractérisation de l'aérosol	95
3.2.3.1	Granulométrie de l'aérosol avant sélection	95
3.2.3.2	Contrôle et caractérisation de la charge - création d'un chargeur par champ	96
3.2.3.2.1	Préambule	96

3.2.3.2.2	Géométrie du chargeur par champ	97
3.2.3.2.3	Régime de fonctionnement du chargeur - régime de Trichel	98
3.2.3.2.4	Mesure de la charge de l'aérosol	100
3.2.3.2.4.1	Principe	100
3.2.3.2.4.2	Hypothèse de distribution en taille monodispersée	100
3.2.3.2.4.3	Débit chargeur - optimisation de la concentration	101
3.2.3.2.4.4	Lois de charge des aérosols	103
3.2.3.2.4.5	Stabilité temporelle de la charge des particules	103
3.2.3.2.4.6	Validation	104
3.3	Approche expérimentale	105
3.3.1	Méthode de mesure des efficacités de collectes	105
3.3.1.1	Étude de l'influence des charges électriques	105
3.3.1.2	Étude de l'influence de l'humidité relative	106
3.3.1.2.1	Principe de sélection des aérosols suivant leur mobilité électrique	106
3.3.1.2.2	Détermination de l'efficacité de collecte	108
3.3.1.3	Hauteur de chute des gouttes	110
3.3.2	Hygroscopicité de la fluorescéine	111
3.3.3	Incertitudes	112
3.3.3.1	Évaluation de l'incertitude sur la taille de l'aérosol	112
3.3.3.2	Évaluation de l'incertitude sur l'efficacité de collecte	113
3.3.3.2.1	Influence des charges électriques	113
3.3.3.2.2	Influence de l'humidité relative	114
3.3.4	Influence de l'humidité relative sur l'efficacité de collecte	116
3.3.5	Influence des charges électriques sur l'efficacité de collecte	119
3.3.5.1	Influence du produit des charges électriques	119
3.3.5.2	Influence de la charge de l'aérosol - goutte électriquement neutre	120
3.3.5.3	Comparaison des mesures avec le modèle développé et la corrélation de Kraemer et Johnstone (1955)	122
3.4	Résumé du CHAPITRE 3	124

CHAPITRE 4 Étude à meso-échelle de l'impact des forces électrostatiques sur la capture des aérosols (radioactifs) par les nuages - le modèle DESCAM ----- 127

4.1	Introduction	127
4.1.1	Présentation du modèle DESCAM - modèle dynamique 1.5-D	127
4.1.1.1	Le modèle dynamique 1.5-D	127
4.1.1.2	Représentation des conditions atmosphériques	128
4.1.1.3	Advection verticale des quantités non diffusantes	129
4.1.1.4	Le modèle à microphysique détaillée DESCAM	129
4.1.2	Cas d'étude sélectionnés - nuage convectif et stratiforme	131
4.1.2.1	Nuage convectif - CCOPE	131
4.1.2.1.1	Campagne CCOPE	131
4.1.2.1.2	Hypothèses pour le cas d'étude CCOPE dans DESCAM 1.5-D	132
4.1.2.1.3	Modélisation de l'épisode du 19 juillet de CCOPE dans DESCAM 1.5-D	133
4.1.2.2	Modèle de nuage stratiforme idéal - adapté de Zhang et al. (2004)	136
4.1.2.2.1	Modifications apportées à DESCAM 1.5-D	136
4.1.2.2.2	Modélisation du nuage stratiforme idéal dans DESCAM 1.5-D	137
4.1.3	Matrice d'efficacité de collecte dans DESCAM	139
4.1.3.1	Efficacité de collecte sans les effets électrostatiques	139
4.1.3.2	Hypothèses de modélisation	140
4.1.3.3	Matrices pour le nuage convectif CCOPE	143
4.1.3.4	Matrices pour le nuage stratiforme idéal	144
4.2	Contribution des mécanismes impliqués dans l'évolution de la concentration de l'aérosol de type 2 dans le nuage	145
4.2.1	Étude du nuage convectif (liquide) de CCOPE	147
4.2.1.1	Taux de capture	147
4.2.1.2	Contribution du mécanisme de collecte	149

4.2.1.3	Contribution de la microphysique -----	151
4.2.1.4	Évolution du spectre granulométrique dans le nuage -----	153
4.2.1.5	Paramétrisation de la capture dans le nuage convectif CCOPE-----	157
4.2.1.6	Cas particulier - distribution en taille monodispersée de l'aérosol radioactif -----	159
4.2.2	Étude du nuage stratiforme idéal-----	161
4.2.2.1	Taux de capture -----	161
4.2.2.2	Contribution de la collecte et de la microphysique -----	162
4.2.2.3	Évolution du spectre granulométrique dans le nuage -----	165
4.2.2.4	Paramétrisation de la capture dans le nuage stratiforme idéalisé -----	167
4.2.2.5	Cas particulier - distribution en taille monodispersée de l'aérosol radioactif -----	168
4.3	Résumé du CHAPITRE 4 et perspectives -----	170
4.3.1	Résumé des résultats -----	170
4.3.2	Remarques sur le modèle DESCAM-----	171
4.3.3	Axes d'étude envisagés-----	171
4.3.3.1	Paramètre d'hygroscopicité -----	171
4.3.3.2	Nuage stratiforme idéalisé - diminution des vents ascendants -----	172
4.3.3.3	Nuage stratiforme idéalisé - rabattement sous le nuage -----	174
CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES -----		177
ANNEXE A. Définition des paramètres d'intérêt -----		183
ANNEXE B. Modèle microphysique 2D-----		185
B. 1.	Méthodologie-----	185
B.1.1.	Calcul de l'efficacité de collecte -----	185
B.1.2.	Suivi lagrangien des particules-----	185
B. 2.	Résultats et discussions -----	186
B.2.1.	Simulations sans forces électrostatiques-----	186
B.2.2.	Simulations avec forces électrostatiques -----	188
B.2.3.	Résultats d'efficacité de collecte pour le modèle 2D-----	188
ANNEXE C. Modèle d'évaporation des gouttes -----		191
ANNEXE D. Protocole expérimental -----		193
ANNEXE E. Mesures d'efficacité de collecte-----		197
ANNEXE F. Efficacites de collecte théoriques-----		199
REFERENCES -----		211

ABREVIATIONS

Acronyme	Signification
CCOPE	Cooperative Convective Precipitation Experiment
CLD	Coulombien-Longue-Distance
CLINCH	CoLLision Ice Nucleation Chamber
CNPE-FD	Centre Nucléaire de Production d'Électricité de Fukushima Daiichi
CNPE-T	Centre Nucléaire de Production d'Électricité de Tchernobyl
CPC	Condensation Particle Counter
DMA	Differential Mobility Analyzer
DESCAM	Detailed SCAvening Model
EAN	Electrostatic Aerosol Neutralizer
ELPI	Electrical Low-Pressure Impactor
IAFD	Image-Attractif-Faible-Distance
In-CASE	In-Cloud Aerosol Scavenging Experiment
SMPS	Scanning Mobility Particle Sizer Spectrometer

NOTATIONS

Symbole Latin	Signification	Valeur [Unité]
a	Rayon de l'aérosol	- [m]
$A_{(moy)}$	Rayon de la goutte (moyen)	- [m]
b	Distance entre les centres de goutte et de particule	- [m]
B_p	Mobilité de la particule	Annexe A [s.kg ⁻¹]
B_v	Coefficient lié à la diffusion des particules due au mouvement brownien	Annexe A [m.s ^{-3/2}]
c	Distance entre q' et le centre de la goutte	- [m]
C_0	Concentration numérique initiale en aérosol de type 2	- [cm ⁻³]
$CAP(i)$	Distribution en taille d'aérosols humides discrétisée suivant la classe i	- [cm ⁻³]
$C_{fluo,g}$	Concentration massique de fluorescéine	- [kg.m ⁻³]
C_{M,D_p}	Concentration massique moyenne d'aérosol de diamètre D_p dans la chambre	- [kg.m ⁻³]
$C_{M,fluo}$	Concentration massique moyenne d'aérosol dans la chambre	- [kg.m ⁻³]
$C_{N,AP}$	Concentration en nombre de particule	- [m ⁻³]
$C_{N,atomiseur}$	Concentration en sortie d'atomiseur	- [m ⁻³]
$C_{N,DMA}$	Concentration en sortie de DMA	- [m ⁻³]
$Cont_{col}$	Contribution de la collecte dans la microphysique	- [-]
$Cont_{micro}$	Contribution de la microphysique dans la variation totale en concentration d'aérosol	- [-]
$c_{p,air}$	Capacité calorifique massique de l'air	- [J.kg ⁻¹ .K ⁻¹]
$C_{s,p}$	Concentration surfacique de particule dans Dsc_{inj}	- [m ⁻²]
$C_T, C_{T,x}, C_{T,y}$	Coefficient de traînée, suivant x , suivant y	- [-]
C_u	Coefficient correctif de Stokes-Cunningham	Annexe A [-]
$D_{50\%}$	Diamètre de coupure de l'impacteur	- [m]
D_b	Coefficient de diffusion de Stokes-Einstein	Annexe A [m ² .s ⁻¹]
D_{im}	Dimension du domaine de simulation	3 [-]
D_{max}	Diamètre maximal de sélection du SMPS	- [m]
D_p	Diamètre de particule	- [m]
$d_{p,d}$	Distance entre la goutte et la particule	- [m]
Dsc_{inj}	Disque d'injection	- [-]
$Dsc_{inj_{a+A}}$	Section efficace de collecte	- [m ²]
D_v	Coefficient de diffusion de la vapeur d'eau	Annexe A [m ² .s ⁻¹]
dW_t	Incrément du processus de Wiener	- [s ^{1/2}]
e	Charge élémentaire	1,602x10 ⁻¹⁹ [C]
E_0	Champ électrique moyen dans la zone de charge	1,39x10 ⁶ [V.m ⁻¹]
$EC_{(i)}$	Efficacité de collecte (à la i ^{ème} réalisation)	- [-]
EC_{KJ}	Efficacité de collecte élémentaire de Kraemer et Johnstone (1955)	- [-]
EC_{NH}	Efficacité de collecte élémentaire de Nielsen et Hill (1976)	- [-]
E_{cond}	Champ électrique au niveau du condensateur	- [V.m ⁻¹]
EC_{Wang}	Efficacité de collecte de Wang et al. (1978)	- [-]
E_{ind}	Champ électrique au système d'induction	- [V.m ⁻¹]
$e_{sat,air}$	Pression de vapeur saturante à la température de l'air	- [Pa]
$e_{sat,s}$	Pression de vapeur saturante à la température de la surface de la goutte	- [Pa]
F	Flux massique d'aérosol dans les gouttes sortant du nuage	- [g.m ⁻² .h ⁻¹]
f_A, f_{AP}, f_i	Fonction de distribution en nombre des gouttes, des aérosols humides et des cristaux de glace	- [m ⁻⁴]
F_{df}	Force de diffusiphorèse	- [N]

NOTATIONS

$F_{E_{cond}}$	Force électrique liée au champ E_{cond}	- [N]
F_{el}	Forces électrostatiques	- [N]
$F_{fl,G}, F_{fl,p}$	Force de flottabilité de la goutte et de la particule	Annexe A [N]
F_g	Fréquence de génération des gouttes	- [Hz]
f_h	Flux de ventilation de chaleur	Annexe A [-]
$F_{N,n}$	Fraction en nombre de particules chargées n fois	- [-]
F_T	Force de traînée	- [N]
F_{th}	Force de thermophorèse	- [N]
f_v	Flux de ventilation de vapeur d'eau	Annexe A [-]
g	Accélération de la pesanteur	9,81 [m.s ⁻²]
$GCAP(i)$	Masse d'aérosols secs dans les aérosols humide discrétisée suivant la classe i	- [pg.cm ⁻³]
$GroF$	Facteur de grossissement des particules	- [-]
h_c	Épaisseur du nuage stratiforme	600 [m]
H	Hauteur d'interaction effective entre les gouttes et les particules	- [m]
$H_{In-CASE}$	Hauteur de la chambre de In-CASE	- [m]
HR	Humidité relative	- [-]
I_{elect}	Courant électrique à l'électromètre	- [A]
K	Noyau de collecte ou rapport des charges électriques goutte/particule	- [m ³ .s ⁻¹] ou [-]
k_{air}	Conductivité thermique de l'air sec	Annexe A [m.kg.s ⁻³ .K ⁻¹]
k_b	Constante de Boltzmann	1,38.10 ⁻²³ [m ² .kg.s ⁻² .K ⁻¹]
$K_{bro,Wang}$	Noyau de collecte de Wang et al. (1978) pour la diffusion brownienne	Annexe A [m ³ .s ⁻¹]
k_{ec}	Constante électrostatique	9x10 ⁹ [N.m ² .C ⁻²]
K_n	Nombre de Knudsen	Annexe A [-]
k_p	Conductivité thermique de la particule	0,43 [m.kg.s ⁻³ .K ⁻¹]
K_{Wang}	Noyau de collecte de Wang et al. (1978)	Annexe A [m ³ .s ⁻¹]
$L_{(eau)}$	Chaleur latente (d'évaporation de l'eau)	- [J.kg ⁻¹]
M_{air}	Masse molaire de l'air	28,96 [kg.kmol ⁻¹]
M_{eau}	Masse molaire de l'eau	18,04 [kg.kmol ⁻¹]
$m_{fluo,F}$	Masse de fluorescéine déposée sur le filtre très haute efficacité	- [kg]
$m_{fluo,G}$	Masse de fluorescéine dans les gouttes	- [kg]
$m_{fluo,rencontrée}$	Masse totale de particules de fluorescéine dans le volume balayé par l'ensemble des gouttes	- [kg]
m_g	Masse de la goutte	- [kg]
m_p	Masse de la particule	- [kg]
$m_{théorique}$	Masse théorique dans le volume de contrôle	- [kg]
n	Nombre de charges élémentaires sur l'aérosol	- [-]
$\mathcal{N}(0,1)$	Distribution normale de moyenne nulle et d'écart-type égal à l'unité	- [-]
N_i	Quantité d'ions produits par unité de volume	- [m ⁻³]
$N_{p,col(i)}$	Nombre de particules collectées (à la i ^{ème} réalisation)	- [-]
$N_{p,Dscinja+A}$	Nombre de particules initialement dans $Dscinja+A$	- [-]
$N_{p,rencontrées}$	Nombre de particules rencontrées par la goutte	- [-]
$P(x x_0, t_1)$	Probabilité d'une particule d'être à la position x après un temps t_1 sachant la position initial x_0	- [-]
P_{air}	Pression de l'air	- [Pa]
P_0	Pression standard	101325 [Pa]
$P_{In-CASE,q,D_p}$	Pénétration dans In-CASE des particules de diamètre D_p et de charge q	- [-]
$q, \langle q \rangle$	Charge de l'aérosol, charge moyenne de l'aérosol	- [C] ou [nombre de e]
q'	Charge image de q dans la goutte	- [C] ou [nombre de e]
q''	Charge résiduelle dans la goutte	- [C] ou [nombre de e]

Q	Charge de la goutte	- [C] ou [nombre de e]
q_c, q_i, q_v	Contenu en eau liquide et en glace	- [g.m ⁻³]
$Q_{chambre}$	Débit d'aérosol dans la chambre	- [m ³ .s ⁻¹]
$Q_{chargeur}$	Débit d'aérosol dans le chargeur	- [m ³ .s ⁻¹]
Q_{diab}	Source de chaleur diabatique	- [kg.m ⁻³ .K.s ⁻¹]
Q_{elect}	Débit d'aérosol dans l'électromètre	- [m ³ .s ⁻¹]
q_s	Charge à saturation de l'aérosol	- [C] ou [nombre de e]
$q_{v(e)}, \tilde{q}_v$	Contenu en vapeur dans le cylindre intérieur (extérieur) ou à l'interface	- [g.m ⁻³]
r	Distance particule/goutte	- [m]
r^*	Distance normalisée particule/goutte	- [-]
R	Constante des gaz parfaits	8,314 [J.K ⁻¹ .mol ⁻¹]
r_1, r_2	Rayon du cylindre intérieur, extérieur	- [m]
$Ratio_{M,n}$	Rapport en masse des particules chargées n fois	- [-]
R_c	Repère cartésien	(X,Y,Z) [-] ou [m]
R_{Dscinj}	Rayon de disque d'injection	- [m]
Re, Re_x, Re_y	Nombre de Reynolds, suivant x , suivant y	- [-]
R_p	Repère polaire	(r, θ) [-]
R_v	Constante spécifique de la vapeur d'eau	461,5 [J.K ⁻¹ .kg ⁻¹]
Stk	Nombre de Stokes	- [-]
$S_{v,eau}$	Sursaturation de l'air par rapport à l'eau liquide	- [-]
$t_{(0)}$	Temps (instant initial)	- [s]
T_0	Température standard	273,15 [K]
t_1	Temps écoulé entre le disque d'injection et la goutte	- [s]
T_{air}	Température de l'air	- [K]
$TANP(i)$	Distribution en taille de gouttes discrétisée suivant la classe i	- [cm ⁻³]
t_c	Période des oscillations des vents du nuage stratiforme	1800 [s]
$TMAP(i)$	Masse d'aérosols secs dans les gouttes discrétisée suivant la classe i	- [pg.cm ⁻³]
$TMIC(i)$	Masse d'aérosols secs dans les cristaux de glace discrétisée suivant la classe i	- [pg.cm ⁻³]
$TNIC(i)$	Distribution en taille de cristaux de glace discrétisée suivant la classe i	- [cm ⁻³]
$T_{(s),g}$	Température (à la surface) de la goutte	- [K]
\tilde{u}	Vitesse radiale à l'interface entre les deux cylindres	- [m.s ⁻¹]
u_{indice}	Incertitude relative liée à l'indice indiqué	- [-]
$U_{(\infty)A}$	Vitesse (terminale) de la goutte	- [m.s ⁻¹]
$U_{(\infty)a}$	Vitesse (de sédimentation) de la particule	Annexe A [m.s ⁻¹]
U_{flux}	Vitesse du flux d'aérosol dans la chambre	- [m.s ⁻¹]
$U_{f@p}$	Vitesse de l'écoulement de l'air à X_p	- [m.s ⁻¹]
$U_{f@p}^*$	Vitesse résultante des forces ressentie par la particule	- [m.s ⁻¹]
$U_{G(0)}$	Vitesse instantanée de la goutte en G (ou G_0)	- [m.s ⁻¹]
U_p	Vecteur vitesse des particules	- [m.s ⁻¹]
\vec{u}_r	Vecteur unitaire en provenance du centre de la goutte vers la particule	- [-]
V_{cond}	Potentiel au condensateur	- [V]
V_{eff}	Volume effectif d'interaction entre la goutte et les particules	- [m ³]
V_{fil}	Potentiel au fil de tungstène	- [V]
V_{ind}	Potentiel à la plaque d'induction	- [V]
$w_{(e)}, \tilde{w}$	Vitesse verticale dans le cylindre intérieur (extérieur) ou à l'interface	- [m.s ⁻¹]
W_t	Processus de Wiener	- [s ^{1/2}]
x, x_0	Position de la particule, position initiale	- [m]
X_{4000}	Vecteur position des 4000 particules suivant la 1 ^{ère} composante	- [m]

NOTATIONS

x_{bro}	Déplacement de la particule relativement à la diffusion brownienne après t_1	- [m]
$X_{d,i}$	Position de la goutte à la $i^{\text{ème}}$ coordonnée de l'espace	- [m]
x_{G_0}	Position en abscisse de G_0	- [m]
$\sqrt{\langle x^2(t) \rangle}_{Einstein}$	Déplacement quadratique moyen d'Einstein	- [m]
x_{max}	Distance normalisée maximale de l'axe Z menant à la collecte	- [-]
$\sqrt{\langle x^2(t) \rangle}_{Simu}$	Déplacement quadratique moyen de simulation	- [m]
\vec{X}_p	Vecteur position des particules	- [m]
$X_{p,i}$	Position de la particule à la $i^{\text{ème}}$ coordonnée de l'espace	- [m]
Y_{4000}	Vecteur position des 4000 particules suivant la 2 ^{ème} composante	- [m]
y_{G_0}	Position en ordonnées de G_0	- [m]
Z, Z_{i-}, Z_{i+}	Mobilité électrique de l'aérosol, des ions négatifs, des ions positifs	- [m ² .s ⁻¹ .V ⁻¹]
Z_{4000}	Vecteur position des 4000 particules suivant la 3 ^{ème} composante	- [m]
z_c	Altitude du centre du nuage stratiforme	990 [m]
Symbole Grec	Signification	Unité
α	Coefficient lié à la turbulence	- [-]
α_i	Variable aléatoire tirée d'une loi normale $\mathcal{N}(0,1)$	- [-]
Δt	Pas de temps	- [s]
ΔV	Différence de potentiel cylindre-fil	- [V]
ϵ_0	Permittivité du vide	8,85x10 ⁻¹² [m ³ .kg ⁻¹ .s ⁴ .A ²]
ϵ	Constante diélectrique prise égale à NaCl	6,12 [-]
η_{air}	Viscosité dynamique de l'air	Annexe A [kg.m ⁻¹ .s ⁻¹]
$\theta, \theta_{(e)}$	Angle entre la particule et l'axe Z ou température potentielle dans le cylindre intérieur (extérieur)	- [-] ou [K]
$\bar{\theta}$	Température potentielle à l'interface entre les deux cylindres	- [K]
$\theta_{v(e)}$	Température potentielle virtuelle dans le cylindre intérieur (extérieur)	- [K]
λ	Variable aléatoire tirée d'une loi de probabilité uniforme	- [-]
λ_{air}	Libre parcours moyen des molécules dans l'air	Annexe A [-]
λ_i	Variable aléatoire tirée d'une loi normale $\mathcal{N}(0,1)$	- [-]
$\vec{\xi}_v, \vec{\xi}_x$	Vecteurs de variables indépendantes issues d'une distribution normale $\mathcal{N}(0,1)$	- [-]
ρ, ρ_{air}	Masse volumique de l'air	Annexe A [kg.m ⁻³]
ρ_{eau}	Masse volumique de l'eau	1000 [kg.m ⁻³]
$\rho_{fluorescéine}$	Masse volumique de la fluorescéine	1580 [kg.m ⁻³]
ρ_p	Masse volumique de la particule	- [kg.m ⁻³]
$\rho_{v,air}$	Masse volumique de vapeur dans l'air	- [kg.m ⁻³]
$\rho_{v,s}$	Masse volumique de vapeur dans l'air à la surface de la goutte	- [kg.m ⁻³]
$\sigma_{(g)}$	Tension de surface ou écart-type (géométrique)	- [N.m ⁻¹] ou [-]
τ	Temps de séjour dans l'espace inter-électrode	- [s]
τ_c	Temps de corrélation	- [s]
τ_p	Temps de relaxation de la particule	Annexe A [s]
τ_v	Temps d'amortissement d'une particule liée à diffusion brownienne	≈10 ⁻⁸ [s]
χ_{col}	Taux de capture	- [s ⁻¹]

INTRODUCTION

Chaque année, ce sont plusieurs milliards de tonnes de particules qui sont mises en suspension dans l'atmosphère, dont les principales sources naturelles proviennent des océans, des sols, de la conversion gaz-particules, et dans une certaine mesure, de l'évaporation des nuages (Hobbs, 1993). Depuis le milieu du 20^{ème} siècle, la vie de ces particules dans l'atmosphère est devenue un sujet d'étude majeur dans de nombreux domaines et en particulier, en sciences de l'atmosphère.

Les particules atmosphériques sont connues pour être un acteur déterminant du climat. Elles interagissent de façon directe avec les rayonnements et empêchent la lumière solaire d'atteindre la surface terrestre. Elles interfèrent également de façon indirecte en favorisant la formation de nuages plus réfléchissants et de temps de vie plus longs, ce qui contribue également à faire diminuer l'irradiance solaire à la surface terrestre. Ainsi, les particules d'aérosols ont un impact sur l'équilibre énergétique de notre planète qui tend à refroidir le climat (Twomey, 1974). Une mise en évidence de cet effet se manifeste par exemple dans l'étude des calottes de glace. En effet, de grands épisodes de refroidissement brutal de l'atmosphère, comme le "Petit Âge Glaciaire" s'étalant entre le 13^{ème} et le 19^{ème} siècle, ont été corrélés à des concentrations élevées en particules, vraisemblablement dans la stratosphère, dont la cause pour cet événement est une activité volcanique intense (Miller et al., 2012). Une manifestation encore plus connue, l'extinction des dinosaures entre les ères géologiques du Crétacé et du Tertiaire, qui s'expliquerait selon deux principales hypothèses que sont un impact météoritique ou un volcanisme exceptionnel. Ces deux événements auraient mis en suspension des grandes quantités de particules, plongeant la Terre dans une longue nuit glaciale (Officer et al., 1987).

Par ailleurs, de par son activité, l'Homme est aussi une source d'émission de particules dans l'atmosphère. Ces particules anthropiques sont abondantes à proximité des grandes mégapoles et, suivant les courants atmosphériques, se retrouvent jusque dans les endroits les plus reculés de la Terre comme l'Antarctique (Rosman et al., 1994). Cette pollution généralisée participe aujourd'hui, au même titre que les particules d'origines naturelles, à faire évoluer le système climatique terrestre.

Sur un autre volet, cet aérosol d'origine humaine soulève des problèmes d'ordre sanitaire. Le caractère délétère de l'aérosol anthropique a été scientifiquement prouvé pour la première fois en décembre 1930 avec l'épisode de la Vallée de la Meuse où 65 personnes perdirent la vie lorsqu'un nuage de pollution s'abattit dans la région. Les causes identifiées par Firket (1931) étaient inhérentes à une inversion de température et un chauffage excessif au charbon. En décembre 1952, le même phénomène se produisit à Londres, référencé aujourd'hui comme le « Grand smog de Londres », causant la mort de plus de 3000 personnes d'après des travaux de l'époque (Wilkins, 1954), chiffre rehaussé récemment à 12 000 (Bell et al., 2004). De nos jours, la problématique de l'aérosol anthropique et ses conséquences sanitaires s'accroît au travers des particules fines, principalement émises par les transports. Plusieurs travaux ont montré que leur taille était propice à une pénétration en profondeur dans le système pulmonaire, engendrant diverses pathologies cardio-respiratoires (Anderson et al., 2012 ; Limbach, 2007 ; Crouse et al., 2012).

En somme, la connaissance du comportement de l'aérosol atmosphérique est un élément clef de la météorologie, de la climatologie, mais aussi de la santé publique. Parmi les composantes de l'aérosol anthropique, les aérosols radioactifs émis dans l'atmosphère sont aussi au cœur des préoccupations sociétales. On peut citer plusieurs événements médiatisés ayant amené à une émission importante de particules radioactives dans l'atmosphère et l'environnement. L'accident du Centre Nucléaire de Production d'Électricité de Tchernobyl (CNPE-T) du 26 avril 1986 est un exemple, au même titre que les 543 essais nucléaires atmosphériques officiellement recensés entre 1945 et 1980, pour la plupart dans les océans Pacifique (USA et France), Arctique (URSS), Indien (Royaume-Uni) et sur terre, dans la région chinoise du Lop Nor (Chine), en Algérie (France) et dans le Nevada (USA). Ces rejets atmosphériques n'ont pas été qu'une source locale de contamination, une fraction des radionucléides émis furent également transportés par les courants atmosphériques et marins sur des échelles continentales. En France, des « zones de rémanence de la radioactivité artificielle » gardent des traces de ces événements, principalement dans les régions montagneuses (Massif-Central, Pyrénées, Jura, Vosges, Alpes du Sud, Est de la Corse). Dans ces zones, les écosystèmes (poissons, plantes aquatiques, gibier, etc.) et les produits d'élevage (lait, fromages, etc.) analysés enregistrent des taux de radioactivité - principalement en

Césium-137 - supérieurs à ceux du reste du territoire¹ et ce, jusqu'à l'étape de consommation des produits². Bien qu'aucune augmentation des pathologies liées aux retombées n'ait été mise en évidence sur la population française, en Ukraine, il a été scientifiquement prouvé que l'Iode-131 - émis en quantité importante sous forme gazeuse et particulaire à la suite de l'accident du CNPE-T - était lié à une augmentation importante des cancers de la thyroïde sur les enfants de moins de 5 ans, en date de l'année 1986 (Tronko et al., 1999). Aujourd'hui, les inquiétudes face aux conséquences de l'émission d'aérosols radioactifs demeurent, et le récent accident du Centre Nucléaire de Production d'électricité de Fukushima Daiichi (CNPE-FD) en 2011 ou encore, de l'explosion d'un réacteur nucléaire militaire de la zone subarctique russe le 8 août 2019 n'ont fait qu'exacerber cette problématique.

Il est important de comprendre la dissémination d'un aérosol issu d'une source particulière et son dépôt afin de prévenir au mieux les conséquences sanitaires. Notamment, la connaissance du rabattement des particules d'aérosol par les nuages et les précipitations (pluie, neige, grêlons, etc.) - référencé comme « dépôt humide » - est essentiel, dès lors qu'il constitue le mécanisme principal régissant le devenir des particules à longue distance (Jaenicke, 1984).

En ce sens, l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN) développe depuis plusieurs années des modèles de crise pour prédire le devenir de l'aérosol radioactif à la suite d'un rejet accidentel dans l'atmosphère et son rabattement au sol qui constituent une menace sanitaire. Pour fonctionner, de tels modèles sont tributaires des observations comme de l'intensité pluviométrique, du terme source de radioactivité et du profil des vents (Mathieu et al., 2012). Ils possèdent donc des résolutions spatiales et temporelles très grandes (de l'ordre du kilomètre et de l'heure respectivement) qui dépendent des modèles météorologiques utilisés (Météo-France, Météo-Japon, etc.). En cas de crise, ces modèles se doivent d'être rapides afin de prédire à grande échelle et à chaque instant, les zones à risques. Les modèles de crise développés par l'IRSN sont des modèles paramétrés où les mécanismes microphysiques agissant sur les particules sont décrits avec des coefficients méso-échelles. Dans ces modèles, l'IRSN décrit le dépôt humide à travers un taux de rabattement qui rend compte de la fraction de particules captées par les gouttes à chaque seconde. Ce taux est linéairement dépendant de l'intensité pluviométrique. Une telle description possède l'avantage d'être rapide mais intègre en une seule variable météorologique l'ensemble des mécanismes microphysiques qui interviennent dans la capture des particules radioactives dans le nuage et sous le nuage. Les mécanismes microphysiques impliqués dans la capture d'une particule par une goutte de nuage micrométrique sont pourtant fondamentalement différents de ceux induisant la capture par une goutte millimétrique de pluie. C'est vraisemblablement une des raisons pour laquelle les cartes de prévention éditées par l'IRSN suivant les accidents du CNPE-T (Renaud et Gurriaran, 2009) et du CNPE-FD (Mathieu et al., 2012) mettent en évidence une mauvaise appréciation - aussi bien une sous-évaluation qu'une surévaluation - des dépôts de parfois plusieurs ordres de grandeurs.

Cette thèse s'inscrit dans une thématique de recherche de l'IRSN visant à améliorer la connaissance du dépôt humide pour, à terme, disposer de modèle de crise plus représentatif de l'environnement. Deux approches sont considérées. Une approche environnementale où l'IRSN étudie le dépôt humide à travers des mesures *in situ* directement dans l'environnement - par exemple, les thèses de Depuydt (2013) et Tav (2017) qui se sont respectivement intéressés au dépôt par la pluie et le brouillard. Une deuxième approche consiste à examiner en laboratoire, en environnement contrôlé, la phénoménologie du dépôt humide, c'est-à-dire, à étudier dans une approche microphysique le dépôt humide. Les travaux de Quérel (2012) ont été conduits dans cette approche afin d'étudier les mécanismes microphysiques impliqués dans le rabattement des particules par les nuages. Par la suite, les mesures effectuées dans son travail de thèse ont été intégrées dans un modèle de nuage afin d'obtenir une meilleure représentation du dépôt humide. Le modèle DESCAM (Detailed SCAttering Model, (Flossmann, 1985)), développé depuis les années 90 par Andrea Flossmann et ses collaborateurs, a été choisi dans son étude numérique, car il possède le fort avantage d'être un modèle à microphysique détaillée. Ce type de modèle possède une description complète des mécanismes microphysiques agissant dans le nuage et sous le nuage où les spectres d'aérosols, de gouttes et de cristaux de glace ne possèdent pas de forme prescrite (dans les modèles paramétrés de l'IRSN, la distribution de l'aérosol radioactif est considérée comme monodispersée). Le modèle DESCAM ne peut être utilisé en cas de crise par l'IRSN pour des raisons évidentes de temps de calcul et de résolutions spatiales - de l'ordre de 100 m - et temporelles - de

¹https://www.irsn.fr/FR/expertise/rapports_expertise/surveillance-environnement/Documents/IRSN_Constat-Remanence-France_201604.pdf

² Ces taux sont surveillés par la Direction Générale de la Concurrence, de la Consommation et de la Répression des Fraudes, et restent néanmoins inférieurs aux limites maximales autorisées par l'État français.

l'ordre de la seconde. Néanmoins, un modèle à microphysique détaillée comme DESCAM peut être utilisé pour obtenir des taux de rabattement plus représentatifs de l'environnement dont les modèles de crise paramétrés de l'IRSN peuvent bénéficier. En effet, DESCAM peut être utilisé pour obtenir des taux de rabattement à méso-échelle, sur la base d'une microphysique détaillée.

Dans cette continuité, les travaux présentés dans ce manuscrit visent à améliorer la compréhension du dépôt humide. Contrairement aux travaux de Quérel (2012) qui a étudié la pluie, ici, le rabattement lié à la capture au sein du nuage est examiné dès lors qu'il est en moyenne le mécanisme moteur du dépôt humide. En effet, Flossmann (1998) évalue numériquement avec DESCAM que pour une goutte qui touche le sol, environ 70 % de la masse de particules qu'elle contient provient du nuage. Ce résultat est en accord avec les mesures dans l'environnement de Laguionie et al. (2014) qui estiment le nuage responsable à 60 % dans le rabattement total des particules.

L'objectif de cette thèse est donc de fournir une deuxième représentation du taux de rabattement des aérosols, décrivant la capture au sein du nuage, dont pourra disposer l'IRSN dans ses modèles de crise. De plus, les aérosols radioactifs sont connus pour être fortement chargés (Clement et Harrison, 1992). De même, plusieurs mesures dans l'environnement ont mis en exergue des charges électriques importantes sur les gouttes de nuage (Takahashi, 1973). En ce sens, le rabattement dans le nuage peut être influencé par les forces électrostatiques comme Chate et Pranesha (2004) ont pu le mettre numériquement en évidence sous le nuage. Cet effet microphysique, non pris en compte dans les modèles paramétrés de l'IRSN, pourrait en partie expliquer la mauvaise estimation des dépôts. Toutefois, cette hypothèse n'a jamais été étudiée et constitue une interrogation importante.

Aussi, deux axes de recherche majeurs ont piloté ce travail :

- L'obtention d'une paramétrisation du taux de rabattement des aérosols radioactifs par les nuages qui manque actuellement dans les modèles paramétrés de l'IRSN ;
- L'étude de l'impact des charges électriques des aérosols radioactifs et des gouttes sur le rabattement au sein du nuage.

Ce manuscrit est organisé autour de quatre chapitres, clôturés chacun par un résumé.

Le premier chapitre fournit les outils nécessaires pour appréhender la capture des aérosols radioactifs par les nuages - les ordres de grandeur sont renseignés ; les mécanismes microphysiques mis en jeu détaillés ; l'efficacité de collecte qui détermine la capture des particules par les gouttes est définie ; un point est fait également sur les modèles et mesures actuels d'efficacité de collecte. Dans le deuxième chapitre, le modèle lagrangien 3D développé durant la thèse est explicité. Il permet de déterminer des efficacités de collecte théoriques en tenant compte de l'ensemble des mécanismes impliqués dans la capture d'aérosol par une goutte - notamment les forces électrostatiques. Des efficacités de collecte sont calculées tenant compte des charges et tailles représentatives des gouttes de nuage et des aérosols atmosphériques, radioactifs ou non.

Dans le troisième chapitre l'expérience In-CASE entièrement conçue durant ce travail est décrite. Elle permet d'évaluer l'efficacité de collecte en contrôlant rigoureusement l'ensemble des paramètres d'influence comme les charges électriques des gouttes et des aérosols. Les mesures d'efficacité effectuées y sont présentées et comparées au modèle décrit au chapitre 2.

Dans le quatrième et dernier chapitre, les nouvelles efficacités de collecte théoriques sont implémentées dans le modèle de nuage DESCAM (Flossmann et al., 1985). Deux cadres de modélisation sont considérés - le cas réel d'un nuage convectif observé lors de CCOPE (Dye et al., 1986) et le cas idéal d'un nuage stratiforme sur la base des travaux de Zhang et al. (2004). A terme, l'impact des forces électrostatiques sur la capture au sein du nuage est mis en exergue pour ces deux types de nuage.

Une conclusion générale regroupera les principaux résultats ainsi que les perspectives envisagées suite à ce travail de recherche.

CHAPITRE 1

AÉROSOL ATMOSPHERIQUE, RADIONUCLÉIDE ET NUAGE

Le but de ce chapitre est de fournir les clés nécessaires à la compréhension de la collecte des aérosols par les gouttes de nuage - les ordres de grandeur, la phénoménologie, les modèles et expériences disponibles.

1.1 CARACTÉRISATION DE L'AÉROSOL

On désigne par « aérosol », un ensemble de particules liquides, solides ou les deux, en suspension dans un milieu gazeux, présentant une vitesse limite de chute négligeable qui permet de les observer ou de les mesurer. En toute rigueur, un aérosol est le système diphasique composé des particules et du gaz porteur, mais dans la pratique, ce terme s'applique aux seules particules en suspension. En moyenne, la concentration atmosphérique en particules d'aérosol avoisine quelques milliers de particules par centimètre cube au niveau du sol (Jaenicke, 1993). En réalité, la concentration et la nature de ces particules dépendent étroitement de la région du globe où on les observe et des conditions atmosphériques. Cependant, il est possible de dégager des tendances.

1.1.1 GRANULOMÉTRIE DE L'AÉROSOL

1.1.1.1 AÉROSOL ATMOSPHERIQUE

Bien que les origines - naturelles ou anthropiques - de l'aérosol atmosphérique soient multiples, sa distribution granulométrique est essentiellement fonction de son temps de séjour dans l'atmosphère. Tandis que les particules nanométriques diffusent et s'agglomèrent (Renoux et Boulaud, 1998), les particules de plusieurs micromètres vont, quant à elles, sédimenter (Madelaine, 1982). Leur temps de séjour est alors très faible, allant de quelques minutes à quelques heures au maximum (Jaenicke, 1984). En revanche, les particules de rayons intermédiaires (entre 40 nm et 1 µm), caractéristiques du mode accumulation de l'aérosol atmosphérique (Whitby, 1973), possèdent une durée de vie beaucoup plus longue dans la troposphère, s'échelonnant de plusieurs semaines à plusieurs mois (Jaenicke, 1984). De telles particules sont alors transportées à une échelle continentale et leur déposition est essentiellement due au « dépôt humide », c'est-à-dire, leur capture par les nuages et les précipitations (Jaenicke, 1984).

1.1.1.2 RADIONUCLÉIDES ÉMIS À LA SUITE DE REJETS ACCIDENTELS DANS L'ATMOSPHERE

Le comportement des radionucléides anthropiques émis lors de rejets accidentels est le même que l'aérosol atmosphérique. Cela a été notamment mis en évidence par les mesures faites suite aux accidents des Centres Nucléaires de Production d'Electricité de Tchernobyl (CNPE-T) et de Fukushima Daiichi (CNPE-FD), respectivement en 1986 et 2011.

1.1.1.2.1 ACCIDENT DU CNPE-T (1986)

La caractérisation granulométrique des radionucléides émis sous forme particulaire à la suite de l'accident du CNPE-T (1986) a fait l'objet de plusieurs campagnes de mesures (Dorrian, 1997 ; Baklanov et Sørensen, 2001) dont une partie est présentée dans le Tableau 1-1. On remarque que la distribution granulométrique des radionucléides (diamètre médian en activité) est très variable suivant les radionucléides, impliquant des mécanismes de dépôt différents. Les isotopes lourds comme le Plutonium 238 et 239 ont rapidement sédimenté - mécanisme de « dépôt sec » - et sont restés confinés dans un rayon de 100 km du réacteur (Pöllänen et al., 1997). Par contre, d'autres études ont montré que les radionucléides plus légers se rattachaient au mode accumulation de l'aérosol atmosphérique et étaient transportés à une échelle continentale (Devell, et al., 1986 ; Jost et al., 1986 ; Pöllänen et al., 1997). Dès lors, le dépôt de ces radionucléides est majoritairement du dépôt humide. C'est principalement le cas des isotopes 134 et 137 du Césium émis sous forme particulaire, illustré par leur distribution en activité mesurée à Aachen (Allemagne) après l'accident - présentée sur la Figure 1-1. En effet, situé à 2000 km du CNPE-T, le pic d'activité net dans le mode accumulation prouve que les isotopes du Césium se sont fixés à l'aérosol atmosphérique et ont adopté sa distribution granulométrique. L'Iode 131, bien que très volatil, s'attache en partie à l'aérosol atmosphérique (Garland, 1967).

Tableau 1-1 Quelques caractéristiques des radionucléides émis lors de l'accident du CNPE-T (Baklanov et Sørensen, 2001).

Radionucléide		Demi-vie	Diamètre médian en activité (μm)	Ecart-type géométrique
Césium-137	Cs-137	30 ans	0,68	1,8 - 2,5
Césium-134	Cs-134	2 ans	0,59	2 - 2,5
Iode-131	I-131	8 jours	Gaz et 0,48	3 - 4
Tellure-132	Te-132	3 jours	0,81	1,5 - 2,5
Iode-133	I-133	21 heures	Gaz et 0,6	/
Baryum-140	Ba-140	13 jours	0,45	/
Strontium-90	Sr-90	29 ans	2,5	2 - 2,5
Ruthénium-103	Ru-103	370 jours	0,65	1,4 - 2,5
Plutonium-238	Pu-238	86 ans	4,3	2
Plutonium-239	Pu-239	24 000 ans	4,3	2,1
Strontium-89	Sr-89	51 jours	2,5	/

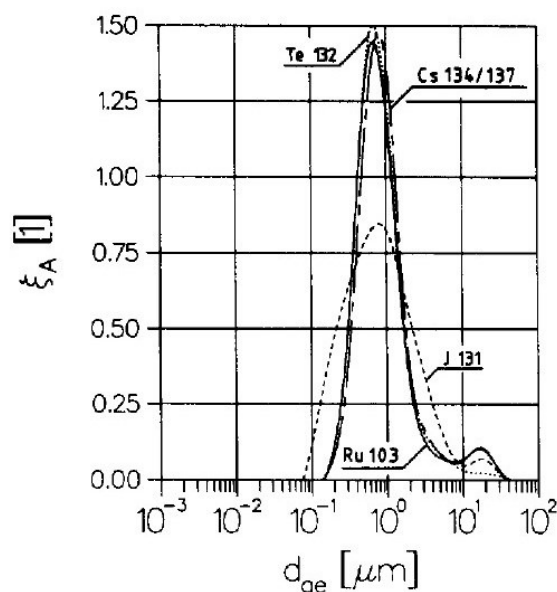


Figure 1-1 Distribution de l'activité normalisée de l'aérosol suivant son diamètre aérodynamique à Aachen (Allemagne) après l'accident du CNPE-T. Graphique tiré de Sparmacher et al. (1993), issus des mesures de Bonka et al. (1986 ; 1987).

1.1.1.2.2 ACCIDENT DU CNPE-FD (2011)

À la suite de l'accident du CNPE-FD (2011), le Xénon-133 fut le principal contributeur de la radioactivité (Masson et al., 2011). Pour autant, de par sa nature chimique (gaz rare) et sa courte demi-vie (5,2 jours), ce radioélément a été détecté sur un périmètre très restreint du lieu de l'accident. A terme, ce radionucléide ne fut pas le plus dosant pour les écosystèmes. Ce sont l'Iode-131 - chimiquement très réactif et se fixant sur la thyroïde - et le Césium-137 - directement émis sous forme particulaire et d'une demi-vie de 30 ans - qui impliquent les conséquences sanitaires les plus importantes. Plusieurs campagnes de mesures ont été faites dans les semaines qui suivirent l'accident du CNPE-FD, notamment les mesures d'Adachi et al. (2013) lors des premiers rejets et les mesures de Kaneyasu et al. (2012) plusieurs semaines après. Leurs travaux montrent que les isotopes du Césium

ont été rejetés en quantité importante dans l'atmosphère et se sont fixés à l'aérosol atmosphérique dans les premières phases de l'accident (Adachi et al., 2013). Plusieurs semaines après l'accident, ces radionucléides se sont entièrement incorporés à l'aérosol atmosphérique (Kaneyasu et al., 2012).

1.1.1.2.2.1. Mesures lors des premiers rejets de l'accident du CNPE-FD (2011) :

Adachi et al. (2013) ont réalisé des prélèvements 3 jours après l'accident (durant 2 jours) du CNPE-FD à une distance de 150 km de l'accident. Les prélèvements ont mis en évidence la présence des isotopes de Césium 134 et 137 attachés à des particules sphériques hydrophobes composées de métaux. Les auteurs indiquent un rayon moyen de particule de $1,3 \mu\text{m}$, une activité par particule de $1,4 \text{ Bq}$ pour une concentration de 10 particules par mètre cube. Soit, un aérosol très peu concentré mais très radioactif, pouvant être transporté à longue distance dès lors que sa granulométrie est celle du mode accumulation (limite haute).

1.1.1.2.2.2. Mesures tardives de l'accident du CNPE-FD (2011) :

Les deux campagnes de prélèvements de Kaneyasu et al. (2012) ont été réalisées dans la même ville que les mesures de Adachi et al. (2013), du 28 avril au 12 Mai et du 12 ou 26 mai 2011, soit minimum 47 jours après l'accident du CNPE-FD. A cette date, Kaneyasu et al. (2012) montrent que les isotopes du Césium sont entièrement incorporés à des particules de sulfate caractéristiques de l'aérosol atmosphérique. Les auteurs présentent des distributions granulométriques en activité et en masse, évaluant un rayon médian en activité entre $0,27$ et $0,34 \mu\text{m}$. Grâce à leurs mesures, on peut estimer une concentration en aérosol de sulfate radioactif à environ $1,1 \times 10^7$ particules par mètre cube pour une activité moyenne par particule de $7,89 \times 10^{-10} \text{ Bq}$. Soit, un aérosol très concentré avec une faible activité par particule qui, là-aussi, est susceptible d'être transporté à une échelle continentale.

1.1.2 CHARGE ÉLECTRIQUE DE L'AÉROSOL

1.1.2.1 AÉROSOL ATMOSPHERIQUE

De nombreux mécanismes peuvent amener l'aérosol atmosphérique à porter des charges électriques, comme par exemple, les aérosols générés via la friction des sols (Hinds, 2012) ou par le spray océanique (Reiter, 1994). Mais ces mécanismes sont de second ordre devant la fixation des ions, dont la provenance vient majoritairement du rayonnement cosmique que subit la Terre (Bricard, 1977) et, en minorité, de la radioactivité naturelle des sols. La distribution de charge de l'aérosol atmosphérique est la plus souvent décrite par une distribution de Boltzmann - présentée sur la Figure 1-2. La déposition des ions étant surfacique, plus un aérosol sera gros et plus il sera potentiellement chargé. Un aérosol de rayon $1,3 \mu\text{m}$ peut porter jusqu'à 10 charges élémentaires.

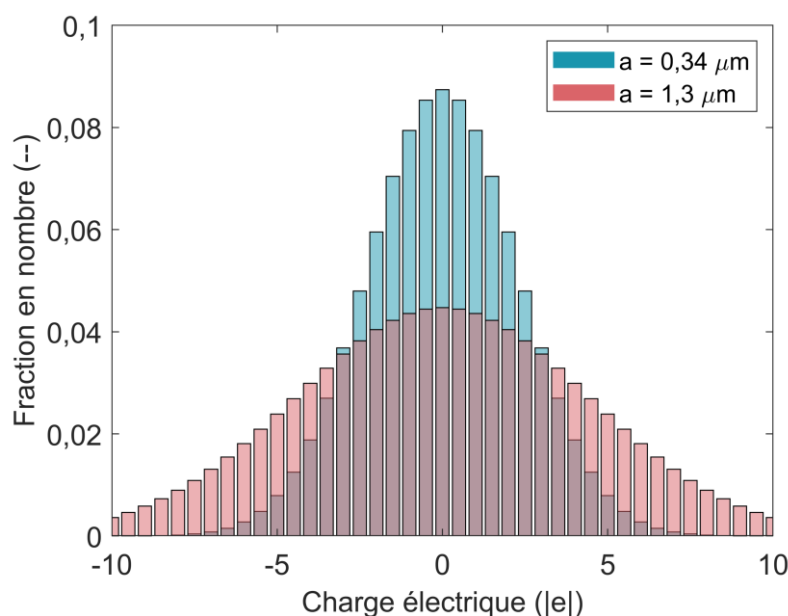


Figure 1-2 Distribution de Boltzmann pour des rayons d'aérosol de $0,34$ et $1,3 \mu\text{m}$.

1.1.2.2 AÉROSOL RADIOACTIF

1.1.2.2.1 PRINCIPE DE CHARGE D'UN AÉROSOL RADIOACTIF

Lors d'une désintégration, l'aérosol va se charger du fait de l'émission d'une particule (processus d'auto-chargement). La charge résiduelle sur l'aérosol est alors de -2 charges élémentaires ou +1 charge élémentaire, selon que le radionucléide est un émetteur alpha (un noyau d'Hélium émis) ou, comme pour les isotopes du Césium, bêta (un électron émis). En plus de cette charge résiduelle, la particule émise depuis le noyau radioactif arrache des électrons en traversant le cortège électronique. Cette ionisation interne additive de l'aérosol est quasi nulle pour un émetteur bêta. En revanche, pour un émetteur alpha, le noyau d'Hélium beaucoup plus massif qu'un électron arrache en moyenne 12 électrons secondaires (Ehrenhaft, 1925 ; Ivanov et al., 1969 ; Yeh et al., 1978).

Une fois émise, la particule va ioniser les molécules du milieu environnant et créer des ions bipolaires. Ces ions vont alors diffuser dans le milieu. Une fraction va se recombiner deux-à-deux, une autre partie de ces ions va se redéposer sur l'aérosol radioactif mais différemment suivant leur polarité. En effet, de nombreux auteurs ont mis en évidence une dissymétrie des mobilités électriques entre les ions négatifs et positifs (Loeb, 1960 ; Ungethüm, 1974 ; Cabane et al., 1976) qui, à terme, engendre des charges importantes sur l'aérosol radioactif.

L'évolution dynamique de la charge électrique d'un aérosol radioactif est donc le bilan de processus d'auto-chargement et de neutralisation, illustré sur la Figure 1-3. Clement et Harrison (1992) détaillent le principe de chargement d'un aérosol radioactif et proposent une série d'équations pour évaluer sa charge qui est fonction de plusieurs paramètres comme l'activité des particules, leur taille, leur concentration et les mobilités électriques des ions bipolaires. Leur modèle a fait l'objet de plusieurs validations expérimentales (Gunn et Woessner, 1956 ; Yeh et al., 1976 ; Yeh et al., 1978 ; Gensdarmes et al., 2001).

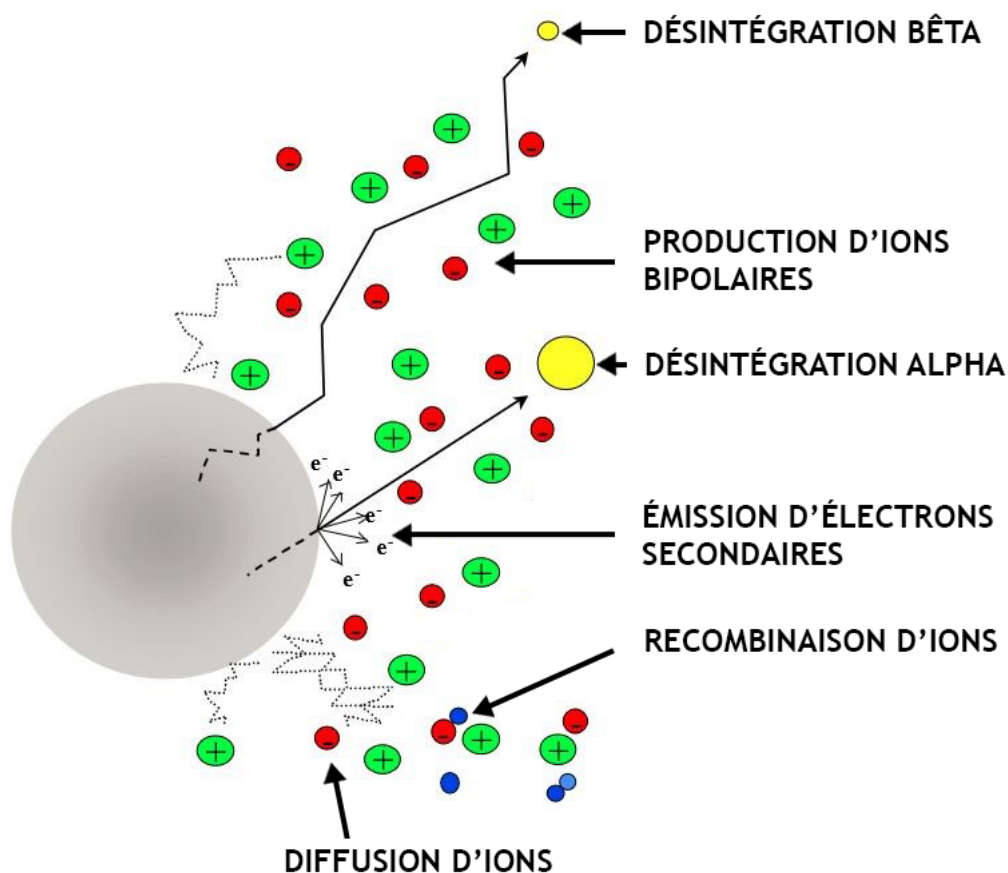


Figure 1-3 Chargement de l'aérosol radioactif - adapté de Gensdarmes et al. (2001).

1.1.2.2.2 ÉVALUATION DE LA CHARGE ELECTRIQUE DES RADIONUCLÉIDES EMIS A LA SUITE DE L'ACCIDENT DU CNPE-FD (2011)

On s'intéresse ici à évaluer la charge de l'aérosol radioactif caractérisé par Adachi et al. (2013) et par Kaneyasu et al. (2012), respectivement dans les premiers rejets et 47 jours après l'accident du CNPE-FD (2011). Pour ce faire, le modèle de Clément et Harrison (1992 ; 2000) est utilisé en considérant des mobilités électriques des ions positifs et négatifs de $1,14 \times 10^{-4}$ et $1,25 \times 10^{-4} \text{ m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, respectivement (Mohnen, 1976). De plus, la distribution de charge est établie suivant l'approximation de Clément et al. (1995) qui considèrent une allure gaussienne. La Figure 1-4, présente les distributions de charge des particules, représentatives des deux moments après l'accident.

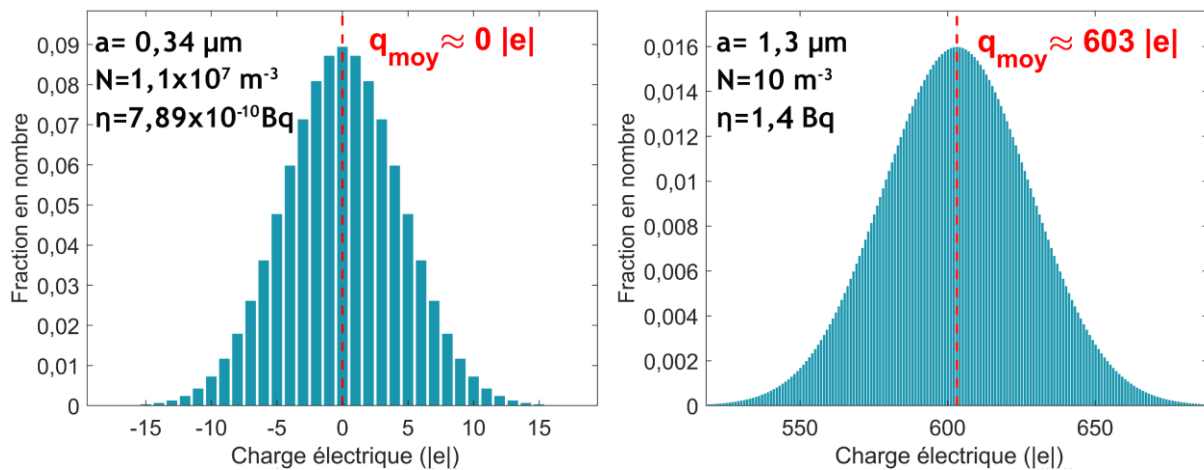


Figure 1-4 Distributions de charge de l'aérosol radioactif évaluées suivant le modèle de Clément et Harrison (1992 ; 2000) dans les premiers rejets (**Droite**) et plusieurs semaines après (**Gauche**) l'accident du CNPE-FD (2011), suivant les mesures respectives d'Adachi et al. (2013) et de Kaneyasu et al. (2012).

La faible activité par particule et la forte concentration induisent une charge moyenne nulle, pour l'aérosol radioactif mesuré par Kaneyasu et al. (2012) plusieurs semaines après l'accident. Pour autant, une fraction de cet aérosol porte jusqu'à une dizaine de charges élémentaires. L'aérosol radioactif caractérisé par Adachi et al. (2013) est, quant à lui, un cas particulier des travaux de Clément et Harrison (1992) d'un aérosol radioactif en milieu non confiné (Clément et Harrison, 1995 ; Clément et Harrison, 2000). Avec des concentrations aussi faibles et un tel niveau d'activité, la charge moyenne de l'aérosol radioactif est estimée à 600 charges élémentaires. À noter que la charge de cet aérosol est positive, variant entre 520 et 680 charges élémentaires.

Les modèles de crise développés par l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN) servent à prédire la propagation du panache radioactif. Ils sont particulièrement utiles dans la phase dite « accidentelle », c'est-à-dire, dans les premiers instants de l'accident, pendant lesquels il est très délicat d'intervenir pour mesurer directement la contamination des sols. Et c'est précisément dans ces premiers instants que l'aérosol va être très fortement chargé.

Ainsi, les forces électrostatiques peuvent jouer un rôle important dans la capture des aérosols radioactifs par les nuages. D'autant plus que les gouttes sont, elles-aussi, chargées - comme nous allons le voir dans la prochaine section.

1.2 CARACTERISATION DES GOUTTES DE NUAGE

Un nuage est un amas de gouttes d'eau ou de cristaux de glace en suspension dans l'atmosphère (Malardel, 2005). À titre d'exemple, un cumulus de 1 km³, qu'on observe par une belle journée d'été, possède une masse d'environ 1,2 million de tonnes dont 500 tonnes représentent l'eau liquide. La partie visible du nuage ne représente finalement qu'un milliardième de son volume et à peine un millième de sa masse totale. Le reste regroupe l'air sec, la vapeur d'eau, mais aussi l'aérosol atmosphérique. Ce dernier va avoir une importance considérable dans la formation du nuage. Il va être le précurseur des gouttes ou des cristaux de glace en jouant le rôle de noyau de condensation ou de congélation pour la vapeur d'eau.

1.2.1 GRANULOMETRIE DES GOUTTES DE NUAGE

Quel que soit le type de nuage (ou de brouillard) et les conditions météorologiques, la distribution en taille de goutte de nuage (ou de brouillard) est souvent représentée par une distribution gamma (Borovikov et al., 1963 ; Meszaros, 1965 ; Gossard, 1994 ; Miles et al., 2000). La remontée très pentue d'une telle distribution représente la faible présence de gouttes de rayon 1 µm qui grossissent très rapidement par condensation de vapeur jusqu'à des rayons de l'ordre de 10 µm. Au-delà, pour un flux constant de vapeur à l'interface, le grossissement de la goutte n'est plus le mécanisme principal impliqué dans son grossissement - la coalescence entre les gouttes prime. C'est pourquoi la fraction de goutte diminue progressivement pour des rayons croissants, ce qui décrit une distribution gamma.

Notamment, la distribution gamma en nombre (f_A) de rayon de goutte (A) de Khrgian-Mazin est couramment utilisée, définie selon l'Équation 1-1 :

$$f_A(A) = C_1 A^2 e^{-C_2 A} \quad \text{Équation 1-1}$$

Les constantes C_1 et C_2 sont calculées suivant les observations (Équations 1-2) :

$$\begin{cases} C_1 \approx \frac{1,45 \times 10^{-6} \times qc}{\rho_{eau} A_{moy}^6} \\ C_2 = \frac{3}{A_{moy}} \end{cases} \quad \text{Équations 1-2}$$

Avec A_{moy} et qc , respectivement le rayon moyen (en cm) des gouttes et le contenu en liquide au sein du nuage. ρ_{eau} est la masse volumique de l'eau. Sur la Figure 1-5, les deux distributions de Khrgian-Mazin sont présentées en utilisant le contenu en eau liquide et le rayon moyen des deux nuages modélisés au CHAPITRE 4 - un nuage fortement convectif et un nuage stratiforme. Pour ces deux nuages, les rayons de goutte sont essentiellement inférieurs à 50 µm.

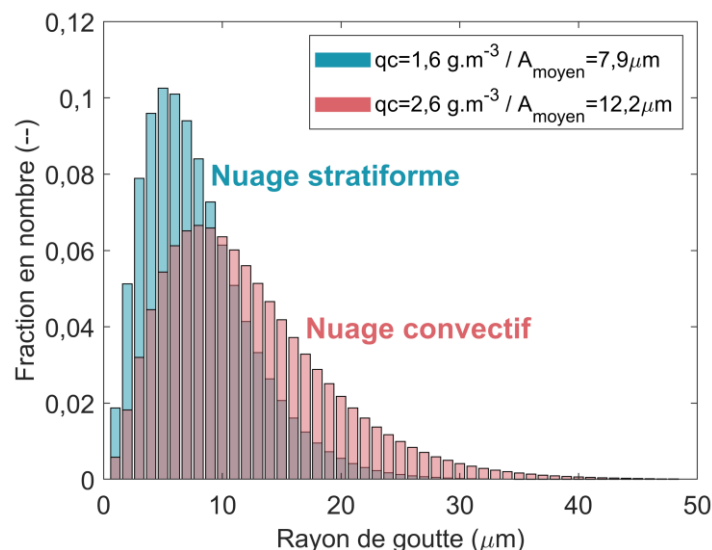


Figure 1-5 Distribution gamma de Khrgian-Mazin pour deux configurations (tirées des deux nuages modélisés au CHAPITRE 4) - un rayon moyen de 7,9 µm et un contenu en eau liquide de 1,6 g.m⁻³ ; un rayon moyen de 12,2 µm et un contenu en eau liquide de 2,6 g.m⁻³.

1.2.2 CHARGE ELECTRIQUE DES GOUTTES DE NUAGE

1.2.2.1 PRINCIPE DE CHARGEMENT D'UNE GOUTTE DE NUAGE

Dans un nuage, les gouttes se chargent électriquement par divers processus, comme par exemple :

- La diffusion et l'attachement des ions sur les hydrométéores ;
- La réorientation des molécules d'eau par induction électrostatique, créant une distribution surfacique de charge dès lors que les gouttes soumises à un champ électrique terrestre se comportent comme une sphère conductrice (voir section 1.3.2.7). Suivant alors un processus de fragmentation, les gouttes qui en résultent possèdent une charge électrique.
- La collision entre hydrométéores, notamment entre la phase liquide et la phase glace, peut engendrer leur fragmentation et un déséquilibre de charge électrique ;
- Le chargement par convection décrit sur la Figure 1-6. Initialement, on considère une parcelle d'air chargée positivement au niveau du sol. Un courant ascendant advecte cet air chargé à une altitude où se forme le nuage (a). Une attraction électrostatique engendre un apport de charges négatives aux limites extérieures du nuage. La convection permet l'incorporation des charges négatives au niveau de la base du nuage. Toujours par attraction électrostatique, des charges positives apparaissent sur les limites extérieures au niveau de la base du nuage pour compenser l'incorporation des charges négatives (b). L'accumulation de charges négatives à la base du nuage, avec l'accumulation des charges positives en haut du nuage, induit un fort champ électrostatique. À un niveau avancé de la convection (c), le champ électrostatique est suffisamment fort entre le haut du nuage (chargé positivement) et la base du nuage (chargée négativement) pour engendrer des décharges électriques partielles dans le nuage qui est une seconde source d'ions positifs (processus appelé "effet couronne"). À ce stade, si la convection continue, le champ électrostatique devient suffisamment important pour permettre la décharge - phénomène d'orage.

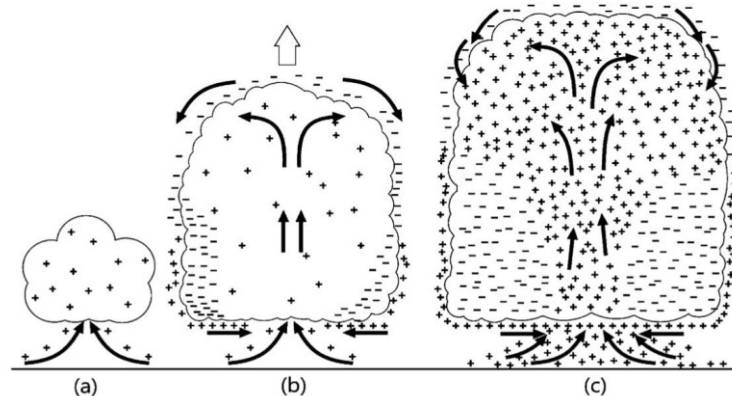


Figure 1-6 Mécanisme de charge d'un nuage convectif - tirée de Saunders (2008).

- (a) Incorporation d'ions positifs dans le nuage. (b) Incorporation d'ions négatifs dans le nuage. (c) Création d'un champ électrostatique entre la base du nuage et le haut du nuage.

- Alors que les précédents points sont des mécanismes inductifs, il existe un mécanisme non-inductif (capable de se produire en l'absence de champ électrique) majoritairement responsable du chargement des gouttes de nuage convectif. Il est basé sur le transfert de charge qui survient, en présence d'eau liquide surfondue, lors d'une collision entre deux particules de glace. Bien que les processus impliqués dans cet échange de charge soient encore mal connus, plusieurs études aussi bien expérimentales (Takahashi, 1978 ; Saunders, 1991) que numériques (Norville et al., 1991) ont mis en évidence ce mécanisme, particulièrement important pour des collisions entre un graupel (de vitesse de chute de l'ordre du mètre par seconde) et un cristal de glacial (en suspension dans le nuage). Les expériences en laboratoire ont montré qu'à basse température (dans la partie supérieure du nuage), le graupel aurait tendance à se charger négativement (le cristal de glace positivement) et inversement en partie basse du nuage. Dès lors, il existerait une température d'inversion de polarité du graupel, comprise entre -10 et -20 °C, dont sa valeur exacte dépendrait de plusieurs paramètres comme le contenu en eau liquide surfondue.

1.2.2.2 MESURES DE LA CHARGE ELECTRIQUE DES GOUTTES DE NUAGE (TAKAHASHI, 1973)

Takahashi (1973) a mesuré la charge des gouttes au sein de nuages convectifs et stratiformes. A noter que les auteurs observent les deux polarités sur les charges des gouttes. Sur la Figure 1-7, les régressions de ces mesures sont présentées pour les deux types de nuage. On remarque qu'en moyenne la charge des gouttes de nuage est très importante et nettement différente suivant le type convectif ou stratiforme. Pour un rayon de 15 μm , une goutte de nuage stratiforme porte, en moyenne, plus de 200 charges élémentaires et presque 10 000 dans un nuage convectif (orageux).

Ainsi, dans cette thèse, il a été choisi de considérer des gouttes de nuage jusqu'à 100 μm . Bien que la fraction en nombre pour cette limite haute soit très basse dans un nuage (voir 1.2.1), les charges électriques sont très importantes pour de tels rayons - les effets électrostatiques peuvent donc être très importants.

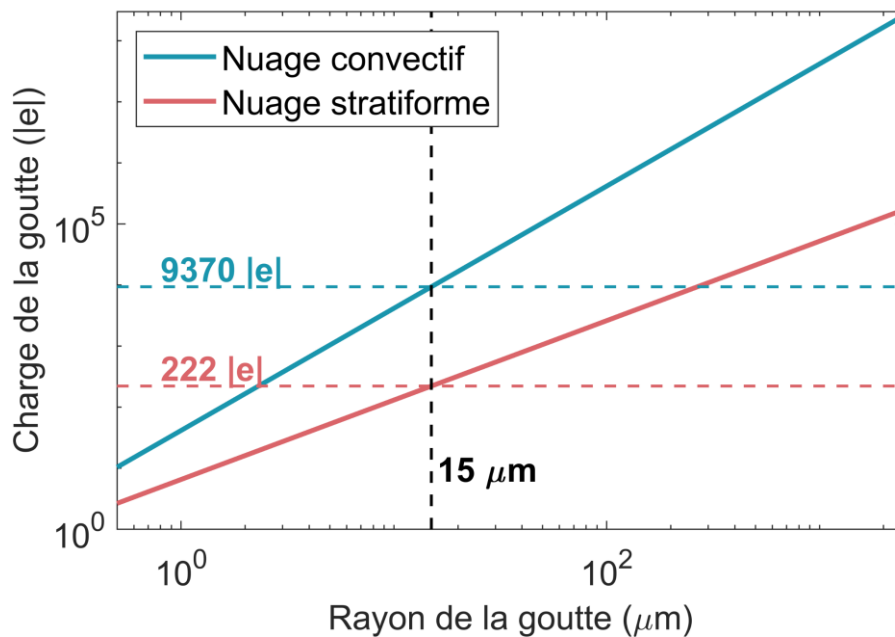


Figure 1-7 Charge électrique des gouttes - tiré des observations de Takahashi (1973).

1.3 CAPTURE DE L'AEROSOL ATMOSPHERIQUE PAR LES NUAGES - MECANISME DE COLLECTE

Dans un nuage, on distingue les particules qui sont incorporées dans l'eau nuageuse - les particules résiduelles - de celles qui restent libres dans l'air - les particules interstitielles. La concentration en aérosol interstitiel évolue suivant différents processus microphysiques, comme par exemple, l'activation des aérosols en goutte de nuage ou bien leur collecte par ces dernières. La liste exhaustive des mécanismes est développée en CHAPITRE 4 (section 4.1.1.4). Dans ce travail, l'étude porte sur le mécanisme de collecte au sein du nuage. Comme il a été vu dans les sections précédentes, les gouttes de nuage et les aérosols (radioactifs) sont chargés électriquement. L'accent sera donc mis sur les effets électrostatiques au sein du nuage qui peuvent avoir un rôle déterminant dans le mécanisme de collecte des aérosols radioactifs par les gouttes.

1.3.1 DEFINITION DE L'EFFICACITE DE COLLECTE

À l'échelle microphysique, le mécanisme de collecte fait intervenir des gouttes de nuage qui, dans leur chute, collectent des particules environnantes. La Figure 1-8 schématise la collecte d'un aérosol par une goutte de nuage. On considère un volume d'air contenant des aérosols interstitiels de concentration en nombre ($C_{N,AP}$) connue. Durant un pas de temps (Δt), une goutte de nuage rencontre statistiquement un nombre d'aérosols ($N_{p,rencontrées}$) défini par l'Équation 1-3 :

$$N_{p,rencontrées} = C_{N,AP} \times V_{eff} \quad \text{Équation 1-3}$$

Où V_{eff} est le volume du cylindre de rayon égal à la somme des rayons de la goutte (A) et d'une particule (a). Mentionnons que ce cylindre n'est pas strictement le volume balayé par la goutte durant le pas de temps, il représente le volume effectif d'interaction entre la goutte - chutant à une vitesse U_A - et l'aérosol - chutant à une vitesse U_a - défini par l'Équation 1-4.

$$V_{eff} = \pi(A + a)^2 \times |U_A - U_a| \times \Delta t \quad \text{Équation 1-4}$$

Parmi ces particules rencontrées, une fraction va être collectée par la goutte. Cette fraction, plus communément appelée « Efficacité de collecte », est un paramètre de référence utilisé dans une majorité des modèles de dispersion atmosphérique, de nuage, de pollution, de climat, etc. L'efficacité de collecte (EC) est alors définie comme le rapport du nombre de particules collectées ($N_{p,col}$) sur le nombre de particules rencontrées (Équation 1-5). Notons que le rapport en masse est une définition équivalente (Pruppacher et Klett, 1997).

$$EC = \frac{N_{p,col}}{N_{p,rencontrées}} = \frac{N_{p,col}}{\pi(A + a)^2 \times |U_A - U_a| \times C_{N,AP} \times \Delta t} \quad \text{Équation 1-5}$$

Dans la plupart des modèles (voir section 1.4.1) ou des mesures (voir section 1.4.2), l'efficacité de collecte est évaluée en considérant un équilibre dynamique. La goutte est supposée chuter à sa vitesse terminale ($U_{\infty,A}$), tandis que la vitesse de l'aérosol est égale à sa vitesse de sédimentation ($U_{\infty,a}$).

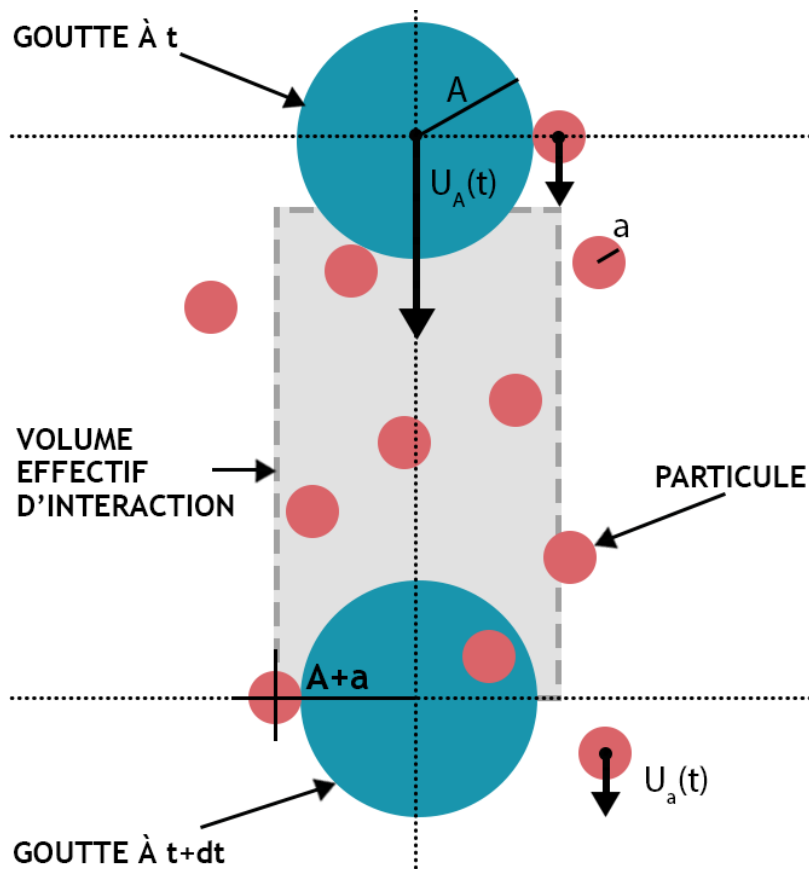


Figure 1-8 Schéma de la collecte d'un aérosol par une goutte de nuage.

Dans un nuage, la collecte des aérosols par les gouttes est modélisée par ce paramètre microphysique. En effet, il intègre l'ensemble des mécanismes affectant la trajectoire des particules dans un nuage. Dans certains cas, l'efficacité de collecte peut être supérieure à l'unité grâce à la contribution de la diffusion brownienne et de forces attractives qui œuvrent à attirer des particules situées au-delà du volume effectif (V_{eff}). C'est notamment le cas des forces électrostatiques.

1.3.2 EFFETS MICROPHYSIQUES IMPLIQUES DANS LA COLLECTE D'AÉROSOL PAR UNE GOUTTE DE NUAGE

Bien que la capture d'un aérosol par une goutte soit la résultante d'un ensemble d'effets microphysiques couplés, dans cette partie, on isole ces mécanismes un-à-un afin de les définir. Les trajectoires présentées sont issues du modèle développé pendant la thèse qui fera l'objet du CHAPITRE 2. De base, les forces de traînée et de flottabilité sont considérées, tandis que d'autres forces seront ajoutées suivant le mécanisme explicité. Le référentiel est la goutte et son centre est l'origine du repère. Les distances sont normalisées par le rayon de la goutte égal à $50\ \mu\text{m}$. Les paramètres non renseignés sont ceux présentés dans le Tableau 2-3. Lorsqu'elles ne sont pas précisées, l'humidité relative et la masse volumique de l'aérosol sont respectivement de 100 % et $1500\ \text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$. Dans le cas contraire, ces valeurs sont prises à l'extrême - s'éloignant du cas réaliste d'un nuage - dans le but d'illustrer visuellement les effets microphysiques mis en jeu. La position initiale est identique pour toutes les trajectoires simulées ici.

Des trajectoires avec les effets microphysiques couplés sont présentées au CHAPITRE 2 (Figure 2-7).

1.3.2.1 MECANISME D'INTERCEPTION

Les particules de faible inertie et peu sensibles au mouvement brownien suivent les lignes de courant de l'écoulement d'air - comme illustré sur la Figure 1-9. Ainsi, lorsqu'une particule suit une ligne de courant qui est très proche de la goutte, une collecte est possible due à l'encombrement de la particule. En effet, il suffit que la distance entre la ligne de courant et la surface de la goutte soit inférieure au rayon de la particule.

Ce mécanisme qu'on nomme « interception » augmente donc lorsque le rayon de la particule croît. Au contraire, lorsque le rayon de la goutte augmente, les lignes de courant de l'écoulement d'air s'écartent les unes des autres et le mécanisme d'interception diminue. Ainsi, le mécanisme d'interception est proportionnel au rapport du rayon de l'aérosol (a) sur le rayon de la goutte (A).

La collecte par interception est illustrée sur la Figure 1-9. En faisant varier le rayon de la particule, on constate que la particule de $8\ \mu\text{m}$ est capturée par la goutte, contrairement à celle de $1,3\ \mu\text{m}$.

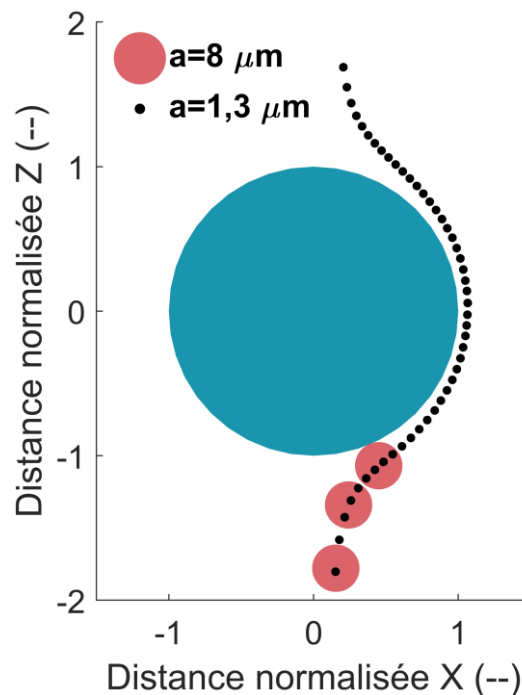


Figure 1-9 Mécanisme d'interception. Les rayons d'aérosol sont de 1,3 et $8\ \mu\text{m}$, la masse volumique de la particule est ici de $1\ \text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$.

1.3.2.2 MECANISME D'IMPACTION INERTIELLE

Une particule dont l'inertie ne peut plus être négligée s'écarte des lignes de courant. Tandis que l'air est dévié au passage de la goutte, les particules inertielles contenues dans cette parcelle d'air vont, quant à elles, ne plus suivre l'écoulement d'air perturbé. Ces particules vont alors venir s'impacter à la surface de la goutte.

On parle alors du mécanisme d'« impaction inertielle », dont sa contribution croît avec l'inertie des particules, elle-même avec l'augmentation de trois paramètres :

- La masse volumique des particules ;
- La taille des particules ;
- La vitesse de l'écoulement de l'air via la taille de la goutte.

La collecte par impaction inertielle est illustrée sur la Figure 1-10. Alors que la particule non inertielle - de masse volumique 1 kg.m^{-3} - n'est pas collectée par la goutte, la particule inertielle - de masse volumique 6500 kg.m^{-3} - est impactée.

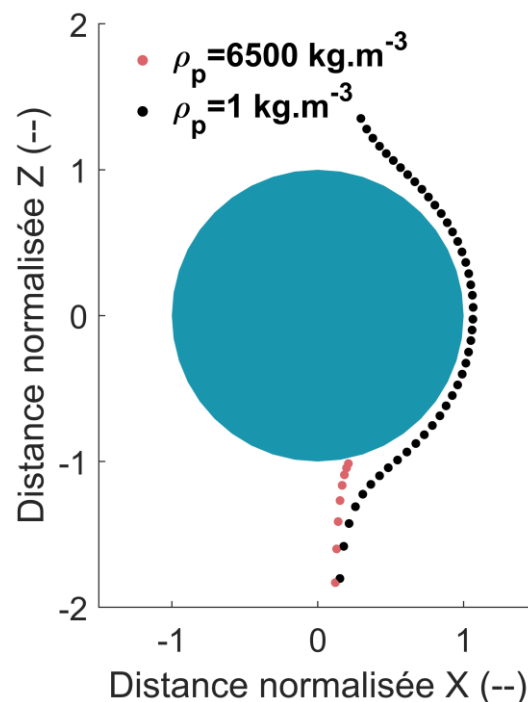


Figure 1-10 Mécanisme d'impaction inertielle. Les masses volumiques d'aérosol sont de 1 et 6500 kg.m^{-3} . Le rayon de l'aérosol est de $1,3 \mu\text{m}$.

1.3.2.3 DIFFUSION BROWNIENNE DES PARTICULES

Lorsqu'une particule appartient au régime continu, son rayon est bien supérieur au libre parcours moyen des molécules d'air dans le milieu. Dans un milieu homogène et isotrope, son mouvement n'est donc pas influencé par l'infinité de chocs moléculaires équirépartis à sa surface.

En revanche, pour une particule appartenant au régime moléculaire, son rayon est inférieur ou de l'ordre du libre parcours moyen des molécules d'air, c'est-à-dire, à la distance moyenne parcourue par une molécule entre deux collisions successives. À -17°C et 540 hPa , cette distance est de 104 nm . Ainsi, on comprend que plus la taille de la particule diminue, plus sa trajectoire sera influencée par les chocs moléculaires, ce qui se traduit par des trajectoires de plus en plus aléatoires. C'est ce que l'on nomme le « mouvement brownien » ou la « diffusion brownienne » de la particule qui peut être décrit comme une marche aléatoire de la particule dans son mouvement.

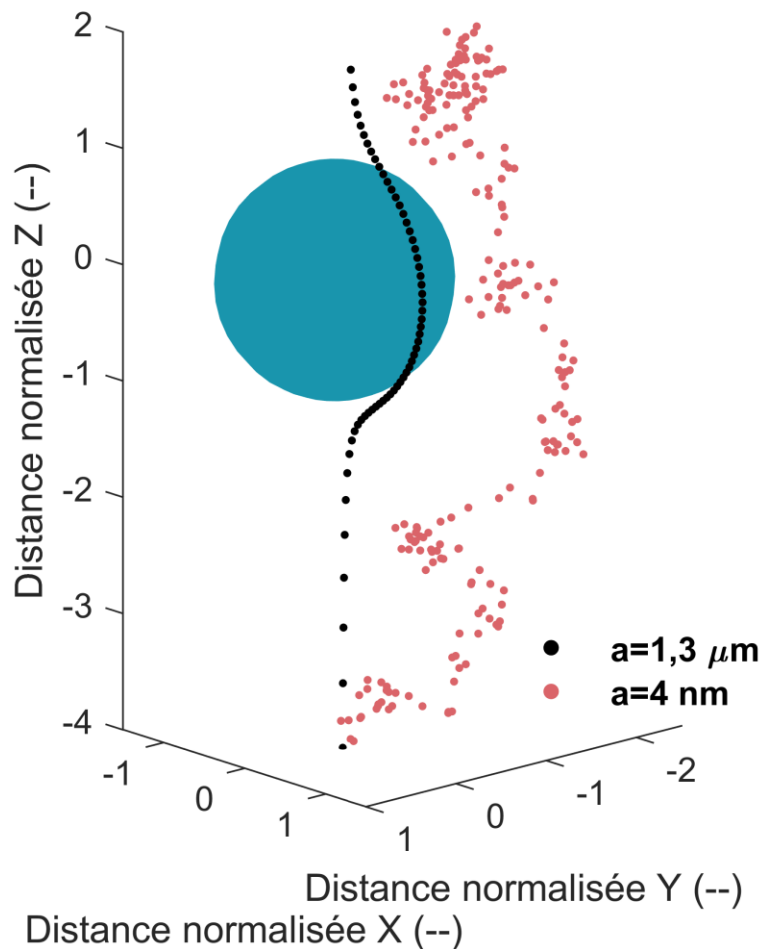


Figure 1-11 Diffusion brownienne de particules de rayon 4 nm et 1,3 μm .
La taille de la particule de 4 nm n'est pas à l'échelle.

Sur la Figure 1-11 sont présentées les trajectoires de particules de 4 nm et 1,3 μm de rayon autour de la goutte. Notons que la taille de la particule de 4 nm n'est pas à l'échelle. On observe que plus la diffusion brownienne est importante, plus la particule est susceptible de ne plus suivre les lignes de courant de l'écoulement d'air autour de la goutte. L'efficacité de collecte est alors augmentée en diminuant la taille des particules.

La majorité des particules susceptibles d'être collectées au sein du nuage étant submicroniques, il est donc essentiel de considérer leur mouvement brownien lorsqu'on réalise un suivi lagrangien de ces particules autour d'une goutte - comme il sera le cas dans le modèle présenté au CHAPITRE 2.

1.3.2.4 FORCE DE THERMOPHORÈSE

La force de thermophorèse apparaît en présence d'un gradient thermique ($\vec{\nabla}T$). C'est notamment le cas à proximité d'une goutte qui s'évapore, dont la température est inférieure à celle du milieu environnant. L'agitation moléculaire à l'interface est alors moins importante que pour des régions éloignées où l'air est plus chaud. Si l'on considère une particule dans la couche limite thermique d'une goutte qui s'évapore, la face de la particule côté goutte est alors assujettie à des chocs moléculaires dont l'énergie cinétique est inférieure à ceux de la face côté milieu environnant (où la température est plus chaude). Au bilan, la particule va être attirée par une goutte qui s'évapore.

Dans ce cas, la force de thermophorèse permet de favoriser la collecte d'une particule - comme illustré sur la Figure 1-12 où deux trajectoires de particule sont calculées sans et avec gradient thermique. Le gradient thermique est ici caractéristique d'une goutte qui s'évapore sous une humidité

relative de 0,01 % - la température à la surface de la goutte ($T_{s,g}$) est inférieure de 3,5 °C à la température de l'air (T_{air}). On observe que la force de thermophorèse permet à la particule d'être collectée par la goutte. L'efficacité de collecte est, *a fortiori*, augmentée par cette force, lorsque l'air est sous-saturé.

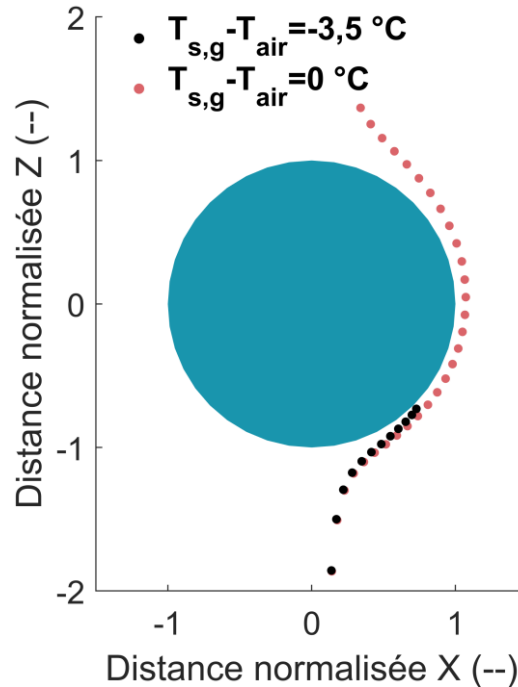


Figure 1-12 Force de thermophorèse - trajectoires simulées d'un aérosol de rayon 1,3 µm sans et avec une différence de température de 3,5 °C entre la surface de la goutte et l'air ambiant.

Une expression analytique de la force de thermophorèse (F_{th}) couramment utilisée dans la littérature (Wang et al., 1978 ; Tinsley et al., 2006) est l'équation de Brock (1962) (Équation 1-6) :

$$\vec{F}_{th} = -\frac{12\pi\eta_{air}a}{5P_{air}} \frac{(k_{air} + 2,5k_pK_n)k_{air}}{(1 + 3K_n)(2k_{air} + k_p + 5k_pK_n)} \vec{\nabla}T \quad \text{Équation 1-6}$$

Où P_{air} est la pression ambiante, k_p est la conductivité thermique de la particule. k_{air} , K_n et η_{air} sont respectivement la conductivité thermique de l'air sec, le nombre de Knudsen et la viscosité dynamique de l'air - dont les expressions sont définies en Annexe A.

1.3.2.5 FORCE DE DIFFUSIOPHORÈSE

Une particule à proximité d'une goutte qui s'évapore va être attirée à la surface de la goutte à cause des chocs moléculaires, non pas dus à un gradient thermique comme pour la thermophorèse, mais ici à un gradient de masse volumique de la vapeur dans l'air ($\vec{\nabla}\rho_v$). En effet, à l'interface de la goutte, l'eau liquide qui s'évapore diffuse en direction du milieu sous-saturé. En parallèle, l'air sec du milieu environnant se dirige, toujours par diffusion, vers la surface de la goutte. Dès lors que la masse molaire des molécules d'air (M_{air}) est supérieure à la masse molaire des molécules d'eau (M_{eau}), une dissymétrie des chocs moléculaires se forme à la surface de la particule. De manière analogue à la thermophorèse, les chocs moléculaires sont alors plus énergétiques du côté du milieu environnant, attirant alors la particule vers la goutte.

Néanmoins, un autre effet est induit par le changement de phase à l'interface de la goutte. L'air incondensable qui diffuse à la surface de la goutte implique nécessairement l'apparition d'un flux de sens opposé, cette fois-ci de nature hydrodynamique, pour maintenir une pression à l'interface constante. Ce flux nommé « Flux de Stefan » va alors avoir tendance à repousser une particule d'une goutte qui s'évapore. La diffusiophorèse est finalement la résultante des deux flux diffusifs, ajoutés

du Flux de Stefan. Santachiara et al. (2012) estiment qu'en moyenne pour la vapeur dans l'air, la contribution du Flux de Stefan est 5 fois plus importante que les deux flux de diffusion engendrés par le gradient de masse volumique de la vapeur dans l'air.

Dans la plupart des cas, la diffusiophorèse repousse donc les particules d'une goutte qui s'évapore - comme illustré sur la Figure 1-13. Ici, deux trajectoires de particule sont simulées avec et sans un gradient de masse volumique de vapeur dans l'air. Le gradient non nul est ici caractéristique d'une goutte qui s'évapore dans un air à 0,01 % d'humidité relative - la différence de masse volumique de la vapeur dans l'air entre l'interface de la goutte ($\rho_{v,s}$) et le milieu environnant ($\rho_{v,air}$) est de $0,001 \text{ kg.m}^{-3}$. On observe que la particule est repoussée par la goutte du fait de la diffusiophorèse (sphères noires) par rapport au cas où le gradient est nul (sphères rouges).

L'expression de cette force (F_{df}) est donnée par Waldmann et Schmitt (1966) (Équation 1-7) :

$$\vec{F}_{df} = -6\pi\eta_{air}a \frac{0,74D_vM_{air}\vec{\nabla}\rho_v}{C_uM_{eau}\rho_{air}} \quad \text{Équation 1-7}$$

C_u et D_v sont respectivement le coefficient correctif de Stokes-Cunningham et le coefficient de diffusion de la vapeur d'eau, explicités en Annexe A.

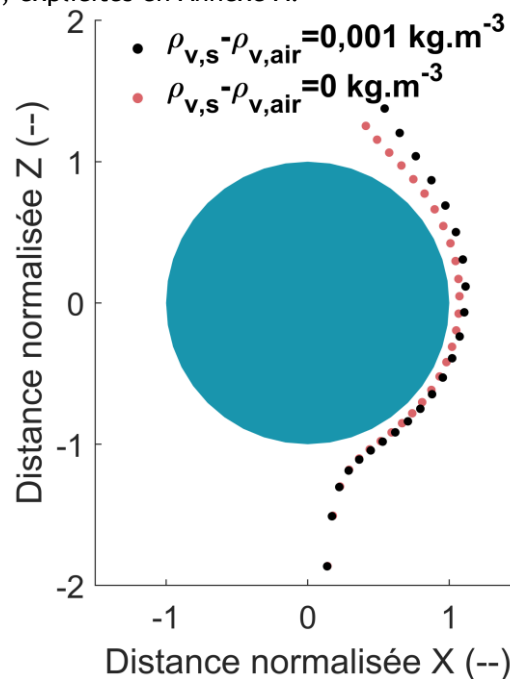


Figure 1-13 Force de diffusiophorèse - trajectoires simulées d'un aérosol de rayon $1,3 \mu\text{m}$ sans et avec une différence de masse volumique de la vapeur dans l'air de $0,001 \text{ kg.m}^{-3}$ entre l'interface de la goutte ($\rho_{v,s}$) et le milieu environnant ($\rho_{v,air}$).

1.3.2.6 MILIEU SOUS-SATURÉ - FORCES DE DIFFUSIOPHORESE ET DE THERMOPHORESE

En milieu sous-saturé où la goutte s'évapore, la diffusiophorèse et la thermophorèse vont souvent œuvrer de manière antagoniste - la thermophorèse tend à attirer la particule vers la goutte tandis que la diffusiophorèse la repousse. Pour autant, la force de thermophorèse est, en moyenne, deux fois plus importante que la force de diffusiophorèse (Tinsley et al., 2006).

L'action combinée de ces deux effets microphysiques favorise donc la collecte d'une particule par une goutte dans un air sous-saturé. Sur la Figure 1-14, ces deux effets - dont les caractéristiques sont les mêmes que sur les Figures 1-12 et 1-13 - sont présentés pour un aérosol de $1,3 \mu\text{m}$. On observe que l'aérosol est capturé par la goutte dans un air à 0,01 % d'humidité relative contrairement à la simulation où l'air est saturé, c'est-à-dire, où la thermophorèse et la diffusiophorèse n'agissent pas. L'efficacité est donc augmentée pour la combinaison de ces deux forces.

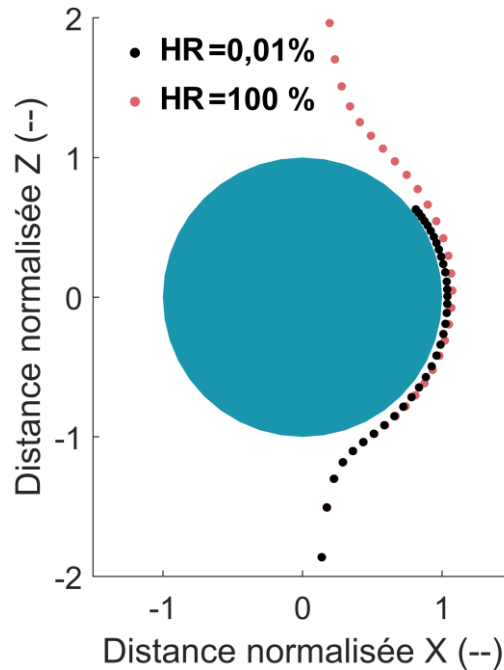


Figure 1-14 Thermophorèse et diffusiophorèse - trajectoires simulées d'une particule 1,3 μm dans un milieu à 100 et 0,01 % d'humidité relative.

Pour rappel, les Équations 1-6 et 1-7 font intervenir les gradients de température et de masse volumique de vapeur dans l'air. Au CHAPITRE 2, ces quantités seront évaluées en faisant les mêmes hypothèses que Wang et al. (1978) et reprises par Tinsley et al. (2006), à savoir :

- La goutte est considérée être en équilibre thermodynamique avec le milieu environnant, ce qui implique que les gradients sont uniquement dus à la goutte et son changement de phase - ce qui est justifié dans le cas d'une goutte de nuage ;
- Les gradients sont supposés être à symétrie sphérique ;
- La deuxième hypothèse est établie pour une goutte stationnaire. Pour tenir compte du fait que les profils de gradient sont modifiés par la chute de la goutte, des coefficients semi-empiriques de flux de ventilation de chaleur (f_h) et de vapeur d'eau (f_v) évalués par Beard et Pruppacher (1971) sont ajoutés. Ces coefficients correctifs sont définis en Annexe A.

Dans la suite, les gradients sont alors calculés par les Équations 1-8 :

$$\begin{cases} \vec{\nabla}T = \frac{(T_{air} - T_{s,g})f_h}{Ar^{*2}} \vec{u}_r \\ \vec{\nabla}\rho_v = \frac{(\rho_{v,air} - \rho_{v,s})f_v}{Ar^{*2}} \vec{u}_r \end{cases} \quad \text{Équations 1-8}$$

Avec \vec{u}_r le vecteur unitaire en provenance du centre de la goutte vers la particule, r^* la distance entre la goutte et la particule, normalisée par le rayon de la goutte (A). Les masses volumiques de la vapeur d'eau dans l'air à l'interface ($\rho_{v,s}$) et dans le milieu ambiant ($\rho_{v,air}$) - d'humidité relative (HR) connue - sont calculées depuis les pressions de vapeur saturante à la température de l'interface ($e_{sat,s}$) et à la température de l'air ($e_{sat,air}$) (Équations 1-9) :

$$\begin{cases} \rho_{v,s} = \frac{e_{sat,s}(T_{s,g})}{R_v T_{s,g}} \\ \rho_{v,air} = \frac{e_{sat,air}(T_{air})}{R_v T_{air}} \times HR \end{cases} \quad \text{Équations 1-9}$$

Où R_v est la constante spécifique de la vapeur d'eau. La température à la surface de la goutte ($T_{s,g}$) est évaluée par un bilan d'énergie analogue à Beard et Pruppacher (1971, Annexe B).

1.3.2.7 FORCES ELECTROSTATIQUES - THEORIE DE LA CHARGE PONCTUELLE IMAGE

L'eau pure est un milieu diélectrique, c'est-à-dire qu'elle ne conduit pas les charges électriques mais laisse s'exercer les forces électrostatiques. Lorsqu'une goutte de rayon (A) et de charge électrique (Q) connus est à proximité d'une particule chargée (de charge q) supposée ponctuelle, l'influence partielle du champ électrique induit par la particule sur la goutte contraint les molécules dipolaires d'eau à se réorienter en surface. Ainsi, une distribution surfacique de charge se crée. Comme le temps nécessaire pour que les dipôles à la surface de la goutte se réorientent est bien inférieur au temps caractéristique de la goutte (Hall et Beard, 1975), on peut considérer que le régime est quasi stationnaire et que la distribution surfacique de charge est identique à celle d'une sphère conductrice. La justification a été formulée par Davis (1964 ; 1969). Ce mécanisme est illustré sur la Figure 1-15 (gauche) en prenant l'exemple d'un aérosol chargé négativement et placé dans le voisinage d'une goutte de polarité opposée.

En électrostatique, le problème d'une sphère conductrice (ici la goutte) à proximité d'une charge ponctuelle (ici la particule) est équivalent à considérer, non plus la goutte, mais deux charges ponctuelles à l'intérieur de celle-ci. La première est la charge ponctuelle (q') image de la particule située à une distance - notée c - du centre de la goutte et toujours de signe opposé. La seconde représente la charge ponctuelle (q'') résiduelle dans la goutte, située en son centre. La Figure 1-15 (droite) illustre cette théorie de la charge ponctuelle image (Jackson, 1999) où les paramètres sont définis par les Équations 1-10.

$$\begin{cases} q' = -\frac{A}{b}q \\ q'' = Q - q' \\ c = \frac{A^2}{b} \end{cases} \quad \text{Équations 1-10}$$

Ainsi, la particule chargée (q) est en interaction électrique avec les deux charges ponctuelles, ce qui revient à appliquer deux lois de Coulomb dans un bilan des forces électrostatiques (Équation 1-11).

$$F_{el} = \frac{qq'}{4\pi\epsilon_0(b-c)^2} + \frac{qq''}{4\pi\epsilon_0b^2} \quad \text{Équation 1-11}$$

Avec ϵ_0 la permittivité du vide. En remplaçant les termes de l'Équation 1-11 à l'aide des Équations 1-10 et en simplifiant, on obtient la formule générale des forces électrostatiques radiales, agissant sur une particule chargée à proximité d'une goutte chargée (Équation 1-12).

$$\vec{F}_{el} = C \left[\overbrace{\left(-\frac{r^*}{(r^{*2}-1)^2} + \frac{1}{r^{*3}} \right)}^{IAFD} + \frac{\overbrace{K}^{CLD}}{r^{*2}} \right] \vec{u}_r \quad \text{Équation 1-12}$$

Avec K et r^* , respectivement, le rapport des charges et la distance normalisée des centres de goutte et de particule tels que (Équation 1-13) :

$$\begin{cases} C = \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0A^2} \\ K = \frac{Q}{q} \\ r^* = \frac{b}{A} \end{cases} \quad \text{Équations 1-13}$$

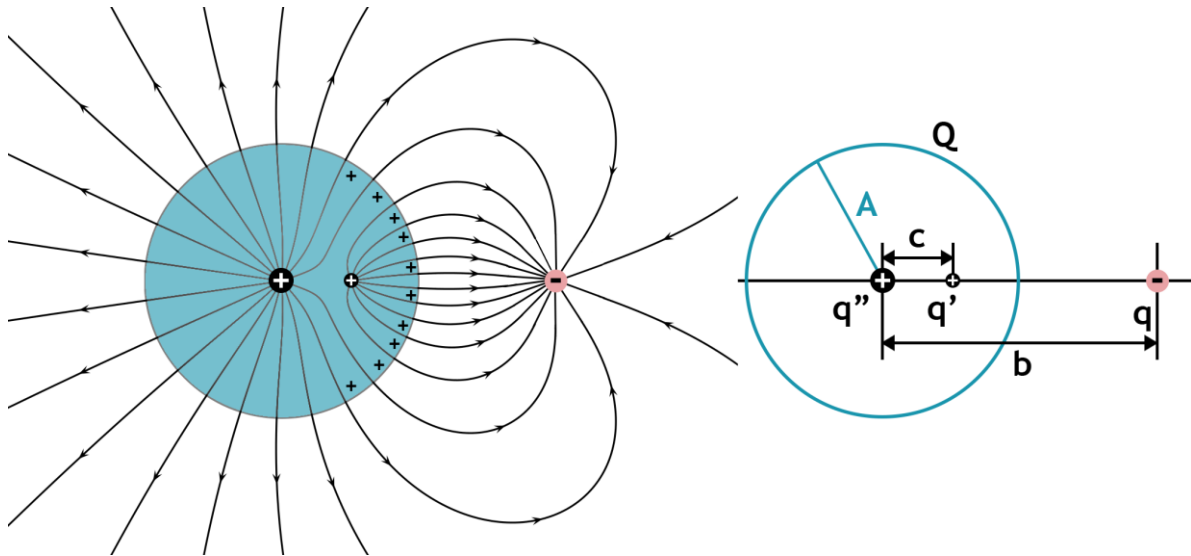


Figure 1-15 (**Gauche**) Distribution surfacique de charge (ici positive) due à l'influence partielle du champ électrique induit par une particule chargée (de charge q) sur une goutte de rayon (A) et de charge électrique (Q). (**Droite**) Problème électrostatique équivalent - charge ponctuelle image (q') de la particule (q), de polarité opposée, située à une distance connue (c) du centre de la goutte et une charge résiduelle de la goutte (q'') positionnée en son centre (Jackson, 1999).

En Équation 1-12, on isole deux termes qui vont avoir des contributions différentes :

- Le premier terme qu'on nommera terme « Image-Attractif-Faible-Distance » (IAFD). Il est toujours attractif et représente l'interaction entre la particule chargée et sa charge ponctuelle image de polarité opposée. Ce terme domine lorsque la particule est proche de la goutte (quand r^* tend vers 1) et possède une amplitude importante, particulièrement visible sur la Figure 1-16 où le second terme est nul ($K=0$) ;
- Le second terme, référencé dans cette thèse comme terme « Coulombien-Longue-Distance » (CLD), qui est répulsif ou attractif, suivant si la goutte et la particule sont de même polarité ou de polarité opposée. Ce second terme domine le terme IAFD à longue distance mais possède une faible amplitude, visible sur la Figure 1-16.

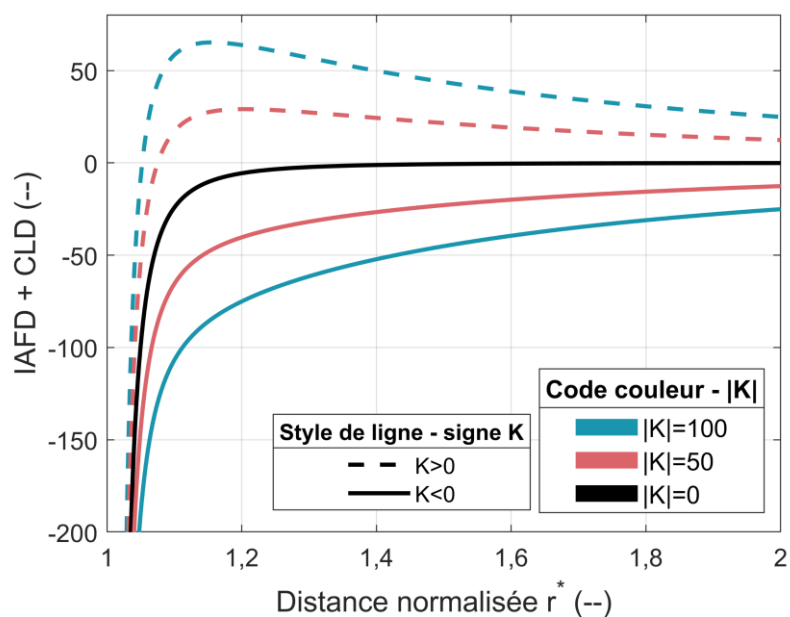


Figure 1-16 Somme des termes Image-Attractif-Faible-Distance (IAFD) et Coulombien-Longue-Distance (CLD) en fonction de la distance normalisée r^* , pour différents rapports de charge.

Sur la Figure 1-17, des trajectoires de particule autour d'une goutte sont présentées avec et sans les forces électrostatiques définies en Équation 1-12 et pour deux rayons de particule - 1,3 μm (gauche) et 4 nm (droite). Bien que les charges sur la goutte et l'aérosol soient de même polarité, pour un aérosol de 1,3 μm on observe que le terme IAFD permet la collecte - augmentant de ce fait l'efficacité de collecte. Au contraire, les particules de 4 nm sont repoussées à longue distance de la goutte à cause du terme CLD qui est répulsif. L'efficacité de collecte est alors fortement diminuée. Ces observations seront explicitées au CHAPITRE 2.

D'autres trajectoires isolant les forces électrostatiques sont présentées en Annexe B.

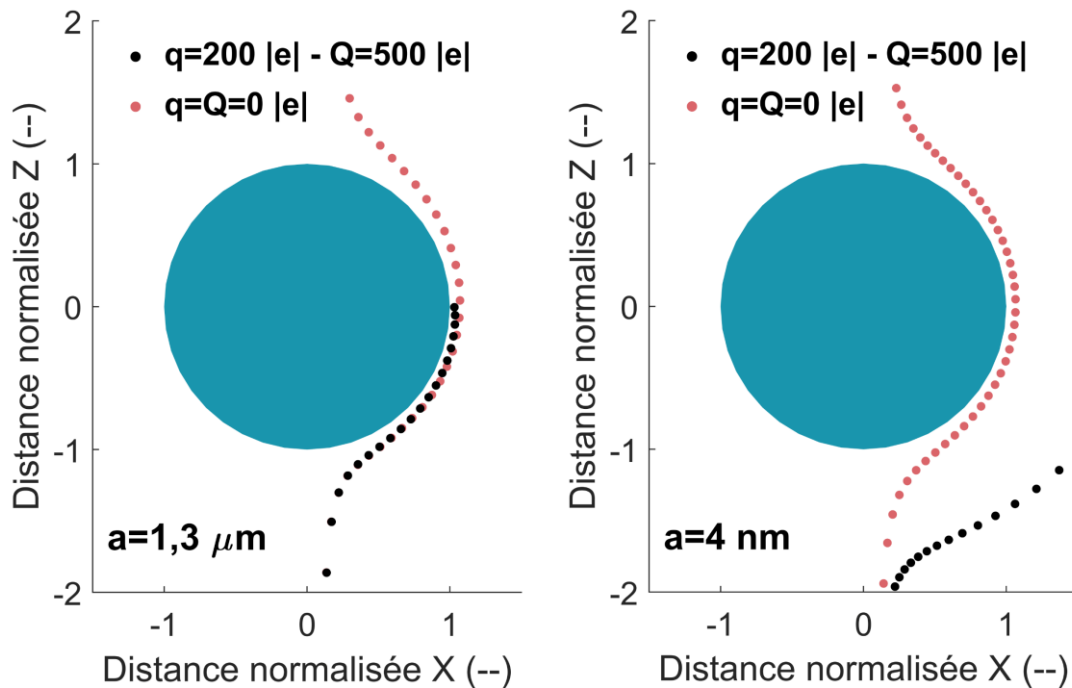


Figure 1-17 Trajectoires simulées de particules avec et sans les forces électrostatiques de rayon 1,3 μm (Gauche) et 4 nm (Droite) pour les mêmes charges sur l'aérosol (200 charges élémentaires) et sur la goutte (500 charges élémentaires).

1.3.2.8 AUTRES EFFETS

Notons qu'il existe d'autres effets microphysiques influençant la capture d'un aérosol par une goutte. A titre d'exemple, on peut citer :

- Le mécanisme de photophorèse qui intervient lorsqu'un côté d'une particule est plus assujéti aux bombardements de photons. Dès lors, la température surfacique de la particule est inhomogène, ce qui induit des chocs moléculaires à la surface, eux-aussi, inhomogènes. Il en résulte un déplacement de la particule (Preining, 1966 ; Mackowski, 1989). Néanmoins, la photophorèse fait principalement évoluer le transport des aérosols dans la stratosphère (Hidy et Brock, 1967) et est de second ordre au sein d'un nuage devant les mécanismes évoqués précédemment ;
- Le mécanisme de turbophorèse qui intervient en présence de gradient de turbulence lorsque l'agitation de l'air est inhomogène. La particule va alors avoir tendance à migrer dans les zones où l'air est le moins agité. Ce mécanisme est négligé ici ;
- La capture arrière peut aussi être un mécanisme important dans la collecte des aérosols par les gouttes de pluie (Beard et Grover, 1974 ; Quérel et al., 2014 ; Lemaitre et al., 2017). Elle apparaît en présence de recirculation de l'écoulement d'air à l'arrière de la goutte. Pour autant, le choix a été fait de ne s'intéresser qu'à des gouttes de nuage de rayon inférieur à 100 μm . Pour cette classe de taille, il n'y a pas de recirculation.

1.4 REVUE DES ETUDES SUR L'EFFICACITE DE COLLECTE

1.4.1 APPROCHES THÉORIQUES

Greenfield (1957) a été un des précurseurs à étudier numériquement l'efficacité de collecte à travers deux mécanismes - l'impaction inertielle et la diffusion brownienne des particules. Il a mis notamment en évidence l'existence d'un minimum d'efficacité de collecte - nommé par la suite le « Greenfield Gap » - pour des rayons d'aérosols entre 0,1 et 1 μm , suivant la taille de goutte considérée.

Beaucoup d'auteurs ont ensuite proposé des modèles élémentaires d'efficacité de collecte, purement analytiques ou semi-empiriques, où les mécanismes sont définis et étudiés indépendamment les uns des autres. Notamment, Walton et Woolcock (1960) donnent l'équation de l'efficacité de collecte pour l'impaction inertielle, Waldmann et Schmitt (1966) pour la diffusiophorèse et la thermophorèse, Fuchs (1965) pour la diffusion brownienne et le mécanisme d'interception. Kraemer et Johnstone (1955) proposent une corrélation (Équation 1-14) définissant l'efficacité de collecte (EC_{KJ}) uniquement par les interactions coulombiennes attractives, c'est-à-dire, lorsque les charges sur la goutte et la particule sont de polarité opposée (Équation 1-14) :

$$EC_{KJ} = \left(\frac{Q}{\pi \varepsilon_0 A^2 \Delta U} \right) \left(\frac{q \times C_u}{6\pi \eta_{air} a} \right) \quad \text{Équation 1-14}$$

Avec ΔU , la vitesse relative des gouttes par rapport aux aérosols. Si on suppose un équilibre dynamique, elle est égale à $|U_{\infty,A} - U_{\infty,a}|$. En 1976, Nielsen et Hill ajoutent le nombre de Stokes (Stk) des particules afin de prendre en compte leur inertie. La corrélation de l'efficacité de collecte (EC_{NH}) est la suivante (Équation 1-15) :

$$EC_{NH} = \left(\sqrt{EC_{KM}} - 0,8Stk \right)^2 \quad \text{Équation 1-15}$$

Dès lors, plusieurs études combinent ces formulations afin d'établir une représentation générale de l'efficacité de collecte (Slinn et Hales, 1971 ; Slinn, 1974 ; Davenport et Peters, 1978). Dans chacune de ces approches, l'efficacité de collecte totale est déterminée en sommant les efficacités élémentaires. De telles approches possèdent l'avantage d'être facile d'utilisation mais négligent le couplage des différents effets microphysiques. L'efficacité de collecte totale est donc mal évaluée, d'autant plus au niveau du Greenfield gap où de nombreux mécanismes ont des contributions équivalentes.

Un modèle très utilisé (notamment dans DESCAM, voir CHAPITRE 4) pour obtenir une estimation de l'efficacité de collecte est le modèle de Wang et al. (1978). Les auteurs considèrent une approche eulérienne pour déterminer le flux de particules à la surface d'une goutte, en considérant la force de thermophorèse (Équation 1-6), de diffusiophorèse (Équation 1-7), ainsi que la diffusion brownienne des particules et les interactions coulombiennes attractives entre la goutte et la particule. Ce modèle est facile d'implémentation mais ne tient pas compte des effets mécaniques comme le poids des particules ou leur inertie. L'estimation de l'efficacité de collecte est alors faussée pour des particules microniques. De plus, ce modèle de flux fait aussi l'hypothèse que les mécanismes microphysiques peuvent être ajoutés séparément sans tenir compte de leur couplage. Les efficacités de collecte en région du Greenfield gap peuvent rapidement devenir erronées.

Viennent ensuite les modèles lagrangiens dont une revue de la littérature est présentée dans le Tableau 1-2. Dans ce tableau, aussi bien les modèles utilisés pour calculer l'efficacité de collecte de particule par une goutte que de coalescence entre gouttes sont considérés, dès lors que les effets microphysiques sont les mêmes. Dans ces modèles, les trajectoires de chaque particule autour de la goutte sont calculées suivant la seconde loi de Newton. Même si cette famille de modèle est bien plus coûteuse en temps de calcul, elle possède l'avantage d'obtenir une estimation bien plus rigoureuse de l'efficacité de collecte dès lors que tous les effets microphysiques sont couplés. Dans ce type de modèle, le principal enjeu est d'obtenir une évaluation précise de l'écoulement de l'air autour de la goutte. Pour de faibles nombres de Reynolds ($Re \approx 1$), des solutions analytiques existent et permettent une bonne modélisation de l'écoulement (Hocking, 1959 ; Klett et Davis, 1973 ; Pinsky et al. 2011 ; Tinsley et al., 2000 ; Tinsley et al., 2001 ; Khain et al., 2004 ; Tinsley et al., 2006 ; Tinsley, 2010 ; Tinsley et Leddon 2013 ; Tinsley et Zhou 2015 ; Zhang et Tinsley, 2018 ; Zhang et al., 2018). Ces équations reposent sur la linéarisation des équations de Navier-Stokes qui, lorsque le nombre de

Reynolds augmente, ne sont plus valides. Dès lors, un solveur numérique est privilégié afin d'obtenir une simulation plus précise du profil des vitesses (Lin et Lee, 1976 ; Grover et al., 1977 ; Jaworek et al., 2002 ; Cherrier et al., 2017). Pour des nombres de Reynolds modérés ($Re < 80$), l'approximation de Hamielec et Johnson (1962) reste néanmoins satisfaisante (Pinsky et al., 2001). Notons qu'à partir d'un nombre de Reynolds de l'ordre de 300 ($A \approx 600 \mu\text{m}$), la goutte a une forme ellipsoïdale qui oscille d'une forme oblongue à aplatie. Les équations de Navier-Stokes doivent alors être résolues en régime non stationnaire sur trois dimensions en tenant compte de la déformation de la goutte au cours du temps. Cette méthode est encore aujourd'hui trop coûteuse en temps de calcul - il faut compter plusieurs mois de calcul afin de modéliser quelques secondes de temps physique. De plus, pour un nombre de Reynolds supérieur à 500 ($A = 800 \mu\text{m}$), l'écoulement n'est plus laminaire. Ces points rendent, à l'heure actuelle, une évaluation théorique de l'efficacité de collecte très délicate pour des rayons de goutte supérieurs à $600 \mu\text{m}$.

Le modèle lagrangien développé au cours de ces 20 dernières années par Tinsley et ses collaborateurs tient compte de tous les effets microphysiques pouvant amener un aérosol à être capturé par une goutte nuage. Les auteurs proposent des corrélations afin d'évaluer l'efficacité de collecte pour un grand spectre de rayons d'aérosol, allant du nanomètre à la dizaine de micromètres. Ils mettent en évidence l'augmentation de l'efficacité de collecte, parfois de plusieurs ordres de grandeur, en considérant l'Équation 1-12 des forces électrostatiques. Pour autant, les auteurs étudient uniquement des rayons de goutte inférieurs à $15 \mu\text{m}$, pour une centaine de charges élémentaires sur la goutte et plusieurs dizaines sur l'aérosol. Pour rappel, à $15 \mu\text{m}$ une goutte de nuage convectif porte près de 10 000 charges élémentaires (section 1.2.2.2), soit deux ordres de grandeur au-dessus des charges considérées par Tinsley et ses collaborateurs. L'aérosol radioactif est susceptible de porter 600 charges élémentaires (section 1.1.2.2) - une charge électrique là-aussi bien plus importante de celles étudiées par les auteurs. Extrapoler leurs efficacités de collecte pour les charges considérées dans cette thèse serait donc une source trop importante d'incertitude. D'autant plus qu'il faudrait extrapoler aussi suivant la taille des gouttes dès lors qu'on souhaite étudier des rayons jusqu'à $100 \mu\text{m}$.

Remarquons qu'une des originalités du modèle de Tinsley et al. vient de la modélisation du mouvement brownien des particules qui peut être de premier ordre dans la capture de particules submicroniques par des gouttes. En revanche, leur modélisation repose sur une marche aléatoire affectant uniquement la position des particules. Pourtant, au gré des chocs moléculaires les vitesses sont, elles-aussi, perturbées. Une modélisation plus rigoureuse du mouvement brownien des particules a été utilisée dans le récent modèle lagrangien de Cherrier et al. (2017), basée sur l'approche de Langevin (1908). Par contre, ces auteurs ne tiennent compte ni de la thermophorèse, ni de la diffusiphorèse, ni des forces électrostatiques et du poids des particules alors que Tinsley et ses collaborateurs ont montré leur très forte contribution sur l'efficacité de collecte.

Tableau 1-2 Revue des modèles lagrangiens permettant le calcul de l'efficacité de collecte (IMP= Impaction inertielle, INT=Interception, DF=Diffusiophorèse, TF=Thermophorèse, FE=Forces Electrostatiques, DB=Diffusion Brownienne).

Référence	Rayon goutte	Rayon aérosol	Modélisation de l'écoulement	Approche	Mécanismes
(Hocking, 1959)	< 30 µm	6-30 µm (Goutte)	Solution de Stokes	2D	IMP, INT
(Klett et Davis, 1973)	< 70 µm	7-70 µm (Goutte)	Solution d' Oseen (1910)	2D	IMP, INT
(Lin et Lee, 1976)	20-200 µm	4-200 µm (Goutte)	Résolution numérique	2D	IMP, INT
(Grover et al., 1977)	42-438 µm	0,5-10 µm	Résolution numérique	2D	IMP, INT, DF, TF, FE
(Pinsky et al, 2001)	1-250 µm	1-250 µm (Goutte)	Stokes et Hamielec et Johnson (1962)	2D	IMP, INT
(Tinsley et al., 2000 ; Tinsley et al., 2001)	18,6-106 µm	0,1-1 µm	Solution de Stokes	2D	FE
(Jaworek et al., 2002)	50-500 µm	0,5-5 µm	Résolution numérique	3D	IMP, INT, FE
(Khain et al., 2004)	1-20 µm	1-20 µm (Goutte)	Solution de Stokes	2D	IMP, INT, FE
(Tinsley et al., 2006)	4-50 µm	0,1-10 µm	Solution d' Oseen (1910) et Proudman-Pearson (1957)	2D	IMP, INT, DF, TF, FE
(Tinsley, 2010 ; Tinsley et Leddon 2013; Tinsley et Zhou 2015 ; Zhang & Tinsley, 2018; Zhang et al., 2018)	3-15 µm	0,004-10 µm	Solution d' Oseen (1910) et Proudman-Pearson (1957)	3D	IMP, INT, DF, TF, FE, DB
(Cherrier et al., 2017)	<340 µm	0,001-10 µm	Résolution numérique	3D	IMP, INT, DB

1.4.2 MESURES D'EFFICACITE DE COLLECTE REALISEES EN LABORATOIRE

Plusieurs études ont tenté de mettre en évidence la contribution des forces électrostatiques (Adam et Semonin, 1971 ; Beard, 1974 ; Wang et Pruppacher, 1977 ; Lai et al., 1978 ; Barlow et Latham, 1983 ; Wang et al., 1983 ; Byrne et Jennings, 1993) et de la thermophorèse et de la diffusiophorèse (Leong et al., 1982 ; Ladino et al., 2011 ; Ardon-Dryer et al., 2015) sur l'efficacité de collecte. Une sélection est présentée dans le Tableau 1-3. Des effets en accord avec les modèles ont été observés, à savoir une augmentation de l'efficacité de collecte lorsque les charges électriques augmentent ou bien pour des humidités relatives qui diminuent. Néanmoins, Ardon-Dryer et al. (2015) se confrontent aux mesures de Ladino et al. (2011) qui, malgré des humidités et des tailles de goutte et particule similaires, observent des écarts jusqu'à plus d'un ordre de grandeur. Par ailleurs, Barlow et Latham (1983) se comparent aux mesures d'Adam et Semonin (1971) et Lai et al. (1978) et observent aussi plus d'un ordre de grandeur entre les différentes mesures. Les auteurs expliquent qu'une partie de ces disparités peut être attribuée aux tailles et aux charges électriques sur les gouttes et les particules, nettement différentes entre les mesures. De plus, bien que toutes les études résumées dans le Tableau 1-3 aient été réalisées en laboratoire, les auteurs se sont heurtés aux difficultés de contrôler tous les paramètres influençant l'efficacité de collecte.

Des critiques peuvent être formulées à la lecture de leurs travaux :

- Adam et Semonin (1971) étudient l'efficacité de collecte de spores de *Bacillus subtilis* par des gouttes microniques. Dans l'étude, les distributions en taille des gouttes et des spores sont monodispersées. En revanche, dans leurs mesures, la charge électrique des particules n'est pas considérée alors que le moyen de génération utilisé par les auteurs, par atomisation, est bien connu pour produire des charges importantes sur les particules. Les charges sur les gouttes ne sont, elles-aussi, pas mesurées. Dans un objectif de comparaison, Beard (1974) fait des hypothèses fortes afin de combler ce manque d'information, concluant que les forces électrostatiques ont eu une grande influence sur les mesures d'Adam et Semonin. De plus, l'humidité relative n'est pas fixée. Ces mesures sont alors trop peu documentées pour espérer une comparaison qui ait du sens ;
- Beard (1974) étudie l'effet des forces électrostatiques sur la collecte. Pour ce faire, une goutte est figée dans un flux ascendant humide de particules dont leur distribution en taille est monodispersée. Leur système permet de contrôler l'humidité relative très proche de la saturation, réduisant par la même occasion les contributions de la thermophorèse et de la diffusiophorèse. Tandis que la charge des gouttes est rigoureusement évaluée, Beard (1974) indique ne pas avoir d'information sur la distribution de charge des particules ;
- Dans l'article de Wang et Pruppacher (1977), les distributions en taille des gouttes et des particules sont monodispersées. La charge sur la goutte est pilotée en appliquant un potentiel électrique à la pointe du système de génération où la goutte se forme. Contrairement aux deux précédents auteurs, Wang et Pruppacher (1977) contrôlent et chargent les particules en les faisant passer dans un champ électrique. Bien qu'une augmentation de l'efficacité de collecte par les forces électrostatiques soit mise en évidence, les auteurs considèrent uniquement des charges sur les gouttes et les particules de polarité opposée. Ainsi, la formulation des forces électrostatiques de l'Équation 1-12 n'est pas validée ni même la contribution du terme IAFD illustrée. De plus, bien que fixée, l'humidité relative ne dépasse pas les 23 % dans leur expérience. À de tels niveaux de sous-saturation, il est fort possible que la thermophorèse et la diffusiophorèse aient une contribution importante sur leurs mesures ;
- Dans les mesures de Lai et al. (1978), la distribution en taille des gouttes est monodispersée et leur charge électrique est contrôlée. En revanche, la distribution granulométrique des aérosols est polydispersée, aucun contrôle de la charge électrique des particules n'est effectué. De plus, l'humidité relative n'est pas mesurée et leur dispositif de génération d'aérosol via des fours à 400 °C laisse penser que les humidités relatives sont très faibles. Bien que les auteurs mettent en évidence une augmentation de l'efficacité de collecte lorsque la charge électrique de la goutte augmente, il est impossible de statuer de la pertinence d'un modèle théorique avec ces mesures - d'autant plus que les gouttes n'ont pas toutes atteintes leur vitesse terminale ;

- Leong et al. (1982) étudient l'influence de la thermophorèse et de la diffusiophorèse sur l'efficacité de collecte d'aérosols. Dans leurs travaux, la distribution en taille de l'aérosol est monodispersée et sa distribution de charge suit une distribution de Boltzmann après son passage dans un neutraliseur. La distribution en taille des gouttes est, elle-aussi, monodispersée et une technique est utilisée afin de disposer uniquement de gouttes électriquement neutres. Pour ce faire, les gouttes passent à travers un condensateur permettant de dévier leur trajectoire suivant leur charge électrique. Cette technique n'est néanmoins pas parfaite, les auteurs déterminent que les gouttes de rayon 56 μm possédant jusqu'à 10^4 charges élémentaires n'étaient pas suffisamment déviées pour être supprimées du train de gouttes. Ainsi, un biais dans leurs mesures est possible du fait d'une contribution des forces électrostatiques mal contrôlée ;
- Barlow et Latham (1983) utilisent des gouttes de distribution en taille monodispersée dont la charge est contrôlée via un potentiel électrique sur l'aiguille hypodermique qu'ils utilisent. La charge des aérosols est supposée suivre une distribution de Boltzmann dès lors que les auteurs utilisent une source radioactive pour les neutraliser. Le problème dans leur système, qui rend leurs mesures difficilement exploitables, vient de la distribution granulométrique des aérosols. Barlow et Latham génèrent le flux d'aérosol en faisant évaporer un nuage de gouttes (de tailles différentes) contenant une concentration connue du soluté choisi. Une fois ces gouttes évaporées, la distribution de l'aérosol résiduel est très dispersée - en témoigne la distribution granulométrique présentée par les auteurs allant d'un rayon de 0,1 à 1,5 μm , pour un maximum vers 0,5 μm . Une deuxième critique de leurs mesures vient de l'humidité relative qui, bien que mesurée, n'est pas contrôlée. Dans l'ensemble des mesures, l'humidité relative varie entre 50 et 70 %. Leurs mesures peuvent donc difficilement être prises comme valeurs de références ;
- Dans leur étude, Wang et al. (1983) contrôlent soigneusement les tailles et les charges sur les particules et les gouttes. Leurs mesures d'efficacité sont en excellent accord avec la corrélation de Kraemer et Johnstone (1955). De plus, les auteurs étudient l'influence de l'hydrophobie des particules, ne montrant aucun effet sur les mesures d'efficacité. Deux critiques sont néanmoins possibles concernant leurs travaux. Les auteurs ne renseignent pas la valeur de l'humidité relative qui, très basse, peut avoir surestimé la contribution des forces électrostatiques qu'ils mettent en évidence. Ce point est néanmoins justifiable par le fait que les auteurs considèrent des forces électrostatiques très importantes, avec des charges sur la goutte à un tiers de la limite de Rayleigh, ce qui permet probablement aux auteurs de négliger l'influence de l'humidité relative. Ensuite, les mesures d'efficacité sont faites avec des charges de polarité opposée entre la goutte et l'aérosol. Les variations de l'efficacité de collecte mettent uniquement en évidence les interactions coulombiennes attractives entre la particule et la goutte. La formulation des effets électrostatiques suivant l'Équation 1-12 n'est donc aucunement validée par les mesures des auteurs ;
- Les mesures de Byrne et Jennings (1993) sont faites avec des gouttes et des aérosols dont la distribution en taille est monodispersée et des charges électriques connues. Les auteurs mesurent notamment une augmentation significative des efficacités de collecte lorsque la charge sur la goutte augmente, la charge sur les particules étant fixée. Néanmoins, leurs mesures sont critiquables dès lors que la vitesse de chute des gouttes dans le tube d'interaction avec les aérosols n'est qu'à 75 % de leur vitesse terminale. De plus, comme Wang et al. (1983) et Wang et Pruppacher (1977), les auteurs chargent les aérosols de polarité opposée à la charge des gouttes de manière à étudier uniquement les interactions coulombiennes attractives. Les hypothèses faites pour formuler l'Équation 1-12 ne sont, là-aussi, pas vérifiables ;
- Les mesures de Ladino et al. (2011) ont été réalisées avec un aérosol et des gouttes possédant des distributions en taille monodispersées à une humidité relative contrôlée de 88 %. Par contre, les auteurs n'ont aucun contrôle sur les charges électriques de l'aérosol et des gouttes. Néanmoins, les particules étant sélectionnées via un DMA (Differential Mobility Analyzer), leur charge électrique est d'une charge élémentaire. Ladino et al. (2011) utilisent un modèle de générateur qui confère une charge électrique quasi-nulle aux gouttes. Pour autant, les auteurs supposent le fait que les gouttes puissent porter une centaine de charges élémentaires. Bien que faible, une telle charge suffit, avec une seule charge élémentaire sur les aérosols, pour augmenter l'efficacité de collecte pour les tailles de goutte qu'ils

considèrent - comme Tinsley et Zhou (2015) le prédisent dans leur modèle. Une critique importante vient de la fréquence de génération des gouttes qu'ils utilisent, de 1000 Hz, qui est sujette à deux interrogations. Premièrement, avec une telle fréquence, la distance inter-goutte est extrêmement proche et la coalescence devient probable. De plus, l'humidité relative étant à 88 %, Ladino et al. (2011) déterminent théoriquement que les gouttes de 12,8 μm s'évaporent jusqu'à atteindre un rayon de 4,2 μm en partie basse de leur chambre d'interaction. Cette évaporation importante induit une diminution de la vitesse terminale des gouttes. Ainsi, l'espacement entre les gouttes diminue au cours de leur chute, favorisant encore plus les effets de sillage et la coalescence entre les gouttes. À noter que Ardon-Dryer et al. (2015) ont tenu compte de ce problème et considèrent des fréquences de 30 Hz seulement, même si les technologies utilisées entre les auteurs sont différentes. Deuxièmement, la distance inter-goutte est si faible que le renouvellement en aérosol est difficile. Ainsi, même si la concentration en aérosol au sein de la chambre est constante, dans le volume d'interaction effectif entre les gouttes et les aérosols, la concentration diminue fortement au cours du temps. C'est d'ailleurs pour cette raison que Byrne et Jennings (1993) baissent volontairement la fréquence d'entrée des gouttes dans la chambre en utilisant une technique analogue à celle de Leong et al. (1982). Byrne et Jennings font passer les gouttes à travers un condensateur relié à un potentiel pulsé qui permet de dévier une partie des gouttes qui n'entreront pas dans la chambre d'interaction. Pour toutes ces raisons, les mesures de Ladino et al. (2011) doivent être considérées avec prudence ;

- Alors que dans les précédents travaux examinés, les auteurs mesurent l'efficacité de collecte par des analyses *ex situ* (boîtes de Pétri, spectrométrie de fluorescence, spectrométrie de masse, etc.), Ardon-Dryer et al. (2015) ont développé une méthode d'obtention de l'efficacité de collecte en ligne. Les distributions en taille des gouttes et des particules sont monodispersées. En bas de leur chambre d'interaction, les gouttes sont séchées puis passées à travers un spectromètre de masse avec le flux d'aérosol composé de billes de Latex. Du sulfate d'ammonium est ajouté aux gouttes, ce qui permet, une fois évaporées, d'avoir un aérosol résiduel différentiable des billes de Latex. Le spectromètre de masse analyse une particule à la fois. Si une particule contient du sulfate d'ammonium et les composés chimiques du Latex, la particule est considérée comme une ancienne goutte ayant collecté un aérosol durant sa chute. Néanmoins, leur dispositif n'est pas adapté pour étudier les forces électrostatiques dès lors que la charge électrique des gouttes est neutralisée (via une source radioactive) mais aucunement contrôlable. De plus, Ardon-Dryer et al. (2015) mesurent la charge des gouttes après neutralisation, montrant une charge résiduelle de 400 ± 400 charges élémentaires. Comme dans les mesures de Ladino et al. (2011), l'aérosol n'est pas neutralisé en sortie de DMA, possédant une charge élémentaire, ce qui présuppose une forte contribution des effets électrostatiques dans leurs mesures. Finalement, le point le plus critiquable des mesures d'Ardon-Dryer et al. (2015) concerne la convergence des efficacités de collecte mesurées qui est le résultat d'un millier de gouttes analysées pour moins de 10 particules collectées (un exemple est illustré pour 1189 gouttes et 5 aérosols capturés). La convergence statistique semble insuffisante pour considérer leurs mesures comme efficacités de collecte de référence.

Pour valider un modèle lagrangien qui tient notamment compte de la représentation générale des forces électrostatiques (Équation 1-12), de nouvelles mesures d'efficacité doivent être réalisées - venant combler un manque de la littérature.

Tableau 1-3 Mesures en laboratoire d'efficacité de collecte.

Référence	Distribution granulométrique		Charge électrique		Humidité relative (%)
	Rayon goutte (µm)	Rayon aérosol (µm)	Goutte (e)	Aérosol (e)	
Adam et Semonin (1971)	200	0,7 x 1,2 (Spores)	Non contrôlée ≈10 ⁷ (Beard, 1974)	Non contrôlée ≈60 (Beard, 1974)	Non contrôlée
Beard (1974)	200-425	0,35-0,44 ± 0,04	10 ⁴ -10 ⁶	Non contrôlée	99
Wang et Pruppacher (1977)	170-340	0,25 ± 0,03	10 ⁶	9 et 15 ± 2	23 ± 2
Lai et al. (1978)	620 et 820	Dispersée 0,15-0,45	10 ⁷ -10 ⁸	Non contrôlée	Non contrôlée
Leong et al. (1982)	56-93	0,58-3,2	Mal contrôlée 10 ⁴ -10 ⁵	≈0	30
Barlow et Latham (1983)	270-600	Dispersée 0,2-1	10 ⁴ -10 ⁷	≈0	Non contrôlée 50-70
Wang et al. (1983)	69-250	0,038-0,1	10 ⁷ -10 ⁸	1-13,5	Non contrôlée
Byrne et Jennings (1993)	400-500	0,35-0,88	10 ⁵ -10 ⁸	360-750	57
Ladino et al. (2011)	12,8-20	0,05-0,33	≈0	1	88 ± 2
Ardon-Dryer et al. (2015)	21,6	0,025-0,475	400 ± 400	1	15 et 88 ± 3

1.5 RÉSUMÉ DU CHAPITRE 1

Au sein d'un nuage, des gouttes de rayon inférieur à 100 μm interagissent avec des particules submicroniques pouvant néanmoins atteindre quelques micromètres. Parmi, la multitude de mécanismes microphysiques qui lient ces deux entités, le processus de collecte requiert une attention particulière dans notre étude. Ce dernier peut être décrit à l'échelle microphysique à travers un paramètre nommé « efficacité de collecte » qui caractérise l'aptitude des gouttes à capturer dans leur chute des aérosols environnants. Un tel paramètre intègre l'ensemble des forces et effets capables de perturber les trajectoires des particules pour, à terme, influencer leur collecte par les gouttes. Par exemple l'inertie des particules ou bien leur diffusion brownienne qui vont inciter les particules micrométriques et nanométriques, respectivement, à entrer en contact avec les gouttes. Une représentation simplifiée de l'efficacité de collecte est alors un profil en « V » avec un minimum appelé « Greenfield Gap » (Greenfield, 1957). Dans cette région où les contributions de ces deux mécanismes sont faibles, d'autres processus prennent part à la collecte. Au sein du nuage, c'est notamment le cas des gradients de température et de masse volumique de vapeur dans l'air qui, à proximité d'une goutte qui s'évapore, perturbent intensément la collecte des particules en induisant les forces respectives de thermophorèse et de diffusiophorèse.

Les gouttes de nuage sont connues pour être électriquement chargées - significativement dans les nuages convectifs, plus modérément dans les nuages stratiformes mais avec des niveaux de charge aucunement négligeables. L'aérosol atmosphérique est, lui-aussi, amené à porter des charges électriques bien que sa distribution de charge s'apparente à une distribution de Boltzmann - de charge électrique moyenne nulle. Les forces électrostatiques peuvent donc avoir une forte influence sur la collecte d'un aérosol, d'autant plus lorsque celui-ci est radioactif. En effet, la littérature est abondamment documentée sur le chargement des aérosols radioactifs qui a été mis en équation par Clement et Harrison (1992) et qui a fait l'objet des plusieurs validations expérimentales. Grâce à leur modèle, 600 charges élémentaires ont été évaluées sur les radionucléides issus des premiers rejets de l'accident du CNPE-FD (2011), caractérisés par Adachi et al. (2013).

Actuellement, il existe plusieurs évaluations théoriques de l'efficacité de collecte suivant les effets électrostatiques, notamment, les corrélations de Kraemer et Johnstone (1955) et de Nielsen et Hill (1976) qui sont très faciles d'implémentation. Néanmoins, elles ne représentent que les interactions coulombiennes attractives qui peuvent exister entre une particule et une goutte. Une approche plus rigoureuse revient à considérer une charge ponctuelle, image de la particule à l'intérieur de la goutte. Le terme qui en résulte dans les forces électrostatiques - le terme Image-Attractif-Faible-Distance (IAFD) dans l'Équation 1-12 - est toujours attractif et augmente l'efficacité de collecte. Les deux corrélations ne sont aussi que des modèles d'efficacités élémentaires, uniquement valables pour des charges électriques très importantes sur la goutte et les particules où les effets électrostatiques dominent la collecte. Pour des charges électriques modérées, là où les autres mécanismes microphysiques ne sont plus négligeables devant les effets électrostatiques, les efficacités de collecte sont mal évaluées suivant ces deux corrélations. Ainsi, les modèles lagrangiens, bien que plus complexes, sont l'unique solution pour disposer d'une bonne évaluation de ce paramètre. Le modèle actuel qui permet de décrire au mieux l'efficacité de collecte est celui développé par le Professeur Tinsley et ses collaborateurs depuis les années 2000. Les auteurs modélisent aussi bien la représentation générale des forces électrostatiques que la thermophorèse, la diffusiophorèse, le poids des particules, leur inertie ainsi que leur mouvement brownien. En revanche, les auteurs se limitent à des tailles de goutte inférieures à 15 μm et à de faibles charges électriques sur la goutte et les particules. Ainsi, la littérature manque à ce jour d'efficacités de collecte théoriques couvrant l'ensemble du spectre granulométrique des gouttes de nuage, mais aussi pour des charges électriques sur les gouttes et les aérosols respectivement représentatives des nuages et des aérosols radioactifs. De nouvelles efficacités de collecte doivent alors être calculées, nécessitant l'implémentation d'un nouveau modèle lagrangien inspiré du modèle de Tinsley qui fera l'objet du CHAPITRE 2. Par contre, la représentation qu'ils font du mouvement brownien des particules est perfectible et nécessite une nouvelle approche basée sur celle de Langevin (1908).

En laboratoire, de nombreux auteurs ont aussi mis expérimentalement en exergue l'influence des forces électrostatiques, de la thermophorèse et de diffusiophorèse dans l'augmentation des efficacités de collecte. Il est pourtant difficile de comparer les mesures disponibles dans la littérature entre elles, dès lors que les paramètres d'influence varient. Des auteurs ont néanmoins confronté les

mesures et souligné une grande disparité de plus d'un ordre de grandeur. Ce constat est le même aussi bien pour les mesures étudiant les forces électrostatiques que celles observant la thermophorèse et la diffusiophorèse. De plus, en examinant les protocoles expérimentaux, on s'aperçoit de difficultés rencontrées par les auteurs à contrôler, dans une même expérience, les tailles et les charges électriques des gouttes et des particules, l'humidité relative et la vitesse de chute des gouttes. Cependant, Wang et Pruppacher (1977) et Wang et al. (1983) réussissent à maîtriser tous les paramètres afin d'étudier les effets électrostatiques mais se limitent à des charges électriques de polarité opposée sur les gouttes et les particules. Ils ne mettent en évidence que les effets coulombiens attractifs. Finalement, il n'existe actuellement aucune mesure dans la littérature étudiant les effets électrostatiques de manière contrôlée, illustrant notamment le terme IAFD de l'Équation 1-12. La représentation générale des forces électrostatiques est, à ce jour et à la revue de littérature effectuée, aucunement validée par l'expérience.

Dans l'optique d'étudier l'impact des forces électrostatiques à méso-échelle via l'incorporation de nouvelles efficacités de collecte théoriques dans un modèle de nuage - CHAPITRE 4 - une validation expérimentale doit être effectuée. Comme la littérature manque de données de référence, une expérience a été construite et fera l'objet du CHAPITRE 3.

CHAPITRE 2

MODELE MICROPHYSIQUE DE CAPTURE DE PARTICULES PAR UNE GOUTTE MICRONIQUE - INFLUENCE DES CHARGES ELECTRIQUES ET DE L'HUMIDITE RELATIVE

2.1 INTRODUCTION

Ce chapitre présente la démarche employée pour modéliser la capture d'aérosol par une goutte de nuage. Ce modèle repose sur un suivi lagrangien de particules assujetties à leur mouvement brownien tout en combinant l'action des forces de diffusiophorèse, de thermophorèse, électrostatiques avec les effets mécaniques tels que l'inertie des particules, leur poids et la force de traînée. De là, des efficacités de collecte sont calculées pour des tailles et des charges électriques sur les gouttes et l'aérosol qu'on retrouve dans les nuages. Le cas d'un aérosol très chargé - caractéristique de l'aérosol radioactif émis après l'accident du CNPE-FD (2011) - est aussi présenté. Ce chapitre fait l'objet d'une publication (Dépée et al., 2019).

2.1.1 HYPOTHESES DE MODÉLISATION

L'aérosol est composé de particules de même taille, de rayon (a) compris entre 4 nm et 1,3 μm , ce qui permet d'englober le mode accumulation (Whitby, 1973). Le rayon (A) des gouttes varie entre 15 et 100 μm balayant la distribution granulométrique des gouttes de nuage. À ces tailles, les gouttes sont des sphères puisqu'aucune déformation n'est mesurable avant 140 μm (Pruppacher et Beard, 1970). Par pragmatisme, les particules sont, elles aussi, traitées comme des sphères. La goutte est supposée chuter à sa vitesse terminale.

Les granulométries considérées dans l'étude permettent de satisfaire à un rapport $m_p/m_g < 10^{-3}$ - où m_p et m_g sont respectivement les masses de la particule et de la goutte - condition nécessaire à la validité des deux hypothèses suivantes :

- La trajectoire de la goutte n'est aucunement perturbée par l'écoulement de l'air autour d'une particule (Tinsley et al., 2006) ;
- La force électrostatique d'une particule sur la goutte n'a aucune incidence sur la trajectoire de la goutte (Grover et Beard, 1975).

Aussi, d'autres hypothèses ont besoin d'être formulées pour la validité du modèle :

- La turbulence dans le nuage est négligée, bien qu'un effet sur la distribution spatiale et la trajectoire de l'aérosol et des gouttes soit possible (Shaw, 2003) ;
- Les gouttes sont considérées comme des collecteurs simples. Cette hypothèse est justifiée par les faibles concentrations rencontrées dans un nuage - de l'ordre de 50 cm^{-3} (Squires et Twomey, 1958). Ainsi, la distance moyenne entre deux gouttes est bien supérieure à l'épaisseur moyenne de la couche limite dynamique autour de chacune d'elles. Les gouttes interfèrent donc statistiquement très peu entre elles et peuvent être considérées comme indépendantes ;
- LeClair et al. (1972) ont étudié théoriquement et expérimentalement les recirculations internes d'une goutte. Les auteurs ont montré que pour des nombres de Reynolds inférieurs à 10, l'écoulement extérieur n'est pas sensible aux recirculations internes et le coefficient de traînée diffère de moins de 1 % considérant une sphère rigide ou fluide. Plus récemment, Oliver et Chung (1987) ont validé et étendu cette affirmation jusqu'à des nombres de Reynolds de 50. Dans cette étude, les gouttes sont donc modélisées par des sphères rigides dès lors que le nombre de Reynolds maximum considéré est 7,43 ($A = 100 \mu\text{m}$) ;
- Les collisions inter-particules et leur coalescence sont négligées ;
- Le coefficient de rétention de particules par la goutte est égal à l'unité (Weber, 1969). C'est-à-dire, qu'un contact particule/goutte mène systématiquement à la capture de la particule par la goutte (absence de rebond) et ce, quelles que soient les propriétés physico-chimiques de l'aérosol et les caractéristiques de la goutte (masse volumique, diamètre, forme, masse, tension de surface, viscosité, etc.).

2.2 DESCRIPTION DU MODÈLE

Cette partie décrit la modélisation microphysique implémentée afin de déterminer l'efficacité de capture d'un aérosol par une goutte.

2.2.1 DESCRIPTION GENERALE DU MODELE

Le calcul de l'efficacité de collecte est évalué par un suivi lagrangien des particules autour d'une goutte chutant dans l'air à sa vitesse terminale. Dès lors, on se place dans le référentiel de la goutte qui est ici galiléen. Le repère cartésien $R_c(X, Y, Z)$ est défini pour suivre la phase aérosol tandis qu'un repère polaire $R_p(r^*, \theta)$ est utilisé pour modéliser l'écoulement d'air autour de la goutte (voir 2.2.2) où le centre de la goutte est l'origine des repères - visible sur la Figure 2-1. Les particules sont injectées, dans le domaine de calcul, à l'intérieur d'un disque fixé à huit rayons de goutte (A) en amont de celle-ci et centré sur l'axe de symétrie de l'écoulement (noté Z sur la Figure 2-1). Ce disque sera nommé par la suite disque d'injection (Dsc_{inj}). A cette distance, l'écoulement d'air est supposé au repos, de vitesse égale à la vitesse terminale de la goutte. Il a été vérifié qu'augmenter cette distance n'a pour effet que d'accroître le temps de calcul.

Une fois la position et la vitesse des particules initialisées, les particules quittent le disque d'injection en direction de la goutte. Chaque trajectoire est alors calculée en tenant compte des forces citées précédemment et du mouvement brownien des particules. Suivant les conditions de collecte explicitées en section 2.2.3.2, le modèle détermine quelles particules sont capturées par la goutte et quelles sont celles sorties du domaine de calcul - situé à une distance de 6 rayons de goutte en aval de celle-ci (Figure 2-1).

L'efficacité de collecte est finalement déduite comme le rapport du nombre de particules capturées par la goutte durant une simulation sur le nombre de particules initialement comprises dans la partie du disque d'injection correspondant à la section efficace de collecte ($Dsc_{inj_{a+A}}$).

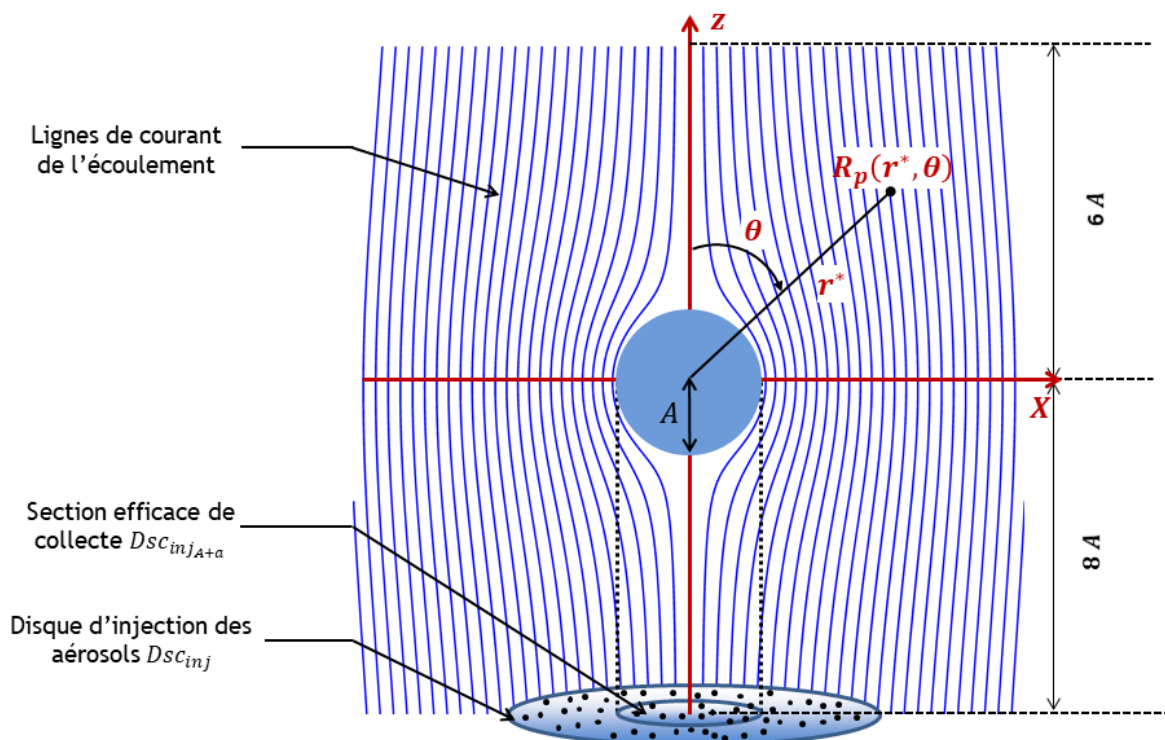


Figure 2-1 Domaine de calcul - position initiale du disque d'injection (Dsc_{inj}) des particules et écoulement d'air autour de la goutte de $15 \mu\text{m}$ (échelle non respectée).

2.2.2 MODELISATION DE L'ÉCOULEMENT D'AIR AUTOUR DE LA GOUTTE

Bien que le mouvement brownien nécessite de considérer un domaine de calcul à trois dimensions, deux suffisent pour modéliser l'écoulement d'air autour de la goutte. En effet, pour les tailles de gouttes considérées ($A \leq 100 \mu\text{m}$, $Re \leq 7,43$), l'écoulement est purement axisymétrique (Pruppacher et Klett, 1997, section 10.2). Dès lors, à chaque pas de temps et pour chaque particule, la vitesse de l'écoulement d'air à la position de la particule ($U_{f@p}$) est calculée dans le plan contenant l'aérosol et l'axe de symétrie de l'écoulement (Z sur la Figure 2-1).

L'évaluation de l'écoulement d'air se fait suivant deux approches :

- L'utilisation de solutions analytiques des équations de Navier-Stokes pour des nombres de Reynolds inférieurs à 0,2 ($A < 30 \mu\text{m}$) ;
- La simulation de l'écoulement d'air via un solveur numérique pour des nombres de Reynolds supérieurs à 0,2.

2.2.2.1 RÉSOLUTION ANALYTIQUE

Pour de faibles nombres de Reynolds ($Re \ll 1$), le terme non linéaire dans les équations de Navier-Stokes est négligé. Il existe alors une solution analytique à ces équations - on parle d'écoulement de Stokes. Cette résolution repose sur le postulat qu'en chaque point de l'écoulement les effets inertiels peuvent être négligés devant les effets visqueux. Cette hypothèse est justifiée proche de la goutte, mais perd rapidement en validité lorsqu'on s'en éloigne - c'est le paradoxe de Stokes.

Or, dans l'approche lagrangienne déployée pour calculer des efficacités de collecte, il est essentiel d'estimer précisément les écoulements, et ce, pour des distances aussi bien proches qu'éloignées de l'interface. Ainsi, la solution analytique dérivée par Oseen (1910) est préférée - ne négligeant pas complètement le terme convectif des équations de Navier-Stokes mais le linéarisant (Équations 2-1) :

$$\begin{cases} U_{f@p}(t)|_{r^*,OS} = -U_{\infty,A} \cos \theta \left(1 + \frac{1}{2r^{*3}}\right) - \frac{3U_{\infty,A}}{Re r^{*2}} \left[e^{-\frac{r^* Re}{4}(1+\cos \theta)} \left(\frac{r^* Re}{4}(1 - \cos \theta) + 1\right) - 1 \right] \\ U_{f@p}(t)|_{\theta,OS} = U_{\infty,A} \sin \theta \left[\left(1 - \frac{1}{4r^{*3}}\right) - \frac{3}{4r^*} e^{-\frac{r^* Re}{4}(1+\cos \theta)} \right] \end{cases}$$

Équations 2-1

Avec $U_{\infty,A}$ la vitesse terminale d'une goutte de rayon A , de nombre de Reynolds Re , $r^* = r/A$ et θ respectivement la distance normalisée de la particule au centre de la goutte et l'angle entre la particule et l'axe Z sur la Figure 2-1). $U_{f@p}(t)|_{r^*,}$ et $U_{f@p}(t)|_{\theta}$ sont respectivement les vitesses radiale et orthoradiale. À noter que cette expression est utilisée loin de la goutte ($r^* > 5$) du fait de vitesses tangentielles et radiales non nulles à l'interface ($r^* = 1$ et $Re \neq 0$). *A fortiori*, une extension asymptotique entre les expressions de Stokes et Oseen est alors privilégiée proche de la goutte ($r^* < 2$) - l'expression de Proudman-Pearson (1957) (Équations 2-2) :

$$\begin{cases} U_{f@p}(t)|_{r^*,PP} = -U_{\infty,A} \cos \theta \left(1 - \frac{3}{2r^*} + \frac{1}{2r^{*3}}\right) \left(1 + \frac{3}{16} Re\right) - \frac{3U_{\infty,A} Re}{16} \left(\cos^2 \theta - \frac{\sin^2 \theta}{2}\right) \\ \quad \left(1 - \frac{3}{2r^*} + \frac{1}{2r^{*2}} - \frac{1}{2r^{*3}} + \frac{1}{2r^{*4}}\right) \\ U_{f@p}(t)|_{\theta,PP} = U_{\infty,A} \sin \theta \left[\left(1 - \frac{3}{4r^*} - \frac{1}{4r^{*3}}\right) \left(1 + \frac{3}{16} Re\right) \right. \\ \quad \left. + \frac{3U_{\infty,A} Re}{16} \cos \theta \left(1 - \frac{3}{4r^*} + \frac{1}{4r^{*2}} - \frac{1}{4r^{*3}} - \frac{1}{4r^{*4}}\right) \right] \end{cases}$$

Équations 2-2

Dans la région intermédiaire ($2 \leq r^* \leq 5$), les expressions d'Oseen (1910) et Proudman-Pearson (1957) sont raccordées par continuité, comme dans les travaux Tinsley et al. (2006) (Équation 2-3) :

$$U_{f@p}(t)|_{OS\&PP} = \left(\frac{1}{3}r^* - \frac{2}{3}\right) U_{f@p}(t)|_{OS} + \left(\frac{5}{3} - \frac{1}{3}r^*\right) U_{f@p}(t)|_{PP} \quad \text{Équation 2-3}$$

La vitesse terminale de la goutte $U_{\infty,A}$ et le nombre de Reynolds Re sont tous deux évalués par l'intermédiaire du modèle de Beard (1976). L'écoulement d'air autour de la goutte de rayon $15 \mu\text{m}$ ($U_{\infty,A} = 3,01 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ et $Re = 0,04$) sur la Figure 2-1 provient de ce système d'équations analytiques.

2.2.2.2 SIMULATION NUMERIQUE

Pour des nombres de Reynolds supérieurs à 0,2 ($A \geq 30 \mu\text{m}$), les hypothèses formulées à la section précédente ne sont plus justifiées. Le solveur numérique ANSYS CFX est alors utilisé pour simuler précisément l'écoulement d'air autour de la goutte. Le domaine de simulation s'étend de $-15A$ à $15A$ et de $0A$ à $20A$ sur les axes Z et X , respectivement, le maillage est post-traité afin d'obtenir une taille de cellule constante de $2 \times 10^{-2}A$. Notons que la convergence du maillage a été vérifiée. Au-delà des limites du domaine suivant l'axe X (Figure 2-1), l'écoulement est supposé homogène (et égal à la vitesse terminale de la goutte). Ainsi, si une particule quitte le domaine suivant l'axe X , la valeur du champ de vitesse à sa position est prise à la limite du domaine pour la même ordonnée Z .

Les vitesses terminales utilisées sont toujours issues du modèle de Beard (1976). Les simulations réalisées pour les quatre des six rayons de gouttes étudiés dans ce chapitre sont présentées sur la Figure 2-2 via les vecteurs vitesses unitaires et l'amplitude des vitesses. On peut remarquer un étirement de la couche limite dans le sillage de la goutte quand sa taille augmente.

À chaque pas de temps et pour chaque particule, des interpolations sont faites afin d'évaluer la vitesse de l'air à la position exacte de la particule.

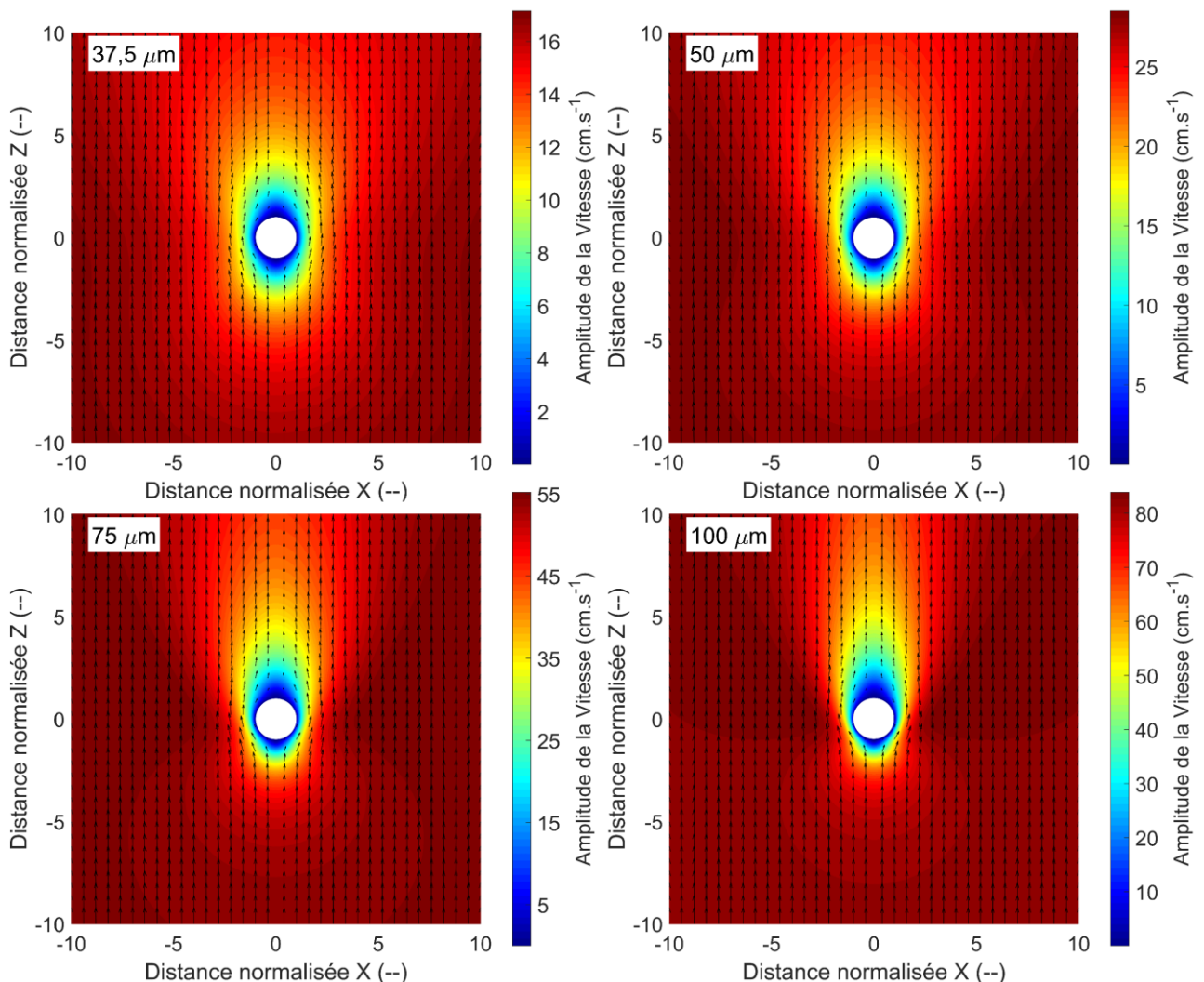


Figure 2-2 Écoulements d'air simulés - amplitude et direction - autour d'une goutte chutant à sa vitesse terminale. (Haut, gauche) $37,5 \mu\text{m}$ / $U_{\infty,A} = 17,4 \text{ cm.s}^{-1}$ / $Re = 0,59$
 (Haut, droite) $50 \mu\text{m}$ / $U_{\infty,A} = 28,8 \text{ cm.s}^{-1}$ / $Re = 1,30$ (Bas, gauche) $75 \mu\text{m}$ / $U_{\infty,A} = 54,8 \text{ cm.s}^{-1}$ / $Re = 3,70$ (Bas, droite) $100 \mu\text{m}$ / $U_{\infty,A} = 82,4 \text{ cm.s}^{-1}$ / $Re = 7,43$.

2.2.3 MODELE DE CAPTURE UNITAIRE 3D

L'Annexe B présente une première étude microphysique des effets électrostatiques sur la collecte qui prévoit une forte influence sur l'efficacité de collecte. Pour autant, ce modèle 2D ne prend en compte ni le poids, ni l'inertie des particules, alors que leur influence sur la collecte n'est pas négligeable (Zhang et al., 2018 ; Zhang et Tinsley, 2018). De plus, pour une modélisation microphysique plus rigoureuse, il convient de considérer les trois dimensions de l'espace pour décrire le mouvement brownien des particules, dès lors que leur rayon ($a \in [4 \text{ nm} ; 1,3 \mu\text{m}]$) est parfois bien inférieur au libre parcours moyen des molécules dans l'air ($\lambda_{air} = 104 \text{ nm}$ en troposphère moyenne).

2.2.3.1 SUIVI LAGRANGIEN DES PARTICULES

Le suivi des particules se fait par une approche lagrangienne stochastique où vitesse et position de chaque particule sont mises à jour à chaque pas de temps. La trajectoire des particules est obtenue à l'aide des équations de Langevin (1908), utilisées dans plusieurs travaux récents (Minier et Peirano, 2001 ; Mohaupt et al., 2011 ; Henry et al., 2014 ; Cherrier et al., 2017) (Équations 2-4) :

$$\begin{cases} d\vec{X}_p(t) = \vec{U}_p(t)dt \\ d\vec{U}_p(t) = \underbrace{\frac{\vec{U}_{f@p}(t) - \vec{U}_p(t)}{\tau_p}}_{\textcircled{1}} dt + \underbrace{B_v d\vec{W}_t}_{\textcircled{2}} \end{cases} \quad \text{Équations 2-4}$$

Où $\vec{X}_p(t)$ et $\vec{U}_p(t)$ sont respectivement les vecteurs position et vitesse de la particule à l'instant t . B_v et τ_p sont respectivement le coefficient lié à la diffusion des particules due au mouvement brownien et le temps de relaxation des particules, définis en Annexe A.

Le système d'Équations 2-4 modélise à la fois la force de friction de l'écoulement sur la particule via le terme $\textcircled{1}$, mais aussi le mouvement brownien de la particule avec le terme $\textcircled{2}$ où $d\vec{W}_t$ est l'incrément du processus de Wiener (W_t). Ces propriétés mathématiques sont caractéristiques des propriétés physiques du mouvement brownien :

- Sa moyenne est nulle $\langle \overline{d\vec{W}_t} \rangle = \vec{0}$, témoignant d'une équiprobabilité de la marche aléatoire dans un milieu isotrope et homogène ;
- Les incréments entre deux pas de temps $\overline{d\vec{W}_t}$ et $\overline{d\vec{W}_{t+\Delta t}}$ sont indépendants, donc de corrélation $\langle \overline{d\vec{W}_{t+\Delta t}}, \overline{d\vec{W}_t} \rangle$ nulle, du fait des échelles de temps considérées. Soit τ_c le temps de corrélation à partir duquel $\langle \overline{d\vec{W}_{t+\tau_c}}, \overline{d\vec{W}_t} \rangle$ est très petit. Une particule sujette au mouvement brownien voit sa vitesse varier dans le temps et s'amortir, en moyenne, en un temps τ_v de l'ordre de 10^{-8} s. Sachant que la variation de la force aléatoire est de l'ordre de 10^{-13} s, τ_c est donc beaucoup plus petit que τ_v (Tannièrre, 2010). Ainsi, une multitude de chocs particule/molécules d'air a lieu durant le pas de temps utilisé pour calculer la trajectoire ($\Delta t \geq \tau_v$), ce qui implique nécessairement l'indépendance de $\overline{d\vec{W}_t}$ et $\overline{d\vec{W}_{t+\Delta t}}$.

L'expression analytique de la trajectoire des particules autour d'une goutte peut être établie par discrétisation de l'équation de Langevin via une méthode d'intégration stochastique d'Itô (Itô et McKean, 1965). La résolution du système d'Équations 2-4 est donnée par Minier et Peirano (2001) (Équations 2-5) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \overrightarrow{X}_p(t + \Delta t) = \overrightarrow{X}_p(t) + \overbrace{\overrightarrow{U}_p(t)\tau_p \left(1 - e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right)}^{①} + \overbrace{\overrightarrow{U}_{f@p}(t) \left[\Delta t - \tau_p \left(1 - e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right)\right]}^{②} \\ \quad + B_v \tau_p \sqrt{\frac{2\tau_p \left(1 - e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right)}{\left(1 + e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right)}} \overrightarrow{\xi}_\chi + B_v \tau_p^2 \frac{\left(1 - e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right)^2}{\sqrt{2\tau_p \left(1 - e^{-\frac{2\Delta t}{\tau_p}}\right)}} \overrightarrow{\xi}_v \\ \overrightarrow{U}_p(t + \Delta t) = \underbrace{\overrightarrow{U}_p(t)e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}}_{①} + \underbrace{\overrightarrow{U}_{f@p}(t) \left(1 - e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right)}_{②} + B_v \underbrace{\sqrt{\frac{\tau_p}{2} \left(1 - e^{-\frac{2\Delta t}{\tau_p}}\right)}}_{③} \overrightarrow{\xi}_v \end{array} \right. \quad \text{Équations 2-5}$$

Avec $(\overrightarrow{\xi}_\chi, \overrightarrow{\xi}_v)$ - deux vecteurs de variables aléatoires et indépendantes suivant une loi normale $\mathcal{N}(0,1)$ pour les trois directions de l'espace générées par méthode Box-Muller (1958).

Cette expression analytique, applicable dans une approche lagrangienne, possède le fort avantage d'être valable pour tout pas de temps Δt , c'est-à-dire :

- Pour les faibles pas de temps ($\Delta t \ll \tau_p$) définissant le régime balistique pour les particules inertielles ($a \approx 1 \mu\text{m}$) ;
- Pour les grands pas de temps ($\Delta t \gg \tau_p$) qui sont caractéristiques du régime diffusif auquel appartiennent les particules browniennes ($a \ll 1 \mu\text{m}$).

Dans les Équations 2-5, les termes ①, ② et ③ permettent de modéliser respectivement l'inertie de la particule, la force de traînée et le mouvement brownien. Ce schéma analytique est utilisé pour déterminer l'efficacité de collecte, comme étudié par Cherrier et al. (2017).

Afin d'étudier l'influence des forces électrostatiques (F_{el} , Équation 1-12), mais aussi de la diffusiophorèse (F_{df} , Équation 1-7), de la thermophorèse (F_{th} , Équation 1-6) et de la force de flottabilité ($F_{fl,p}$, poids et poussée d'Archimède) sur l'efficacité de collecte, ces forces sont ajoutées aux équations de Langevin (Équations 2-6) :

$$\left\{ \begin{array}{l} d\overrightarrow{X}_p(t) = \overrightarrow{U}_p(t)dt \\ d\overrightarrow{U}_p(t) = \frac{\overrightarrow{U}_{f@p}(t) - \overrightarrow{U}_p(t)}{\tau_p} dt + B_v d\overrightarrow{W}_t + \frac{dt}{m_p} (\overrightarrow{F}_{df} + \overrightarrow{F}_{el} + \overrightarrow{F}_{th} + \overrightarrow{F}_{fl,p}) \end{array} \right. \quad \text{Équations 2-6}$$

Le suivi des particules se fait donc en appliquant les Équations 2-5 après un changement de variable. La vitesse de l'écoulement d'air à la position de la particule ($U_{f@p}$) est remplacée par la vitesse résultante (Équation 2-7) ressentie par la particule du fait de l'écoulement d'air et des forces ajoutées ($U_{f@p}^*$) :

$$\overrightarrow{U}_{f@p}^*(t) = \overrightarrow{U}_{f@p}(t) + \frac{\tau_p}{m_p} (\overrightarrow{F}_{df} + \overrightarrow{F}_{el} + \overrightarrow{F}_{th} + \overrightarrow{F}_{fl,p}) \quad \text{Équation 2-7}$$

2.2.3.2 CONDITIONS INITIALES ET CONDITIONS AUX LIMITES

2.2.3.2.1 DISQUE D'INJECTION

Le disque d'injection des particules est situé à 8 rayons de goutte où l'écoulement est supposé au repos (Figure 2-1). La vitesse initiale des particules est alors prise égale à la vitesse terminale de la goutte, en négligeant sa vitesse de sédimentation (de $3,7 \times 10^{-2} \text{ cm.s}^{-1}$ au maximum alors que la plus petite goutte considérée chute à $3,01 \text{ cm.s}^{-1}$) (Équation 2-8) :

$$\vec{U}_p(t=0) = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ U_{\infty,A} \end{bmatrix}_{(X,Y,Z)} \quad \text{Équation 2-8}$$

Le rayon du disque d'injection (R_{Dscinj}) est optimisé pour contenir toute particule susceptible d'être collectée par la goutte (Équation 2-9) :

$$R_{Dscinj} = \underbrace{A + a}_{\textcircled{1}} + \underbrace{x_{bro}}_{\textcircled{2}} + \underbrace{Ax_{max}}_{\textcircled{3}} \quad \text{Équation 2-9}$$

Chaque terme tient compte d'un ou plusieurs effets microphysiques menant à la capture d'une particule :

- Le terme $\textcircled{1}$ est le rayon de la section efficace de collecte ($Dscinj_{a+A}$, Figure 2-1), où les particules sont susceptibles d'être capturées du fait de l'impaction et de l'interception ;
- Le terme $\textcircled{2}$ considère le déplacement maximal des particules possible du fait de leur mouvement brownien durant un temps t_1 . Ce déplacement est calculé via l'équation de Fokker-Planck (Équation 2-10) :

$$P(x|x_0, t_1) = \frac{1}{\sqrt{4\pi D_b t_1}} e^{-\frac{(x-x_0)^2}{4D_b t_1}} \quad \text{Équation 2-10}$$

Où D_b est le coefficient de diffusion de Stokes-Einstein, x_0 la position initiale de la particule, t_1 le temps écoulé entre x_0 et x , $P(x|x_0, t_1)$ est la probabilité qu'une particule ait parcouru une distance inférieure de x sachant la position initiale x_0 après un temps t_1 . Ainsi, x_{bro} est évalué en supposant t_1 égal à la distance du disque d'injection à la goutte divisée par la vitesse terminale de celle-ci ($t_1 = 8A/U_{\infty,A}$) avec $P(x_{bro}|x_0, t_1) = 99,9 \%$ et x_0 mis à zéro. Cela signifie que le déplacement de 99,9 % des particules depuis l'injection jusqu'à la goutte, dû à la diffusion brownienne, sera inférieur à x_{bro} .

- Le terme $\textcircled{3}$ est évalué via le modèle lagrangien 2D explicité en Annexe B afin d'ajouter la distance maximale (x_{max}) de l'axe de la goutte (normalisée par le rayon de la goutte) où l'injection d'une particule mène à sa collecte grâce notamment aux forces de diffusiophorèse, de thermophorèse et électrostatiques.

2.2.3.2.2 NOMBRE DE PARTICULES INJECTEES

Chaque particule est aléatoirement injectée dans le disque d'injection ($Dscinj$) suivant une loi de probabilité de distribution uniforme. Initialement, la distribution surfacique de particule ($C_{s,p}$) dans le disque d'injection est établie afin que la section efficace de collecte ($Dscinj_{a+A}$ sur la Figure 2-1) compte au moins 1000 particules. Une première réalisation (=initialisation du disque d'injection et suivi des particules jusqu'à la collecte par la goutte ou la sortie du domaine de calcul) est effectuée afin de déterminer le nombre de particules collectées par la goutte ($N_{p,col}$). Si ce nombre est inférieur à 1000, la concentration surfacique ($C_{s,p}$) est augmentée jusqu'à obtenir 1000 collectes. Cette procédure permet de contrôler la convergence statistique de l'efficacité de collecte (voir section 2.3.4).

2.2.3.2.3 CONDITIONS DE COLLECTE

Une particule qui sort du domaine de calcul sans être collectée par la goutte est considérée comme manquée et son suivi est arrêté. Au contraire, si la particule touche la surface de la goutte, elle est collectée. Deux critères sont vérifiés à chaque pas de temps pour déterminer si une collecte a lieu :

- Une capture est considérée si à la fin d'un pas de temps (Équation 2-11) la distance entre les centres de la goutte et de la particule est inférieure à la somme des rayons :

$$d_{p,d}(t) = \sqrt{\sum_{i=1}^3 (X_{p,i}(t) - X_{d,i}(t))^2} \leq a + A \quad \text{Équation 2-11}$$

Où $X_{p,i}$ et $X_{d,i}$ sont respectivement la $i^{\text{ème}}$ coordonnée de l'espace de la position de la particule et de la goutte ($X_{d,i} = 0$ m, prise au centre du repère).

- Une capture aléatoire peut se produire à l'intérieur d'un pas de temps dû au mouvement brownien de la particule. Cette condition peut être formulée par le critère ci-dessous (Équation 2-12), basé sur la théorie des ponts browniens (Henry et al., 2014) :

$$\frac{e^{\left(\frac{2(a+A)(d_{p,d}(t)+d_{p,d}(t+\Delta t)-(a+A))}{B_v^2 \tau_p^2 \Delta t}\right)}}{\left[e^{\left(\frac{2d_{p,d}(t)d_{p,d}(t+\Delta t)}{B_v^2 \tau_p^2 \Delta t}\right)} - 1 \right]} \geq \lambda \quad \text{Équation 2-12}$$

Où $d_{p,d}(t)$ et $d_{p,d}(t + \Delta t)$ sont respectivement les distances entre la goutte et la particule au début et à la fin du pas de temps, λ est une variable aléatoire tirée d'une loi de probabilité de distribution uniforme.

En réalité, il n'y a pas deux mais trois critères utilisés dans le modèle afin de déterminer si une particule est collectée. Dès lors que les forces électrostatiques sont considérées, le terme Image-Attractif-Faible-Distance (IAFD, Équation 1-12) diverge proche de la goutte ($r^* \approx 1$) du fait du terme en $1/(r^* - 1)$. Aussi, au lieu de diminuer la valeur du pas de temps (Δt) vers des valeurs infinitésimales, augmentant considérablement le temps de calcul, une particule est aussi considérée comme collectée lorsqu'elle traverse la goutte entre deux pas de temps. Cette condition de collecte, même si elle est peu physique, est préférée à une réduction trop importante du pas de temps.

2.2.3.3 PAS DE TEMPS

Pour rappel (section 2.2.3.1), le schéma explicite utilisé pour le suivi de chaque particule est valable pour tout pas de temps afin de décrire aussi bien le régime balistique ($\Delta t \ll \tau_p$) que le régime diffusif ($\Delta t \gg \tau_p$) des particules. Quelques exemples de pas de temps pour la simulation de particule autour d'une goutte de 15 μm sont présentés dans le Tableau 2-1.

Considérant des gouttes plus grosses, le pas de temps a été ajusté pour s'adapter à l'amplitude des gradients de vitesse autour de la goutte. Un coefficient empirique a été ajouté aux valeurs de pas de temps du Tableau 2-1, à savoir, $1/2$, $1/3$, $1/5$, $1/7$, $1/10$, pour des gouttes de rayon (A) respectif 25, 37,5, 50, 75 et 100 μm .

Tableau 2-1 Pas de temps utilisés dans le modèle en fonction du rayon de la particule ($A = 15 \mu\text{m}$).

$a(\mu\text{m})$	0,004	0,010	0,050	0,100	0,500	1,300
$\tau_p(s)$	$1,43 \times 10^{-8}$	$3,65 \times 10^{-8}$	$2,10 \times 10^{-7}$	$5,02 \times 10^{-7}$	$6,45 \times 10^{-6}$	$3,80 \times 10^{-6}$
$\Delta t(s)$	$10^3 \tau_p$	$10^3 \tau_p$	$10^2 \tau_p$	$10^1 \tau_p$	$10^0 \tau_p$	$10^{-1} \tau_p$

2.2.3.4 CALCUL DE L'EFFICACITE DE COLLECTE

À la fin d'une réalisation - de l'initialisation du disque d'injection, du suivi des particules et de leur collecte ou leur sortie du domaine de calcul - l'efficacité de collecte est déduite par le nombre de particules collectées ($N_{p,col}$) durant la réalisation, divisé par le nombre de particules ($N_{p,Dscinj_{a+A}}$) initialement comprises dans la section efficace de collecte ($Dsc_{inj_{a+A}}$, Figure 2-1) (Équation 2-13) :

$$EC_i(a, A, q, Q, HR) = \frac{N_{p,col,i}(a, A, q, Q, HR)}{N_{p,Dscinj_{a+A}}} = \frac{N_{p,col,i}(a, A, q, Q, HR)}{\pi(a + A)^2 C_{s,p}} \quad \text{Équation 2-13}$$

Où EC_i est l'efficacité de collecte calculée à la fin de la $i^{\text{ème}}$ réalisation qui dépend à la fois des rayons de la goutte (A) et de la particule (a), mais aussi de leur charge respective (Q et q) et de l'humidité relative (HR) du milieu.

La capture d'une particule dépend du mouvement brownien qui est un processus stochastique. *In fine*, une méthode Monte-Carlo est utilisée afin de s'assurer de la convergence statistique de l'efficacité de collecte calculée vers une valeur statistiquement convergée. Pour cela, une famille de n simulations est réalisée et l'efficacité de collecte convergée (EC) est déduite de la moyenne de ces n réalisations (Équation 2-14) :

$$EC(a, A, q, Q, HR) = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n EC_i(a, A, q, Q, HR) \quad \text{Équation 2-14}$$

Pour les résultats du modèle, 50 réalisations ont été considérées statistiquement satisfaisantes afin de déduire l'efficacité (EC) par méthode Monte-Carlo (des détails sont donnés en section 2.3.4).

2.2.3.5 LOGIGRAMME DE L'ALGORITHME DE CALCUL

Les principales étapes de l'algorithme sont présentées dans le logigramme de la Figure 2-3 :

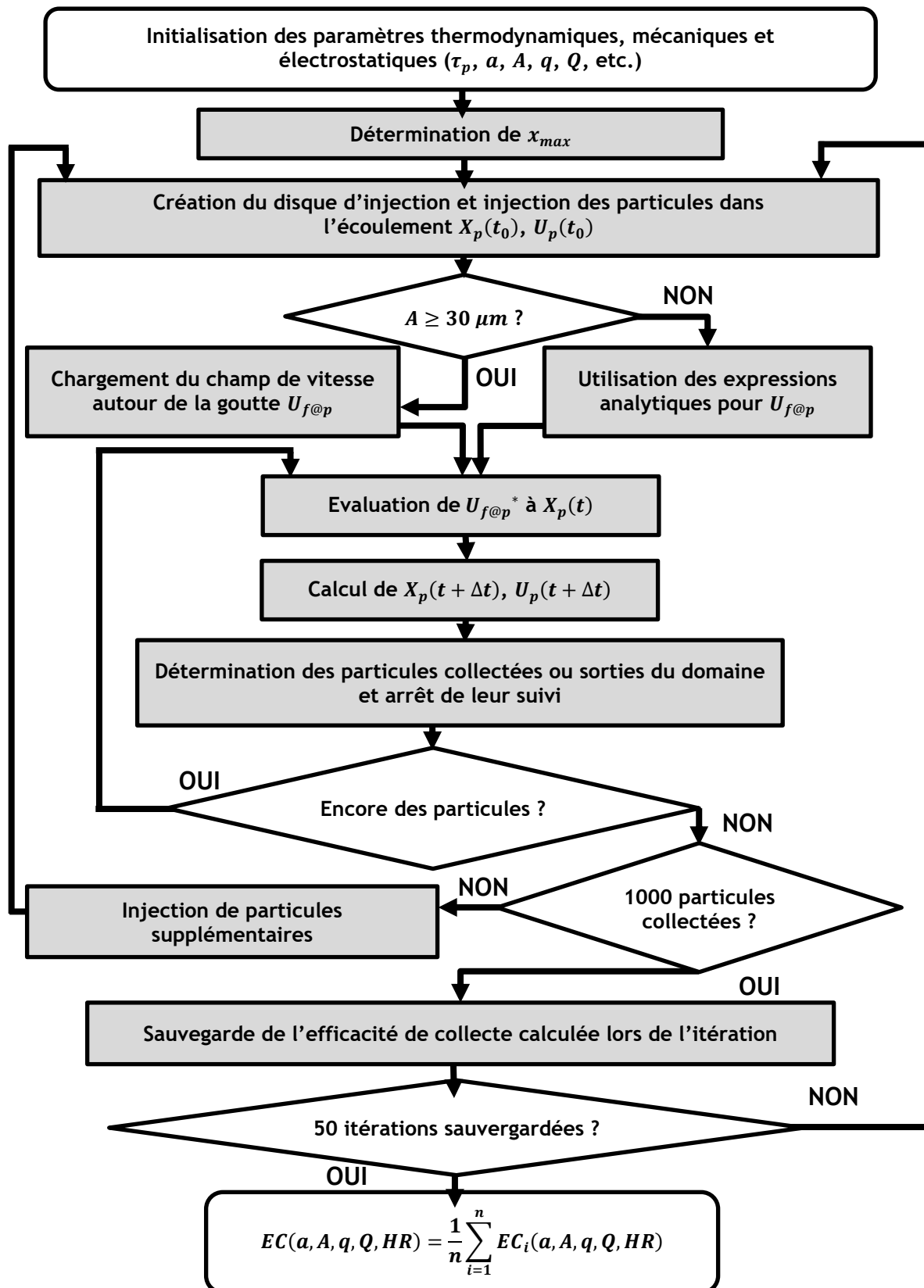


Figure 2-3 Logigramme de l'algorithme de calcul de l'efficacité de collecte.

2.3 VALIDATIONS ET PERFORMANCES DU MODELE

Plusieurs niveaux de vérification ont été déployés afin de juger de la fiabilité du modèle 3D implémenté. La génération des nombres aléatoires et la modélisation du mouvement brownien ont notamment été examinées, au même titre que la convergence explicitée dans cette partie.

2.3.1 GENERATION DES NOMBRES ALEATOIRES

Pour rappel, les variables aléatoires des vecteurs $(\vec{\xi}_x, \vec{\xi}_y, \vec{\xi}_z)$ des Équations 2-5 suivent une loi normale $\mathcal{N}(0,1)$ pour les trois directions de l'espace, générées par une méthode de Box-Muller (1958). Afin de valider la méthode de génération, un test de Shapiro-Wilk (1965) est utilisé afin de s'assurer que l'échantillon de variables aléatoires est normalement distribué. Considérant un seuil de confiance de 95 % et une taille d'échantillon de 100, l'hypothèse selon laquelle la population est normalement distribuée ne peut être rejetée.

2.3.2 MODELISATION DU MOUVEMENT BROWNIEN

L'implémentation de la diffusion des particules a été vérifiée par comparaison entre le déplacement quadratique moyen des particules et le déplacement quadratique moyen théorique $(\sqrt{\langle x^2(t) \rangle}_{Einstein})$ formulé par Einstein (1956) (Équation 2-15) :

$$\sqrt{\langle x^2(t) \rangle}_{Einstein} = \sqrt{2D_{im}D_b t} \quad \text{Équation 2-15}$$

Où D_{im} est la dimension du domaine de simulation.

Pour un même rayon d'aérosol, la diffusion de 4000 particules prises dans un air au repos est simulée, c'est-à-dire, en utilisant les Équations 2-5 avec $\vec{U}_{f@p}^*(t) = \vec{U}_{f@p}(t) = \vec{0}$ m.s⁻¹ (Équations 2-7). Initialement, la vitesse des particules est nulle et leur position est prise comme étant l'origine d'un repère cartésien $R_c(X, Y, Z)$. Sur la Figure 2-4 (haut) sont présentées les trajectoires de quatre rayons de particule de 4 nm, 30 nm, 100 nm et 1,3 µm pendant 10 ms - illustrant une diffusion brownienne moins importante pour des gros aérosols. Le déplacement quadratique moyen du modèle est alors déduit suivant l'Équation 2-16 :

$$\sqrt{\langle x^2(t) \rangle}_{Simu} = \sqrt{\text{Variance}(X_{4000}(t)) + \text{Variance}(Y_{4000}(t)) + \text{Variance}(Z_{4000}(t))} \quad \text{Équation 2-16}$$

Où $X_{4000}(t)$, $Y_{4000}(t)$ et $Z_{4000}(t)$ sont respectivement les vecteurs contenant les positions des 4000 particules à l'instant t pour les trois composantes de l'espace.

La Figure 2-4 (bas) présente la comparaison entre la théorie $(\sqrt{\langle x^2(t) \rangle}_{Einstein})$ et la simulation $(\sqrt{\langle x^2(t) \rangle}_{Simu})$ pour l'ensemble des rayons de particule considérés dans l'étude. Une différence d'au plus 1 % est observée entre la relation d'Einstein et les résultats des simulations - validant l'implémentation du modèle de diffusion brownienne des particules.

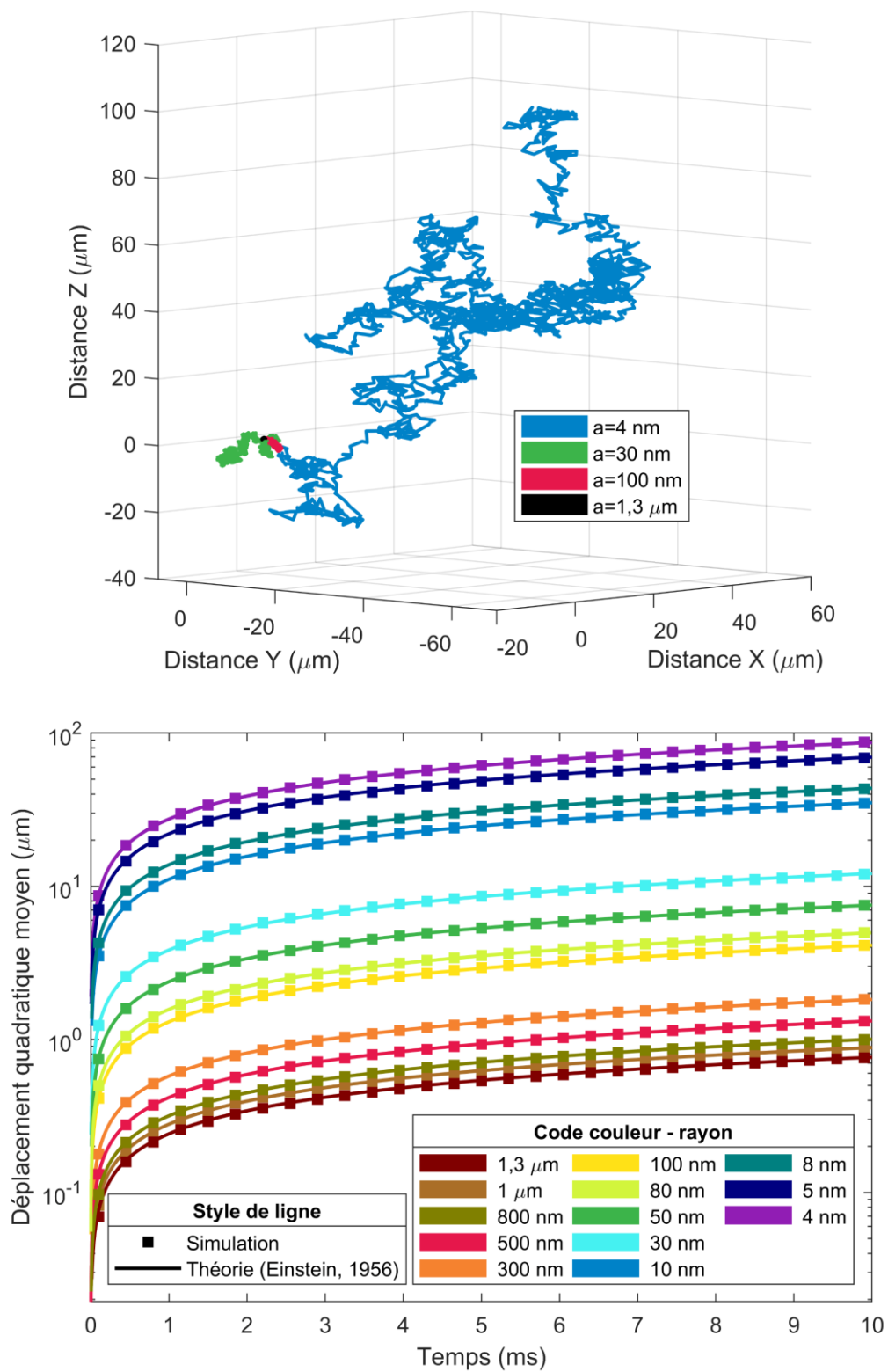


Figure 2-4 (Haut) Diffusion de particule de 4 nm, 30 nm, 100 nm et 1,3 μm dans un air au repos pendant 10 ms. (Bas) Déplacement moyen quadratique simulé et issu de la théorie d'Einstein (1956).

2.3.3 OPTIMISATION DU DISQUE D'INJECTION

L'optimisation du rayon du disque d'injection (D_{scinj}) - explicitée à la section 2.2.3.2.1 - est un enjeu important du modèle. En effet, une surestimation va augmenter le nombre de particules et donc le temps de calcul tandis qu'une sous-estimation mène à une valeur erronée d'efficacité de collecte comme toutes les particules capturables ne sont pas initialement considérées.

Pour s'assurer que le rayon du disque d'injection soit optimisé, un test simple peut être réalisé. Il s'agit de calculer différentes efficacités de collecte pour différents rayons du disque d'injection (R), augmentés ou diminués par rapport à sa valeur optimisée R_{Dscinj} . Les efficacités de collecte obtenues sont ensuite comparées à l'efficacité de collecte de référence, c'est-à-dire, avec le rayon R_{Dscinj} du disque d'injection (déterminé en section 2.2.3.2.1). Cette démarche est réalisée pour les différentes tailles de particules considérées dans ce chapitre.

La Figure 2-5 présente l'écart relatif de l'efficacité de collecte en fonction de l'écart relatif du rayon du disque d'injection (rapport R/R_{Dscinj}). Le rayon de la goutte (A) est de 15 μm .

On observe que lorsqu'on considère un rayon du disque d'injection inférieur à R_{Dscinj} , l'écart augmente très fortement en diminuant le rayon du disque. Le disque d'injection est alors mal dimensionné et l'efficacité de collecte obtenue est erronée. Au contraire, à partir de 100 % de R_{Dscinj} , l'écart entre les efficacités de collecte est quasi nul (<1 %). Cela veut dire que l'efficacité de collecte calculée est équivalente à l'efficacité de référence, peu importe si on considère un rayon supérieur à R_{Dscinj} . Dans ce cas, le temps de calcul est augmenté inutilement. On peut donc conclure que l'évaluation du disque d'injection (R_{Dscinj}) faite en section 2.2.3.2.1 est optimale - elle minimise à la fois le temps de calcul et l'erreur sur l'efficacité de collecte.

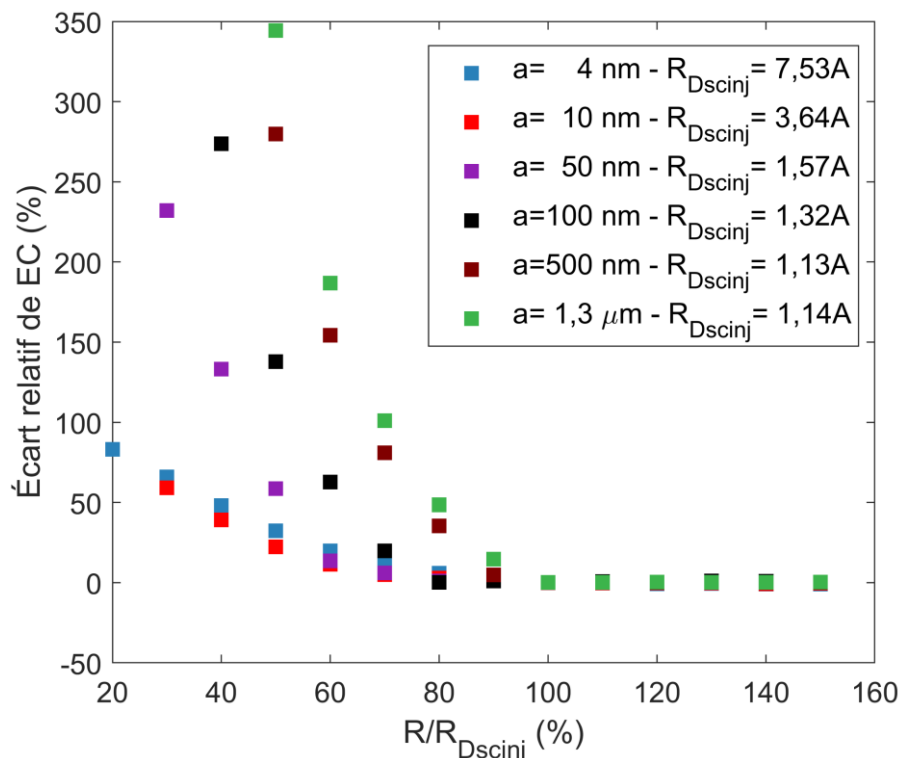


Figure 2-5 Écart relatif de l'efficacité de collecte (EC) en fonction de l'écart relatif du rayon de disque d'injection (R/R_{Dscinj}). Le rayon de la goutte (A) est de 15 μm .

2.3.4 CONVERGENCE STATISTIQUE DE L'EFFICACITE DE COLLECTE

Pour rappel de la section 2.2.3.4, l'efficacité de collecte (EC) est obtenue par méthode Monte-Carlo du fait de la modélisation du mouvement brownien des particules décrite via un processus stochastique. Dès lors, le contrôle de la convergence statistique des efficacités de collecte est nécessaire afin de connaître l'erreur par rapport à l'efficacité de collecte véritable (c'est-à-dire, obtenue avec une infinité de réalisations) en fonction du nombre (n) de réalisations (Équation 2-14).

Premièrement, un test de Shapiro-Wilk (1965) est utilisé avec un seuil de confiance de 95 % afin de vérifier que la famille des n efficacités de collecte calculées depuis les n simulations est normalement distribuée. De ce test statistique, l'hypothèse selon laquelle la famille est normalement distribuée ne peut être rejetée. Dès lors, un test de T-student est utilisé afin de déterminer l'intervalle de confiance sur l'efficacité de collecte avec un seuil de confiance de 95 %. L'écart-type de l'efficacité non biaisée considéré dans le test T-student vient d'une famille de 10 000 simulations.

Le Tableau 2-2 présente les intervalles de confiance pour une particule appartenant aux régimes moléculaire ($a = 4$ nm), intermédiaire ($a = 80$ nm) et continu ($a = 1,3$ μ m) et ce, pour divers nombres de simulations (n) et de particules collectées dans une simulation. Dans cette étude, la plus petite taille de goutte - caractérisant le plus grand déplacement des particules dû à la diffusion brownienne - est considérée ($A = 15$ μ m) afin de majorer les intervalles de confiance pour l'ensemble des tailles de gouttes étudiées dans ce chapitre.

Pour expliquer ce que représente l'intervalle de confiance, on peut prendre l'exemple de la première ligne du Tableau 2-2 (pour un aérosol de 4 nm, 100 particules collectées et 50 itérations). L'intervalle de confiance est de 7,71 %, ce qui signifie que la vraie valeur d'efficacité de collecte - obtenue par une infinité de simulations - est comprise entre plus ou moins 7,71 % de l'efficacité de collecte biaisée calculée depuis la famille de 50 simulations.

Le Tableau 2-2 renseigne les éléments suivants :

- Pour un nombre d'itérations fixé, l'augmentation du nombre de particules collectées durant une simulation (en augmentant le nombre de particules injectées) diminue l'erreur statistique sur l'efficacité puisqu'elle réduit l'intervalle de confiance ;
- Pour un nombre de particules collectées fixé durant une simulation, augmenter le nombre d'itérations permet d'améliorer la résolution sur l'efficacité de collecte du fait de la diminution de l'intervalle de confiance ;
- Pour des nombres d'itérations et de particules collectées fixés, l'erreur statistique diminue en augmentant le rayon de la particule. Cette observation vient du fait que les grosses particules sont moins assujetties à la diffusion brownienne.

Les cases grisées dans le Tableau 2-2 représentent les critères de convergence choisis pour le modèle - 50 réalisations et 1000 particules collectées quelle que soit la taille de l'aérosol. Ainsi, dans le cas le plus défavorable d'une particule appartenant au régime moléculaire ($a = 4$ nm), l'intervalle de confiance est de 2 %. Pour une particule inertielle ($a = 1,3$ μ m), l'intervalle de confiance est de 0,001 %.

Tableau 2-2 Intervalles de confiance en fonction du nombre de réalisations et du nombre de particules collectées - les cases grisées représentent la configuration choisie pour les simulations.

Rayon de la particule $a(\mu m)$	Nombre de particules collectées $N_{p,col}(a, A, q, Q, HR)$	Nombre n d'itérations	Intervalle de Confiance T-Student (%)	
4×10^{-3}		50	7,71	
		≈ 100	100	5,39
		1000	1,69	
	≈ 1000	50	2,37	
		100	1,65	
		1000	$5,17 \times 10^{-1}$	
8×10^{-2}		50	$6,77 \times 10^{-2}$	
		≈ 100	100	$4,73 \times 10^{-2}$
		1000	$1,48 \times 10^{-2}$	
	≈ 1000	50	$2,65 \times 10^{-2}$	
		100	$1,85 \times 10^{-2}$	
		1000	$5,78 \times 10^{-3}$	
1,3		50	$3,60 \times 10^{-3}$	
		≈ 100	100	$2,51 \times 10^{-3}$
		1000	$7,86 \times 10^{-4}$	
	≈ 1000	50	$1,16 \times 10^{-3}$	
		100	$8,08 \times 10^{-4}$	
		1000	$2,53 \times 10^{-4}$	

2.3.5 CONFRONTATION AVEC LE MODELE DE TINSLEY ET ZHOU (2015)

Une dernière étape de validation consiste à comparer le modèle aux efficacités de collecte de Tinsley et Zhou (2015). Pour ce faire, les mêmes conditions thermodynamiques ont été considérées, caractéristique de la troposphère moyenne (-17 °C, 540 hPa). Uniquement dans cette section, la masse volumique des particules est, comme pour les auteurs, égale à 500 kg.m⁻³. Dans leur étude, Tinsley et Zhou (2015) raisonnent en noyau de collecte (K). Pour la comparaison, leurs résultats sont alors formulés en efficacité de collecte (EC) avec la relation suivante (Équation 2-17) :

$$K = EC \times \pi(a + A)^2 |U_{\infty,A} - U_{\infty,a}| \quad \text{Équation 2-17}$$

Où la vitesse de sédimentation de la particule ($U_{\infty,a}$) est calculée suivant la formule explicitée en Annexe A.

La Figure 2-6 présente les résultats de simulation (gauche), ainsi que leur comparaison (droite) avec les résultats de simulation de Tinsley et Zhou (2015). La courbe noire en trait continu représente le cas sans forces électrostatiques, la courbe tiretée noire représente les efficacités théoriques liées à la diffusion de Wang et al. (1978). On remarque de très fortes similitudes entre les résultats des deux modèles. Les variations de l'efficacité de collecte sont identiques de même pour les ordres de grandeur. On observe néanmoins que le présent modèle évalue, en moyenne, l'efficacité de collecte 20 % supérieure à celle issue du modèle de Tinsley et Zhou (2015).

Ces écarts peuvent être dus à l'intégration de plusieurs différences entre les deux modèles :

- Aux intervalles de confiance (voir section 2.3.5) respectifs. Notons que Tinsley et Zhou (2015) utilisent aussi une méthode Monte-Carlo mais ne précisent pas les intervalles de confiance de leurs résultats (à notre connaissance) ;
- À la technique de génération des nombres aléatoires (voir section 2.3.1) ;
- Au schéma analytique de la trajectoire des particules utilisé. Tinsley et Zhou (2015) utilisent une modélisation simplifiée du mouvement brownien des particules où uniquement la position des particules est affectée. Avec l'approche de Langevin (1908), sur laquelle repose le système d'Équations 2-5, les vitesses sont, elles-aussi, perturbées ;
- À une valeur d'un paramètre d'influence arrondie différemment dans les deux modèles. Par exemple, la vitesse terminale de la goutte, aussi évaluée par Tinsley et Zhou (2015) suivant le modèle de Beard (1976) ;
- Aux critères de collecte. Comme explicité en section 2.2.3.2.3, un 3^{ème} critère de collecte a été utilisé dans le présent modèle, considérant une particule collectée lorsqu'elle traverse la goutte durant un pas de temps à cause de forces électrostatiques très attractives. Ce critère permet de conserver, durant une simulation, un pas de temps constant, environ égal à 10^{-5} s (section 2.2.3.3). Tinsley et Zhou (2015) citent une précédente étude (Tinsley, 2010) indiquant que leur pas de temps est aussi fixé, variant entre 4×10^{-3} et $0,25 \times 10^{-3}$ s suivant la taille de l'aérosol (les mêmes que dans notre étude). Leur pas de temps est beaucoup plus grand alors il est fort probable que des particules traversent aussi la goutte durant leurs simulations. Pourtant, aucune considération analogue au 3^{ème} critère de collecte n'est énoncée dans leurs travaux (à notre connaissance). Ainsi, il est possible que durant leurs simulations, des particules collectées soient oubliées. De fait, leur efficacité de collecte pourrait être légèrement sous-évaluée.

Au regard de ces comparaisons, ces écarts sont néanmoins très acceptables pour un paramètre comme l'efficacité de collecte, qui varie ici sur 5 ordres de grandeur.

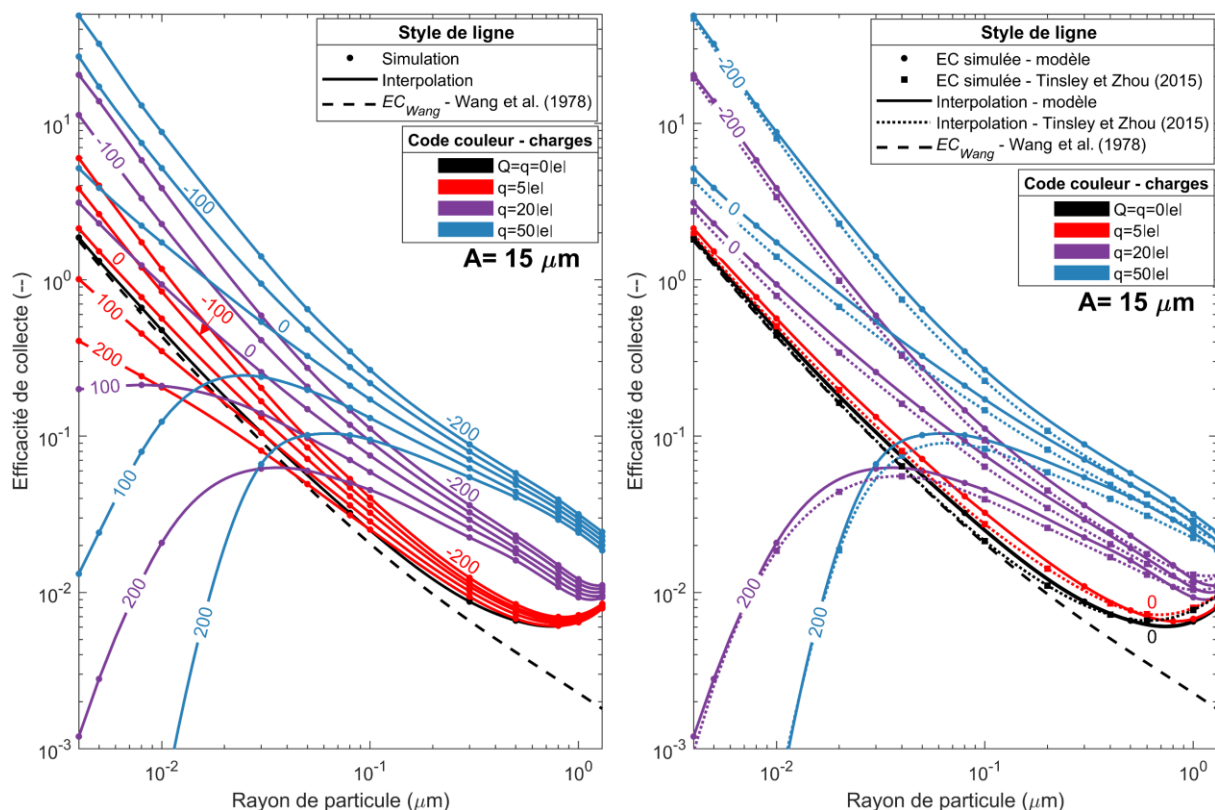


Figure 2-6 Efficacité de collecte en fonction du rayon des particules pour divers couples de charges sur la goutte (Q) et sur l'aérosol (q). La charge sur la goutte est directement renseignée sur le graphique en nombre de charges élémentaires. **(Gauche)** Résultats de simulation. **(Droite)** Comparaison entre le modèle et les résultats de Tinsley et Zhou (2015).

2.4 RESULTATS NUMERIQUES ET DISCUSSIONS

Tous les résultats numériques de simulation peuvent être trouvés en Annexe F. Les efficacités de collecte en dessous de 10^{-5} ont été déterminées lors d'une simulation, mais n'ont pas fait l'objet de 50 simulations pour satisfaire le critère de convergence de la section 2.3.4. Les efficacités de collecte sont alors seuillées à 10^{-5} .

2.4.1 PREAMBULE

2.4.1.1 DONNEES D'ENTREE DU MODELE

Lors des simulations, les conditions thermodynamiques considérées sont celles de la troposphère moyenne. Le rayon de l'aérosol varie de 4 nm jusqu'à 1,3 μm . Au-delà, on estime que l'aérosol incorpore la phase liquide au sein du nuage entièrement par processus d'activation. Le rayon des gouttes varie entre 15 et 100 μm afin de couvrir l'ensemble du spectre granulométrique au sein d'un nuage, les tailles inférieures à 15 μm ayant préalablement été étudiées par d'autres auteurs (Tinsley et Zhou, 2015 ; Zhang et Tinsley, 2018 ; Zhang et al., 2018). Dans cette étude, la masse volumique des particules est prise à $1500 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$, faisant l'hypothèse qu'elle correspond à une valeur moyenne dans l'atmosphère. Il a été choisi de rester à cette masse volumique pour ne pas multiplier les résultats numériques (dont ceux de ce chapitre ont nécessité plus de deux années de calcul sur plusieurs supercalculateurs), bien qu'il existe un effet important de ce paramètre sur l'efficacité de collecte - ce point est discuté en conclusion de ce chapitre.

Les paramètres pour l'ensemble des simulations qui suivront sont résumés dans le Tableau 2-3.

La charge électrique de l'aérosol est fixée à 0, 5, 20, 50 ou 600 charges élémentaires pour modéliser les interactions électriques entre les gouttes de nuage et un aérosol atmosphérique électriquement neutre, faiblement chargé (typique d'un aérosol naturel ou anthropique) ou très fortement chargé (représentatif des radionucléides émis après l'accident du CNPE-FD en 2011, voir section 1.1.2). La charge de la goutte, quant à elle, varie de la neutralité à la valeur moyenne caractéristique de nuages stratiformes et convectifs comme mesurée par Takahashi (1973) dont les ordres de grandeur ont été présentés en section 1.2.2.

Tableau 2-3 Paramètres de simulation.

Paramètre	Valeur numérique	Unité
Conductivité thermique de l'air sec (k_{air})	$2,26 \times 10^{-2}$	$\text{m}\cdot\text{kg}\cdot\text{s}^{-3}\cdot\text{K}^{-1}$
Conductivité thermique de la particule (k_p) égale à celle de la fluorescéine sodée	0,43 (Al-Azzawi et Owen, 1984)	$\text{m}\cdot\text{kg}\cdot\text{s}^{-3}\cdot\text{K}^{-1}$
Libre parcours moyen des molécules dans l'air (λ_{air})	104	nm
Masse volumique de l'aérosol (ρ_p)	1500	$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$
Masse volumique de l'air (ρ_{air})	0,73	$\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$
Humidité relative de l'air (HR)	100-95-75	%
Nombre de Reynolds (Re)	0,04 / 0,18 / 0,59 / 1,30 / 3,70 / 7,43	-
Pression de l'air (P_{air})	540	hPa
Rayon de l'aérosol (a)	$\in [0,004 ; 1,3]$	μm
Rayon de la goutte (A)	15 / 25 / 37,5 / 50 / 75 / 100	μm
Température de l'air (T_{air})	256,15	K
Viscosité dynamique de l'air (η_{air})	$1,63 \times 10^{-5}$	$\text{kg}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$
Vitesse terminale de la goutte ($U_{\infty,A}$)	3,01 / 8,16 / 17,4 / 28,8 / 54,8 / 82,4	$\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$

2.4.1.2 ILLUSTRATION DE TRAJECTOIRES

La Figure 2-7 présente des simulations de 10 trajectoires de particule de rayon 4 nm (gauche) et 1,3 μm (droite) autour d'une goutte de 50 μm . Les particules sont ici aléatoirement introduites dans un disque d'injection de rayon constant égal à 0,2A et situé à 8 rayons de goutte (A), comme sur la Figure 2-1. Les forces de diffusiophorèse et de thermophorèse n'interviennent pas ici dès lors que l'air est saturé. Sur la figure, les simulations du milieu sont sans les forces électrostatiques. Sinon, 600 et 1000 charges élémentaires sont respectivement fixées sur les particules et la goutte, de même polarité pour les simulations du haut, de polarité opposée pour les simulations du bas (Figure 2-7).

On observe à partir de la Figure 2-7 que :

- Les particules nanométriques sont beaucoup plus sujettes au mouvement brownien, comme en témoigne la marche aléatoire plus prononcée sur les simulations de gauche. Ces particules vont avoir tendance à quitter les lignes de courant pour être collectées par la goutte. Sur la simulation du milieu, trois particules nanométriques sont collectées par la goutte (trajectoires rouges à gauche) pour seulement une particule micronique (à droite). Cette tendance est en accord avec l'augmentation de l'efficacité de collecte pour des rayons de particule qui diminuent ;
- Lorsque les particules et la goutte sont de polarité opposée, on constate une augmentation du nombre de particules collectées quelle que soit la taille de la particule. Néanmoins, pour les particules nanométriques, l'attraction est bien plus importante, comme l'illustre la totalité des particules injectées ayant été collectées par la goutte. Il est question ici de mobilité électrique des particules, plus grande pour des particules plus petites ;
- Pour cette même raison, les particules nanométriques sont fortement repoussées à longue distance lorsque leur charge électrique est de même polarité que celle de la goutte (Figure 2-7, en haut à gauche). En revanche, les particules microniques, dont la mobilité électrique est plus faible, ne sont pas repoussées. Bien au contraire, cinq des dix particules injectées ont été collectées par la goutte (simulation en haut à droite), pour seulement une dans le cas sans les forces électrostatiques (au milieu à droite). Les particules microniques sont attirées grâce au terme Image-Attractif-Faible-Distance (IAFD) de l'Équation 1-12.

Ces points seront discutés à la suite du chapitre, notamment à la section 2.4.4.

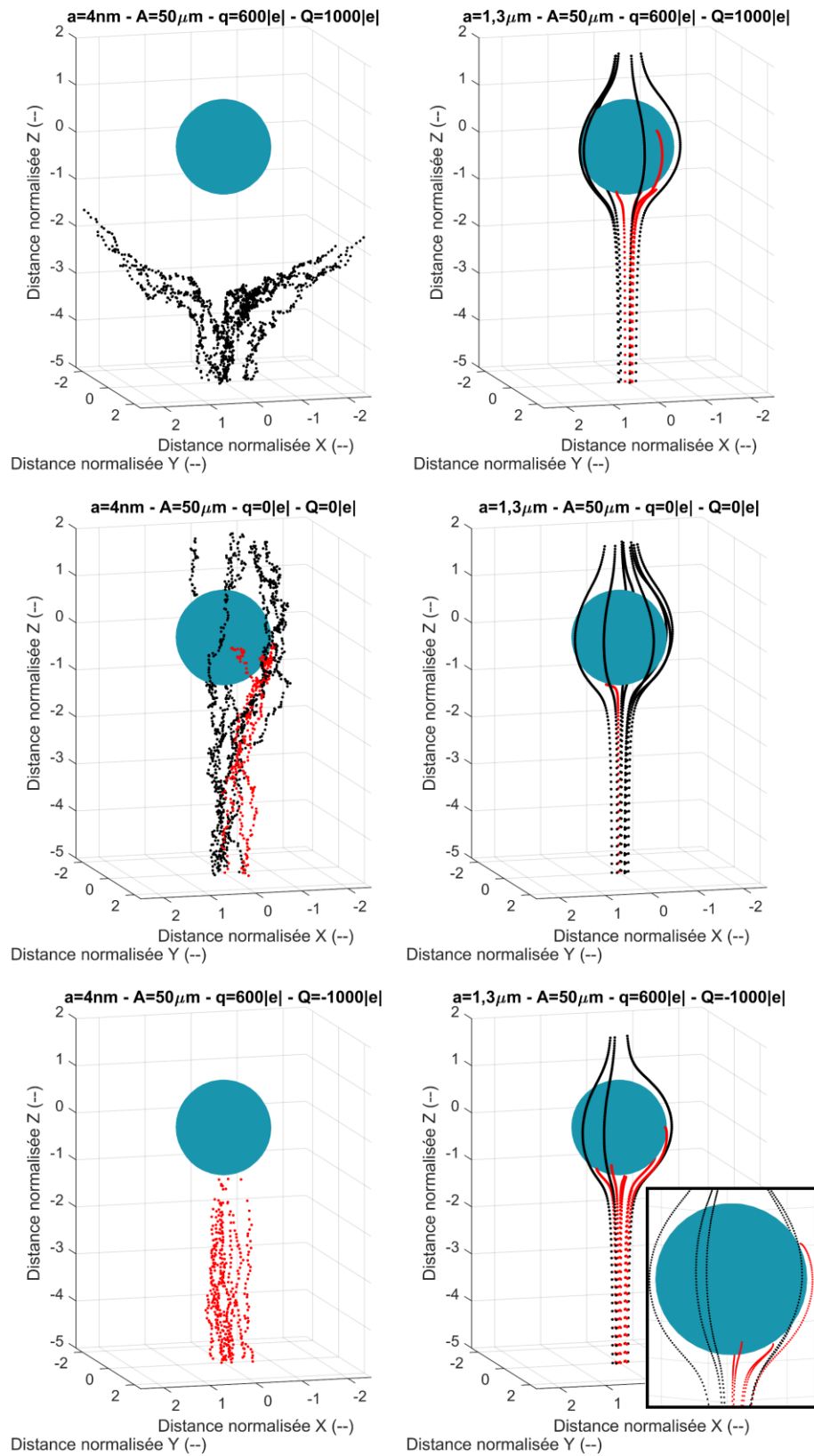


Figure 2-7 Illustration de trajectoires pour diverses tailles de particule autour d'une goutte de 50 μm de rayon et pour différents couples de charges sur la goutte et la particule. Les trajectoires rouges sont celles de particules collectées, les noires sont celles de particules non collectées.

2.4.2 RESULTATS DE SIMULATION - AEROSOL ET GOUTTE ELECTRIQUEMENT NEUTRES, AIR SATURE

La Figure 2-8 présente les résultats des simulations pour un aérosol et une goutte électriquement neutres ($q=Q=0$ e). Dans cette section, l'humidité relative est de 100 %. Les résultats sont comparés au modèle de Wang et al. (1978) pour des efficacités (EC_{Wang}) uniquement influencées par le mouvement brownien des particules (Équation 2-18) :

$$EC_{Wang} = \frac{K_{bro,Wang}}{\pi(a+A)^2 |U_{\infty,A} - U_{\infty,a}|} \quad \text{Équation 2-18}$$

Où $K_{bro,Wang}$ est le noyau de diffusion de Wang et al. (1978) explicité en Annexe A.

Plusieurs remarques peuvent être formulées :

- Pour toutes les tailles de goutte étudiées et pour un aérosol ultrafin ($a < 40$ nm), les efficacités de collecte (EC) tendent vers le modèle de Wang et al. (1978). Ce qui veut dire que pour ces tailles d'aérosols, la collecte des particules est uniquement pilotée par la diffusion brownienne. Aussi, pour une taille d'aérosol donnée, l'efficacité de collecte diminue lorsque le rayon de la goutte grandit. En effet, le temps de séjour de la particule à proximité de la goutte diminue du fait d'un écoulement d'air plus rapide et, ainsi, le déplacement moyen quadratique des particules lié à leur diffusion décroît (étant proportionnel à la racine du temps - Équation 2-15). Dans ce cas, la probabilité d'une collision diminue ;
- Pour les petites gouttes ($A \leq 37,5$ μm) :
 - Pour des aérosols de rayon entre 40 et 500 nm, les efficacités de collecte calculées par le modèle décroissent pour des tailles de particule croissantes. Ces variations sont identiques au modèle de Wang et al. (1978). Pour autant, la différence croît entre les deux modèles lorsque l'aérosol grossit - donnant des efficacités supérieures au modèle de Wang et al. (1978). Bien que la diffusion domine la collecte des particules pour cet intervalle de tailles, le déplacement moyen des particules relatif aux lignes de courant diminue pour des particules de taille croissante - le mécanisme d'interception ne peut donc plus être totalement négligé. L'inertie des particules augmente elle aussi avec leur taille, même si elle reste de second ordre. De ce fait, les écarts entre les deux modèles s'accroissent, le modèle de Wang et al. (1978) ne tenant pas compte des effets mécaniques ;
 - L'effondrement de l'efficacité de collecte pour des particules de rayon supérieur à 500 nm ($A \leq 37,5$ μm) vient de l'existence d'une zone de stagnation - illustrée par la zone rouge sur la Figure 2-9 - où la vitesse de sédimentation de la particule est supérieure à la vitesse ascendante de l'écoulement d'air. Dans cet exemple, la particule possède un rayon de 1,3 μm . Pour des rayons de goutte inférieurs à 37,5 μm , la zone de stagnation en amont de la goutte s'étend au-delà du rayon de collecte des particules (somme des rayons de la goutte et de la particule, lignes tiretées sur la Figure 2-9) ce qui place le poids de la particule comme un effet principal dans la diminution de l'efficacité de collecte. Des explications complémentaires peuvent être trouvées dans les travaux de Zhang et Tinsley (2018) qui ont aussi mis en évidence l'effet du poids sur la collecte des particules. L'efficacité de collecte est d'autant plus sensible au poids des particules que les particules sont proches du régime continu où les trajectoires menant à la capture sont très proches de l'axe de la goutte. La diminution de l'efficacité de collecte est bien plus importante pour une goutte de 25 que 15 μm dès lors que le déplacement des particules lié à leur diffusion diminue pour des vitesses d'écoulement d'air plus importantes. Au contraire, la diminution est beaucoup moins importante pour une goutte de 37,5 μm du fait que la zone de stagnation après la limite de collecte soit moins étendue (Figure 2-9), mais aussi du fait que l'inertie des particules devienne suffisamment importante pour permettre aux particules de franchir la zone de stagnation et d'être collectées.

- Il existe un minimum d'efficacité qui est visible pour des gouttes de 75 et 100 μm de rayon et au-delà des tailles de particule ($a > 1,3 \mu\text{m}$) considérées pour les plus petites tailles de goutte. On observe que ce minimum - appelé « Greenfield gap » (Greenfield, 1957) - apparaît pour des aérosols plus petits et pour des tailles de goutte croissantes. L'augmentation qui suit ce minimum vient du mécanisme d'impaction qui devient de premier ordre et qui augmente avec la taille de la goutte et de la particule et, *a fortiori*, avec l'inertie de la particule. C'est pourquoi les simulations montrent une remontée de l'efficacité de collecte tandis que le modèle de Wang et al. (1978) continue de diminuer - ne prenant en compte ni l'interception, ni le poids et l'inertie des particules.

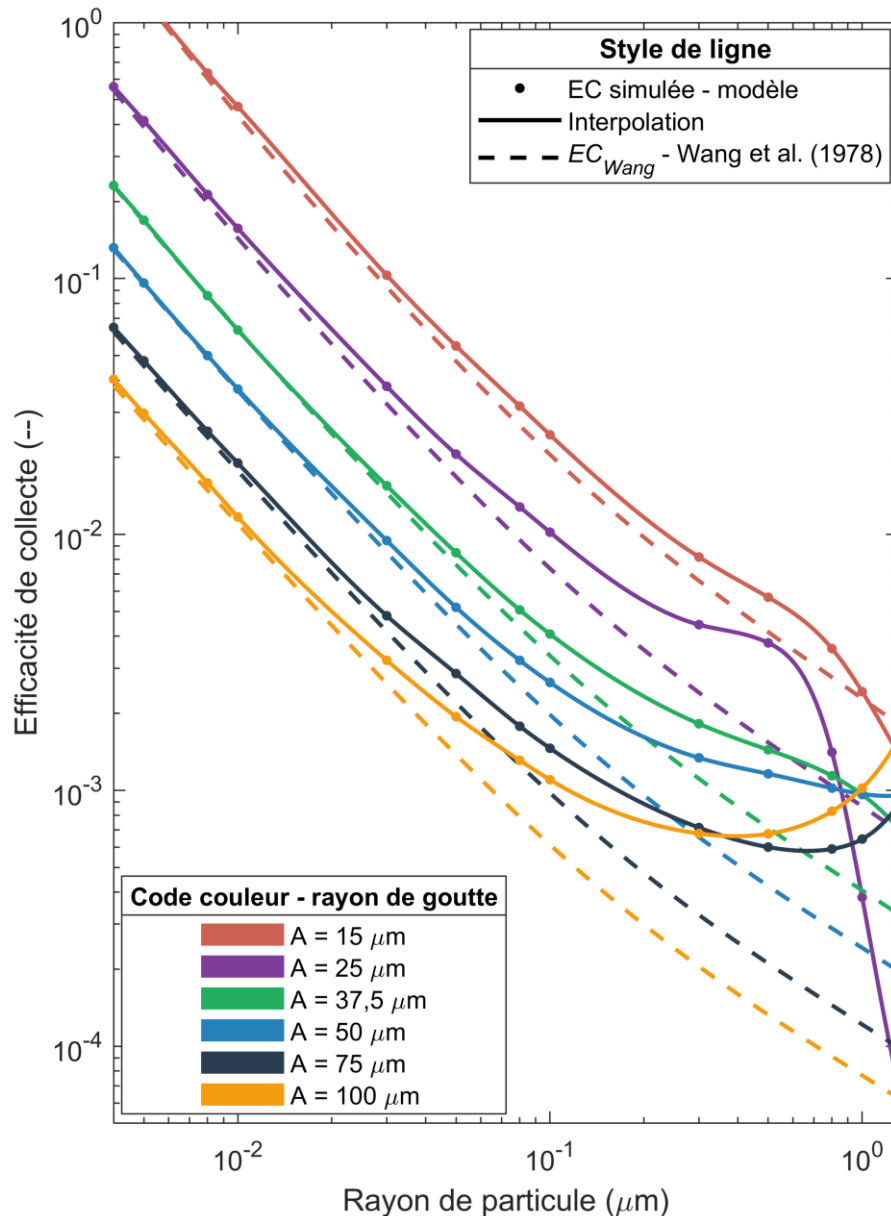


Figure 2-8 Efficacité de collecte en fonction du rayon des particules, simulée à l'aide du présent modèle et du modèle de Wang et al. (1978), pour l'ensemble des tailles de goutte considérées dans le chapitre sans les contributions des forces électrostatiques, de thermophorèse et de diffusiophorèse.

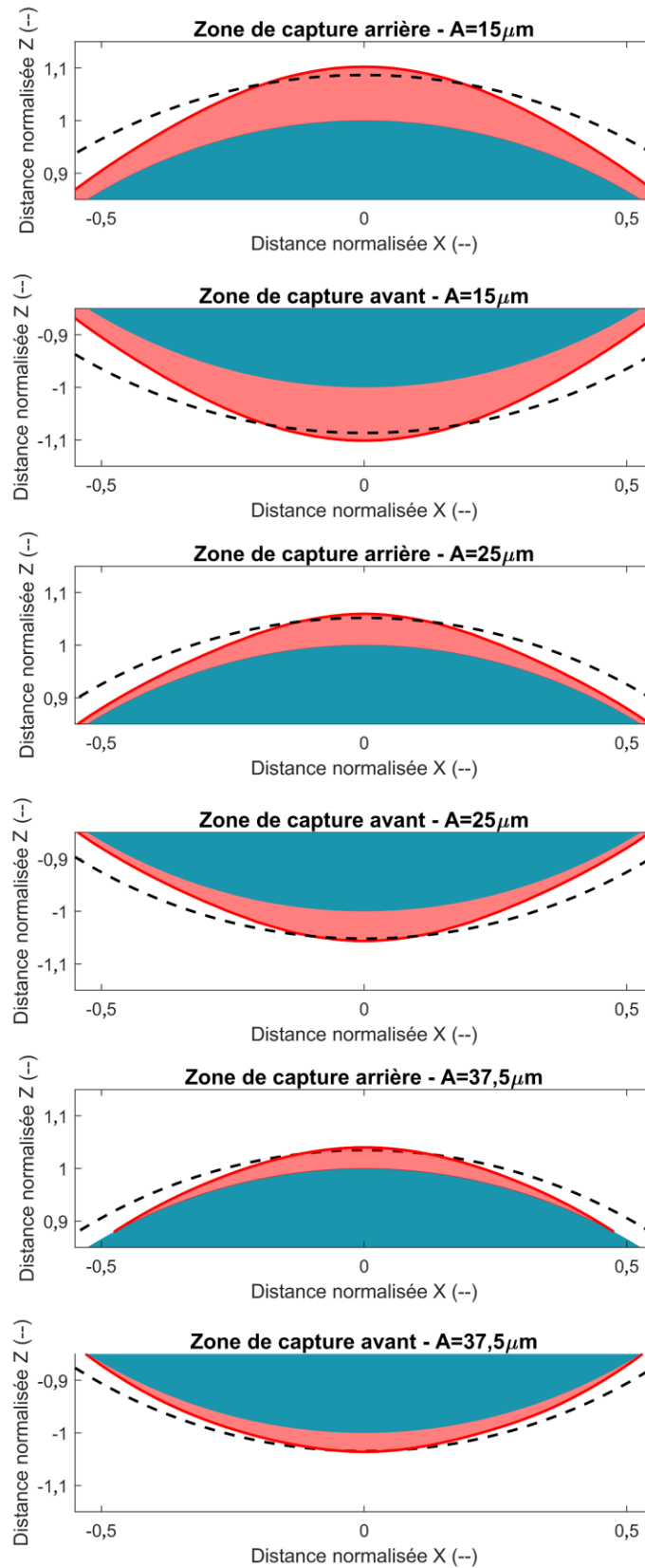


Figure 2-9 Zone de stagnation (rouge) d'une particule de $1,3 \mu\text{m}$ en amont et en aval des gouttes de rayon 15 , 25 et $37,5 \mu\text{m}$. Les lignes tiretées représentent le rayon de collecte de la particule.

2.4.3 RESULTATS DE SIMULATION - INFLUENCE DE L'HUMIDITE RELATIVE

La Figure 2-10 présente les résultats des simulations pour un aérosol et une goutte électriquement neutres ($q=Q=0$ e) et pour des humidités relatives de 75, 95 et 100 %. Le rayon de la goutte est de 15 μm . Les résultats sont comparés au modèle de Wang et al. (1978) pour des efficacités (EC_{Wang}) influencées par le mouvement brownien des particules, ainsi que la thermophorèse et la diffusiophorèse pour les humidités inférieures à 100 % (Équation 2-19) :

$$EC_{Wang} = \frac{K_{Wang}}{\pi(a+A)^2 |U_{\infty,A} - U_{\infty,a}|} \quad \text{Équation 2-19}$$

Où K_{Wang} est le noyau de Wang et al. (1978) explicité en Annexe A.

Les résultats de simulation sont en très bon accord avec le modèle de Wang et al. (1978). Comme explicité au CHAPITRE 1, dans un air sous saturé, la diffusiophorèse œuvre à repousser l'aérosol de la goutte en évaporation tandis que la thermophorèse l'attire. L'amplitude de la thermophorèse étant deux fois supérieure à celle de la diffusiophorèse, la force nette est au bilan attractive. Ainsi, ces effets microphysiques augmentent l'efficacité de collecte, notamment en région de Greenfield gap (Greenfield, 1957). Pour un aérosol de 1,3 μm , l'efficacité de collecte gagne deux ordres de grandeur en passant d'une humidité relative de 100 à 75 %. Lorsque le rayon de l'aérosol diminue, la diffusion brownienne domine et la contribution de la thermophorèse et de la diffusiophorèse s'annule.

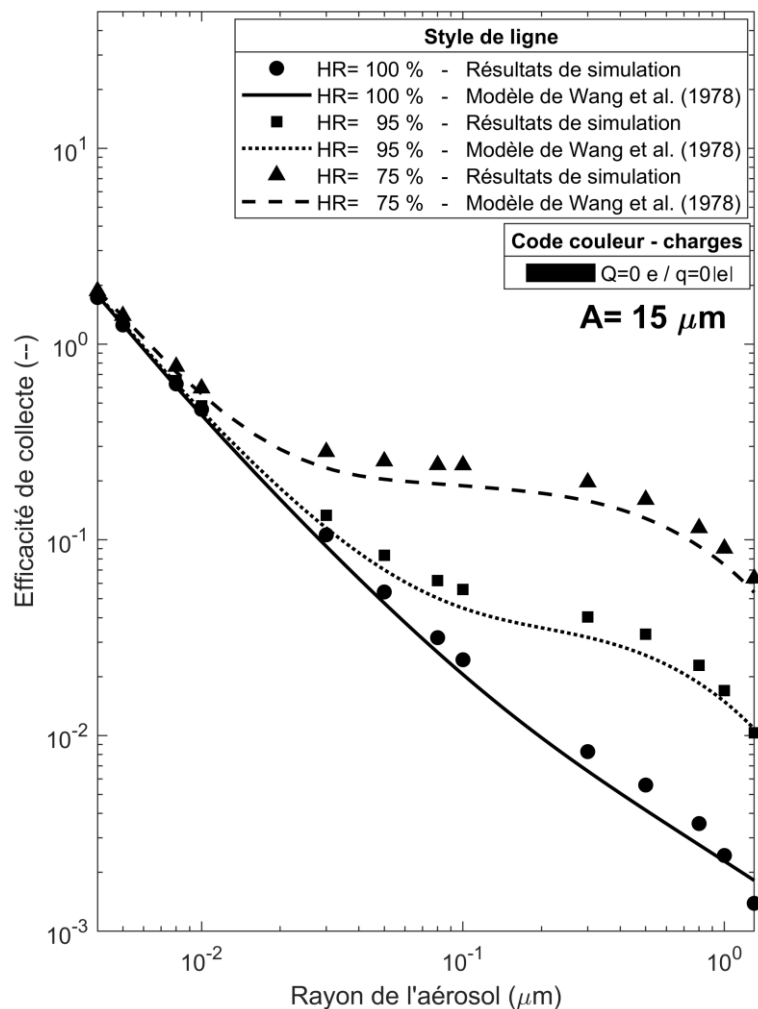


Figure 2-10 Efficacité de collecte en fonction du rayon de l'aérosol, simulée avec le présent modèle et le modèle de Wang et al. (1978), pour une goutte de 15 μm de rayon et des humidités relatives de 75 %, 95 % et 100 %.

2.4.4 RESULTATS DE SIMULATION - INFLUENCE DES CHARGES ELECTRIQUES

Les résultats présentés de la Figure 2-11 à la Figure 2-13 représentent une partie de la matrice d'efficacité de collecte calculée pour divers couples de charge sur la goutte et l'aérosol. L'intégralité des efficacités de collecte simulées sont présentées en Annexe F. Dans cette section, l'humidité relative est de 100 %. Ainsi, la contribution de la thermophorèse et de la diffusiophorèse est nulle. Sur les figures, les courbes noires, rouges, violettes, bleues et jaunes représentent respectivement une charge sur l'aérosol de 0, 5, 20, 50 et 600 charges élémentaires. Pour une même couleur, chaque courbe correspond à une charge sur la goutte dont la valeur est directement reportée sur les courbes en nombre de charges élémentaires. Le modèle de Wang et al. (1978) est aussi présenté en ligne tiretée, considérant uniquement la diffusion brownienne des particules.

Premièrement, les tendances sans les forces électrostatiques présentées dans la section précédente sont toujours observables pour des gros aérosols même si des charges importantes sur les gouttes et l'aérosol induisent la réduction de leur effet. Les contributions des deux termes de l'expression analytique des forces électrostatiques (Équation 1-12) sont aussi visibles sur les figures, comme nous allons l'expliquer.

2.4.4.1 CONTRIBUTION DU TERME IMAGE-ATTRACTIF-FAIBLE-DISTANCE (IAFD)

Pour une goutte électriquement neutre (courbes labellisées « 0 » de la Figure 2-11 à la Figure 2-13), la contribution du terme Coulombien-Longue-Distance (CLD, Équation 1-12) est nulle.

Ainsi, on observe que :

- Pour des rayons de goutte et de particule donnés, l'efficacité de collecte augmente avec la charge de l'aérosol du fait du terme Image-Attractif-Faible-Distance (IAFD) qui varie quadratiquement avec la charge électrique de la particule ;
- Pour des gouttes électriquement neutres et une charge donnée sur la particule, l'efficacité augmente pour tout le spectre granulométrique d'aérosol étudié, comparé au cas sans forces électrostatiques ($q=Q=0 |e|$). Pour autant, on observe que l'écart relatif entre les deux cas baisse pour des tailles d'aérosols qui diminuent. En effet, la contribution relative du terme IAFD décline pour les petits aérosols devant leur diffusion brownienne qui devient motrice de la collecte, et ce, même si dans l'absolu la contribution du terme IAFD augmente du fait d'une mobilité électrique des particules accrue ;
- Pour des gouttes électriquement neutres, le terme IAFD domine proche du Greenfield gap - où le mouvement brownien et les effets mécaniques (inertie et interception) sont faibles - et cette domination s'étend vers les petits aérosols quand leur charge augmente. À noter que cette affirmation reste vraie pour des faibles charges sur la goutte. Dès lors que l'on considère des gouttes fortement chargées, la contribution du terme CLD devient de premier ordre devant le terme IAFD.

2.4.4.2 CONTRIBUTION DU TERME COULOMBIEN-LONGUE-DISTANCE (CLD)

Pour des gouttes fortement chargées, le terme CLD est prépondérant pour l'ensemble des tailles d'aérosol considérées dans l'étude. Ainsi, pour les gros aérosols, l'efficacité de collecte est pilotée par le produit des charges, augmenté ou diminué si les polarités sont respectivement opposées ou identiques. Par exemple, pour un aérosol faiblement chargé ($q=5 |e|$) typique de l'aérosol atmosphérique et une charge de goutte représentative d'un nuage convectif ($Q=10000 |e|$ pour $A=15 \mu\text{m}$ ou $Q=30000 |e|$ pour $A=25 \mu\text{m}$) - le terme CLD est si répulsif que l'efficacité de collecte est inférieure à 10^{-5} quelle que soit la taille de l'aérosol étudiée (ces efficacités de collecte ne sont donc pas représentées sur la Figure 2-11). Au contraire, si la goutte est chargée négativement (avec toujours $q=5 |e|$ et $A=15 \mu\text{m}$ ou $25 \mu\text{m}$) l'efficacité est augmentée jusqu'à un et deux ordres de grandeur par rapport au cas sans les forces électrostatiques, respectivement pour des aérosols micrométriques et nanométriques.

Pour de faibles charges sur la goutte ($Q \approx 100 |e|$ pour $A=15 \mu\text{m}$, $Q \approx 1000 |e|$ pour $A=100 \mu\text{m}$), la contribution du terme CLD n'apparaît que pour des petits aérosols. Cela s'observe sur l'ensemble des simulations (Figure 2-11 à Figure 2-13) par l'intermédiaire de l'effet de la charge de la goutte (Q) qui est de second ordre pour des gros aérosols ($a > 0,3 \mu\text{m}$), devenant de plus en plus important pour de

petits aérosols car la mobilité électrique d'un aérosol est inversement proportionnelle à sa taille. Ce résultat est en accord avec les simulations de Tinsley et Zhou (2015) qui étudient l'effet des forces électrostatiques pour des rayons de goutte inférieurs à 15 μm . La présente étude montre que cela reste valide pour des rayons de 100 μm .

La contribution du terme CLD est aussi illustrée :

- La diminution de l'efficacité de collecte qui apparaît pour de petits aérosols de grande mobilité électrique lorsque le terme CLD est répulsif. Ce cas est illustré sur la Figure 2-6 (haut, gauche) ;
- Les courbes de produits de charges ($q \times Q$) égaux et identiques ont la même asymptote pour des petits aérosols. C'est par exemple le cas sur la Figure 2-12 pour une goutte de rayon 50 μm , la courbe d'efficacité pour une goutte chargée - 10 000 $|e|$ et un aérosol chargé 5 $|e|$ coïncide avec celle pour une goutte chargée - 1 000 $|e|$ et un aérosol chargé 50 $|e|$, pour un aérosol nanométrique. Cette observation est due au terme CLD qui domine la collecte pour ces tailles d'aérosols et qui est proportionnel au produit des charges ($q \times Q$).

2.4.4.3 TRANSITION ENTRE LA DOMINATION DU TERME IAFD ET CLD

Pour une faible charge sur la goutte et de même polarité que celle de l'aérosol, la transition entre la domination des termes IAFD et CLD est très marquée sur les résultats de simulation de par une diminution brutale de l'efficacité sous l'effet de la charge de la goutte (Q). Il existe un rayon d'aérosol critique à partir duquel l'efficacité de collecte devient inférieure au cas neutre ($q=Q=0 |e|$). Par exemple, pour une goutte de 15 μm (Figure 2-11), 600 et 200 $|e|$ respectivement sur l'aérosol et la goutte, le rayon critique est d'environ 30 nm :

- Pour des rayons inférieurs au rayon critique ($a < 30 \text{ nm}$), l'efficacité tend rapidement vers 0 quand la taille de l'aérosol diminue. En effet, la mobilité électrique de l'aérosol est suffisamment grande pour que le terme CLD domine et repousse les particules à longue distance. Ce cas est illustré sur la Figure 2-7 (haut, gauche) ;
- Pour des rayons supérieurs au rayon critique ($a \geq 30 \text{ nm}$), la mobilité électrique de l'aérosol n'est plus suffisamment importante pour permettre au terme répulsif CLD de contrebalancer les effets dynamiques. Ainsi, l'aérosol se rapproche de la goutte et la contribution du terme IAFD - de grande amplitude - domine et permet la collecte à faible distance. Ce cas est illustré sur la Figure 2-7 (haut, droite). Pour ces tailles de particules, l'efficacité de collecte est augmentée.

Par ailleurs, on remarque que ce rayon critique varie entre les simulations :

- Plus la taille de la goutte est importante, plus le rayon critique est faible. En effet, alors que le rayon critique était précédemment de 30 nm pour une goutte de 15 μm ($q=600 |e|$ et $Q=200 |e|$), pour une goutte de 75 μm avec les mêmes charges électriques, le rayon critique est inférieur aux tailles d'aérosol considérées dans l'étude (Figure 2-13). Cette observation est directement liée à la contribution des effets dynamiques qui augmente avec la taille de la goutte, venant compenser toujours plus le terme CLD répulsif pour une même polarité sur la goutte et l'aérosol ;
- Plus le couple de charges est important et plus le rayon critique augmente. Par exemple, pour un rayon de goutte de 15 μm , des charges de 600 et 100 $|e|$ sur l'aérosol et la goutte respectivement, le rayon critique est d'environ 15 nm. Pour une charge sur la goutte de 200 $|e|$, le rayon critique est de 30 nm. Cette tendance vient de la contribution du terme CLD qui augmente avec le produit des charges.

2.4.4.4 INFLUENCE DE LA TAILLE DE LA GOUTTE SUR LES EFFETS ELECTROSTATIQUES

Ces simulations montrent que la contribution des effets électrostatiques sur l'efficacité de collecte s'atténue lorsque la taille de la goutte augmente. Cela peut être illustré quantitativement par les résultats de simulation :

- Pour un rayon d'aérosol de $1,3 \mu\text{m}$ et une goutte électriquement neutre, l'efficacité augmente de plus de deux ordres de grandeur grâce au terme IAFD lorsque la charge sur l'aérosol varie de 0 à 600 charges élémentaires pour une goutte de $15 \mu\text{m}$ (Figure 2-11), et par moins d'un ordre de grandeur lorsque la goutte à un rayon de $100 \mu\text{m}$ (Figure 2-13) ;
- Pour une goutte de $15 \mu\text{m}$ et un aérosol de 4 nm possédant une charge de $20 |e|$, le terme CLD mène à une variation relative (comparé au cas sans forces électrostatiques) de $+595 \%$ et $-99,9 \%$ pour une charge sur la goutte de $-200 |e|$ et $200 |e|$ respectivement (Figure 2-11). Pour une goutte de $75 \mu\text{m}$, les différences respectives ne sont plus que de $+23 \%$ et -23% (Figure 2-13).

Néanmoins, les effets électrostatiques restent de premier ordre lorsque l'on considère une charge sur la goutte en accord avec les mesures de Takahashi (1973) et ce, même si l'aérosol est faiblement chargé. En effet, pour une goutte de $100 \mu\text{m}$ et un aérosol de 4 nm possédant une charge de $5 |e|$, l'efficacité de collecte est augmentée d'un facteur 194 entre le cas d'une goutte chargée $-400\,000 |e|$ (nuage convectif) et le cas neutre ($q = Q = 0 |e|$).

Pour un aérosol micronique possédant les mêmes caractéristiques que les particules radioactives caractérisées par Adachi et al. (2013) à la suite de l'accident du CNPE-FD (2011) - soit un rayon de $1,3 \mu\text{m}$ et une charge de 600 charges élémentaires (CHAPITRE 1) - l'efficacité de collecte est augmentée d'un facteur 48 pour une goutte de $100 \mu\text{m}$ de nuage convectif ($Q = -400\,000 |e|$) par rapport au cas sans les forces électrostatiques ($q = Q = 0 |e|$).

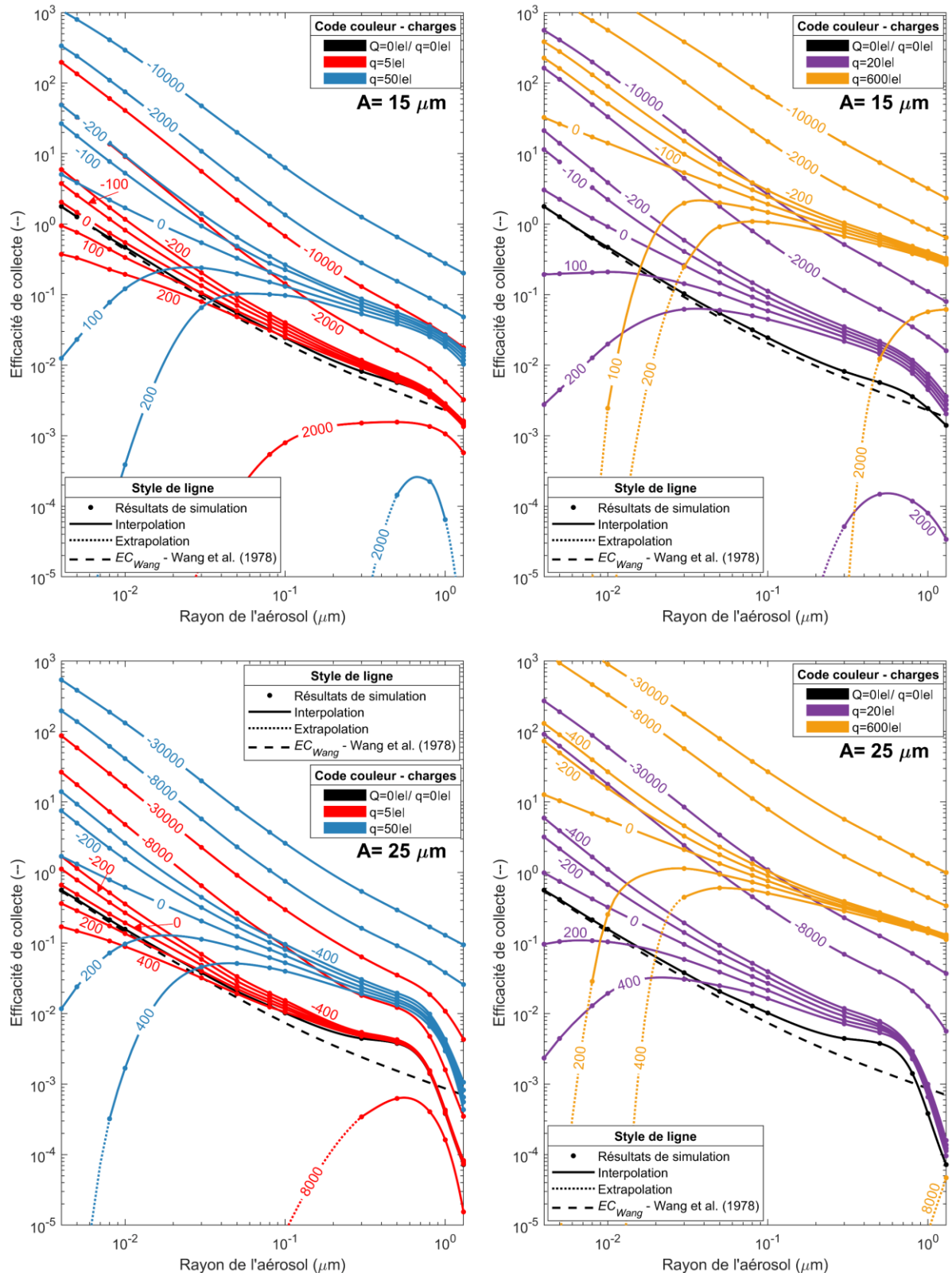


Figure 2-11 Efficacités de collecte en fonction du rayon de l'aérosol, simulées à l'aide du présent modèle pour deux gouttes de 15 μm (Haut) et 25 μm (Bas) de rayon et divers couples de charges sur la goutte et l'aérosol. La charge électrique de la goutte est directement renseignée sur les courbes en nombre de charges élémentaires. Les efficacités théoriques de Wang et al. (1978) considérant uniquement la diffusion brownienne des particules sont représentées par les lignes tiretées.

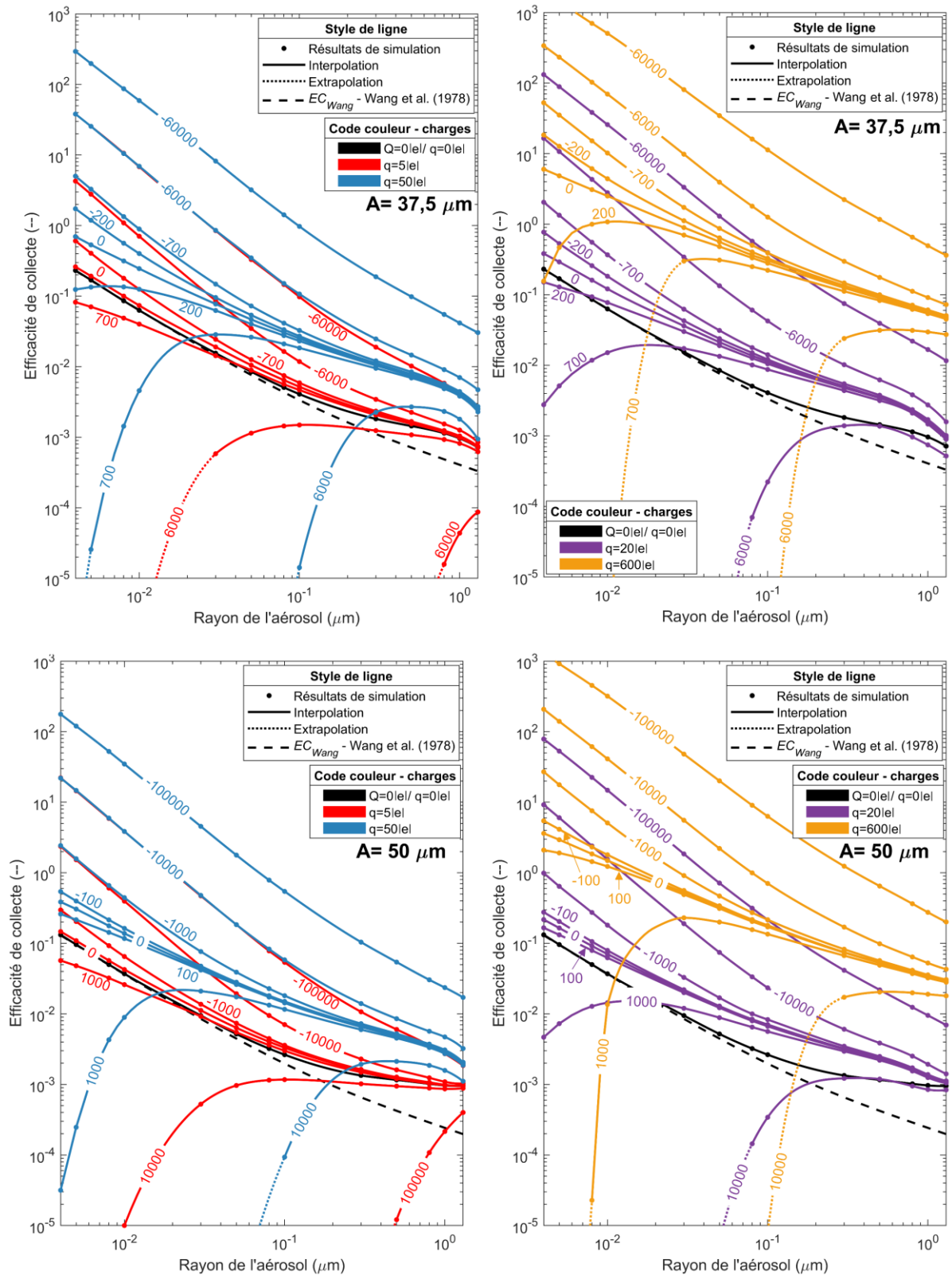


Figure 2-12 Mêmes indications que la Figure 2-11 pour deux gouttes de $37,5 \mu\text{m}$ (Haut) et $50 \mu\text{m}$ (Bas) de rayon.

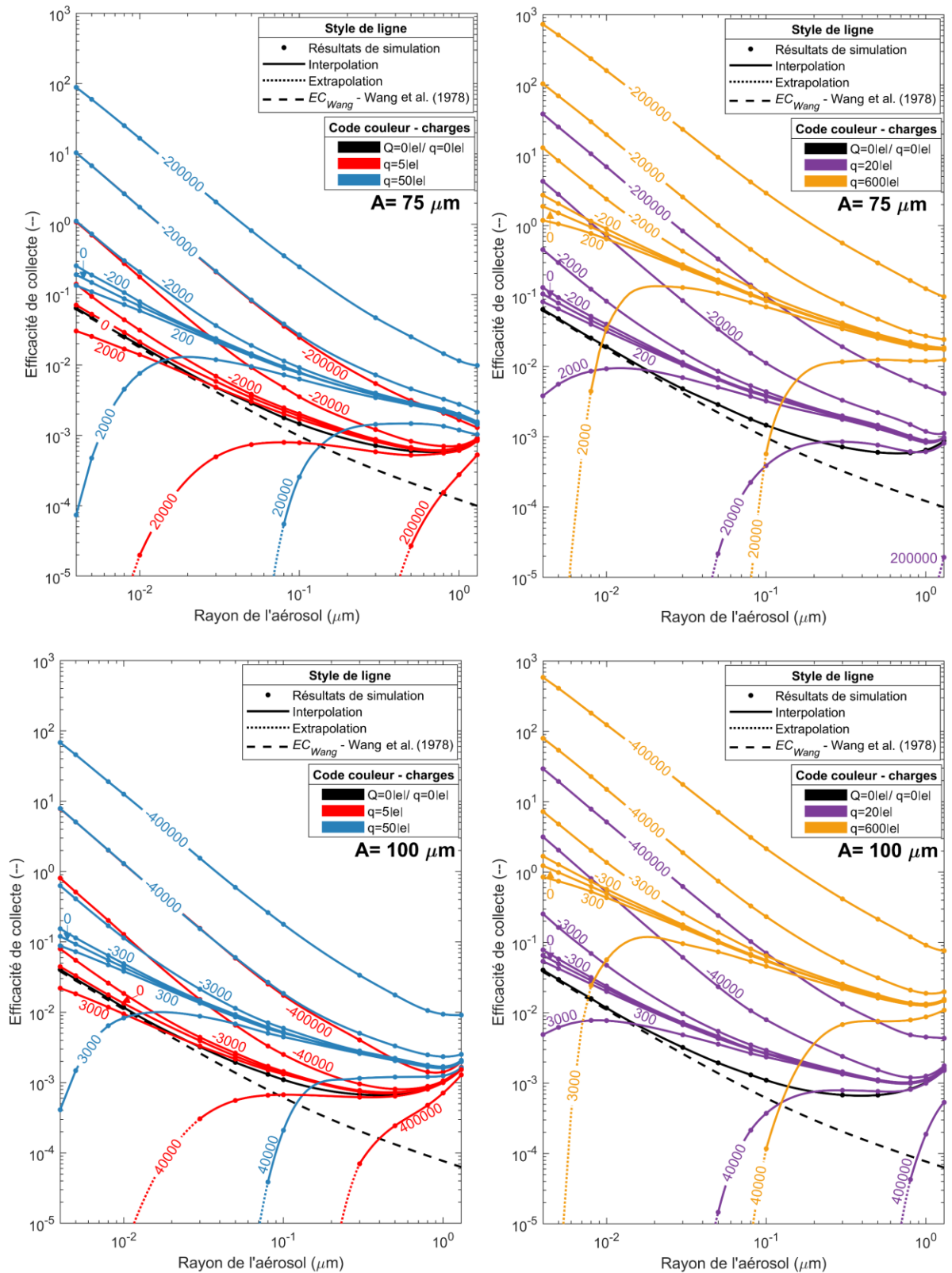


Figure 2-13 Mêmes indications que la Figure 2-11 pour deux gouttes de 75 μm (Haut) et 100 μm (Bas) de rayon.

2.4.5 RESULTATS DE SIMULATION - EFFETS COUPLES

La Figure 2-14 présente les résultats de simulation d'une goutte de $15\ \mu\text{m}$ de rayon. Dans cette simulation, les effets électrostatiques sont couplés à la thermophorèse et à la diffusiophorèse agissant en milieu sous-saturé. La charge de l'aérosol est de 5 (gauche) et 50 (droite) charges élémentaires.

Pour la charge la plus faible sur l'aérosol (Figure 2-14, gauche), les effets électrostatiques ont une influence moindre sur l'efficacité de collecte pour un milieu sous-saturé et des aérosols microniques. Pour ces tailles, la diffusiophorèse et la thermophorèse sont motrices et ce, même pour une haute humidité relative de 95 %. Ce n'est que lorsque le rayon de l'aérosol diminue vers des tailles nanométriques que les effets électrostatiques deviennent alors de premier ordre.

Il faut noter que pour des aérosols très chargés (600 charges élémentaires), la diffusiophorèse et la thermophorèse sont négligeables devant les forces électrostatiques. Les efficacités de collecte pour des humidités relatives de 95 et 75 % sont identiques à celles de la Figure 2-11 (haut, gauche) où l'air est saturé.

Pour une charge intermédiaire sur l'aérosol de 50 charges élémentaires et une haute humidité relative de 95 % (Figure 2-14, droite), les forces électrostatiques, la thermophorèse et la diffusiophorèse contribuent à part égale dans les efficacités de collecte. Pour ces tailles d'aérosols où les effets sont couplés, les modèles eulériens comme le modèle de Wang et al. (1978), bien que rapides d'utilisation, deviennent sensiblement faux. Les modèles lagrangiens, comme celui présenté dans ce chapitre, sont plus rigoureux même s'ils sont coûteux en temps de calcul.

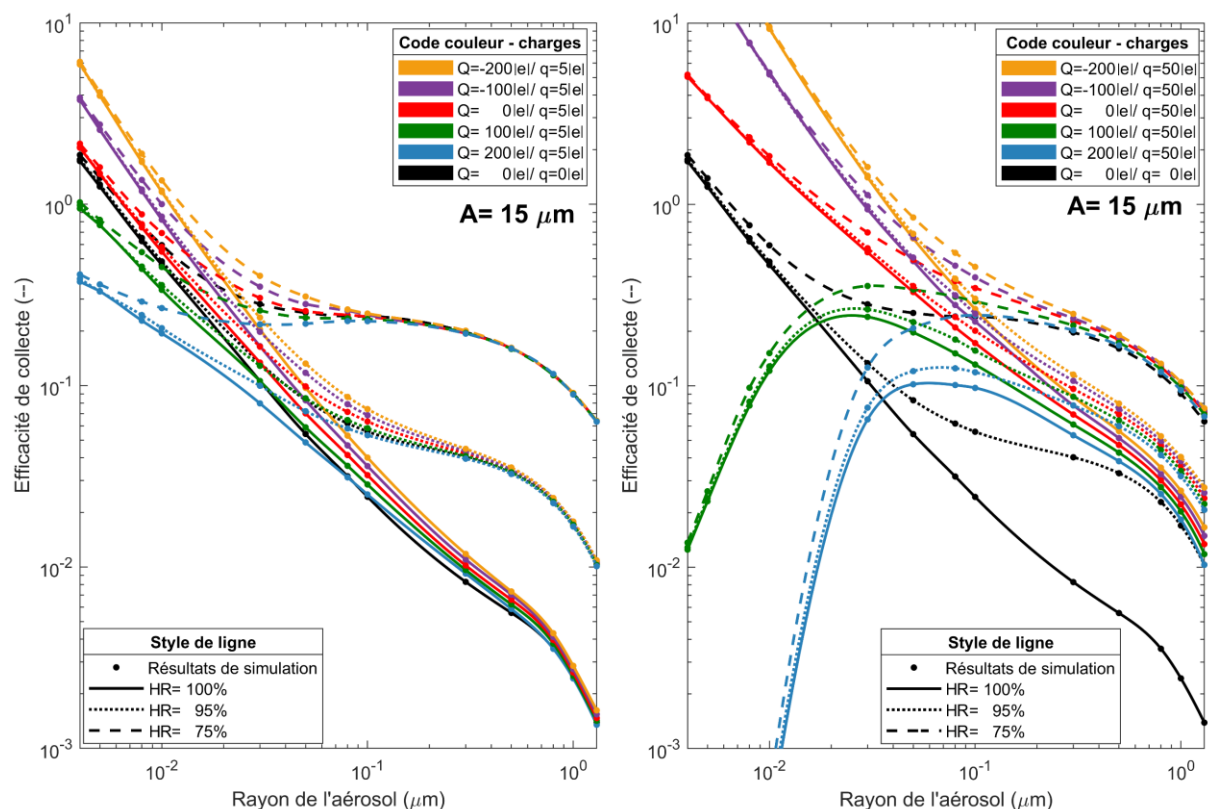


Figure 2-14 Efficacités de collecte simulées grâce au présent modèle pour une goutte de $15\ \mu\text{m}$ de rayon et diverses charges électriques sur la goutte. La charge électrique sur l'aérosol est fixée à 5 (Gauche) et 50 (Droite) charges élémentaires.

2.5 RESUME DU CHAPITRE 2

L'objectif de cette étude était de disposer d'un modèle de capture d'aérosol par une goutte permettant l'évaluation de l'efficacité de collecte. Dans ce modèle, des particules sont suivies dans une approche lagrangienne stochastique 3D où poids, inertie, diffusion brownienne, thermophorèse, diffusiophorèse et effets électrostatiques sont considérés. La modélisation de la diffusion brownienne des particules est possible de par l'utilisation et la résolution d'une équation de type Langevin. Cette étude a fait l'objet d'une publication (Dépée et al., 2019).

Une matrice d'efficacités a été calculée afin de combler le manque de données de référence disponibles dans la littérature, notamment pour des charges électriques sur l'aérosol qui sont représentatives de l'aérosol radioactif accidentellement rejeté dans l'atmosphère à la suite de l'accident du CNPE-FD (2011). De manière semblable aux travaux de Tinsley et Zhou (2015), le rayon des particules varie entre 4 nm et 1,3 μm pour caractériser les particules susceptibles d'être collectées par les gouttes de nuage. Les tailles de goutte étudiées vont quant à elles, de 15 à 100 μm - étendant les travaux des précédents auteurs afin d'étudier les effets électrostatiques sur l'ensemble de la granulométrie d'un nuage.

Les simulations réalisées montrent une dépendance de l'efficacité de collecte aux forces électrostatiques sur plusieurs ordres de grandeur, d'où l'importance d'en étudier les effets sur la capture des aérosols au sein des nuages. Pour ce faire, la nouvelle matrice d'efficacités établies est directement intégrée au modèle de nuage DESCAM (DEtailed SCAvenging Model), ce qui fera l'objet d'une étude au CHAPITRE 4.

Le modèle ainsi développé a été confronté aux simulations d'autres modèles de la littérature mais, pour être validé, doit être confronté à l'expérience. Ces travaux expérimentaux font l'objet du prochain chapitre. Comme l'humidité relative s'est révélée être un paramètre important (section 2.4.3 et 2.4.5), elle devra être rigoureusement contrôlée dans le protocole expérimental. La contribution de la thermophorèse et de la diffusiophorèse devenant très vite significative pour des aérosols microniques et des hautes humidités relatives, la chambre de In-CASE (In-Cloud Aerosol Scavenging Experiment) présentée en CHAPITRE 3 devra être la plus proche possible de la saturation lorsque l'étude portera sur les forces électrostatiques.

Les résultats de simulation présentés dans ce chapitre et détaillés en Annexe F doivent être utilisés avec précaution lorsque la masse volumique des aérosols s'éloigne de celle considérée pour les simulations (1500 $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$). En effet, pour des aérosols microniques, augmenter la masse volumique accroît le mécanisme d'impaction inertielle. De plus, pour des gouttes de faibles rayons ($A \leq 37,5 \mu\text{m}$), la contribution du poids des particules dépend grandement de leur masse volumique comme Zhang et Tinsley (2018) ont pu le montrer. Ainsi, pour des masses volumiques s'éloignant significativement de 1500 $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$, l'erreur sur l'efficacité de collecte devient importante. Pour autant, l'effet de la masse volumique est négligeable pour des rayons d'aérosol inférieurs à 0,3 μm . Par exemple, pour un aérosol de rayon 80 nm, l'efficacité de collecte varie de moins de 4 % quand la masse volumique passe de 500 à 4500 $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ (Zang et Tinsley, 2018).

Les simulations ont été faites pour des conditions de pression et de température représentatives de la troposphère moyenne (-17°C et 540 hPa). Ces efficacités de collecte restent acceptables dans l'environnement à d'autres altitudes. En effet, Tinsley et Leddon (2013) estiment que l'efficacité de collecte varie de moins de 20 % si on passe des conditions thermodynamiques de la troposphère moyenne à celles du sol (+15°C et 1013 hPa) et de 40 % si on passe des conditions thermodynamiques de la troposphère moyenne à celles de la haute troposphère (-56°C et 180 hPa).

CHAPITRE 3

ÉTUDE EXPERIMENTALE DE LA CAPTURE DE PARTICULES SUBMICRONIQUES PAR DES GOUTTES MICRONIQUES - INFLUENCE DES CHARGES ELECTRIQUES ET DE L'HUMIDITE RELATIVE

3.1 OBJECTIFS ET CONTRAINTES

L'objectif dans ce chapitre est de confronter le modèle théorique explicité au CHAPITRE 2 à des mesures réalisées en laboratoire. Un dispositif expérimental a donc été développé, permettant :

- La mise en relation de gouttes microniques chutant, à leur vitesse terminale, dans un flux de particules submicroniques - les deux distributions en taille étant monodispersées ;
- Le contrôle des charges de l'aérosol et des gouttes, ainsi que de l'humidité relative ;
- La séparation, en sortie de chambre, du flux d'aérosol et du train de gouttes ;
- La mesure de la masse d'aérosol capturée par les gouttes ;
- L'évaluation de la masse d'aérosol rencontrée par une goutte durant sa chute.

3.2 EXPÉRIENCE IN-CASE

Pour répondre aux objectifs expérimentaux, l'expérience « In-CASE » (In-Cloud Aerosol Scavenging Experiment) a été construite durant la thèse, inspirée de l'expérience « CLINCH » (CoLLision Ice Nucleation CHamber) utilisée par Ladino et al. (2011). Son schéma aéraulique est présenté sur la Figure 3-1. Des gouttes microniques chutent dans un flux de particules submicroniques de distribution en taille monodispersée circulant entre 0,4 et 1,5 l.min⁻¹ à travers une chambre d'une hauteur de 1 m. Les gouttes sont générées via un élément piézoélectrique de sorte que leur distribution en taille soit considérée comme monodispersée. Leur charge électrique est contrôlée par un système d'induction électrostatique (voir section 3.2.2). La température dans la chambre de In-CASE est régulée via un fluide caloporteur circulant dans une hélice circulaire soudée à la paroi extérieure de la chambre (Figure 3-1). Ce contrôle de la température permet indirectement la maîtrise de l'humidité relative, facilitée par un humidificateur placé en entrée de chambre. L'aérosol produit pour ces expériences est composé de fluorescéine sodée ($C_{20}H_{10}Na_2O_5$) - molécule sélectionnée pour ses grandes propriétés de fluorescence. Pour ce faire, un brouillard de gouttelettes est généré via un atomiseur pneumatique, puis séché à travers un sécheur en ligne. Par la suite, une partie du flux d'aérosol passe par un DMA (Differential Mobility Analyzer) afin de sélectionner les particules suivant leur mobilité électrique, tandis que l'excédent est évacué vers un évent. Comme cela a été mis en exergue dans les CHAPITRES 1 et 2, les effets électrostatiques et l'humidité relative - via la thermophorèse et la diffusiophorèse - ont une forte contribution à l'efficacité de collecte. Pour mesurer leur influence, des expériences à effets découplés ont été réalisées :

- Lorsque l'étude porte sur les forces électrostatiques, le flux d'aérosol passe dans un chargeur aérosol afin de conférer aux particules l'état de charge souhaité. Ce chargeur a été dimensionné à 1,5 l.min⁻¹ pour y minimiser le dépôt d'aérosol (voir section 3.2.3). Le débit d'aérosol étant au maximum de 1,2 l.min⁻¹ en sortie de DMA, un débit d'air propre est donc ajouté en entrée de chargeur. En partie basse de chambre, l'aérosol passe dans un neutraliseur électrostatique avant d'être collecté, sur un filtre très haute efficacité. Cela permet d'éviter toute accumulation de charges électriques sur le filtre qui, à terme, peut induire une perte d'aérosol via un dépôt sur les parois du porte-filtre ;
- Dans le cas où l'étude porte sur la thermophorèse et la diffusiophorèse, le chargeur aérosol est remplacé par le neutraliseur pour s'affranchir des effets électrostatiques.

En bas de la chambre, un séparateur aérodynamique a été construit afin de récolter les aérosols sur un filtre très haute efficacité tandis que les gouttes s'impactent dans un volume de contrôle. Des précisions sont données en 3.2.1. Durant l'expérience, la température et l'humidité relative (la pression est à la pression atmosphérique) sont mesurées via deux capteurs disposés en haut et bas de chambre. À la fin de chaque expérience, les masses de particules déposées sur le filtre et dans le volume de contrôle sont mesurées par spectrométrie de fluorescence pour en déduire l'efficacité de collecte.

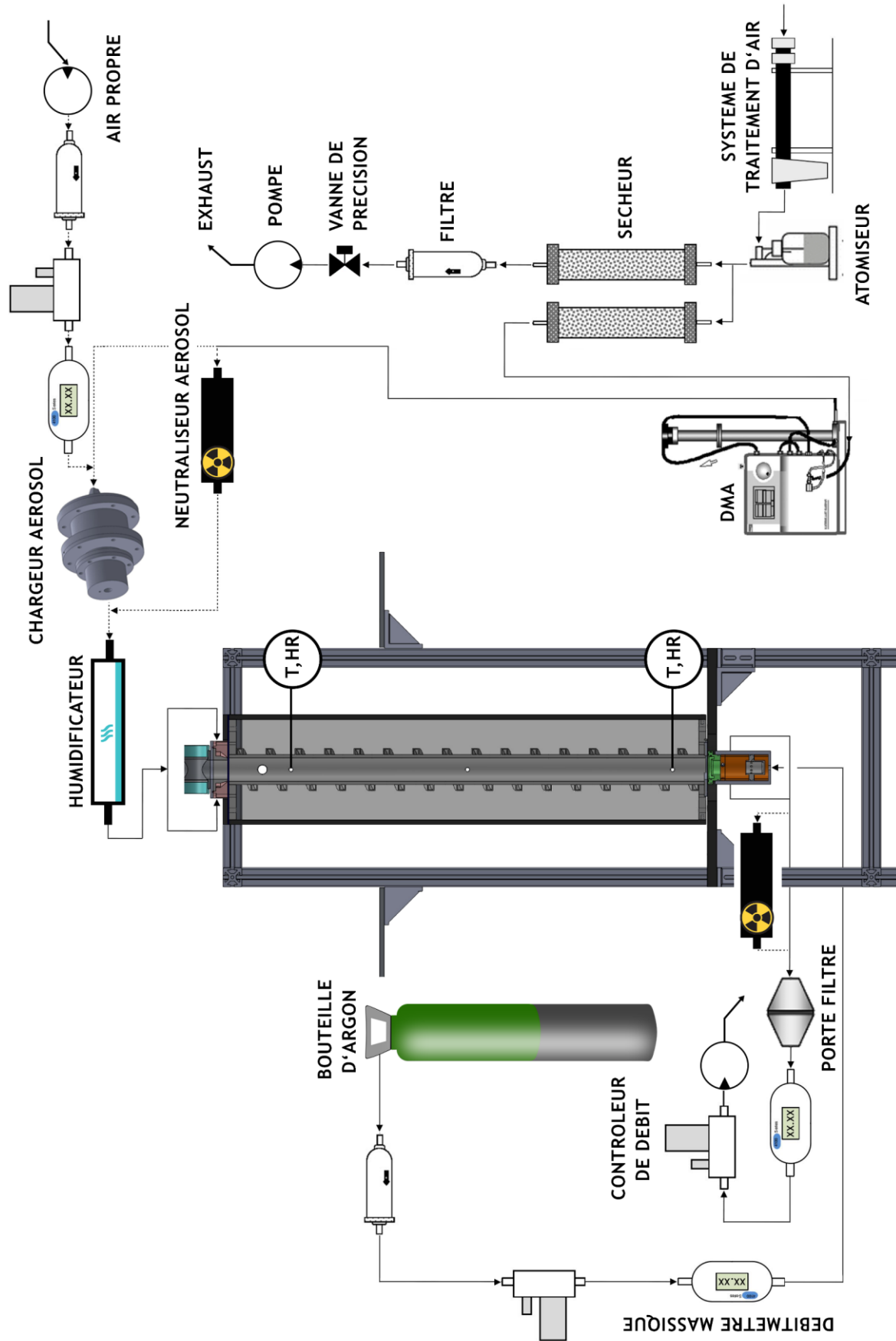


Figure 3-1 Schéma aéraulique de In-CASE.

3.2.1 SEPARATION DES GOUTTES ET DU FLUX D'AÉROSOL

3.2.1.1 GEOMETRIE DE L'IMPACTEUR

La Figure 3-2 présente la géométrie de l'impacteur développée pour séparer les gouttes du flux d'aérosols en partie basse de la chambre de In-CASE. L'impacteur se décompose premièrement d'une partie convergente (de diamètre allant de 5 cm à 3 cm) où une gouttière est insérée pour éviter un éventuel ruissellement lié à la condensation de vapeur sur les parois. Les aérosols sont aspirés en dehors de la chambre par 4 aspirations situées juste en dessous du convergent, tandis que les gouttes viennent s'impacter dans un volume de contrôle situé au fond de l'impacteur.

Pour s'assurer qu'il n'y ait pas de pollution du flux d'aérosol dans le volume de contrôle contenant les gouttes, un contre-courant de gaz est utilisé. Ce gaz étant à la température de la pièce, il est plus chaud que le flux d'aérosol à température de la chambre de In-CASE. Ainsi, pour éviter des instabilités du type Rayleigh-Taylor (Sharp, 1983) - pouvant provoquer une pollution de particules dans le volume de contrôle - l'Argon a été choisi plutôt que de l'air, possédant une masse volumique plus grande. L'Argon est injecté en partie basse de l'impacteur et circule de bas en haut du volume de contrôle (de diamètre 2,5 cm) par l'intermédiaire de 9 orifices de 4 mm de diamètre.

Le débit volumique d'Argon en entrée est réglé à $0,4 \text{ l.min}^{-1}$ - donnant des vitesses ascendantes d'Argon de $1,4 \text{ cm.s}^{-1}$ et de $5,9 \text{ cm.s}^{-1}$, respectivement, en partie haute du volume de contrôle et en sortie de chacun des 9 orifices. Ainsi, l'aérosol - qui possède une vitesse de sédimentation de l'ordre de $10^{-2} \text{ cm.s}^{-1}$ - ne peut entrer dans le volume de contrôle tandis que la goutte - de vitesse terminale proche de 25 cm.s^{-1} - vient s'y impacter. L'Argon est aspiré avec le flux d'aérosol par les quatre sorties situées en dessous du convergent.

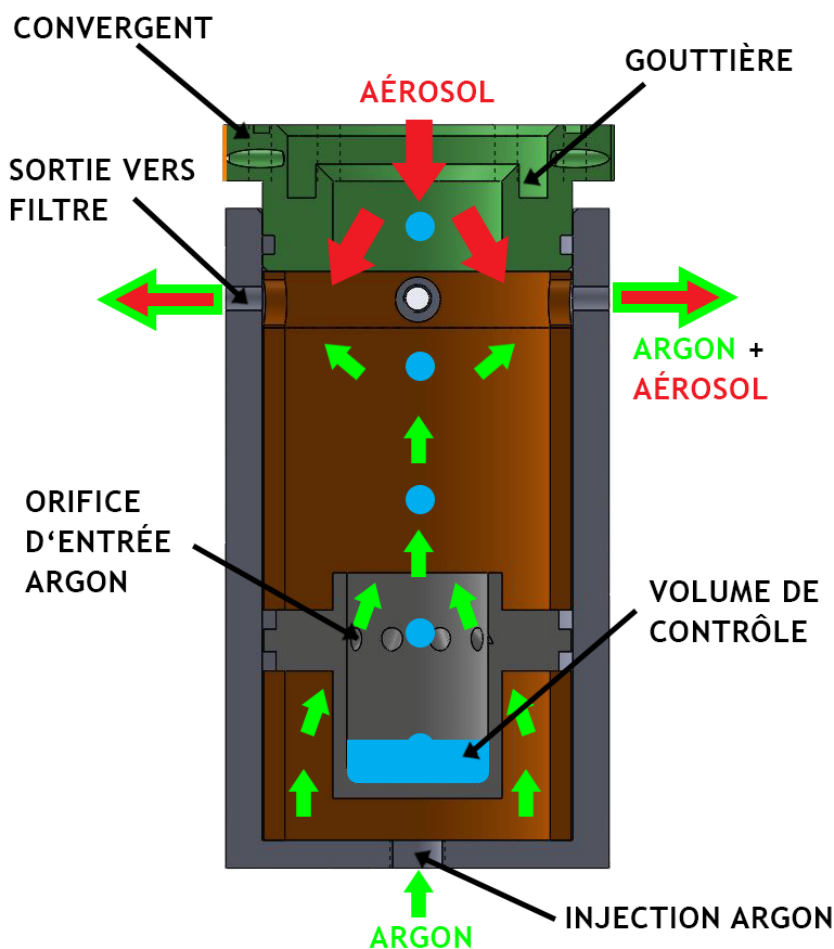


Figure 3-2 Géométrie de l'impacteur - séparation des gouttes et du flux d'aérosol (flèches rouges) avec un contre-courant d'Argon (flèches vertes).

3.2.1.2 RETENTION DES GOUTTES DANS LE VOLUME DE CONTRÔLE

Des tests préliminaires sont réalisés pour s'assurer que toutes les gouttes injectées dans la chambre se déposent dans le volume de contrôle de l'impacteur après avoir traversé la chambre. Pour ce faire, les gouttes sont générées à une fréquence (F_g) durant un temps Δt , avec une concentration massique de fluorescéine ($C_{fluo,g}$) contrôlée. Les flux dans In-CASE - et notamment le contre-courant en Argon - sont identiques à ceux imposés lors des mesures d'efficacité hormis qu'il n'y a pas d'aérosol dans cette étape de validation. Si toutes les gouttes atteignent le volume de contrôle, la masse théorique déposée est alors exprimée suivant l'Équation 3-1 :

$$m_{théorique} = F_g \times \Delta t \times \frac{4\pi}{3} A^3 C_{fluo,g} \quad \text{Équation 3-1}$$

Avec $F_g = 25$ Hz et $C_{fluo,g} = 0,1$ g.l⁻¹. Le rayon de la goutte (A) est mesuré par ombroscopie (comme 3.2.2.3) au début et à la fin de l'expérience. À la fin de l'expérience, la masse de fluorescéine sodée déposée dans le volume de contrôle est évaluée par spectrométrie de fluorescence.

La Figure 3-3 regroupe les résultats de trois expériences de durée respective 30 mn, 3 h et 5 h. On observe une différence maximale de -2,55 % entre la masse attendue et la masse mesurée à la fin de l'expérience de 5 h ce qui est satisfaisant aux vues des hypothèses faites pour ces tests. En effet, une grande incertitude réside dans la taille de la goutte mesurée à un instant donné, mais surtout du fait qu'on considère une taille moyenne entre le début et la fin de l'expérience. Une illustration simple de ce biais est l'expérience de 3h. Sur ce test, la masse de fluorescéine mesurée dans le volume de contrôle est plus grande que la masse théorique (pour rappel les flux sont dépourvus d'aérosol dans cette expérience). Cette différence peut être attribuée à l'incertitude sur la mesure du rayon de la goutte, dont la dépendance est au cube en Équation 3-1.

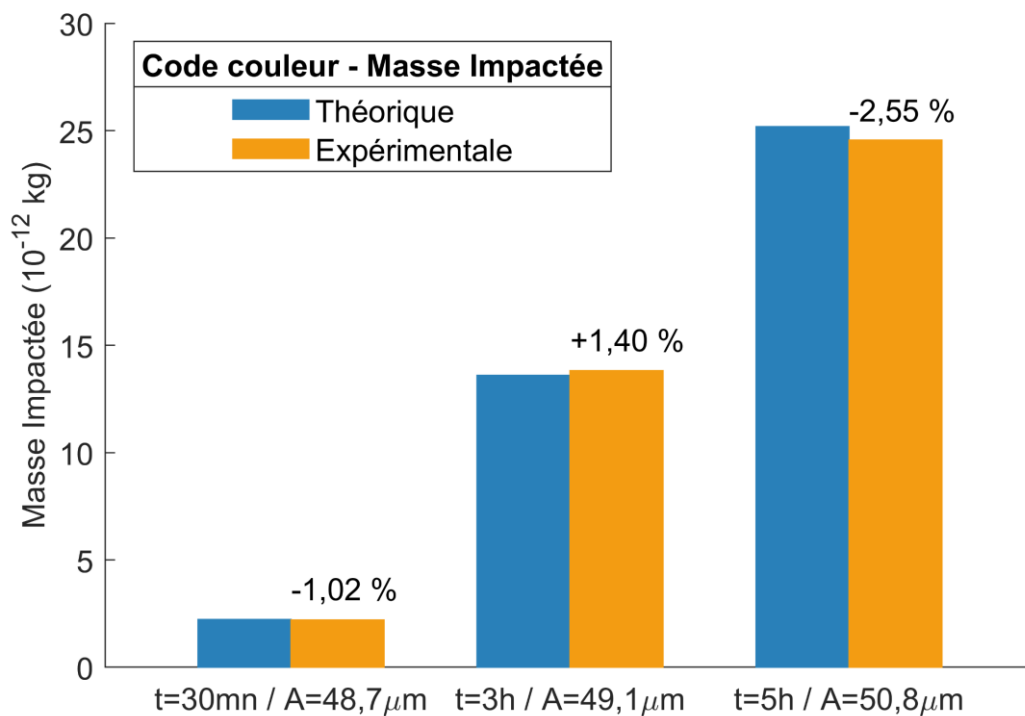


Figure 3-3 Masse de fluorescéine théorique (bleue) et mesurée (orange) dans le volume de contrôle après 30 mn, 3 h et 5 h. Le rayon mesuré des gouttes (A) est renseigné.

3.2.1.3 POLLUTION DU VOLUME DE CONTRÔLE PAR LE FLUX D'AÉROSOL

Pour s'assurer des performances du contre-courant en Argon, deux expériences de 5 h pour deux diamètres secs d'aérosol de 100 nm et 500 nm ont été réalisées, cette fois-ci en absence de goutte. Pour chaque expérience, la masse de fluorescéine dans le volume de contrôle était inférieure à la limite de détection du fluorimètre qui est de 10^{-13} g.ml⁻¹.

Ainsi, si une pollution du flux d'aérosol dans le volume de contrôle existe, elle n'est pas détectable dans les analyses. Dès lors, la masse de fluorescéine mesurée dans les gouttes à la fin d'une expérience vient nécessairement d'évènements de collecte.

3.2.2 CONTROLE ET CARACTERISATION DES GOUTTES

3.2.2.1 DISPOSITIF DE GENERATION DES GOUTTES

Un dispositif piézo-électrique (présenté sur la Figure 3-4, non renseigné sur le Figure 3-1) emprunté à la technologie des imprimantes à jet d'encre (MJ-ABL-01, MicroFab) est utilisé pour générer un train de gouttes microniques. Le générateur piézoélectrique est alimenté en eau ultra pure via une bouteille où la pression est asservie par un module de contrôle, tandis que sa contraction est pilotée par un deuxième module. La pression dans la bouteille est réglée afin d'avoir l'eau en équilibre au niveau de l'orifice de sortie du piézoélectrique. Sa contraction va alors briser l'équilibre en propageant une onde de pression au niveau de l'orifice - une goutte est ainsi expulsée. Un train de gouttes est alors créé dont la fréquence de génération des gouttes est égale à la fréquence de contraction du piézoélément.

Le piézoélectrique utilisé, de diamètre d'orifice 150 μ m, possède l'avantage d'être stable sur des durées compatibles avec celles des expériences (jusqu'à 6 heures).

Remarque : Du chlorure de sodium est ajouté dans l'eau ultra pure pour contrôler la charge électrique des gouttes. Ce point sera développé en section 3.2.2.6.

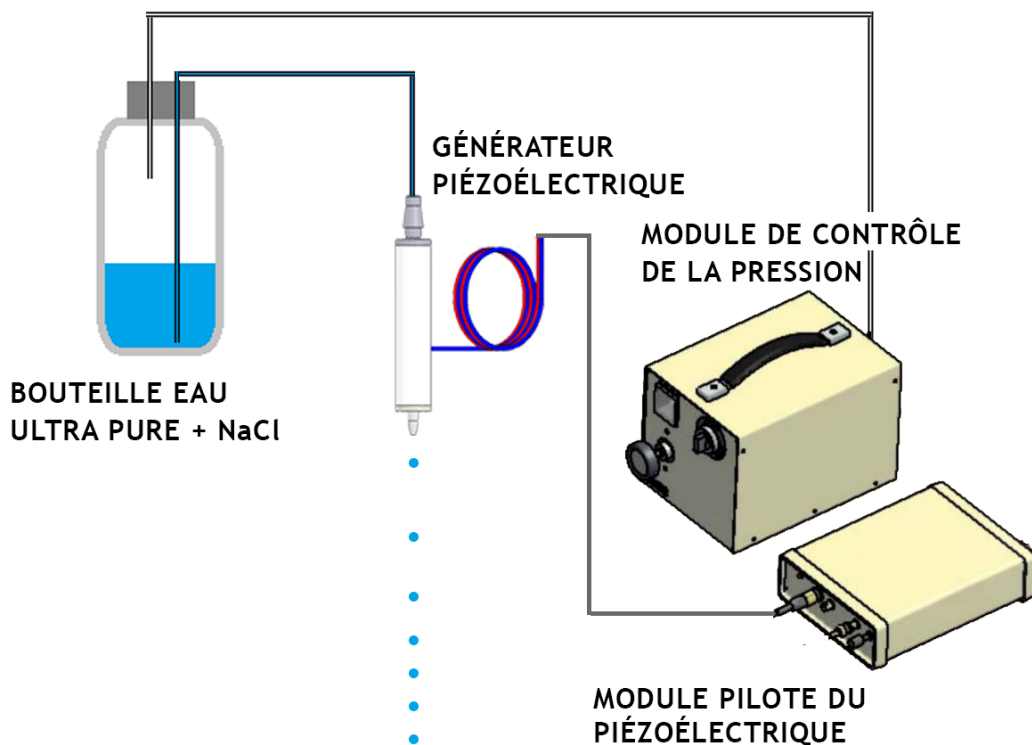


Figure 3-4 Dispositif de génération des gouttes.

3.2.2.2 FREQUENCE DE GENERATION

La fréquence maximale de génération - fonction de la viscosité et de la tension de surface du fluide utilisé - est de l'ordre de 200 Hz pour l'eau pure utilisée dans l'étude expérimentale. Pour autant, une fréquence plus basse de 25 Hz est préférée afin d'éviter tout problème de coalescence. En effet, comme les gouttes sont générées à une vitesse supérieure à leur vitesse terminale, la distance inter-gouttes diminue en fonction de la distance à la tête du générateur piézoélectrique (Figure 3-5). Dès lors, il a été observé que pour des fréquences supérieures à 25 Hz (pour l'orifice 150 μm), la distance inter-goutte est trop faible et induit des effets aérodynamiques menant à la coalescence des gouttes. Des gouttes plus grosses se forment alors et, du fait de leur vitesse terminale plus importante, collectent les gouttes plus petites qui les précèdent - le train de gouttes est alors rompu. Cette observation est illustrée sur la Figure 3-6 et s'accorde avec les conclusions d'Ardon-Dryer et al. (2015).

De fait, une fréquence de génération de 25 Hz est utilisée dans l'ensemble des expériences afin de garder un train de gouttes de distribution en taille monodispersée.

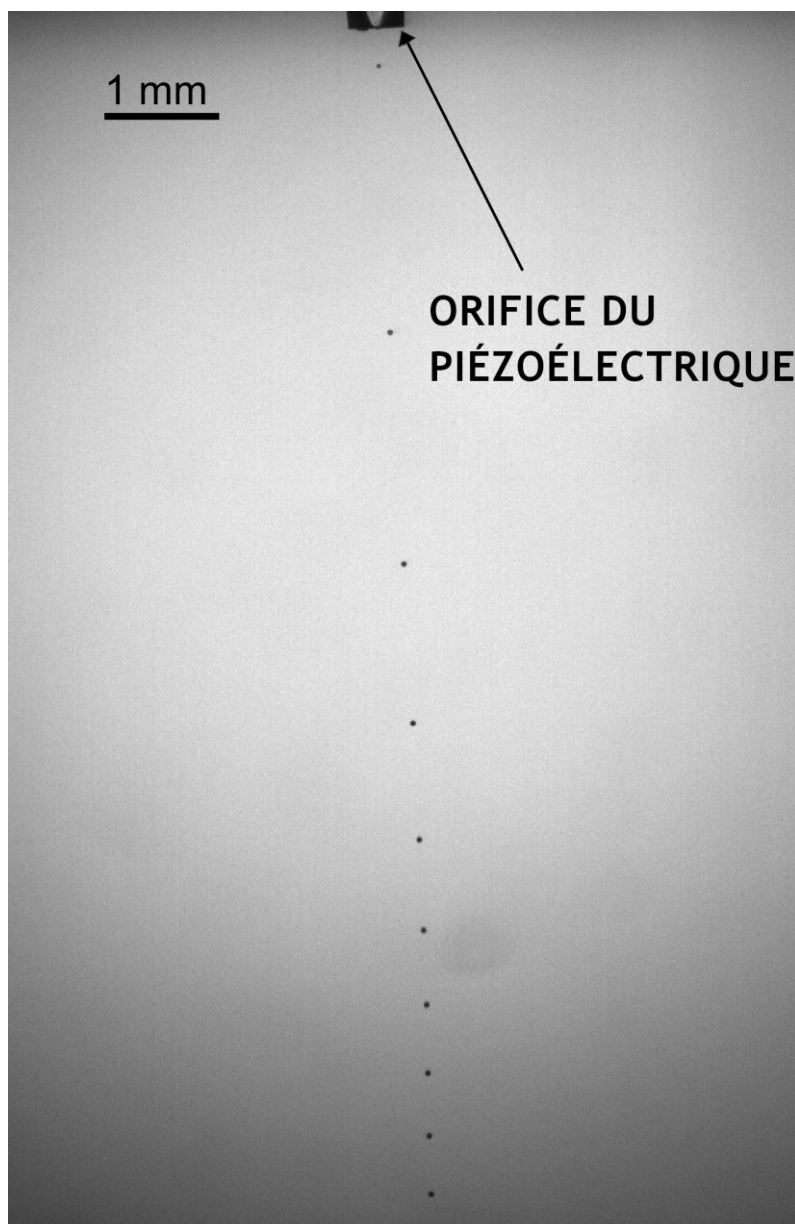


Figure 3-5 Génération de gouttes microniques en sortie de piézoélectrique - diminution de la distance inter-goutte du fait de leur décélération (fréquence 200 Hz).

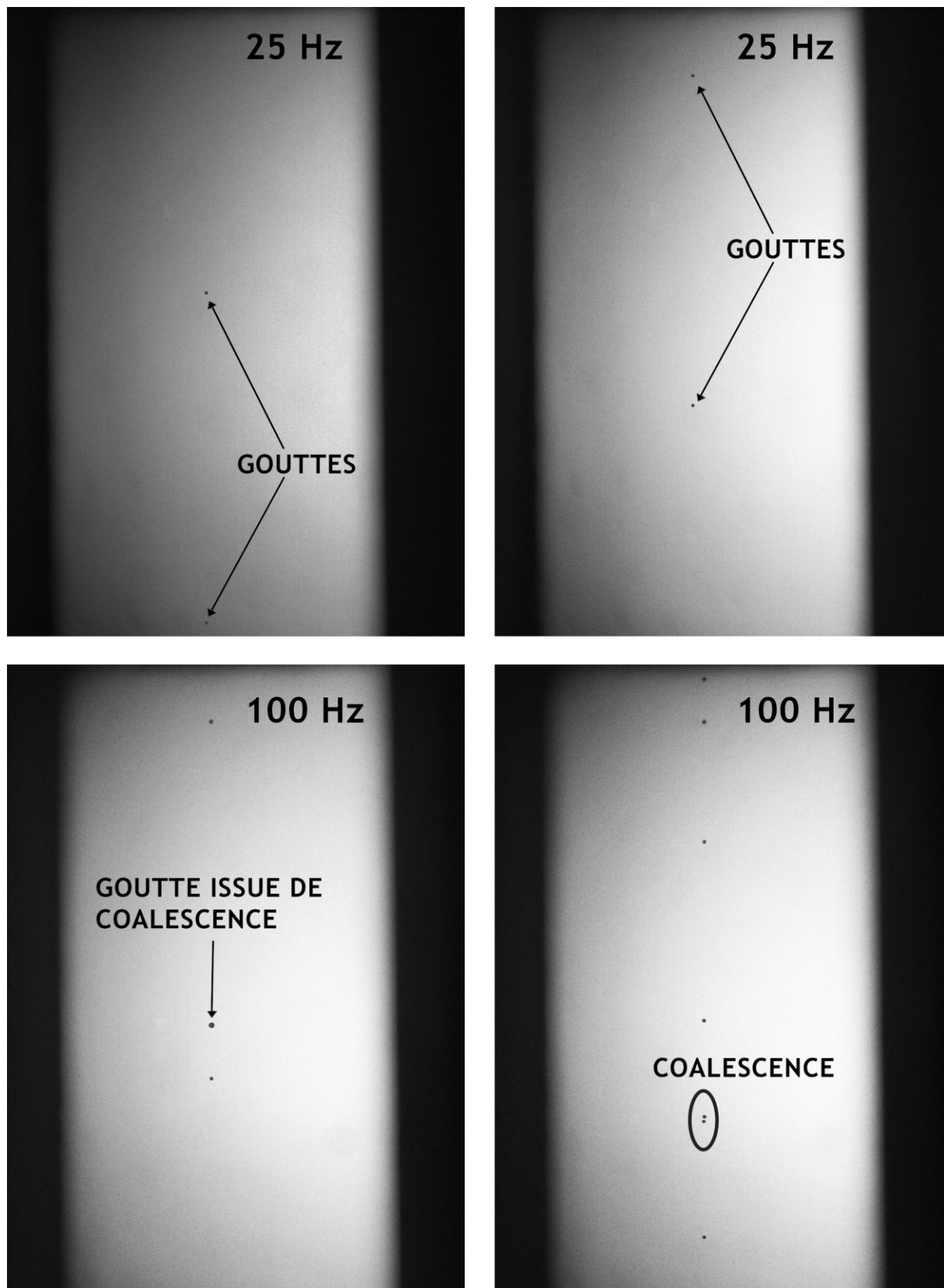


Figure 3-6 Illustration du problème de coalescence dans le cas d'une fréquence supérieure à 25 Hz. Visualisation du train de gouttes à 20 cm de l'injection - 25 Hz (Haut) et 100 Hz (Bas).

3.2.2.3 TAILLE DES GOUTTES

Plusieurs fois au cours d'une expérience, une acquisition de 200 images prises en ombroscopie laser est réalisée à travers les deux hublots situés en partie haute de la chambre de In-CASE (Figure 3-7, gauche). Ces images sont ensuite analysées à l'aide d'une transformée circulaire de Hough pour en déduire la taille des gouttes. Un exemple de détection de taille de goutte est présenté sur la Figure 3-7 (droite) pour une goutte de rayon $49,7 \mu\text{m}$. Dans l'ensemble des expériences, les rayons des gouttes mesurés sont de l'ordre $50 \mu\text{m}$ avec un écart-type de $0,5 \mu\text{m}$. La distribution en taille des gouttes générées par le dispositif (Figure 3-4) peut donc être considérée comme monodispersée.

Remarque : En section 3.2.2.7, une méthode plus précise pour obtenir la taille de la goutte repose sur la mesure de sa vitesse terminale ($U_{\infty,A}$) pour en déduire sa taille en utilisant le modèle inversé de Beard (1976). Cette méthode ne peut pas être utilisée *in situ* durant une expérience car les hublots sont disposés à la même hauteur que le piézoélectrique. Une hauteur d'environ 15 cm est nécessaire pour permettre aux gouttes d'atteindre leur vitesse terminale.

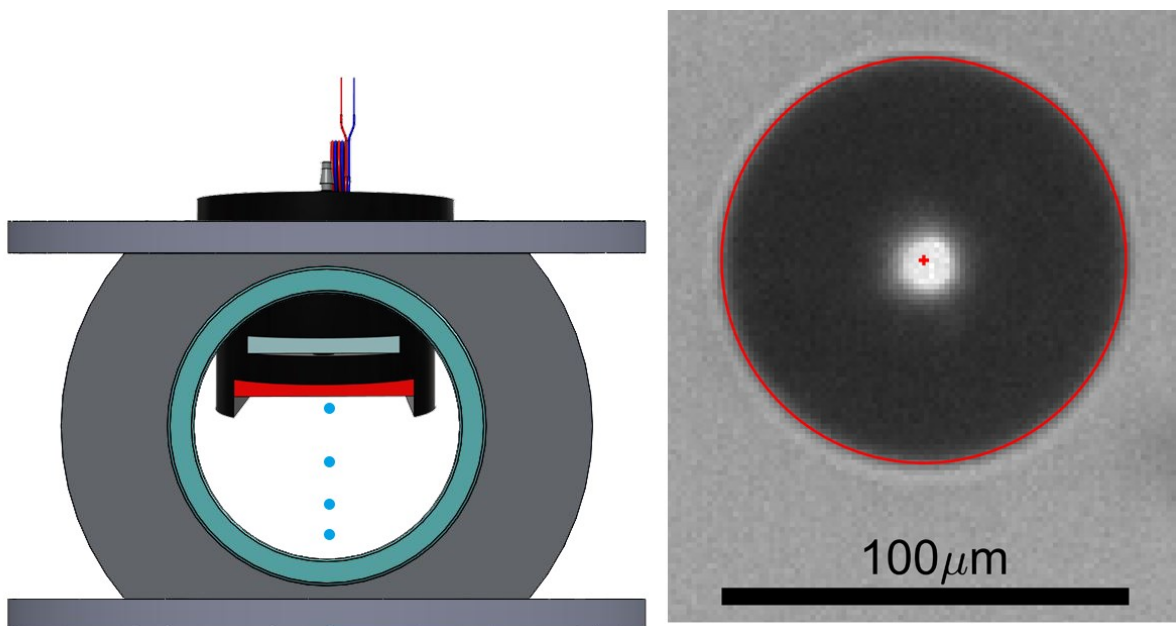


Figure 3-7 (Gauche) Disposition du piézoélectrique dans la pièce réalisée en impression 3D. (Droite) Image prise en ombroscopie d'une goutte générée par le piézoélectrique. La croix et le cercle rouge sont la détection du centre de la goutte et de son rayon (ici de $49,7 \mu\text{m}$) par une transformée circulaire de Hough.

3.2.2.4 TEMPERATURE DANS LA CHAMBRE DE IN-CASE

Pour que les mesures soient inter-comparables, la température dans la chambre de In-CASE est de l'ordre d' 1°C (la pression étant celle de la pièce). Cette température a été choisie pour maximiser l'humidité relative dans la chambre, tout en évitant la formation de glace sur les parois. Pour faire varier l'humidité relative, notamment lorsque l'étude porte sur l'influence de la thermophorèse et de la diffusiphorèse, on fait varier la température de l'eau dans l'humidificateur - la baissant pour diminuer l'humidité relative.

La plus basse humidité relative considérée dans les mesures est de l'ordre de 70% . Pour ces mesures, l'humidificateur est enlevé pour avoir un air au maximum sec en entrée de la chambre. Mentionnons qu'à la température de la pièce, l'humidité relative en sortie des sécheurs en ligne (Figure 3-1) se situe entre 10 et 20% . Dès lors, il n'a pas été possible, à une température de chambre d' 1°C - d'obtenir de plus basses humidités relatives. Toujours est-il que, dans un nuage, les humidités relatives sont proches de la saturation.

3.2.2.5 ÉVAPORATION DES GOUTTES DANS LA CHAMBRE DE IN-CASE

L'évaporation des gouttes dans la chambre de In-CASE a été évaluée théoriquement grâce à un modèle d'évaporation purement diffusif. La convection y est négligée dès lors que la vitesse terminale des gouttes est faible ($U_{\infty,A} \approx 25 \text{ cm.s}^{-1}$). Les équations de bilan d'énergie et de masse utilisés sont présentées en Annexe C. Le temps de transit des gouttes dans la chambre est alors évalué via ce modèle d'évaporation qui détermine le rayon de la goutte au cours du temps, et le modèle de Beard (1976) qui met à jour sa vitesse terminale.

Sur la Figure 3-8 sont présentées des courbes d'évaporation d'une goutte de rayon initial $50 \mu\text{m}$ pour quatre humidités relatives et pour une température et une pression représentatives des expériences réalisées ($T_{air} = 274,15 \text{ K}$ et $P_{air} = 1 \text{ atm}$). L'évaporation de la goutte est donc négligée dans les expériences dès lors que le rayon de la goutte diminue de maximum 3 % dans un environnement à 70 % d'humidité relative (humidité relative la plus faible étudiée).

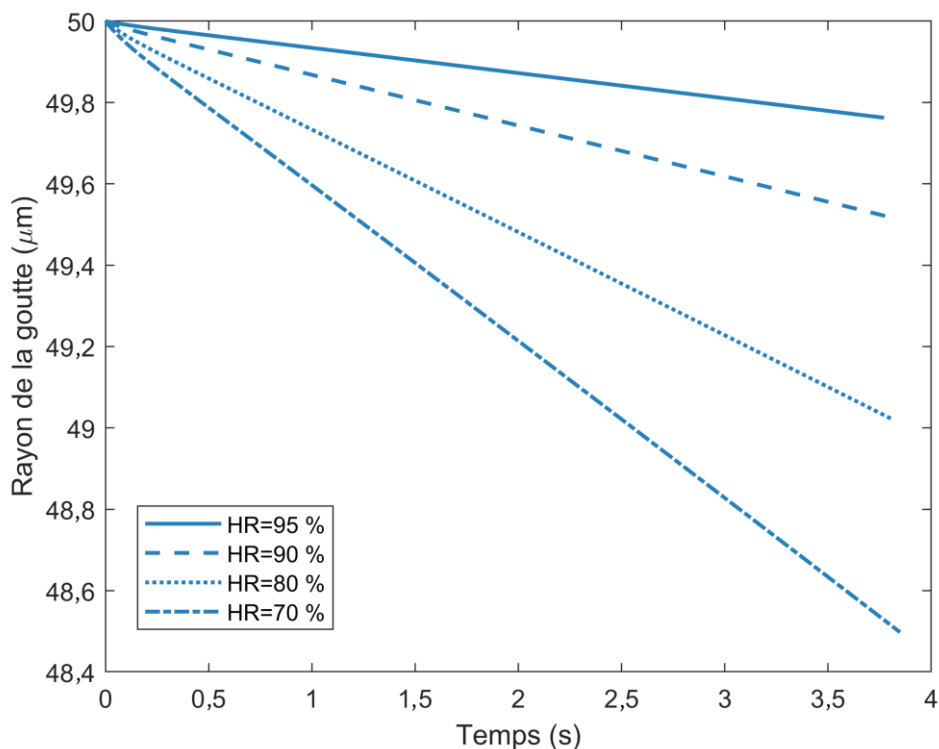


Figure 3-8 Évaporation théorique d'une goutte de rayon $50 \mu\text{m}$ de l'injection dans la chambre jusqu'à sa sortie, 1 m plus bas, sous quatre humidités relatives ($T_{air} = 274,15 \text{ K}$ et $P_{air} = 1 \text{ atm}$).

3.2.2.6 CONTROLE DE LA CHARGE DE LA GOUTTE - PRINCIPE D'INDUCTION

Afin de contrôler la charge électrique des gouttes, un système d'induction électrostatique - inspiré des travaux de Reischl et al. (1977) - a été conçu dans la thèse. Dans ce but, du chlorure de sodium a été ajouté dans la bouteille d'eau ultra pure alimentant le piézoélectrique (Figure 3-4) à une concentration de $3,33 \text{ g.l}^{-1}$. Dès lors, deux plaques horizontales et parallèles sont disposées au niveau de l'orifice du piézoélectrique. Une de ces plaques est reliée au potentiel 0 V tandis que l'autre à un potentiel contrôlé (V_{ind}). Un champ électrique (E_{ind}) est donc imposé à l'orifice (Figure 3-9, gauche), permettant selon la polarité du potentiel V_{ind} , d'attirer sélectivement des ions sodium (chargés positivement) ou chlorure (chargés négativement) à l'orifice du piézoélectrique où se forme la goutte. De plus, l'amplitude du champ électrique contrôle la quantité d'ions attirés et, à terme, le nombre de charges élémentaires portées par la goutte.

Pour mettre en évidence la variation de la charge de la goutte suivant le potentiel V_{ind} à la plaque d'induction, un condensateur plan - avec une distance inter-électrode de 1 cm - est positionné en dessous des plaques à induction (Figure 3-9, gauche). Une plaque du condensateur est reliée à un

potentiel contrôlé (V_{cond}), l'autre au potentiel 0 V, imposant un champ électrique (E_{cond}). Sur la Figure 3-9, à droite, sont présentées les trajectoires de goutte déduites de l'analyse de 200 images prises en ombroscopie. Pour illustrer, les centres de chaque goutte - détectés sur ces 200 images grâce à une transformée circulaire de Hough - sont présentés pour un potentiel à la plaque à induction de -32,25 V. Le potentiel au condensateur est fixé à $V_{cond} = -629,5$ V et chaque trajectoire correspond à un potentiel à la plaque d'induction (V_{ind}) différent. La trajectoire noire est le cas particulier où tous les potentiels sont nuls ($V_{cond} = V_{ind} = 0$ V).

On peut remarquer que :

- La trajectoire noire ($V_{cond} = V_{ind} = 0$ V) est verticale, les gouttes chutent gravitairement ;
- La trajectoire violette pour $V_{ind} = 0$ V est inclinée vers la gauche comparé à la trajectoire au repos ce qui indique que le piézoélectrique charge naturellement les gouttes avec une polarité négative ;
- Si on augmente positivement V_{ind} , on attire de plus en plus d'ions négatifs (Cl^-) au niveau de l'orifice du piézoélectrique et la goutte devient de plus en plus chargée négativement ce qui s'observe avec les trajectoires tirées sur la Figure 3-9 (droite) dont la déviation est toujours plus grande ;
- Au contraire, si un potentiel négatif et décroissant (V_{ind}) est imposé à la plaque d'induction, on attire des ions positifs (Na^+) et on change la polarité de la goutte - imagé par des trajectoires d'inclinaison opposée à la trajectoire violette.

Ainsi, lors des expériences, ce système d'induction électrostatique est imbriqué avec le générateur piézoélectrique dans une pièce conçue en impression 3D, présentée sur la Figure 3-9 (milieu) et disposé en partie haute de la chambre de In-CASE (Figure 3-7, gauche) - permettant le contrôle de la charge des gouttes lors d'une expérience.

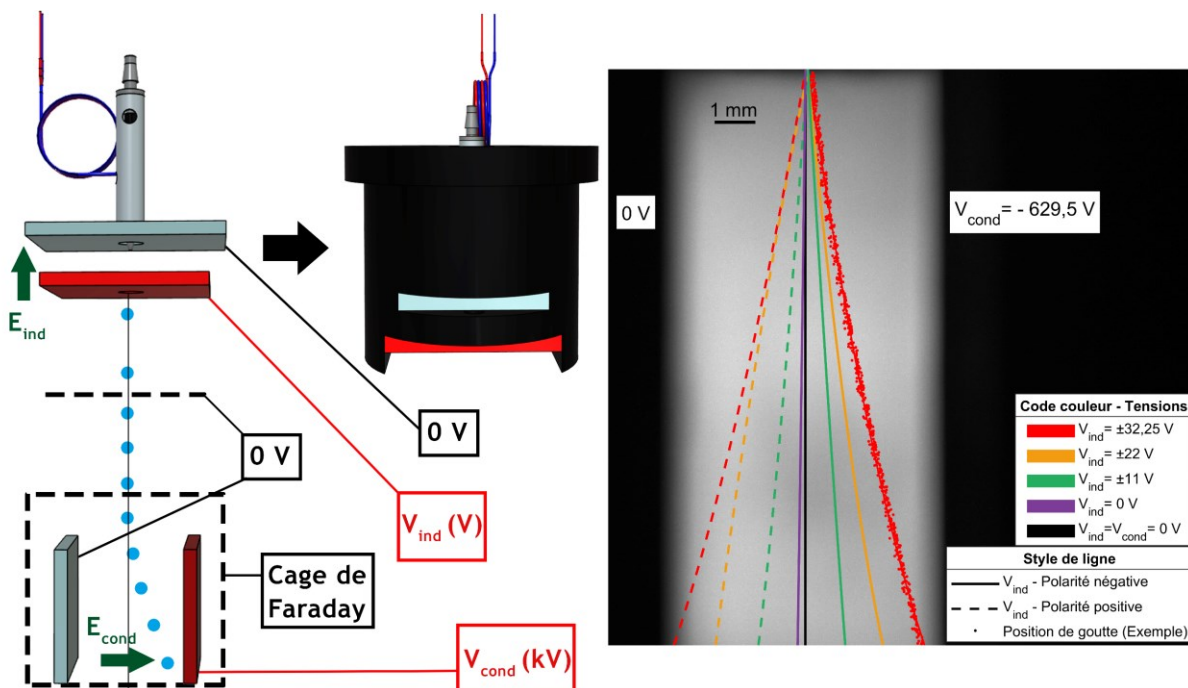


Figure 3-9 (Gauche) Schéma du système de charge par induction, condensateur et cage de Faraday pour le contrôle de la charge des gouttes. (Milieu) Schéma de la pièce réalisée en impression 3D contenant le générateur piézoélectrique et les plaques à induction. (Droite) Trajectoires de goutte moyennées, issues de l'analyse de 200 images prises en ombroscopie laser entre le condensateur ($V_{cond} = -629,5$ V). Illustration des positions de goutte pour $V_{ind} = -32,25$ V.

3.2.2.7 ÉVALUATION DE LA CHARGE DE LA GOUTTE

3.2.2.7.1 PRINCIPE ET DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Une expérience *ex situ* présentée sur la Figure 3-10, semblable à celle présentée précédemment (Figure 3-9) a été conçue afin de déterminer précisément la corrélation entre le potentiel à la plaque d'induction (V_{ind}) et la charge de la goutte (Q).

Le système de plaques à induction (Figure 3-9, milieu) est fixé à environ 20 cm au-dessus du condensateur. Les gouttes chutent en traversant une première plaque métallique, horizontale, percée et de potentiel nul, puis, entrent dans une cage de Faraday où le condensateur de la Figure 3-9 (gauche) est disposé. Le champ électrique (E_{cond}) dans le condensateur est imposé et des images des trajectoires de gouttes sont prises en ombroscopie. Enfin, la charge des gouttes est évaluée en minimisant les écarts entre la trajectoire observée et la trajectoire théorique déduite de la résolution analytique de la deuxième loi de Newton.

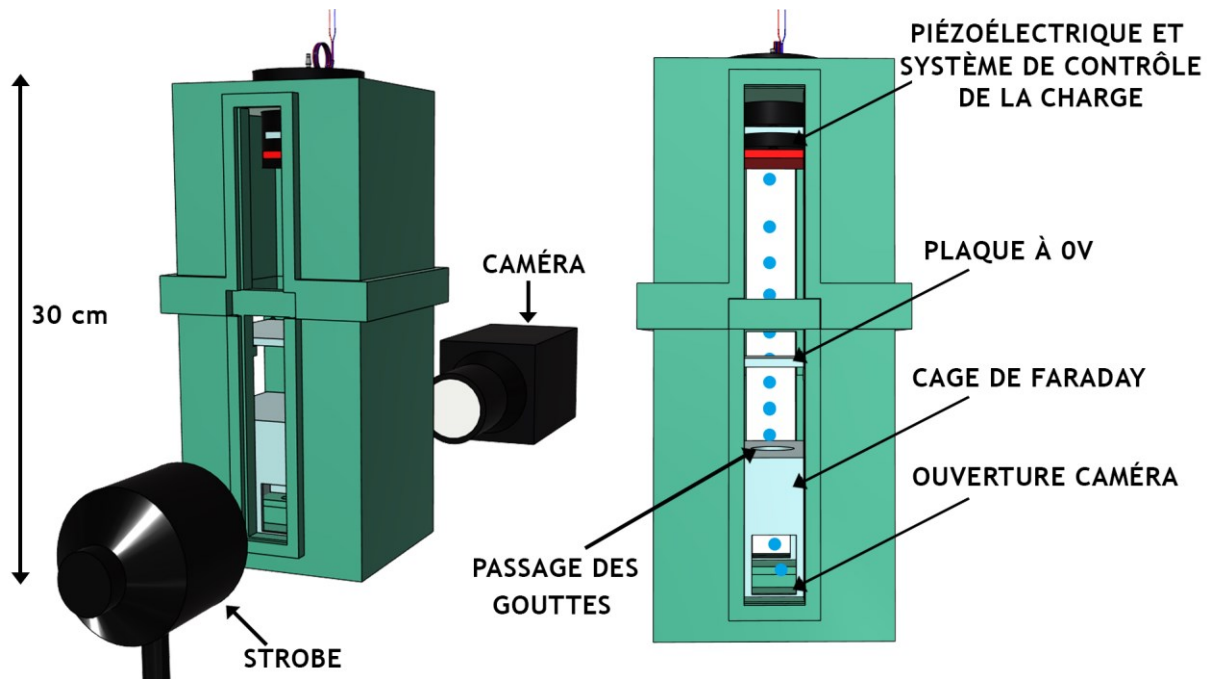


Figure 3-10 Schéma du système d'évaluation de la charge électrique des gouttes.

3.2.2.7.2 DETERMINATION DE LA CHARGE

Une série de 200 couples d'images, deux à deux déphasées d'un pas de temps connu ($\Delta t = 20439,08 \mu s$), sont prises en ombroscopie laser dans le condensateur. Le centre de chaque goutte est détecté via une transformée circulaire de Hough. Sur la Figure 3-11 (gauche), les gouttes d'une première image sont représentées par les croix noires tandis que la croix verte est la goutte de l'image déphasée de Δt .

Dès lors, la vitesse instantanée $\overline{U_{G_0}}(t) = U_{G_0,x} \overline{u}_x + U_{\infty,A} \overline{u}_y$ à la première position de goutte (G_0) de coordonnées (x_{G_0}, y_{G_0}) est mesurée et sa composante verticale permet d'en déduire la taille de la goutte (A) en inversant le modèle de Beard (1976).

A fortiori, des trajectoires théoriques des gouttes au niveau du condensateur sont déduites en résolvant la deuxième loi de Newton où les forces appliquées sur la goutte sont la force de flottabilité ($F_{fl,G}$), la force de traînée (F_T) et la force électrostatique ($F_{E_{cond}}$) liée au champ (E_{cond}) au niveau du condensateur (Équations 3-2).

$$\begin{cases} m_g \frac{d\vec{U}_G(t)}{dt} = \vec{F}_{fl} + \vec{F}_T + \vec{F}_{E_{cond}} \\ \vec{F}_{fl} = -m_g \frac{\rho_{eau} - \rho_{air}}{\rho_{eau}} g \vec{u}_y \\ \vec{F}_T = -\frac{C_T \pi \rho_{air} U_G^2 A^2}{2} \frac{\vec{U}_G(t)}{\|\vec{U}_G(t)\|} \\ \vec{F}_{E_{cond}} = Q E_{cond} \vec{u}_x \end{cases} \quad \text{Équations 3-2}$$

En projetant sur les deux axes, on obtient les deux équations à résoudre suivantes (Équations 3-3) :

$$\begin{cases} m_g \frac{dU_{G,x}(t)}{dt} = Q E_{cond} - \frac{C_{T,x} \pi \rho_{air} U_{G,x}^2 A^2}{2} \\ m_g \frac{dU_{G,y}(t)}{dt} = -m_g \frac{\rho_{eau} - \rho_{air}}{\rho_{eau}} g - \frac{C_{T,y} \pi \rho_{air} U_{G,y}^2 A^2}{2} \end{cases} \quad \text{Équations 3-3}$$

Où $C_{T,x}$ et $C_{T,y}$ sont les projections du coefficient de traînée C_T suivant les deux coordonnées de l'espace, dépendant des nombres de Reynolds de la goutte - projetés eux-aussi sur les deux axes - Re_x et Re_y . Dans l'étude, $Re_x \ll 1$ et $Re_y < 2$. Ainsi, les coefficients de traînée de la goutte peuvent être calculés suivant les expressions analytiques données par Hinds (2012) (Équations 3-4) :

$$\begin{cases} C_{T,x} = \frac{24}{Re_x} = \frac{12 \eta_{air}}{AU_{G,x} \rho_{air}} \\ C_{T,y} = \frac{24}{Re_y} \underbrace{(1 + 0,15 Re_y^{0,687})}_{\textcircled{1}} \approx \frac{12 \eta_{air}}{AU_{G,y} \rho_{air}} \underbrace{\left(1 + 0,15 \left(\frac{2AU_{\infty,A} \rho_{air}}{\eta_{air}}\right)^{0,687}\right)}_{=K_1} \end{cases} \quad \text{Équations 3-4}$$

À noter que le terme $\textcircled{1}$ des Équations 3-4 est supposé constant pour simplifier la résolution du système d'Équations 3-3 - permettant notamment d'obtenir une équation différentielle linéaire du second ordre. Cette hypothèse est justifiée dès lors que Re_y est très proche de 1 et que $C_{T,y} = \frac{24}{Re_y}$ reste satisfaisante. Ainsi, le système à résoudre devient (Équations 3-5) :

$$\begin{cases} m_g \frac{dU_{G,x}(t)}{dt} = Q E_{cond} - \frac{K_2}{6\pi A \eta_{air}} U_{G,x} \\ m_g \frac{dU_{G,y}(t)}{dt} = -m_g \frac{\rho_{eau} - \rho_{air}}{\rho_{eau}} g - \frac{6\pi A \eta_{air} K_1}{K_3} U_{G,y} \end{cases} \quad \text{Équations 3-5}$$

Après deux intégrations et les conditions aux limites : $U_{G,x}(t=0) = U_{G_0,x}$, $U_{G,y}(t=0) = U_{\infty,A}$, $(x_G(t=0), y_G(t=0)) = (x_{G_0}, y_{G_0})$, les positions théoriques x_{th} et y_{th} , respectivement horizontales et verticales de la goutte sont ainsi données par le système d'Équations 3-6 :

$$\begin{cases} x_{th}(t) = \frac{Q E_{cond}}{K_2} t + \frac{m_g}{K_2} \left(U_{G_0,x} - \frac{Q E_{cond}}{K_2} \right) \left[1 - e^{-\frac{K_2 t}{m_g}} \right] + x_{G_0} \\ y_{th}(t) = -\frac{m_g (\rho_{eau} - \rho_{air})}{K_3 \rho_{eau}} g t + \frac{m_g}{K_3} \left(U_{\infty,A} + \frac{m_g (\rho_{eau} - \rho_{air})}{K_3 \rho_{eau}} g \right) \left[1 - e^{-\frac{K_3 t}{m_g}} \right] + y_{G_0} \end{cases}$$

Équations 3-6

Où $E_{cond} = -grad(V) = -\frac{V_{cond}}{0,01} \text{ V.m}^{-1}$.

Comme présenté sur la Figure 3-11 (gauche), pour chaque image, la charge de la goutte (Q) est alors évaluée en recherchant la trajectoire théorique issue des Équations 3-6 qui minimise la distance avec les positions mesurées des gouttes. Dans l'exemple de la Figure 3-11 (gauche), la trajectoire théorique

qui correspond le mieux à la trajectoire observée (pour $V_{ind} = -32,25$ V, $V_{cond} = -629,5$ V, $A = 49,5$ μm et $T_{air} = 292,55$ K) est obtenue pour une charge de goutte de $+9,10 \times 10^4$ |e|. Finalement, la même méthode est utilisée sur les 200 couples d'images, puis, une valeur moyenne de la charge de la goutte et son écart-type en sont déduits - visible sur la Figure 3-11 (droite).

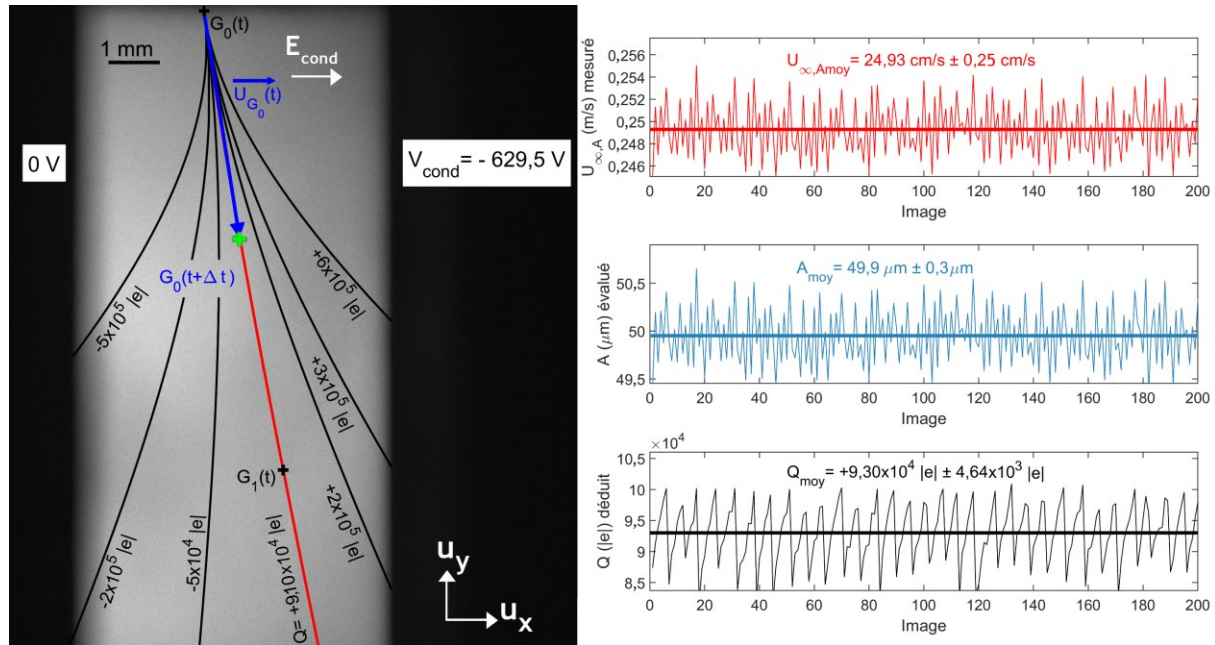


Figure 3-11 (Gauche) Détermination de la trajectoire théorique qui minimise la distance à la trajectoire expérimentale pour une image. Déduction de la charge de la goutte correspondant à la trajectoire théorique rouge. $V_{ind} = -32,25$ V, $V_{cond} = -629,5$ V, $A = 49,5$ μm et $T_{air} = 292,55$ K. (Droite) Mesure de la vitesse de la goutte, évaluation de sa taille par modèle inverse de Beard (1976) et évaluation de sa charge sur 200 images. Les moyennes et les écarts-types sont renseignés.

3.2.2.7.3 CONFRONTATION DES DEUX METHODES DE MESURE DE LA TAILLE DES GOUTTES

Pour rappel, lors de l'évaluation de la charge des gouttes - le modèle inverse de Beard (1976) est utilisé pour en déduire leur taille via la composante verticale de vitesse des gouttes. Lors de la génération de goutte dans In-CASE, la technique d'ombroscopie laser est privilégiée (voir 3.2.2.3). Le Tableau 3-1 regroupe différentes évaluations de la taille de gouttes pour les deux méthodes. Un écart de moins de 3 % est observé ce qui prouve que la vitesse terminale des gouttes est bien atteinte et qu'inverser le modèle de Beard (1976) est justifié. Même si l'écart est très faible entre les deux méthodes, la résolution sur la mesure de la taille de la goutte est meilleure avec la technique inverse car il est facile d'augmenter le déphasage (Δt) entre les images tandis que la technique par ombroscopie laser est limitée par le grossissement de l'objectif.

Tableau 3-1 Confrontation entre les deux méthodes de mesure de la taille de la goutte.

Test	Méthode en inversant le modèle de Beard (1976)	Méthode par ombroscopie laser	Écart entre les deux méthodes
1	$A = 42,3$ μm	$A = 41,3$ μm	-2,4 %
2	$A = 49,6$ μm	$A = 48,9$ μm	-1,4 %
3	$A = 40,4$ μm	$A = 41,2$ μm	+1,9 %
4	$A = 50,0$ μm	$A = 50,3$ μm	-0,6 %

3.2.2.7.4 VALIDATION DU SYSTEME

Plusieurs tests ont été réalisés pour valider la méthode d'évaluation de la charge de la goutte, notamment :

- La cage de Faraday et la plaque horizontale de potentiel nul permettent d'isoler le champ induit par les plaques à induction électrostatique (E_{ind}) du champ induit par le condensateur (E_{cond}). Pour tous les potentiels appliqués aux bornes du condensateur ($|V_{cond}| < 1$ kV), aucun impact du potentiel sur la charge de la goutte n'a été observé ;
- La hauteur entre l'orifice du piézoélectrique et le condensateur est de plus de 20 cm (Figure 3-10). Expérimentalement, il a été vérifié qu'environ 15 cm suffisent pour que les gouttes décélèrent jusqu'à leur vitesse terminale $U_{\infty,A}$. Ainsi, la composante verticale de $\vec{U}_{G_0}(t)$ est bien la vitesse terminale de la goutte et peut être utilisée pour en déduire la taille de la goutte A en inversant le modèle de Beard (1976) ;
- La taille de la goutte est déduite de la vitesse terminale mesurée. Aussi, une vérification importante réside dans l'influence du potentiel au condensateur (V_{cond}) sur cette vitesse terminale qui pourrait freiner ou accélérer les gouttes et ainsi biaiser l'évaluation de leur taille. Le Tableau 3-2 regroupe les résultats de test pour deux potentiels au condensateur (V_{cond}) et deux potentiels sur la plaque d'induction (V_{ind}) représentatifs de ceux utilisés au cours des expériences. Lors des tests, le champ induit par le condensateur réduit la vitesse des gouttes d'au maximum 1,30 %. Cette situation correspond au cas où la goutte et le potentiel du condensateur sont tous deux négatifs. Les résultats de ces tests montrent également que le champ induit augmente la vitesse de la goutte d'au plus 0,31 %, correspondant au cas où la goutte et le potentiel au condensateur sont de polarité opposée. Ceci représente une sous-estimation du rayon de la goutte inférieure à 0,7 % pour une surestimation de moins de 0,2 %. A terme, l'influence du champ électrique sur la vitesse terminale est négligeable.

Tableau 3-2 Variation de la vitesse terminale avec le potentiel E_{cond} et détermination du rayon de la goutte en inversant le modèle de Beard (1976).

V_{cond} (V)	V_{ind} (V)	Signe Q	$U_{\infty,A}$ mesurée (cm.s ⁻¹)	Écart (%)	A déduit (μm)	Erreur sur A (%)
-870	0	-	20,01	-	44,3	-
	-14	+	20,07	+0,31	44,4	+0,2 %
	0	-	20,24	-	44,6	-
	14	-	19,98	-1,30	44,3	-0,7 %
-460	0	-	20,12	-	44,4	-
	-20	+	20,13	+0,05	44,5	+0,2 %
	0	-	20,25	-	44,6	-
	20	-	20,04	-1,02	44,4	-0,5 %

3.2.2.7.5 LOI DE CHARGE DES GOUTTES

En reproduisant la méthode explicitée en section 3.2.2.7.2 pour différents potentiels à la plaque d'induction (V_{ind}), on peut en déduire une loi de charge des gouttes. Celle-ci est présentée sur la Figure 3-12. On remarque que :

- La méthode est reproductible donnant les mêmes résultats sur les différentes expériences ce qui valide la possibilité d'utiliser cette loi de charge *in situ* pour la mesure d'efficacité de collecte ;
- La charge des gouttes est indépendante de leur taille et de l'évaporation dès lors que leur rayon est bien différent entre chaque expérience - allant de 47,0 à 51,2 μm ;

- La cage de Faraday et la plaque horizontale (Figure 3-10) permettent de s'assurer que le champ au condensateur (E_{cond}) n'a aucune influence sur la charge de la goutte. En effet, lors des 4 expériences, le potentiel au condensateur (V_{cond}) varie entre -477,4 et -629,5 pour des résultats identiques ;
- Sans potentiel à l'inducteur, les gouttes sont naturellement chargées par le piézoélectrique à hauteur de -10^4 charges élémentaires, ce qui est en accord avec les mesures de Ardon-Dryer et al. (2015) faites sur le même type de piézoélectrique (pas de même diamètre d'orifice).

Cette loi de charge sera donc utilisée lors des expériences, où par exemple, la goutte est considérée comme électriquement neutre pour un potentiel à la plaque d'induction $V_{ind} = -2,6$ V.

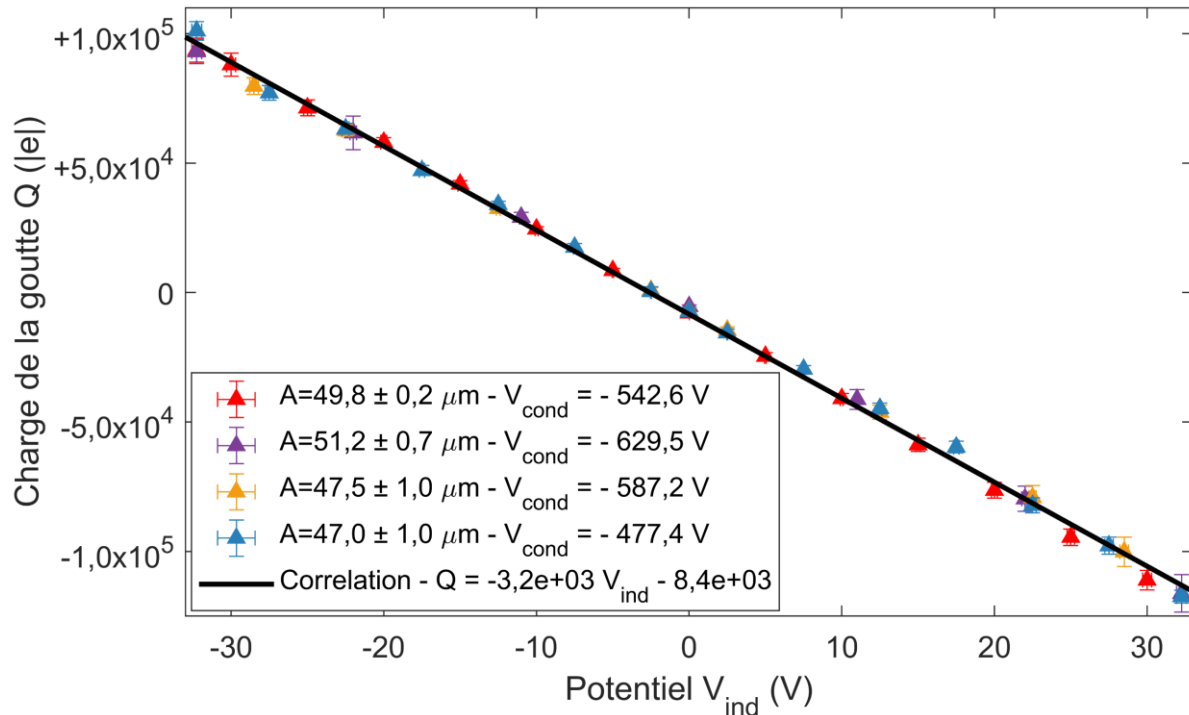


Figure 3-12 Loi de charge (Q) des gouttes en fonction du potentiel à la plaque d'induction (V_{ind}). Les barres d'incertitude sont les écarts-types visibles sur la Figure 3-11 (bas, droite).

3.2.3 PRODUCTION ET CARACTERISATION DE L'AEROSOL

3.2.3.1 GRANULOMETRIE DE L'AEROSOL AVANT SELECTION

L'aérosol de fluorescéine est généré via un atomiseur. Sa distribution granulométrique dépend de la concentration en fluorescéine dans la solution atomisée. Plus la concentration est importante, plus les gouttes issues de l'atomisation sont concentrées et plus les aérosols seront gros. À noter que la pression dans l'atomiseur est aussi un paramètre utilisé pour contrôler la distribution - plus celle-ci est importante et plus le mode de la distribution apparaît pour des grosses particules. Les distributions granulométriques mesurées avec un SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer Spectrometer, modèle TSI-3080) pour des solutions de concentration de 36 et 100 g.l^{-1} sont présentées sur la Figure 3-13. On remarque que le mode de la distribution passe de 82 à 135,8 nm en triplant la concentration en fluorescéine.

Les distributions granulométriques des aérosols produits via cet atomiseur sont très dispersées avec des écarts-types géométriques supérieurs (σ_g) à 1,75. Dans certaines expériences, même après la sélection d'un diamètre d'aérosol via un DMA, les chargés-multiples (définition en 3.3.1.2.1) représentent une part non négligeable du flux d'aérosol qui traverse la chambre d'In-CASE. Ce point est développé en section 3.3.1.2.1.

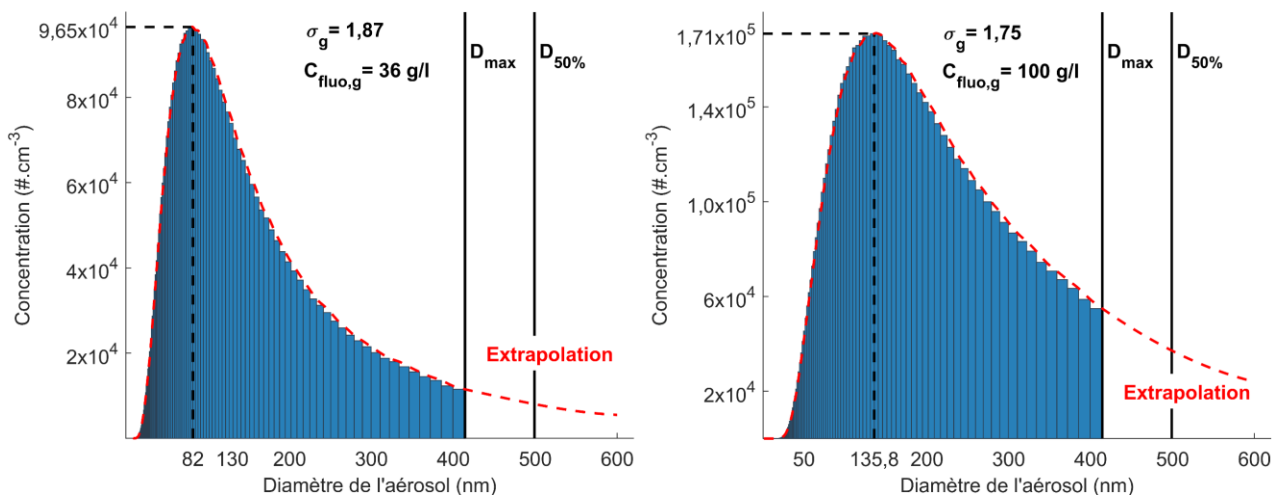


Figure 3-13 Distribution granulométrique de l'aérosol produit par l'atomiseur pneumatique après séchage pour des solutions de concentration 36 g.l⁻¹ (Gauche) et 100 g.l⁻¹ (Droite). Le débit d'entrée d'aérosol est de 0,6 l.min⁻¹, le débit d'air de gainage de 6 l.min⁻¹. Pour ces conditions aérauliques, le diamètre de coupure et le diamètre maximal mesuré par le SMPS-3080 sont respectivement $D_{50\%} = 499 \text{ nm}$ (avec un impacteur de 0,058 cm) et $D_{\text{max}} = 414,1 \text{ nm}$.

3.2.3.2 CONTROLE ET CARACTERISATION DE LA CHARGE - CREATION D'UN CHARGEUR PAR CHAMP

3.2.3.2.1 PRÉAMBULE

Deux dispositifs de charge d'aérosol disponibles au laboratoire ont été envisagés pour les expériences. Le premier est un EAN (Electrostatic Aerosol Neutralizer, modèle 581, TOPAS) qui - par l'intermédiaire de deux électrodes de polarité opposée - génère une grande quantité d'ions bipolaires. En désactivant une des électrodes et en faisant varier le potentiel électrique sur l'autre, un flux d'ions unipolaires de différentes concentrations peut être généré afin de charger l'aérosol. Une autre option est d'utiliser le chargeur à effet couronne de l'ELPI (Electrical Low Pressure Impactor, DEKATI). Bien que la tension dans le chargeur soit imposée par l'appareil, il est possible de piloter la charge de l'aérosol en modifiant son temps de transit au sein du chargeur. Dans les deux cas, un débit d'air est nécessaire en plus du débit d'aérosol, engendrant une dilution d'au minimum un facteur 20 pour le EAN, de 10 pour le chargeur effet couronne de l'ELPI avec une pénétration de l'aérosol de seulement quelques pourcents.

Sachant que la masse d'aérosol capturée par une goutte est directement proportionnelle à la concentration massique de l'aérosol dans la chambre où ils sont mis en relation, il est essentiel de minimiser la dilution du flux d'aérosol. Ainsi, la création d'un chargeur d'aérosol était nécessaire pour limiter cette dilution (d'un facteur 3,75 au maximum pour ce chargeur développé).

Dans les cas les plus défavorables où l'efficacité de collecte attendue est très basse, la durée typique d'une expérience peut dépasser les 5 h. Une telle durée est souvent nécessaire pour que la masse d'aérosol captée dans les gouttes soit bien supérieure à la limite de détection de l'appareil de mesure. Avec la dilution du EAN - 5 fois supérieure à celle du chargeur développé - il faudrait statistiquement 5 fois plus de temps pour obtenir la même masse d'aérosol capturée par les gouttes. Une journée entière pour une mesure d'efficacité de collecte n'était pas concevable.

3.2.3.2.2 GEOMETRIE DU CHARGEUR PAR CHAMP

La Figure 3-14 et la Figure 3-15 présentent respectivement la géométrie - inspirée de celle de Unger et al. (2004) - et une vue éclatée du chargeur. Ce chargeur d'aérosol est basé sur un système de décharges électriques produites entre un fil de tungstène de 300 μm de diamètre relié à un haut potentiel électrique et un cylindre relié à la masse. L'espace inter-électrode mesure 2 cm. Le champ électrostatique induit est si important que les molécules d'air sont ionisées. Les ions ainsi produits suivent les lignes du champ électrique, créant un courant ionique entre le fil de tungstène et le cylindre de masse. Le flux de particules est alors gainé et accéléré par l'intermédiaire d'un convergent de diamètre 3 mm dans cette région où circulent les ions qu'on appelle la zone de dérive (Unger et al., 2004). Durant leur passage dans la zone de dérive, les particules rencontrent les lignes de champ électrique où les ions transitent. Dès lors, des ions se déposent en surface des particules. Une fois chargé, l'aérosol sort ensuite du chargeur tandis que les ions, de grande mobilité électrique, restent piégés grâce à un convergent métallique de sortie relié à la masse qui constitue un piège à ion. Une bille de Téflon® (PTFE) est fixée au bout du fil de tungstène pour éviter les effets de pointe.

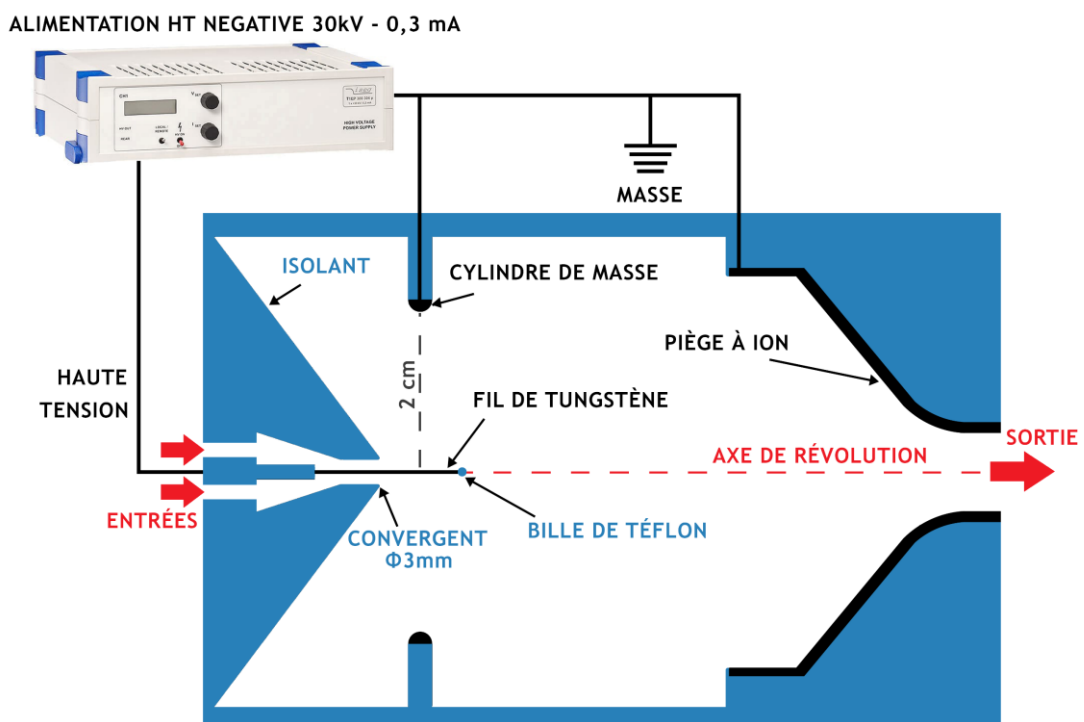


Figure 3-14 Géométrie du chargeur par champ construit - vue axisymétrique - et alimentation des parties métalliques.

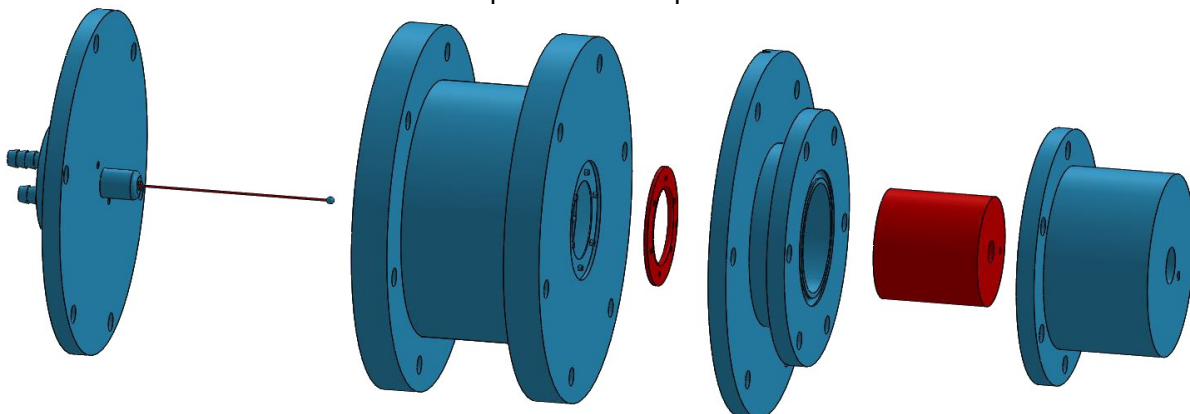


Figure 3-15 Vue éclatée du chargeur par champ. Les parties bleues sont en matériau isolant électrique (PETG) et les parties rouges sont les parties métalliques - le fil de tungstène, le cylindre de masse et le piège à ion.

3.2.3.2.3 REGIME DE FONCTIONNEMENT DU CHARGEUR - REGIME DE TRICHEL

Le chargeur aérosol est utilisé dans un régime de Trichel (Unger, 2001) avec une polarité négative, offrant notamment les avantages suivants :

- La fréquence importante des impulsions dans ce régime permet une bonne homogénéité de la densité d'ions autour du fil de tungstène et une charge spatialement homogène des particules autour du fil ;
- Le fil de tungstène de potentiel négatif engendre une migration des électrons depuis la zone d'ionisation vers le cylindre de masse, tandis que les ions positifs viennent bombarder le fil de tungstène. Un potentiel positif sur le fil de tungstène inverserait les flux et nuirait à l'intégrité du cylindre de masse dans le temps - plus difficile et coûteux à remplacer que le fil de tungstène.

Pour étudier le fonctionnement d'une décharge dans le chargeur aérosol et notamment identifier le régime de décharge souhaité - le moyen le plus utilisé est de tracer sa caractéristique courant-tension avec un débit d'air propre fixé. Pour ce faire, une résistance de précision de 100 k Ω est placée entre le cylindre de masse et la masse pour y mesurer le courant ionique issu du plasma et la fréquence des décharges avec un multimètre (Figure 3-16). La Figure 3-17 présente la courbe courant-tension pour différents débits d'aérosol, ainsi que la fréquence des décharges en fonction du potentiel au fil de tungstène (V_{fil}). Par ailleurs, la visualisation des décharges négatives y est présentée grâce à un oscilloscope analogique.

On peut faire les remarques suivantes :

- La décharge n'est pas influencée par les débits d'air propre considérés qui comprennent le débit de fonctionnement du chargeur. Jusqu'à 0,6 l.min⁻¹, le renouvellement des molécules d'air dans le chargeur est suffisant pour ne pas dégrader la décharge ;
- Dans le régime de Trichel, le courant ionique croît avec le potentiel au fil de tungstène ($|V_{fil}|$). Il correspond à la partie linéaire de la courbe courant-tension sur la Figure 3-17 ;
- Pour de faibles potentiels au fil de tungstène ($|V_{fil}|$), sur la Figure 3-17 où la courbe courant-tension n'est plus linéaire, le régime est dit de collecte. C'est-à-dire que le champ électrique entre le fil et le cylindre de masse n'est pas suffisant pour ioniser le gaz - le faible courant mesuré est dû à la collection des charges présentes dans le flux d'air propre. Ces ions sont issus de la radioactivité naturelle et des rayons cosmiques ;
- Lorsque la différence de potentiel cylindre-fil (ΔV) augmente, la fréquence des impulsions croît (Figure 3-17, haut, droite). De plus, pour une différence de potentiel cylindre-fil suffisamment grande, le régime de Trichel laisse place au régime de Glow (Unger, 2001). Bien qu'étant la continuité du régime de Trichel, le régime de Glow se caractérise par l'absence d'impulsion mesurable. Plus spécifiquement, le temps entre deux impulsions est si faible qu'il devient inférieur à la durée d'une impulsion. La transition entre le régime de Trichel et de Glow est observable sur la Figure 3-17 (Haut, droite) où la fréquence des impulsions diminue à partir d'une différence de potentiel de 19 kV. Pour autant, cette diminution est uniquement due au multimètre qui ne parvient plus à discerner les impulsions individuellement.

À noter qu'en continuant d'augmenter le potentiel appliqué au fil ($|V_{fil}|$), le régime de décharge devient le régime d'arc où la décharge est alors filamenteuse entre les deux électrodes. Ce régime est évité car la concentration en ions n'est plus spatialement homogène et les électrodes peuvent être endommagées par l'arc (Unger, 2001).

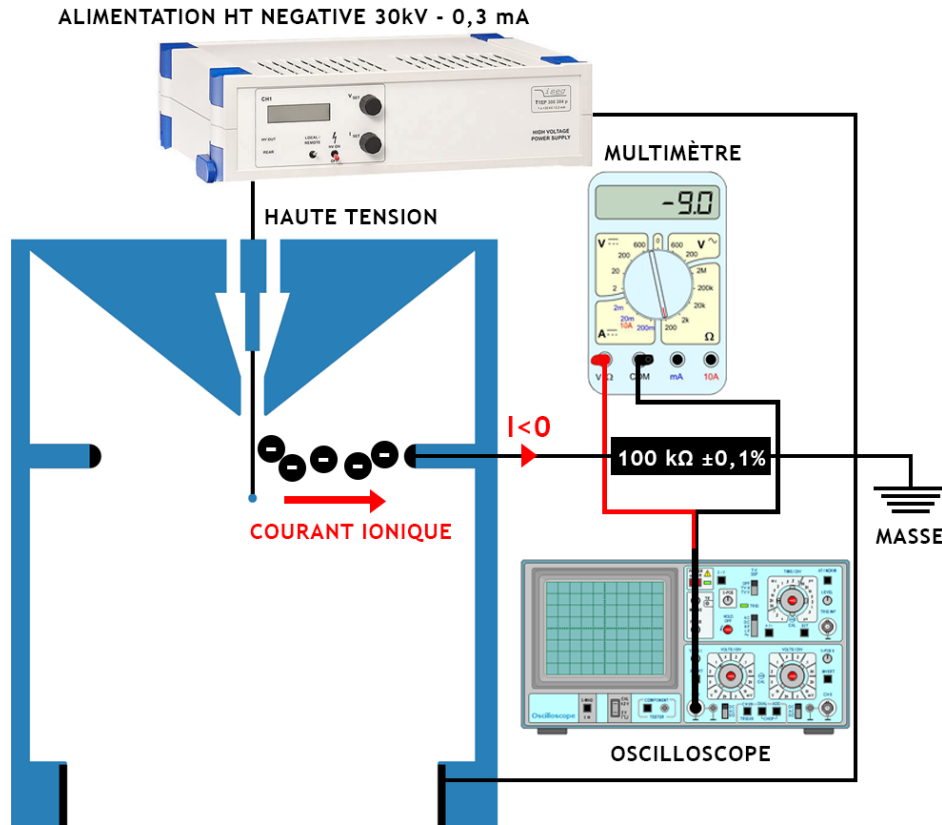


Figure 3-16 Schéma électrique pour la caractérisation du chargeur. Mesure de la tension aux bornes d'une résistance de précision de 100 kΩ pour l'évaluation du courant ionique et l'observation des décharges.

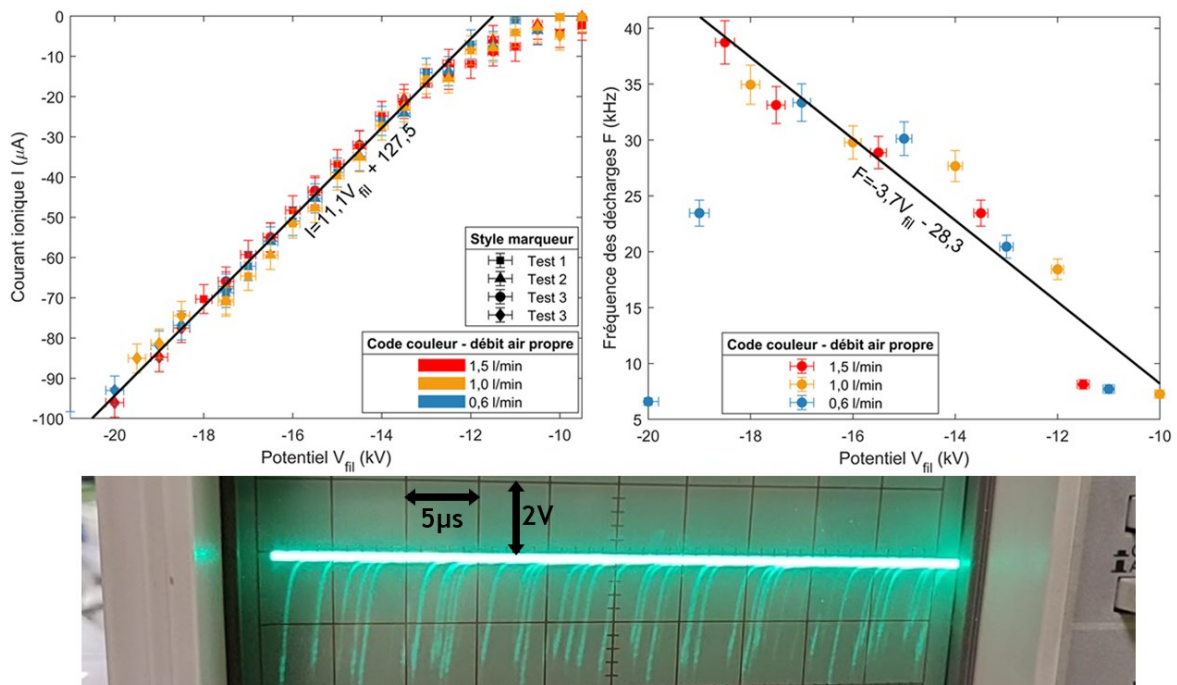


Figure 3-17 Caractéristique de la décharge. (Haut, gauche) Courbe courant-tension. (Haut, droite) Fréquence des impulsions en fonction de la tension. (Bas) Visualisation des impulsions à l'oscilloscope analogique pour une tension de -10 kV.

3.2.3.2.4 MESURE DE LA CHARGE DE L'AEROSOL

3.2.3.2.4.1. Principe

Un circuit de mesure de la charge moyenne acquise par les particules a été disposé en sortie de chargeur - présenté sur la Figure 3-18. En sortie de chargeur, une partie du flux d'aérosol chargé est dirigé vers un électromètre aérosol (3068A, TSI) afin de mesurer le courant (I_{elect}) issu de l'évacuation des charges dans l'électromètre à un débit connu (Q_{elect}). Le débit restant permet de donner l'information de la concentration en nombre de particules ($C_{N,AP}$) via un CPC TSI-3787 (Condensation Particle Counter). Avant d'arriver au CPC, une batterie de diffusion filtre les fines particules produites dans la décharge, et l'aérosol est neutralisé en amont pour éviter des pertes par dépôt dans le CPC et la batterie de diffusion. Dans le cas d'étude où le débit dans le chargeur ($Q_{chargeur}$) est de 0,6 l.min⁻¹, il est nécessaire d'ajouter un débit d'air propre pour satisfaire un débit de 0,6 l.min⁻¹ au niveau du CPC. La charge moyenne ($\langle q \rangle$) acquise par les particules est alors donnée par l'Équation 3-7 (en nombre de charges élémentaires) :

$$\langle q \rangle = \frac{I_{elect}}{e C_{N,AP} Q_{elect}} \quad \text{Équation 3-7}$$

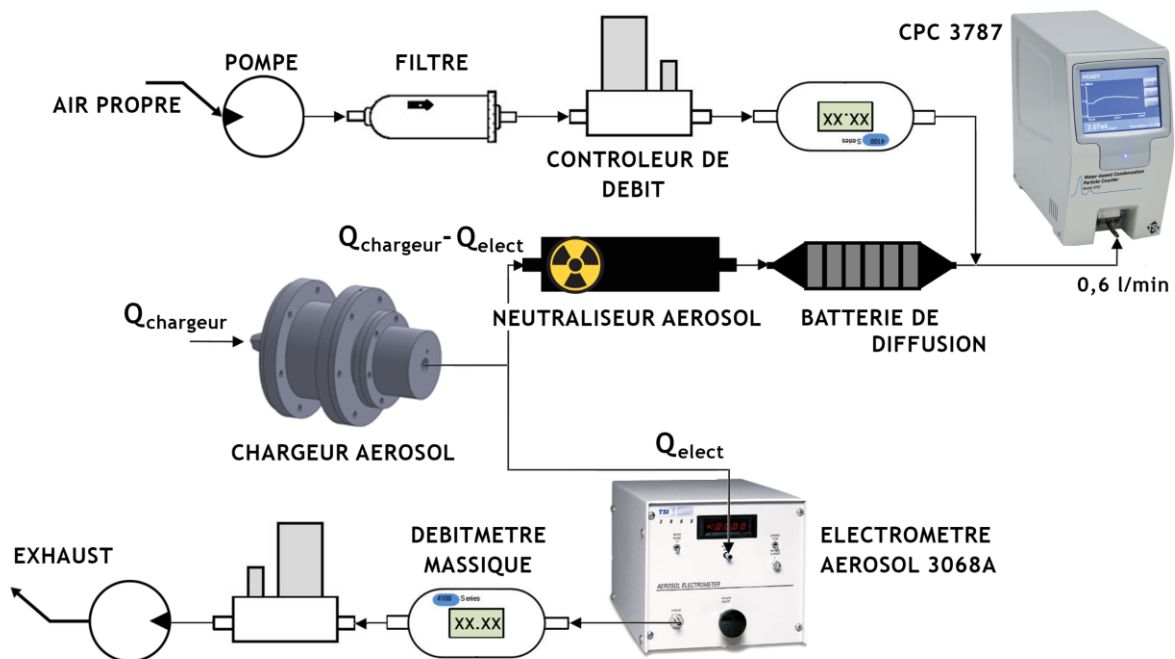


Figure 3-18 Dispositif de mesure de la charge moyenne sur l'aérosol.

3.2.3.2.4.2. Hypothèse de distribution en taille monodispersée

La méthode de détermination de la charge moyenne unitaire des particules se fait par une mesure collective liée au courant induit par les particules chargées. Ce principe de mesure est donc uniquement valable dès lors que la distribution en taille de l'aérosol est monodispersée. Pour chaque taille d'aérosol sélectionnée, le débit dans le DMA a été optimisé pour s'assurer que les diamètres correspondant aux aérosols multichargés (définition en 3.3.1.2.1) soient stoppés par l'impacteur aérodynamique placé en entrée de DMA (de diamètre 0,0508 cm). Le Tableau 3-3 présente le débit d'aérosol dans le DMA et le diamètre de coupure aérodynamique ($D_{50\%}$) associé pour chaque taille d'aérosol considérée (la masse volumique de la fluorescéine est de 1580 kg.m⁻³). Pour chaque taille d'aérosol, le diamètre de coupure est suffisamment faible devant les chargés deux fois (renseignés dans le Tableau 3-3) pour considérer la distribution granulométrique de l'aérosol en sortie de DMA comme monodispersée.

Tableau 3-3 Diamètre du coupure ($D_{50\%}$) lors des expériences de mesure de charge (impacteur de diamètre 0,0508 cm).

Diamètre d'aérosol sélectionné	Chargé 2 fois de même mobilité électrique	Débit d'aérosol dans le DMA	$D_{50\%}$
200 nm	323,6 nm	1,2 l/min	280 nm
300 nm	507,4 nm	1,0 l/min	314 nm
400 nm	696,6 nm	0,6 l/min	426 nm
500 nm	888,6 nm	0,4 l/min	537 nm

3.2.3.2.4.3. Débit chargeur - optimisation de la concentration

Sur la Figure 3-19, est présentée la charge moyenne ($\langle q \rangle$) acquise par un aérosol de 400 nm de diamètre en fonction du potentiel au fil de tungstène (V_{fil}) et ce, pour deux débits d'aérosol dans le chargeur ($Q_{chargeur}$) de 0,6 l.min⁻¹ et 1,5 l.min⁻¹. Dans un chargeur par champ, la charge acquise par l'aérosol est essentiellement fonction de deux paramètres (Unger, 2001) :

- La concentration d'ions produits (N_i) dans le chargeur ;
- Le temps de séjour (τ) des particules dans l'espace inter-électrode.

On remarque que la charge moyenne augmente lorsque le potentiel au fil de tungstène ($|V_{fil}|$) augmente, et aussi lorsque le débit d'aérosol dans le chargeur ($Q_{chargeur}$) diminue. Ces observations sont en accord avec les deux remarques énoncées précédemment. En effet, l'augmentation de la différence de potentiel fil-cylindre implique une augmentation de la concentration en ions (N_i). De même, une diminution du débit dans le chargeur ($Q_{chargeur}$) induit une augmentation du temps de séjour (τ) de l'aérosol dans la zone de charge.

A partir d'une certaine tension au fil de tungstène ($|V_{fil}|$), l'aérosol atteint un niveau saturé de charge. Ce palier s'explique par le champ électrique induit par la charge de l'aérosol qui, à partir d'une charge suffisante, coupe les lignes du champ électrique inter-électrodes. Ainsi, les lignes du champ électrique inter-électrodes où transitent les ions ne touchent plus la surface de l'aérosol - on dit alors que l'aérosol a atteint sa charge à saturation. À la saturation, la charge moyenne de l'aérosol n'augmente que par le mécanisme de diffusion des ions.

Bien que pour un débit de 0,6 l.min⁻¹ la charge moyenne sur l'aérosol soit plus importante que pour un débit de 1,5 l.min⁻¹, un paramètre important demeure la concentration en aérosol dans la chambre de In-CASE. Ainsi, la pénétration dans le chargeur pour les deux débits a été évaluée en plus de la charge moyenne de l'aérosol. Les résultats sont présentés sur la Figure 3-20. La pénétration y est définie comme le rapport des concentrations en nombre ($C_{N,AP}$) lorsque le chargeur est allumé et éteint avec le même dispositif que sur la Figure 3-18 (Équation 3-8) :

$$\text{Pénétration (\%)} = \frac{C_{N,AP} - \text{chargeur allumé}}{C_{N,AP} - \text{chargeur éteint}} \times 100 \quad \text{Équation 3-8}$$

On rappelle que pour un débit d'aérosol de 1,5 l.min⁻¹, de l'air propre est ajouté en entrée de chargeur dès lors que le débit de sortie du DMA maximum pour un aérosol de 400 nm est 0,6 l.min⁻¹ (Tableau 3-3). En plus de la pénétration intrinsèque du chargeur (courbe bleue sur la Figure 3-20), le débit de dilution est aussi pris en considération - courbe rouge sur la Figure 3-20.

À terme, on valide le choix de considérer un débit de 1,5 l.min⁻¹ dans le chargeur dès lors que pour les tensions appliquées au fil de tungstène durant les expériences ($|V_{fil}| > 8,5$ kV), on optimise la concentration en particules injectées dans la chambre In-CASE.

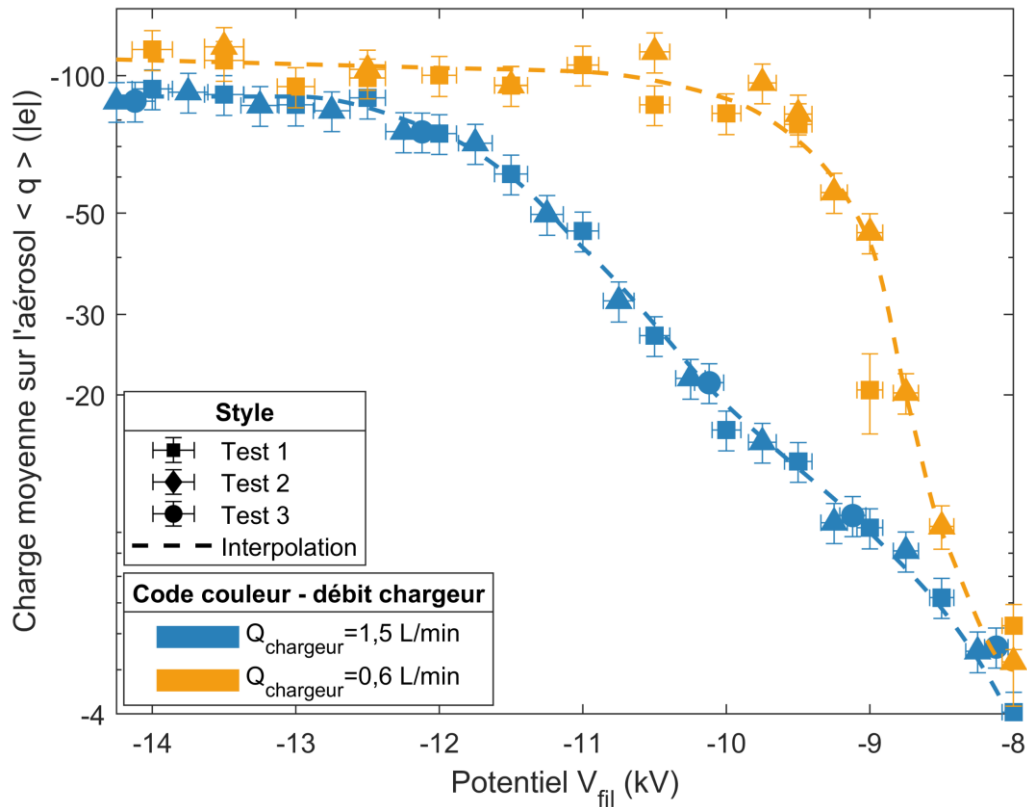


Figure 3-19 Charge moyenne sur l'aérosol de 400 nm de diamètre en fonction de la tension au fil de tungstène (V_{fil}) pour deux débits.

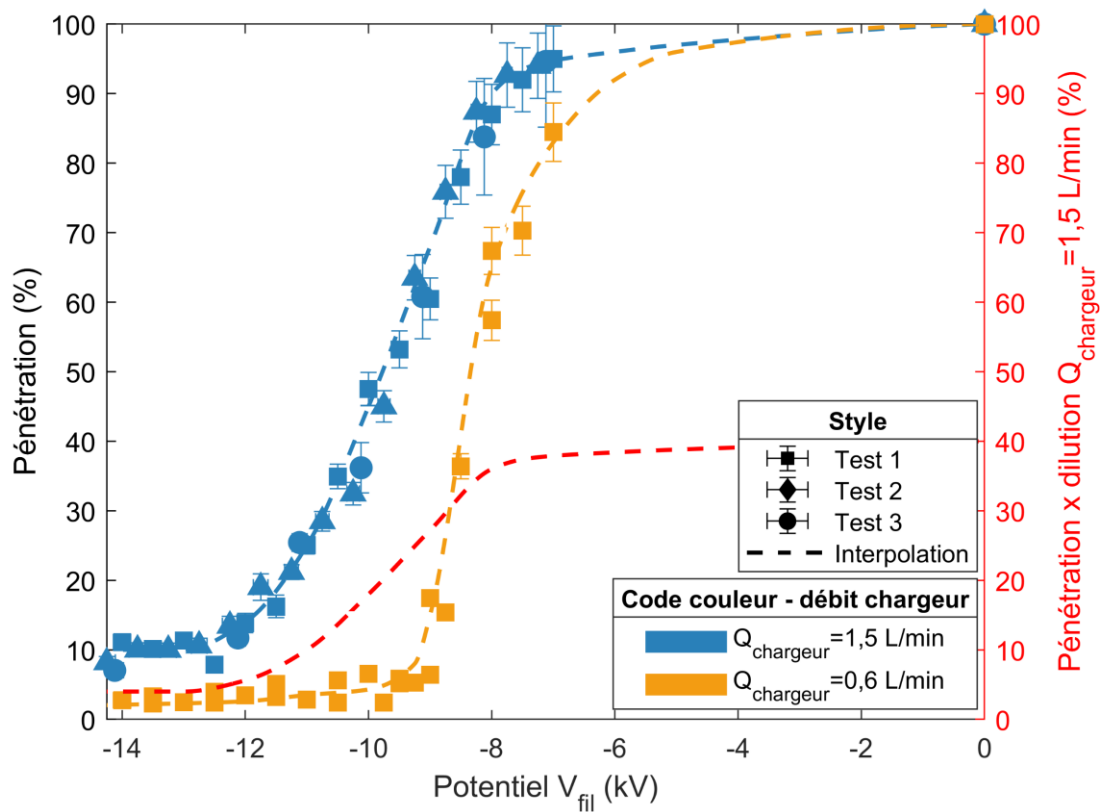


Figure 3-20 Pénétration de l'aérosol de 400 nm de diamètre dans le chargeur en fonction de la tension au fil de tungstène (V_{fil}) pour deux débits.

3.2.3.2.4.4. Lois de charge des aérosols

Le dispositif présenté sur la Figure 3-18 a été appliqué pour un débit dans le chargeur de $1,5 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$ et ce, pour quatre diamètres d'aérosol (D_p) allant de 200 nm à 500 nm. La Figure 3-21 présente les lois de charge qui résultent des expériences *ex situ*. Elles seront utilisées lors des mesures *in situ* d'efficacité de collecte étudiant les forces électrostatiques. On remarque que, pour une même tension appliquée au fil de tungstène, plus la taille de l'aérosol est importante, plus sa charge est grande du fait que la surface interceptant les lignes de champ croît. De plus, à partir d'une tension au fil de tungstène de $-12,5 \text{ kV}$, la charge de l'aérosol atteint la saturation.

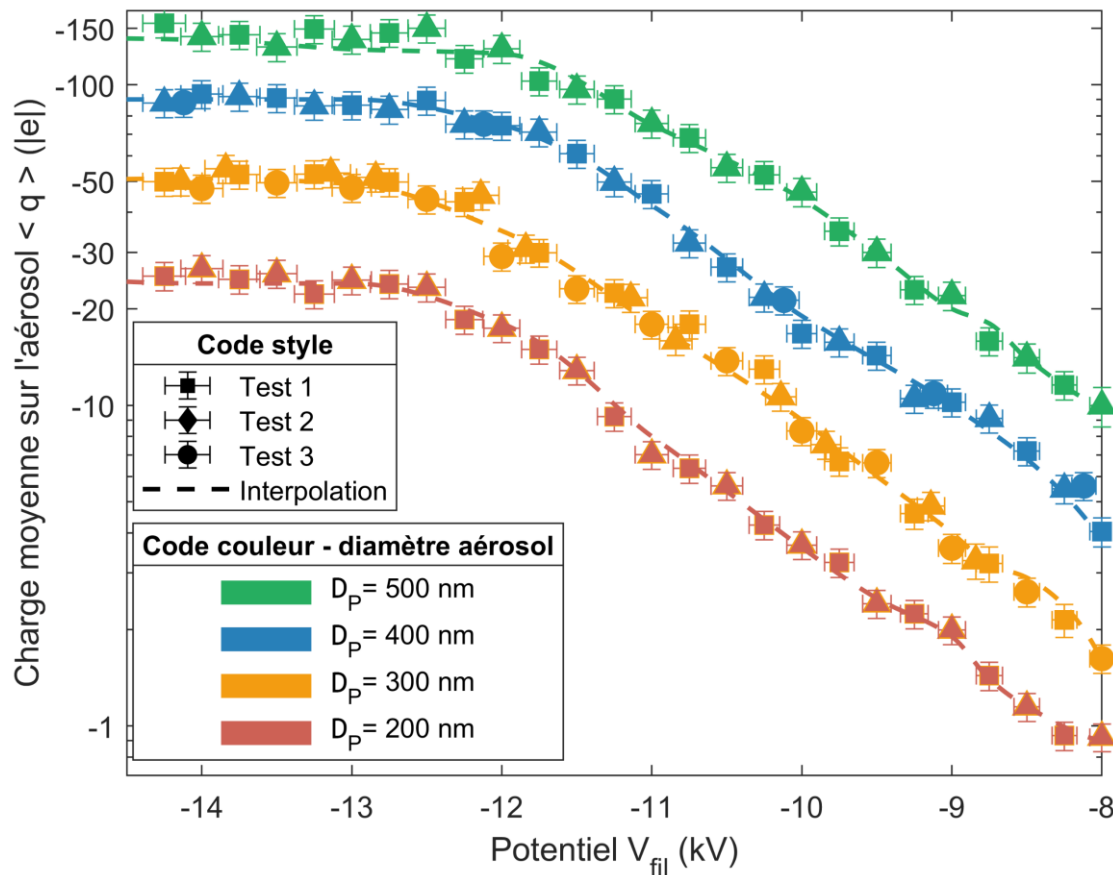


Figure 3-21 Lois de charge des aérosols en fonction du potentiel au fil de tungstène (V_{fil}) pour les quatre diamètres (D_p) étudiés.

3.2.3.2.4.5. Stabilité temporelle de la charge des particules

Les expériences pouvant durer plusieurs heures pour la mesure des efficacités de collecte, il est important de s'assurer que la charge moyenne des particules reste stable sur cette période. La Figure 3-22 présente la charge moyenne mesurée sur un aérosol de 400 nm sur une durée de 5 heures, pour une tension sur le fil de tungstène de $-11,5 \text{ kV}$ soit une charge mesurée de -61 charges élémentaires sur la Figure 3-21. On observe que la charge est stable sur la période caractéristique des expériences qui seront réalisées afin d'évaluer les efficacités de collecte.

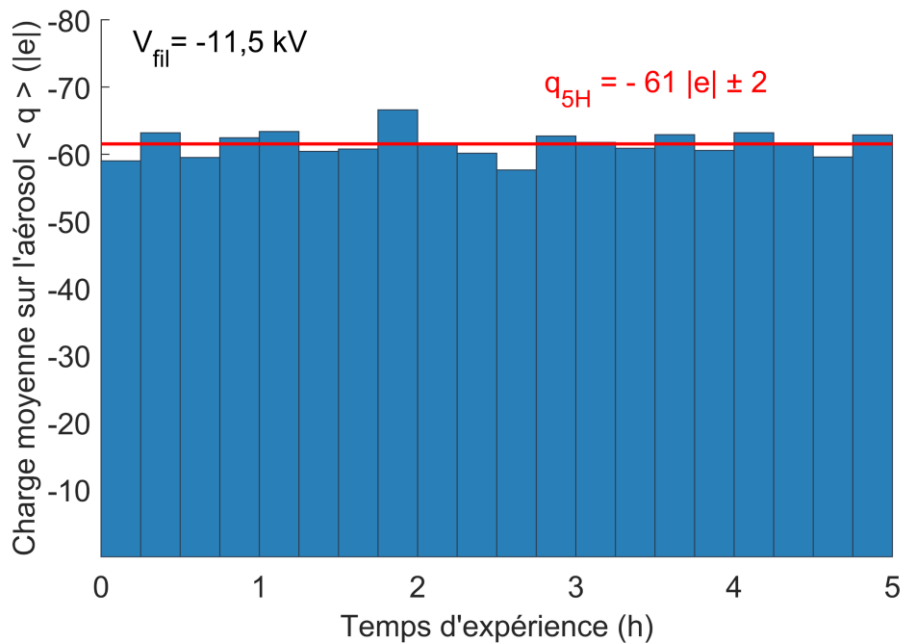


Figure 3-22 Charge moyenne d'un aérosol de diamètre 400 nm au cours du temps pour un potentiel au fil de tungstène de -11,5 kV.

3.2.3.2.4.6. Validation

Pour valider le dispositif et la méthode présentés en section 3.2.3.2.4.1, la charge des aérosols a été mesurée dans le cas où le chargeur aérosol est éteint ($V_{fil} = 0 V$). Pour chaque taille d'aérosol, la charge mesurée grâce à l'Équation 3-7 était d'une charge élémentaire - soit la charge attendue en sortie de DMA. Ce résultat confirme la monodispersion de la distribution granulométrique des particules.

La charge à saturation (q_s) - mise en évidence en Figure 3-21, à partir d'une tension appliquée au fil de tungstène de -12,5 kV - est estimée par la formule analytique suivante (Équation 3-9) (Pauthenier et Moreau-Hanot, 1932) :

$$q_s = \left(1 + \frac{2(\varepsilon - 1)}{(\varepsilon + 2)} \right) \frac{\pi \varepsilon_0 E_0 D_p^2}{e}, \quad \text{Équation 3-9}$$

Où ε est la constante diélectrique de la particule qu'on approxime en la prenant égale à celle du NaCl de 6,12. Le champ $E_0 = 1,39 \times 10^6 \text{ V.m}^{-1}$ est le champ électrique moyen dans la zone de charge des aérosols pour une tension au fil de tungstène de -12,5 kV. Dans le Tableau 3-4 est présentée une comparaison entre la charge à saturation mesurée expérimentalement (pour $|V_{fil}| = 12,5 \text{ kV}$) avec la théorie obtenue par l'Équation 3-9. Pour les quatre tailles d'aérosol étudiées, les mesures sont cohérentes avec la théorie ce qui valide la méthode et plus généralement le fonctionnement du chargeur aérosol construit.

Tableau 3-4 Comparaison entre la charge à saturation théorique et expérimentale.

D_p	$q_{s,12,5 \text{ kV}} - \text{théorique}$	$q_{s,12,5 \text{ kV}} - \text{mesurée}$
200 nm	-21,8 e	-23,4 e ± 2,3
300 nm	-49,1 e	-43,9 e ± 4,4
400 nm	-87,3 e	-89,3 e ± 9,0
500 nm	-136,4 e	-150,1 e ± 15,1

3.3 APPROCHE EXPERIMENTALE

3.3.1 METHODE DE MESURE DES EFFICACITES DE COLLECTES

L'efficacité de collecte est calculée en faisant le rapport de la masse d'aérosol captée par les gouttes ($m_{fluo,G}$) sur la masse totale d'aérosol dans le volume balayé par les gouttes lors de leur chute pendant une expérience ($m_{fluo,rencontrée}$). Ces deux masses sont obtenues à la fin des expériences, la première directement mesurée dans le volume de contrôle de l'impacteur, la deuxième déduite par la mesure de la masse d'aérosol déposée sur le filtre à très haute efficacité ($m_{fluo,F}$) via l'Équation 3-11 et l'Équation 3-12.

Pour rappel, l'aérosol généré est constitué de fluorescéine sodée pure. Dès lors, les deux masses ($m_{fluo,G}$ et $m_{fluo,F}$) sont mesurées par spectrométrie de fluorescence. Le protocole expérimental permettant d'obtenir ces mesures est détaillé en Annexe D.

Les influences respectives de l'humidité relative de l'air et des effets électriques sur la collecte ont été étudiées au cours de deux campagnes d'essais. Lors de ces deux campagnes, la méthode expérimentale pour déduire les efficacités de collecte est sensiblement différente :

- Lors des expériences dédiées à l'effet de l'humidité relative sur l'efficacité de collecte, les aérosols multichargés n'ont pas été éliminés par l'impacteur en entrée de DMA. Chaque expérience est alors reliée aux autres et une méthode d'inversion est utilisée pour extraire chacune des efficacités de collecte ;
- La mesure est directe lorsque l'étude porte sur l'effet des charges électriques.

Ces deux méthodes sont explicitées dans les deux sections suivantes.

3.3.1.1 ÉTUDE DE L'INFLUENCE DES CHARGES ELECTRIQUES

Pour rappel, lors des expériences réalisées dans le but d'étudier l'effet des forces électrostatiques, l'aérosol de fluorescéine pure est produit à l'aide d'un atomiseur pneumatique et d'un DMA disposés en série (Figure 3-1). Pour ces expériences, quatre tailles de particules ont été étudiées : 200 nm, 300 nm, 400 nm et 500 nm. Les conditions de génération de ces aérosols sont synthétisées dans le Tableau 3-3. La monodispersion de la distribution granulométrique des particules a été vérifiée précédemment (section 3.2.3.2.4.2). L'efficacité de collecte de l'aérosol de diamètre (D_p) et charge (q) connus, par une goutte de rayon (A) et de charge (Q) connus sous une humidité relative contrôlée (HR) est alors déduite par l'Équation 3-10 :

$$EC(D_{p,humide}, A, q, Q, HR) = \frac{m_{fluo,G}}{m_{fluo,rencontrée}} \quad \text{Équation 3-10}$$

Où la masse totale de particules de fluorescéine dans le volume balayé par l'ensemble des gouttes est évaluée par (Équation 3-11) :

$$m_{fluo,rencontrée} = \pi \left(A + \frac{D_{p,humide}}{2} \right)^2 H_{In-CASE} C_{M,fluo} F_g \Delta t \quad \text{Équation 3-11}$$

Avec $H_{In-CASE}$ la hauteur de la chambre (= 1 m), F_g la fréquence de génération des gouttes et Δt le temps d'expérience. $C_{M,fluo}$ est la concentration massique moyenne de l'aérosol dans la chambre. Cette grandeur est évaluée à partir de la masse déposée sur le filtre ($m_{fluo,F}$) et du débit d'aérosol dans la chambre ($Q_{chambre}$). Mentionnons que ce débit est celui dans la chambre et non le débit au niveau du porte filtre dès lors qu'un débit d'Argon est ajouté au niveau de l'impacteur (Figure 3-1). L'aérosol étant chargé, son dépôt dans la chambre de In-CASE doit être considéré pour éviter une sous-estimation de la concentration massique moyenne réelle de l'aérosol au cours de la traversée des gouttes dans la chambre de In-CASE. Ainsi, des tests *ex situ* ont été réalisés pour évaluer la

pénétration ($P_{In-CASE,q,D_p}$) pour toutes les tailles d'aérosols (D_p) et charges (q) étudiées. Cette pénétration est définie comme le rapport entre la concentration en nombre en entrée de la colonne (sortie de chargeur) sur la concentration en sortie de la colonne. Les résultats sont présentés dans le Tableau 3-5 et sont considérés pour corriger la concentration moyenne en particules dans la colonne (Équation 3-12) :

$$C_{M,fluo} = \left(1 + \frac{1 - P_{In-CASE,q,D_p}}{2}\right) \frac{m_{fluo,F}}{Q_{chambre} \Delta t} \quad \text{Équation 3-12}$$

Remarque importante : Le diamètre de l'aérosol humide ($D_{p,humide}$) doit être considéré dans l'Équation 3-11 (ainsi qu'en Équation 3-16), tenant compte de l'hygroscopicité de la fluorescéine sodée (voir section 3.3.2). De la même façon, la concentration massique moyenne de l'aérosol dans la chambre est aussi celle d'un aérosol humide. Néanmoins, si on considère le coefficient qui permet de passer de la masse d'un aérosol humide à celle d'un aérosol sec, celui-ci intervient dans l'Équation 3-10, à la fois au numérateur à travers la masse d'aérosol collecté par la goutte ($m_{fluo,G}$) et au dénominateur dans la concentration massique moyenne ($C_{M,fluo}$). Les coefficients se simplifient donc et on peut raisonner en termes de diamètre d'aérosol sec pour les masses mesurées. Remarquons toutefois que l'efficacité de collecte mesurée est celle d'un diamètre d'aérosol humide.

Tableau 3-5 Pénétration des aérosols chargés dans la colonne de In-CASE.

D_p	q	Pénétration $P_{In-CASE,q,D_p}$
200 nm	-10 e	94,7 %
	-20 e	86,0 %
300 nm	-11 e	96,5 %
	-30 e	86,2 %
400 nm	-10 e	97,0 %
	-34 e	88,8 %
	-71 e	78,2 %
500 nm	-22 e	94,1 %
	-52 e	89,6 %
	-90 e	81,8 %

3.3.1.2 ÉTUDE DE L'INFLUENCE DE L'HUMIDITE RELATIVE

3.3.1.2.1 PRINCIPE DE SELECTION DES AEROSOLS SUIVANT LEUR MOBILITE ELECTRIQUE

Pour mesurer l'efficacité de collecte des aérosols dans la chambre de In-CASE, les aérosols sont sélectionnés suivant leur mobilité électrique via un DMA (Figure 3-1). La mobilité électrique (Z) d'un aérosol est définie comme suit (Équation 3-13) :

$$Z = \frac{n \times e \times C_u}{3\pi\eta_{air}D_p} \quad \text{Équation 3-13}$$

Où D_p est le diamètre des particules (ici en cm), C_u le coefficient correctif de Stokes-Cunningham (défini en Annexe A) et n le nombre de charge élémentaire. Notons que la viscosité dynamique (η_{air}) est ici en Poise. Ainsi, toutes les particules ayant le même rapport $\frac{n \times C_u}{D_p}$ sont sélectionnées par le DMA.

Par exemple lorsque l'on cherche à sélectionner une particule de diamètre 100 nm (chargé une fois), les particules de diamètre de 151,6 nm (chargé deux fois) et de 196,4 nm (chargé trois fois) sont aussi sélectionnées par le DMA.

Lors des expériences dédiées à l'influence des charges électriques, les aérosols multichargés de même mobilité que le diamètre d'aérosol ciblé (chargé une fois) sont arrêtés par l'impacteur aérodynamique en entrée de DMA (Tableau 3-3). Lors des expériences étudiant l'impact de l'humidité relative, les diamètres d'aérosols sélectionnés par le DMA sont présentés en Tableau 3-6. Ce tableau renseigne également les diamètres d'aérosol chargé deux fois possédant la même mobilité électrique, ainsi que le diamètre de coupure ($D_{50\%}$) de l'impacteur aérodynamique du DMA (0,0508 cm) pour chaque débit d'aérosol utilisé. Dans ce tableau, on remarque que pour des diamètres sélectionnés de 400 et 500 nm, les aérosols multichargés peuvent être négligés dès lors que le diamètre des chargés deux fois est très supérieur au diamètre de coupure de l'impacteur. Pour ces diamètres, la distribution en taille de l'aérosol dans la chambre de In-CASE est donc considérée monodispersée. Néanmoins, pour les diamètres sélectionnés de 100 et 300 nm, les aérosols multichargés ne sont pas stoppés par l'impacteur aérodynamique en entrée de DMA.

Tableau 3-6 Diamètre $D_{50\%}$ - diamètre de coupure lors des expériences à différentes humidités relatives (impacteur de diamètre 0,0508 cm).

Diamètre d'aérosol sélectionné	Chargé 2 fois de même mobilité électrique	Débit d'aérosol utilisé	$D_{50\%}$
100 nm	151,6 nm	0,6 l/min	426 nm
300 nm	507,4 nm	0,6 l/min	426 nm
400 nm	696,6 nm	0,6 l/min	426 nm
500 nm	888,6 nm	0,4 l/min	537 nm

Pour quantifier les rapports des particules multichargées dans le flux d'aérosol en sortie de DMA pour un diamètre sélectionné de 100 et 300 nm, le modèle théorique de Wiedensohler (1988) sur lequel repose le principe de fonctionnement du DMA est utilisé. Il permet de calculer la fraction en nombre ($F_{N,n}$) de particules chargées n -fois de diamètre (D_p) à la sortie du neutraliseur disposé avant le DMA (Équations 3-14) :

$$\left\{ \begin{array}{l} F_{N,n}(D_p) = 10^{\left[\sum_{i=1}^n a_i(n) \left(\log\left(\frac{D_p}{10^{-9}}\right) \right)^{i-1} \right]} \quad \text{si } n < 3 \\ \\ F_{N,n}(D_p) = \frac{e}{\sqrt{4\pi^2 \varepsilon_0 D_p k_b T_{air}}} e^{-\frac{\left[n - \frac{2\pi\varepsilon_0 D_p k_b T_{air}}{e^2} \ln\left(\frac{Z_{i+}}{Z_{i-}}\right) \right]^2}{2 \frac{2\pi\varepsilon_0 D_p k_b T_{air}}{e^2}}} \quad \text{si } n \geq 3 \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} a_{i \in [1,6]}(1) = \begin{bmatrix} -2,3484 \\ 0,6044 \\ 0,4800 \\ 0,0013 \\ -0,1553 \\ 0,0320 \end{bmatrix} \\ \\ a_{i \in [1,6]}(2) = \begin{bmatrix} -44,4756 \\ 79,3772 \\ -62,8900 \\ 26,4492 \\ -5,7480 \\ 0,5049 \end{bmatrix} \end{array} \right.$$

Équations 3-14

Avec $\frac{Z_{i+}}{Z_{i-}} = 0,875$ (Wiedensohler, 1988) le rapport des mobilités des ions positifs et négatifs.

La température de l'air (T_{air}) pour calculer les fractions en nombre est égale à celle de la pièce.

Dès lors, connaissant la distribution granulométrique des aérosols en entrée du DMA et les rapports en nombre ($F_{N,n}$) de particules multichargées, il est possible de déterminer les rapports en masse ($Ratio_{M,n}$) des particules multichargées en sortie de DMA et donc traversant la colonne de In-CASE. Les Tableaux 3-7 et 3-8 présentent respectivement les rapports en masse des particules multichargées pour un diamètre d'aérosol sélectionné de 100 et 300 nm. Dans les tableaux, les concentrations en nombre ($C_{N,atomiseur}$) sont basées sur les distributions granulométriques de la Figure 3-13. La température de la pièce (T_{air}) est ici de 23 °C.

D'après les Tableaux 3-7 et 3-8, nous remarquons que :

- Lorsqu'un aérosol de 100 nm est sélectionné, la contribution en masse des particules chargées 4 et 5 fois est inférieure à 6,5 %. De plus, avec de si faibles concentrations en nombre, leur probabilité de capture dans In-CASE peut être négligée. Néanmoins, les particules chargées 2 et 3 fois ne peuvent être négligées ;
- Lorsqu'un aérosol de 300 nm est sélectionné, les particules chargées 2 fois ne peuvent pas être négligées - avec une contribution en masse quasiment égale aux particules chargées 1 fois. À noter, les particules chargées 3 fois ne sont pas étudiées. En effet, de diamètre 706,8 nm, elles sont directement stoppées par l'impacteur aérodynamique en entrée de DMA ($D_{50\%} \approx 426$ nm).

3.3.1.2.2 DETERMINATION DE L'EFFICACITE DE COLLECTE

Suivant les diamètres sélectionnés, la méthode pour déterminer l'efficacité de collecte diffère :

- Pour rappel, lorsque des aérosols de 400 et 500 nm de diamètre (D_p) sont sélectionnés, l'aérosol en sortie de DMA possède une distribution en taille monodispersée. L'efficacité de collecte s'obtient alors directement comme en section 3.3.1.1 avec une pénétration égale à l'unité ($P_{In-CASE,q,D_p} = 1$) ;
- En revanche, pour un aérosol de 100 nm de diamètre, la masse d'aérosol collectée par les gouttes ($m_{fluo,G}$) provient de la contribution des particules portant jusqu'à trois charges élémentaires. Cette masse peut donc s'écrire comme la combinaison linéaire des produits des efficacités de collecte et des masses rencontrées d'aérosols (Équation 3-15) :

$$m_{fluo,G} = EC(100 \text{ nm}, A, q, Q, HR) \times m_{100 \text{ nm}, \text{ rencontrée}} + EC(151,6 \text{ nm}, A, q, Q, HR) \times m_{151,6 \text{ nm}, \text{ rencontrée}} + EC(196,4 \text{ nm}, A, q, Q, HR) \times m_{196,4 \text{ nm}, \text{ rencontrée}} \quad \text{Équation 3-15}$$

Avec les masses de particules de fluorescéine de diamètre D_p dans le volume balayé par l'ensemble des gouttes données par (Équation 3-16) :

$$m_{D_p, \text{ rencontrée}} = \pi \left(A + \frac{D_{p, \text{ humide}}}{2} \right)^2 H_{In-CASE} C_{M,D_p} F_g \Delta t \quad \text{Équation 3-16}$$

Où C_{M,D_p} est la concentration massique de l'aérosol de diamètre D_p (portant n charges) dans la colonne définie par le système d'Équations 3-17 :

$$\begin{cases} C_{M,D_p} = C_{M,fluo} \times Ratio_{M,n} \\ C_{M,fluo} = \frac{m_{fluo,F}}{Q_{chambre} \Delta t} \end{cases} \quad \text{Équations 3-17}$$

Dans cette équation, le rapport en masse ($Ratio_{M,n}$) de l'aérosol de diamètre D_p portant n charges élémentaires est calculé depuis le rapport en nombre des Équations 3-14 et les distributions granulométriques de la Figure 3-13. Les résultats numériques du rapport sont présentés dans les Tableaux 3-7 et 3-8.

Tableau 3-7 Répartition en masse entre les aérosols chargés 1,2,...,n fois en sortie de DMA suivant le modèle théorique de Wiedensohler (1988) pour un aérosol sélectionné de 100 nm. Exemple avec les deux distributions d'aérosol présentées sur la Figure 3-13.

Concentration fluorescéine dans l'atomiseur 36 g/l					
D_p (nm)	100,0	151,6	196,4	238,2	278,2
$C_{N,atomiseur}$ (cm^{-3})	$8,74 \times 10^4$	$5,79 \times 10^4$	$4,07 \times 10^4$	$3,03 \times 10^4$	$2,33 \times 10^4$
$n(-)$	1	2	3	4	5
$F_{N,n}$ (%)	21,4	5,6	1,5	0,36	0,08
$C_{N,DMA}$ (cm^{-3})	$1,87 \times 10^4$	$3,241 \times 10^3$	612	108	19
$Ratio_{M,n}$ (%)	51,3	31,0	12,7	4,0	1,0
$Ratio_{M,n=1:3}$ (%)	54,0	32,6	13,4	négligé	négligé
Concentration fluorescéine dans l'atomiseur 100 g/l					
D_p (nm)	100,0	151,6	196,4	238,2	278,2
$C_{N,atomiseur}$ (cm^{-3})	$1,52 \times 10^5$	$1,68 \times 10^5$	$1,45 \times 10^5$	$1,20 \times 10^5$	$1,00 \times 10^5$
$n(-)$	1	2	3	4	5
$F_{N,n}$ (%)	21,4	5,6	1,5	0,36	0,08
$C_{N,DMA}$ (cm^{-3})	$3,25 \times 10^4$	$9,38 \times 10^3$	$2,18 \times 10^3$	428	80
$Ratio_{M,n}$ (%)	36,5	36,6	18,5	6,5	1,9
$Ratio_{M,n=1:3}$ (%)	39,8	40,0	20,2	négligé	négligé

Tableau 3-8 Répartition en masse entre les aérosols chargés 1,2,...,n fois en sortie de DMA suivant le modèle théorique de Wiedensohler (1988) pour un aérosol sélectionné de 300 nm. Exemple avec les deux distributions d'aérosol présentées sur la Figure 3-13.

Concentration fluorescéine dans l'atomiseur 36 g/l		
D_p (nm)	300,0	507,4
$C_{N,atomiseur}$ (cm^{-3})	$2,04 \times 10^4$	$6,33 \times 10^3$
$n(-)$	1	2
$F_{N,n}$ (%)	17,8	8,9
$C_{N,DMA}$ (cm^{-3})	$3,64 \times 10^4$	562
$Ratio_{M,n}$ (%)	57,2	42,8
Concentration fluorescéine dans l'atomiseur 100 g/l		
D_p (nm)	300,0	507,4
$C_{N,atomiseur}$ (cm^{-3})	$9,11 \times 10^4$	$3,05 \times 10^4$
$n(-)$	1	2
$F_{N,n}$ (%)	17,83	8,89
$C_{N,DMA}$ (cm^{-3})	$1,62 \times 10^4$	$2,71 \times 10^3$
$Ratio_{M,n}$ (%)	55,3	44,7

Ainsi, l'Équation 3-15 est une équation linéaire à 3 inconnues. Ces inconnues sont les efficacités de collecte des aérosols 100, 151,6 et 196,4 nm de diamètre, qu'on note ici EC_k . Le système matriciel à résoudre, nécessitant j expériences (avec $j \geq 3$), est finalement (Équations 3-18) :

$$\begin{cases} M_{capturée} = M_{rencontrée} \otimes EC \\ M_{capturée} = (m_{fluo,G,i})_{i \in [1,j]} \\ M_{rencontrée} = (m_{k,rencontrée,i})_{(i,k) \in [1,j] \times [1,3]} \\ EC = (EC_k)_{k \in [1,3]} \end{cases} \quad \text{Équations 3-18}$$

Où k est l'indice du diamètre de la particule chargé 1, 2 ou 3 fois et i l'indice de l'expérience.

Ce système matriciel est résolu numériquement par la méthode de quasi-Newton (Quarteroni et al., 2000). L'unicité de la solution est vérifiée en faisant varier la condition initiale dans la recherche du minimum qu'utilise cette méthode de résolution. Pour les trois humidités relatives, les résidus des résolutions numériques sont inférieurs à 1 % pour chaque valeur d'efficacité déduite.

- Pour un aérosol de 300 nm, le principe est le même que pour la sélection du 100 nm. La masse capturée par les gouttes est la combinaison linéaire des produits des efficacités de collecte et des masses capturées pour les diamètres 300 nm et 507,4 nm (Équation 3-19) :

$$m_{fluo,G} = EC(300 \text{ nm}, A, q, Q, HR) \times m_{300 \text{ nm}, rencontrée} + EC(507,4 \text{ nm}, A, q, Q, HR) \times m_{507,4 \text{ nm}, rencontrée} \quad \text{Équation 3-19}$$

On fait l'hypothèse que les aérosols de 507,4 nm de diamètre ont la même efficacité de collecte que les aérosols de 500 nm. Or, comme cette efficacité de collecte a été précédemment déterminée (de manière directe comme en section 3.3.1.1), l'efficacité de collecte pour les aérosols de 300 nm de diamètre est déduite (Équation 3-20) :

$$EC(300 \text{ nm}, A, q, Q, HR) = \frac{m_{fluo,G} - EC(507,4 \text{ nm}, A, q, Q, HR) \times m_{507,4 \text{ nm}, rencontrée}}{m_{300 \text{ nm}, rencontrée}} \approx \frac{m_{fluo,G} - EC(500 \text{ nm}, A, q, Q, HR) \times m_{507,4 \text{ nm}, rencontrée}}{m_{300 \text{ nm}, rencontrée}} \quad \text{Équation 3-20}$$

3.3.1.3 HAUTEUR DE CHUTE DES GOUTTES

La hauteur de la chambre de In-CASE ($H_{In-CASE}$) est un paramètre qui apparaît dans le calcul de l'efficacité de collecte (Équation 3-11 et Équation 3-16). Rigoureusement, il faudrait considérer la hauteur d'interaction effective entre les gouttes et l'aérosol (H), définie par l'Équation 3-21 :

$$H = \frac{U_{\infty,A}}{U_{\infty,A} + U_{flux}} \times H_{In-CASE} \approx H_{In-CASE} \quad \text{Équation 3-21}$$

Où U_{flux} est la vitesse du flux d'aérosol dans la colonne qui est au maximum égal à 1,27 cm.s⁻¹ (pour un débit de 1,5 l.min⁻¹) et au minimum égal à 0,34 cm.s⁻¹ (pour un débit de 0,4 l.min⁻¹). Sachant que la vitesse terminale des gouttes de 100 µm de diamètre est de 25,6 cm.s⁻¹, la hauteur effective varie entre 98,7 % et 95,3 % de la hauteur de la chambre de In-CASE ($H_{In-CASE}$). Pour simplifier, la hauteur d'interaction effective entre les gouttes et l'aérosol est prise comme étant la hauteur de la chambre de In-CASE.

3.3.2 HYGROSCOPICITÉ DE LA FLUORESCÉINE

Dans la section précédente, les efficacités de collecte obtenues sont en réalité celles d'aérosols plus gros du fait de l'hygroscopicité de la fluorescéine. En effet, le caractère hygroscopique de la fluorescéine (capacité à absorber de l'eau) entraîne un grossissement de l'aérosol dans la chambre de In-CASE du fait des humidités relatives élevées.

Pour quantifier le facteur de grossissement ($GroF$) en fonction de l'humidité relative (HR) pour un aérosol de fluorescéine, les données expérimentales de Quérel et al. (2014) ont été exploitées. Les données disponibles n'excédant pas 90 % d'humidité relative, la kappa-théorie (Petters et Kreidenweis, 2007) a été utilisée afin d'extrapoler ces données jusqu'aux humidités relatives fixées lors des expériences (jusqu'à 96 %). Afin de trouver une correspondance entre les données expérimentales de Quérel et al. (2014) et la kappa-théorie, seules les mesures à humidités relatives inférieures à 85 % ont été prises en compte.

La Figure 3-23 représente les données de Quérel et al. (2014) considérées et leur extrapolation suivant la kappa-théorie avec un paramètre d'hygroscopicité de 0,23 (0,2 et 0,27 en conditions enveloppes). Cette courbe est valable pour toutes les tailles d'aérosols (Quérel et al., 2014 ; Topping et al., 2005). À titre indicatif, ce paramètre est compris entre 0,5 et 1,4 pour des espèces chimiques extrêmement hygroscopiques, entre 0,01 et 0,5 pour des espèces chimiques hygroscopiques à très hygroscopiques et égal à zéro pour des espèces chimiques non hygroscopiques.

Ainsi, par exemple, pour les trois humidités relatives de 71,1 %, 82,4 % et 93,5 % considérées lors des expériences sans forces électrostatiques (section 3.3.4), un aérosol de 100 nm en sortie de DMA grossit respectivement d'un facteur 1,16, 1,27 et 1,57. À terme, ce ne sont pas les efficacités de collecte à 100 nm qui sont mesurées, mais celles de particules dont les diamètres sont respectivement 116, 127 et 157 nm. De plus, la masse volumique de l'aérosol (ρ_p) n'est plus celle de la fluorescéine pure ($\rho_{fluorescéine} = 1580 \text{ kg.m}^{-3}$) mais tient compte du facteur de grossissement des particules et de la masse volumique de l'eau (ρ_{eau}) suivant l'Équation 3-22 :

$$\rho_p(HR) = \frac{\rho_{fluorescéine} + \rho_{eau} \times [GroF(HR)^3 - 1]}{GroF(HR)^3} \quad \text{Équation 3-22}$$

Remarque : Avant l'entrée de l'aérosol dans la chambre In-CASE - c'est-à-dire en sortie de DMA ou de chargeur aérosol - l'humidité relative est abaissée en deçà de 20 % grâce aux sècheurs en ligne disposés entre l'atomiseur pneumatique et le DMA (Figure 3-1). Sur la Figure 3-23, on observe que le grossissement est inférieur à 2 %. L'aérosol en entrée de DMA est donc considéré comme sec.

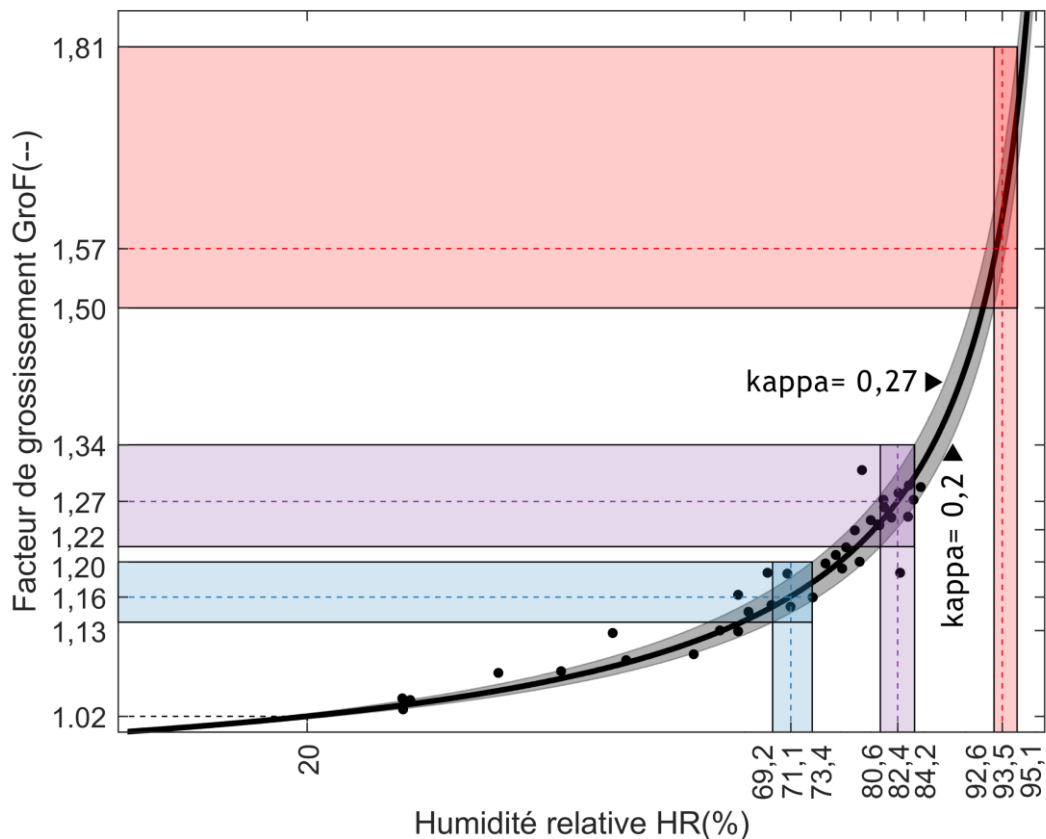


Figure 3-23 Hygroscopicité de l'aérosol de fluorescéine. Extrapolation des données de Quérel et al. (2014) suivant la kappa-théorie (Petters et Kreidenweis, 2007) avec un paramètre d'hygroscopicité kappa de 0,23 (courbe noire). L'encadrement des données expérimentales (zone grise) est pour des paramètres d'hygroscopicité variant de 0,2 à 0,27.

3.3.3 INCERTITUDES

3.3.3.1 ÉVALUATION DE L'INCERTITUDE SUR LA TAILLE DE L'AÉROSOL

La valeur du kappa est la principale source d'incertitude concernant le diamètre des aérosols dans la chambre de In-CASE. Cette incertitude est bien plus grande que celle liée à la largeur de la bande spectrale sélectionnée par le DMA. Aussi, seule l'incertitude liée à la valeur du kappa est considérée.

Pour les mesures d'efficacité de collecte étudiant l'influence de l'humidité relative, l'incertitude s'établit selon les critères suivants :

- En considérant les humidités relatives enveloppes des expériences - par exemple 69,2 et 73,4 % pour l'expérience dont la cible est 71,1 % ;
- L'incertitude basse est calculée en considérant le kappa de l'enveloppe basse et la plus basse humidité relative mesurée - dans l'exemple l'incertitude basse est donc

$$U_{D_p,basse} = \frac{GroF(69,2,kappa=0,2)}{GroF(71,1,kappa=0,232)} ;$$
- L'incertitude haute est calculée en considérant le kappa de l'enveloppe haute et la plus haute humidité relative mesurée - dans l'exemple l'incertitude haute est donc

$$U_{D_p,haute} = \frac{GroF(73,4,kappa=0,27)}{GroF(71,1,kappa=0,232)} .$$

Pour les expériences non couplées, les incertitudes hautes et basses sont respectivement évaluées en prenant le facteur de grossissement, à l'humidité relative mesurée lors de l'expérience, pour un paramètre kappa de 0,27 et 0,2 (Figure 3-23).

3.3.3.2 ÉVALUATION DE L'INCERTITUDE SUR L'EFFICACITE DE COLLECTE

3.3.3.2.1 INFLUENCE DES CHARGES ELECTRIQUES

Pour rappel, l'efficacité de collecte expérimentale se calcule via l'Équation 3-23 :

$$EC(D_p, A, q, Q, HR) = \frac{m_{fluo,G}}{\pi \left(A + \frac{D_p}{2}\right)^2 H_{In-CASE} C_{M,D_p} \times \text{nombre de gouttes}} \quad \text{Équation 3-23}$$

$$\approx \frac{m_{fluo,G}}{\pi A^2 H_{In-CASE} C_{M,D_p} \times \text{nombre de gouttes}}$$

L'incertitude relative sur l'efficacité de collecte est évaluée suivant la loi de propagation des incertitudes (Lira, 2003) (Équation 3-24) :

$$u_{EC} = \sqrt{u_A^2 + u_{H_{In-CASE}}^2 + u_{m_{fluo,G}}^2 + u_{\text{nombre de gouttes}}^2 + u_{C_{M,D_p}}^2} \quad \text{Équation 3-24}$$

Avec :

- u_A : l'incertitude relative liée à la mesure de la taille de la goutte qui est évaluée comme le rapport de l'écart-type des diamètres sur la moyenne des diamètres mesurés sur 200 images prise en ombroscopie. Cette incertitude est de l'ordre de 1 % ;
- $u_{H_{In-CASE}}$: l'incertitude relative liée à la hauteur d'In-CASE où chute la goutte qui est de l'ordre de 1 cm pour 1 m ;
- $u_{m_{fluo,G}}$: l'incertitude relative sur la masse de particules de fluorescéine captée par les gouttes qui tient compte de l'incertitude liée à la mesure de fluorescence ($u_{\text{fluorimètre}}$) - donnée par le certificat d'étalonnage - et de l'incertitude ($u_{\text{volume eau}}$) liée aux 2 ml d'eau ajoutés pour récupérer la fluorescéine cristallisée au fond du volume de contrôle après le séchage des gouttes (voir protocole expérimental, Annexe D) - estimé à 1 % (Équation 3-25) :

$$u_{m_{fluo,G}} = \sqrt{u_{\text{fluorimètre}}^2 + u_{\text{volume eau}}^2} \quad \text{Équation 3-25}$$

- $u_{\text{nombre de gouttes}}$: l'incertitude relative sur le nombre de gouttes tombées dans le volume de récupération dont l'estimation provient du test de qualification de la section 3.2.1.2 ;
- $u_{C_{M,D_p}}$: l'incertitude relative sur la concentration massique dans la chambre qui, suivant l'Équation 3-12, peut être formulée (Équations 3-26) :

$$\begin{cases} u_{C_{M,D_p}} = \sqrt{u_{m_{fluo,F}}^2 + u_{Q_{\text{chambre}}}^2 + u_{\Delta t}^2} \approx \sqrt{u_{m_{fluo,F}}^2 + u_{Q_{\text{chambre}}}^2} \\ u_{m_{fluo,F}} = \sqrt{u_{\text{fluorimètre}}^2 + u_{\text{dilution}}^2} \end{cases} \quad \text{Équations 3-26}$$

Où $u_{Q_{\text{chambre}}}$ est l'incertitude sur le débit - donnée par l'étalonnage du constructeur - u_{dilution} est l'incertitude liée à la dilution de la solution de 100 ml contenant le filtre (voir protocole expérimental en Annexe D) estimée à 1 % et $u_{\Delta t}$ l'incertitude sur le temps de l'expérience qui est négligée dès lors que l'erreur est de l'ordre de la seconde pour une expérience de plusieurs heures.

3.3.3.2.2 INFLUENCE DE L'HUMIDITE RELATIVE

L'évaluation de l'incertitude dépend du diamètre d'aérosol sélectionné par le DMA (finalement de la présence ou non de charges multiples), aussi :

- Pour les diamètres sélectionnés de 400 et 500 nm, l'évaluation de l'incertitude est la même qu'en section 3.3.3.2.1 ;
- L'efficacité de collecte pour un aérosol de 300 nm étant évaluée par l'intermédiaire de l'efficacité de collecte du 500 nm, l'incertitude pour le 500 nm ($u_{500\text{ nm}}$) est propagée dans celle du 300 nm et la méthode utilisée suit celle précédemment décrite ;
- Pour déterminer l'incertitude des efficacités de collecte des aérosols de 100, 151,6 et 196,4 nm, la méthode diffère dès lors qu'on résout numériquement un jeu de j -expériences indépendantes possédant chacune leur incertitude de mesure. Pour ce faire, pour chaque expérience, les incertitudes relatives $u_{m_{fluo,G,i}}$ et $u_{m_{k,rencontrée,i}}$ de chaque élément $m_{fluo,G,i}$ et $m_{k,rencontrée,i}$ des vecteurs respectifs $M_{capturée}$ et $M_{rencontrée}$ (Équations 3-18) sont calculées avec la même méthode que celle développée en section 3.3.3.2.1. Ainsi, le système matriciel d'Équations 3-18 est perturbé de la manière suivante (Équations 3-27) :

$$\begin{cases} M_{capturée,pert} = M_{rencontrée,pert} \otimes EC \\ M_{capturée,pert} = (m_{fluo,G,pert,i})_{i \in [1,j]} \\ M_{rencontrée,pert} = (m_{k,rencontrée,pert,i})_{(i,k) \in [1,j] \times [1,3]} \\ EC = (EC_k)_{k \in [1,3]} \end{cases} \quad \text{Équations 3-27}$$

Avec les éléments $m_{fluo,G,pert,i}$ et $m_{k,rencontrée,pert,i}$ perturbés suivant les Équations 3-28 :

$$\begin{cases} m_{fluo,G,pert,i} = \left[(1 - u_{m_{fluo,G,i}}) + 2 \times u_{m_{fluo,G,i}} \times \lambda_i \right] m_{fluo,G,i} \\ m_{k,rencontrée,pert,i} = \left[(1 - u_{m_{k,rencontrée,i}}) + 2 \times u_{m_{k,rencontrée,i}} \times \alpha_i \right] m_{k,rencontrée,i} \end{cases} \quad \text{Équations 3-28}$$

Où λ_i et α_i sont des variables tirées aléatoirement suivant une loi normale $\mathcal{N}(0,1)$ générées par méthode Box-Muller (1958).

Ainsi, 10000 systèmes matriciels (Équations 3-27), perturbés suivant le système d'Équations 3-28, sont définis par méthode Monte-Carlo et résolus suivant la méthode quasi-Newton pour obtenir 10000 vecteurs solutions (EC). À noter que pour certains systèmes perturbés, la méthode de quasi-Newton détermine des valeurs négatives d'efficacités. N'étant pas physiques et avec une fréquence d'occurrence faible, ces solutions sont ignorées pour évaluer l'incertitude. Sur la Figure 3-24, un ensemble de solutions pour un aérosol de 100 nm et une humidité relative de 71,1 % est présenté. L'écart-type (σ) de la distribution est calculé et constitue l'incertitude sur la mesure d'efficacité de collecte.

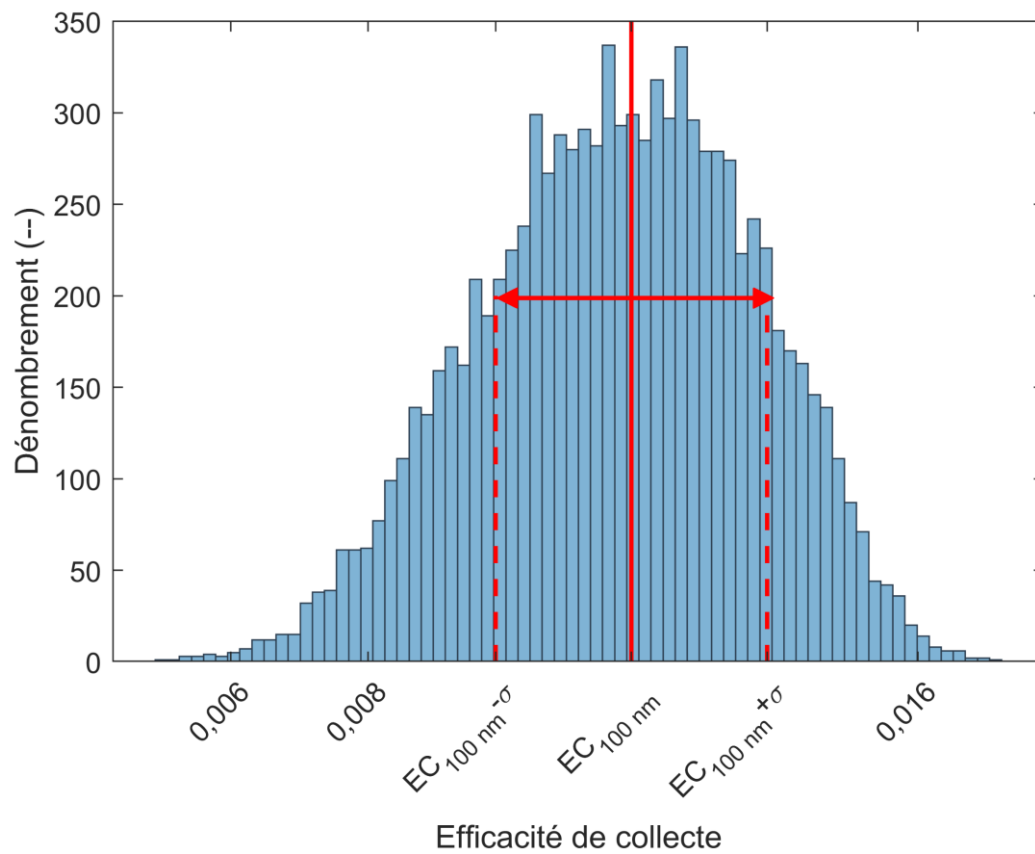


Figure 3-24 Distribution des 10000 solutions (les solutions négatives sont supprimées) pour un aérosol de diamètre sec 100 nm et une humidité relative de 71,1 %.

3.3.4 INFLUENCE DE L'HUMIDITE RELATIVE SUR L'EFFICACITE DE COLLECTE

Sur la Figure 3-25, les mesures d'efficacités effectuées à plusieurs humidités relatives - 71,1, 82,4 et 93,5 % - sont présentées pour plusieurs rayons secs d'aérosols variant de 50 à 250 nm. Pour chaque expérience, la température est de $0,58 \pm 0,50^\circ\text{C}$ sur l'ensemble des expériences. Le rayon de la goutte est de $49,6 \pm 1,3 \mu\text{m}$. Les gouttes et les aérosols sont neutralisés électriquement, respectivement à l'aide de la loi de charge de la Figure 3-12 et d'un neutraliseur placé en entrée de chambre de In-CASE (Figure 3-1). Pour chaque humidité relative étudiée, les conditions thermodynamiques et la taille des gouttes varient légèrement entre les mesures. Dès lors, ces dernières sont comparées au modèle développé au CHAPITRE 2 et au modèle de Wang et al. (1978) en utilisant les conditions enveloppes et moyennes d'expérience, détaillées dans le Tableau 3-9. Sur la figure, les rayons humides sont considérés en tenant compte du facteur de grossissement ($GroF$) aux conditions moyennes d'expérience. Pour ces mêmes conditions, la masse volumique est déduite de l'Équation 3-22.

Au regard des mesures, on peut noter que pour les tailles d'aérosols et de gouttes étudiées :

- La contribution de la thermophorèse et de la diffusiophorèse est de premier ordre. Pour les aérosols les plus gros, l'efficacité de collecte est augmentée de 379 % en passant de 93,5 à 71,1 % d'humidité relative. On peut noter une diminution légère de la contribution de ces effets microphysiques pour les mesures avec les aérosols les plus petits où l'efficacité de collecte est cette fois-ci augmentée de 301 % entre ces deux mêmes humidités relatives. Bien que cette diminution de la contribution soit très faible, elle est en accord avec les modèles théoriques qui, lorsque la taille des aérosols diminue, prévoient que la diffusion brownienne prime sur la thermophorèse et la diffusiophorèse. Par conséquent, l'effet de l'humidité relative s'estompe en diminuant la taille de l'aérosol ;
- La taille de l'aérosol a une influence plus faible que l'humidité relative. En effet, entre le plus gros et le plus petit aérosol étudiés, l'efficacité de collecte varie de 61, 59 et 203 %, pour les humidités 71,1, 82,4 et 93,5 %, respectivement. On observe que l'effet de la taille des particules diminue lorsqu'on augmente la contribution de la thermophorèse et de la diffusiophorèse (pour une humidité relative qui baisse). Cette remarque est en accord avec les résultats des modèles où, dans les tailles d'aérosols étudiées, on observe un palier d'efficacité de collecte de plus en plus prononcé pour des humidités relatives faibles.

Finalement, dans les tailles d'aérosol sélectionnées, les deux modèles sont en accord avec les mesures effectuées. Pour les deux humidités les plus basses (71,1 et 82,4 %), les efficacités de collecte théoriques sont très similaires entre les modèles. Néanmoins, les écarts deviennent notables proche de la saturation où la contribution de la thermophorèse et de la diffusiophorèse est faible. Dès lors, la contribution des mécanismes d'impaction et d'interception augmente dans le modèle développé dans cette thèse. En revanche, le modèle de Wang et al. (1978) ne tient pas compte de ces mécanismes microphysiques. Ainsi, alors que les simulations du présent modèle arrivent à un minimum pour ensuite remonter du fait des mécanismes mécaniques, les efficacités de collecte du modèle de Wang et al. (1978) continuent de diminuer avec la contribution de la diffusion brownienne. Cette différence est visible pour 93,5 % d'humidité relative et d'autant plus pour le cas saturé.

Pour la deuxième partie des résultats expérimentaux, on étudie les effets électrostatiques. On cherche alors à minimiser l'effet de l'humidité relative observé sur la Figure 3-25 en se plaçant le plus proche possible de la saturation (vers 95 %). Ainsi, le modèle de Wang et al. (1978) ne sera plus utilisé dès lors que, comme mentionné plus haut, dans les tailles d'aérosols étudiés, la thermophorèse, la diffusiophorèse, l'interception, l'impaction inertielle vont avoir des effets couplés sur l'efficacité de collecte. Le modèle eulérien de Wang et al. (1978) ne permet pas une évaluation théorique rigoureuse des efficacités de collecte pour ces conditions, d'autant plus qu'il ne tient compte que des interactions coulombiennes attractives des forces électrostatiques.

Les valeurs des efficacités de collecte mesurées sont regroupées en Annexe E.

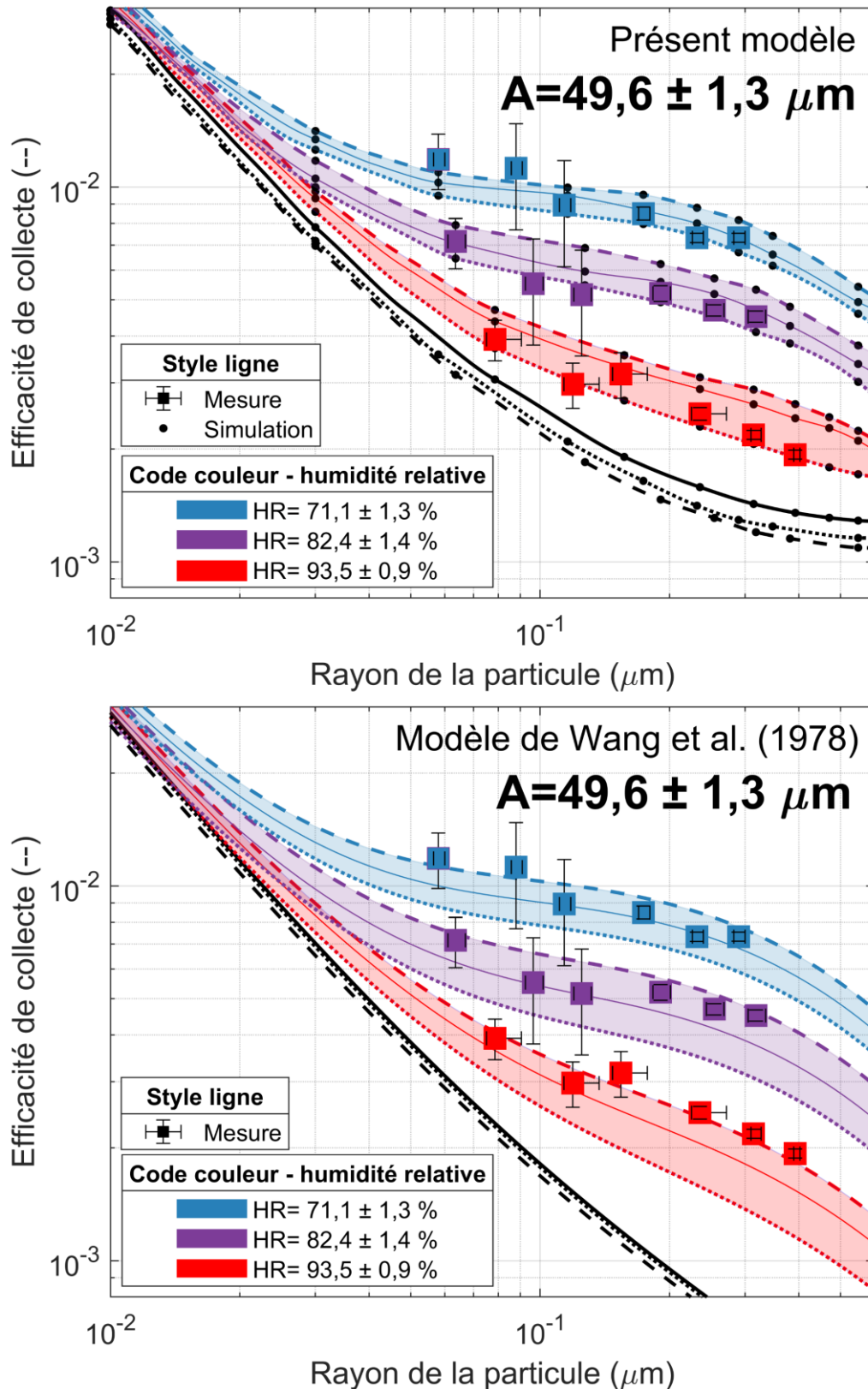


Figure 3-25 Mesures d'efficacité de collecte à 3 humidités relatives - 71,1, 82,4 et 93,5 % - pour des aérosols de rayon humide entre 58 et 393 nm. (Haut) Les points et les traits sont respectivement les résultats du modèle présenté au CHAPITRE 2 et les interpolations. (Bas) Les traits sont les résultats du modèle de Wang et al. (1978). Les données d'entrée des modèles sont renseignées dans le Tableau 3-9.

Tableau 3-9 Conditions d'expériences moyennes (ligne solide), minimisant (ligne pointillée) et maximisant (ligne tiretée) l'efficacité de collecte.

Style ligne	$A(\mu m)$	$HR(\%)$	$T(^{\circ}C)$	$\rho_p(kg.m^{-3})$
.....	50,4	95,1	0,75	1150
————	48,8	93,5	1,20	1150
- - - - -	47,6	92,6	1,60	1150
————	48,8	100,0	1,20	1150
.....	53,0	84,2	0,03	1282
————	50,8	82,4	0,27	1282
- - - - -	48,6	80,6	0,59	1282
- - - - -	50,8	100,0	0,27	1282
.....	50,6	73,4	0,14	1372
————	49,3	71,1	0,27	1372
- - - - -	48,0	69,2	0,37	1372
.....	49,3	100,0	0,27	1372

3.3.5 INFLUENCE DES CHARGES ELECTRIQUES SUR L'EFFICACITE DE COLLECTE

Pour mettre en évidence l'effet des charges électriques, 70 efficacités de collecte ont été mesurées, réparties sur 4 rayons humides d'aérosol entre 175 et 432 nm (rayons secs entre 100 et 250 nm), un rayon de goutte de $48,5 \pm 1,1 \mu\text{m}$ et 7 charges électriques sur la goutte de $9,6 \times 10^4$, 3×10^4 , 5×10^3 , 0, -5×10^3 , -1×10^4 et -3×10^4 charges élémentaires. Étant limité par la géométrie adoptée pour charger les gouttes (Figure 3-7, gauche) et de l'alimentation basse tension utilisée, cet intervalle de charge de goutte est maximal. Néanmoins, de telles charges assurent d'être à la fois représentatif de nuage convectif et stratiforme, en tenant compte des deux polarités possibles. Les charges électriques sur l'aérosol sont celles du Tableau 3-5. A noter que l'aérosol est chargé négativement, de par le régime du chargeur par champ utilisé, alors que la charge électrique évaluée dans les premiers rejets de l'accident du CNPE-FD (2011) est positive (voir section 1.1.2.2). Néanmoins, si le modèle se trouve validé par les mesures, on remarque la relation $F_{el}(-q, Q) = F_{el}(q, -Q)$ en Équation 1-12. Aussi, les efficacités de collecte seront équivalentes pour le même rapport de charge électrique ($K = \frac{Q}{q}$).

L'humidité relative moyenne sur l'ensemble des expériences est de 95,1 % ($\pm 0,2$ %) pour une température moyenne de $1,08^\circ\text{C}$ ($\pm 0,12^\circ\text{C}$). Pour chaque point de mesure, le facteur de grossissement ($GroF$) des particules est évalué pour en déduire les rayons humides et la masse volumique.

Les valeurs des efficacités de collecte mesurées sont regroupées en Annexe E.

3.3.5.1 INFLUENCE DU PRODUIT DES CHARGES ELECTRIQUES

Les mesures d'efficacité de collecte en fonction du produit des charges sur l'aérosol et la goutte sont présentées sur la Figure 3-26 pour les 4 tailles d'aérosol. Les lignes tiretées représentent la valeur théorique d'efficacité de collecte, obtenue avec le modèle développé durant la thèse (CHAPITRE 2) sans les forces électrostatiques, à une humidité relative de 95 % et une température de 1°C .

De cette représentation nous pouvons observer les éléments suivants :

- Une très forte influence du produit des charges, échelonnant l'efficacité de collecte sur plus de 4 ordres de grandeur ;
- Pour de faibles produits de charge positifs, on observe des efficacités de collecte supérieures à ce que prévoit la théorie sans les effets électrostatiques. Pourtant, les polarités sont les mêmes et les forces coulombiennes sont répulsives. Cette augmentation peut être attribuée au terme Image-Attractif-Faible-Distance (IAFD, Équation 1-12) qui, malgré une même polarité sur la goutte et la particule, contribue à attirer les particules vers la goutte.
- Pour de très forts produits de charge positifs, les efficacités de collecte chutent. Le terme Coulombien-Longue-Distance (CLD, Équation 1-12) repousse les particules à longue distance de la goutte ce qui diminue fortement la collecte.

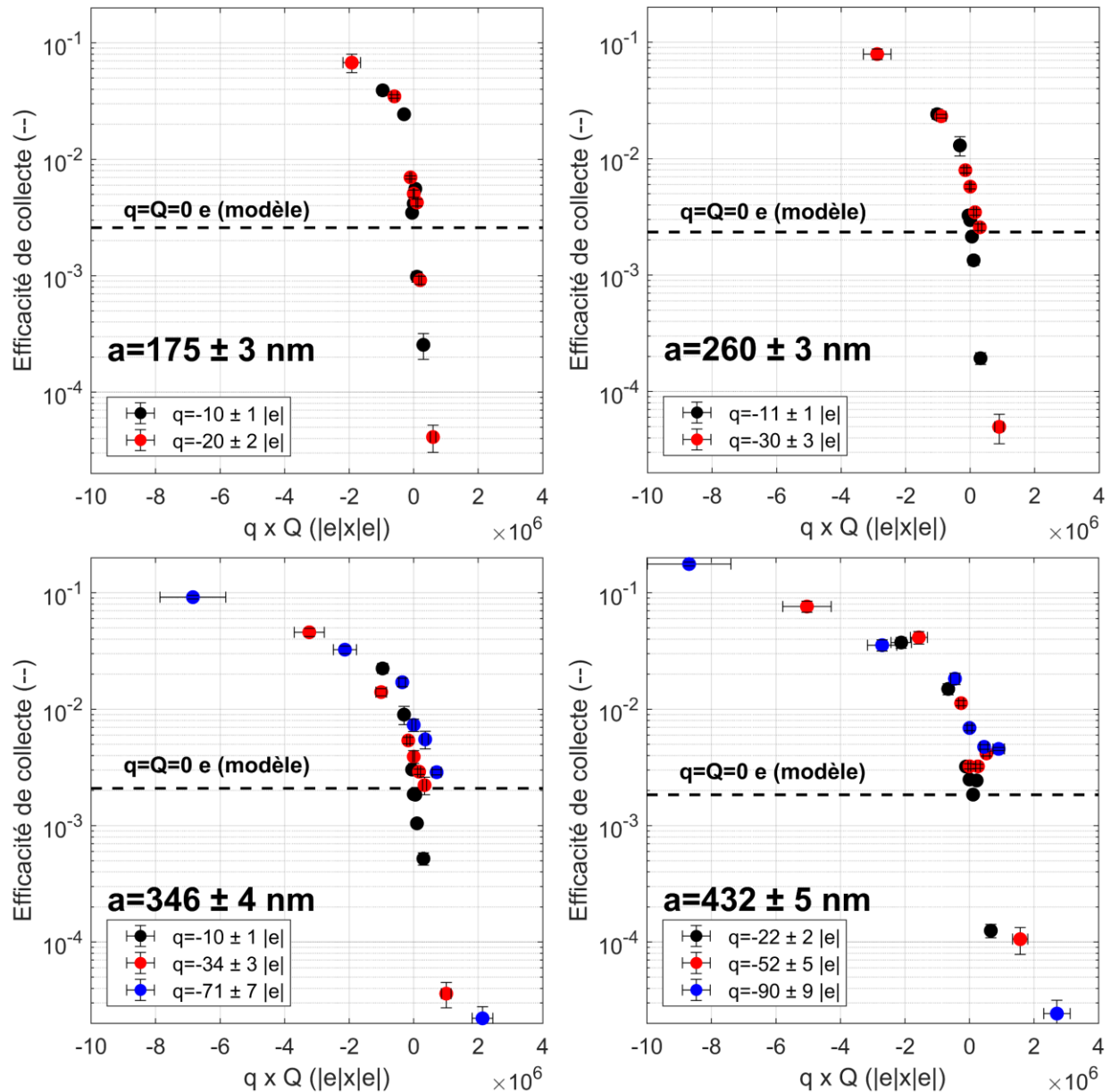


Figure 3-26 Mesures des efficacités de collecte en fonction du produit des charges électriques de la goutte et de l'aérosol. Les lignes tiretées représentent l'efficacité de collecte théorique sans forces électrostatiques (à la température et à l'humidité relative moyennes des expériences). Le rayon de l'aérosol est de 175 nm (Haut, Gauche), 260 nm (Haut, Droite), 346 nm (Bas, Gauche) et 432 nm (Haut, Droite). Les charges sur l'aérosol sont représentées par le code couleur.

3.3.5.2 INFLUENCE DE LA CHARGE DE L'AEROSOL - GOUTTE ELECTRIQUEMENT NEUTRE

La Figure 3-27 présente les efficacités de collecte pour les 4 tailles d'aérosol considérées où la goutte est électriquement neutralisée. De plus, les mesures d'efficacité de collecte de la section 3.3.4 pour une humidité relative de 93,5 % et un rayon humide de 154, 235, 314 et 392 nm sont renseignées pour le cas sans force électrostatique (charge sur la goutte nulle et aérosol neutralisé). Les lignes tiretées représentent la valeur théorique d'efficacité de collecte, obtenue avec le modèle, sans les forces électrostatiques, à une humidité relative de 95 % et une température de 1 °C.

On observe que pour environ -10 charges élémentaires sur un aérosol de rayon de 346 et 260 nm, ainsi que pour environ -20 charges élémentaires pour un aérosol de 432 nm, la contribution des forces

électrostatiques n'est pas significative devant les forces de thermophorèse et de diffusiophorèse dès lors que les efficacités de collecte sont très similaires aux mesures sans forces électrostatiques.

Néanmoins, l'effet de la charge électrique de l'aérosol sur l'efficacité de collecte devient notable quand la charge augmente et ce, même si la goutte est électriquement neutre. Par exemple, pour un rayon d'aérosol de 346 nm, l'efficacité de collecte est multipliée par 4 en passant d'une charge sur l'aérosol de 10 à 70 charges élémentaires. Ce résultat est important dès lors qu'il met en évidence la présence d'une charge ponctuelle à l'intérieur de la goutte, image de la charge sur l'aérosol. Au bilan, l'efficacité de collecte est augmentée de par le terme IAFD (Equation 1-12) qui est l'unique contribution des forces électrostatiques ici - la charge sur la goutte étant nulle.

De plus, pour une charge sur la particule fixée, on observe une augmentation de l'efficacité de collecte lorsque la taille de l'aérosol diminue. Cette observation est due à l'augmentation de la mobilité électrique des particules pour des rayons plus faibles qui, *a fortiori*, augmente la contribution du terme IAFD des forces électrostatiques.

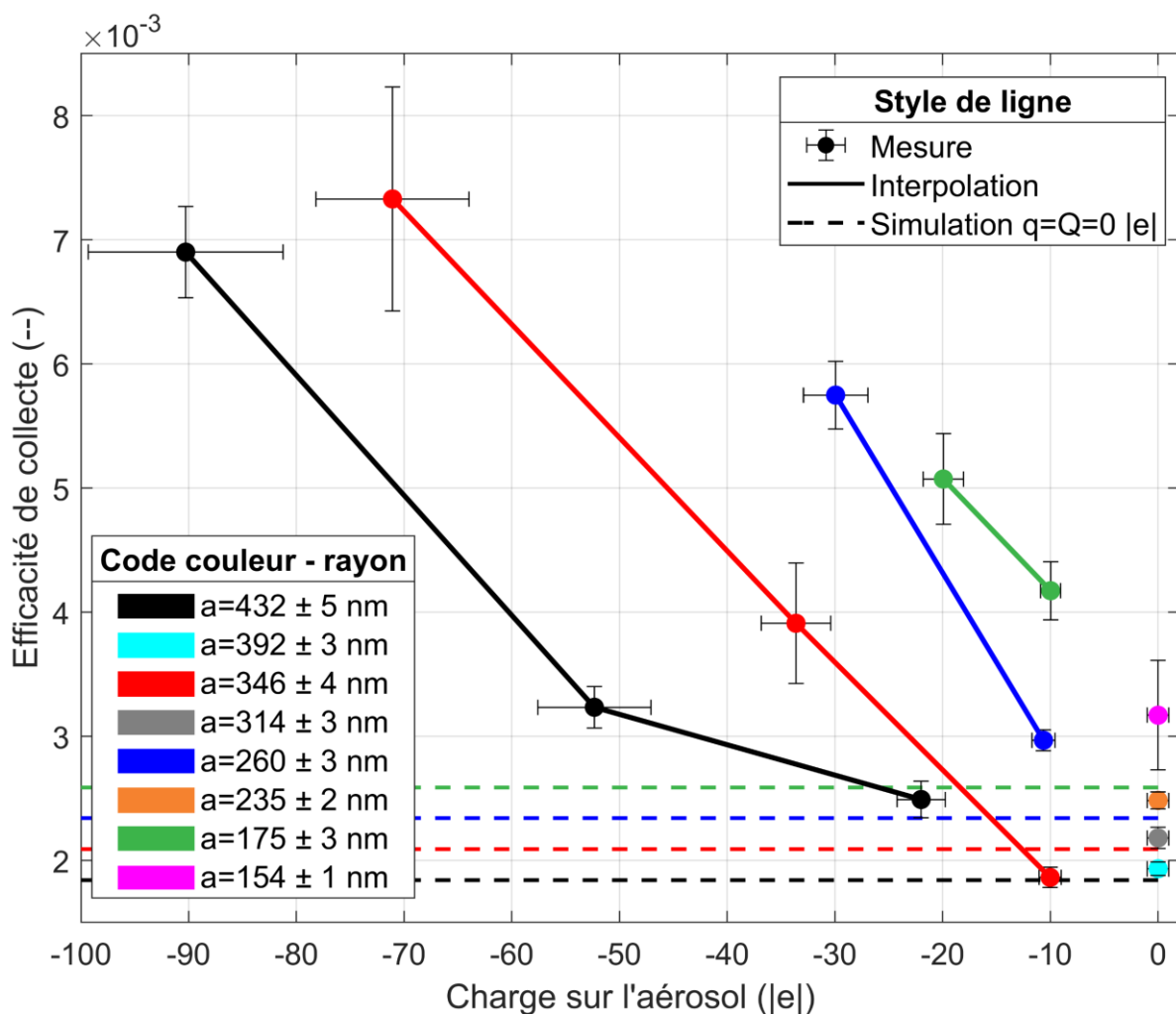


Figure 3-27 Mesures d'efficacité de collecte pour un aérosol de 175, 260, 346 et 432 nm. La goutte est électriquement neutre (aux incertitudes de mesure près) et la charge sur l'aérosol varie. Les lignes tiretées représentent la valeur théorique d'efficacité de collecte pour ces tailles d'aérosol, obtenue avec le modèle développé sans les forces électrostatiques, à une humidité relative de 95 % et une température de 1 °C. Les mesures présentées en section 3.3.4 à 93,5 % d'humidité relative pour un aérosol électriquement neutre sont aussi rajoutées pour des rayons de 154, 235, 314 et 393 nm.

3.3.5.3 COMPARAISON DES MESURES AVEC LE MODELE DEVELOPPE ET LA CORRELATION DE KRAEMER ET JOHNSTONE (1955)

Lors des précédentes sous-sections, l'évolution des mesures d'efficacité de collecte suivant les effets électrostatiques est en accord avec les phénomènes expliqués au CHAPITRE 2 (section 2.4.4). Dans cette partie, on compare les mesures d'efficacité de collecte à la modélisation.

Pour chacune des 70 mesures, l'efficacité de collecte théorique a été calculée en tenant compte des conditions d'expérience, à savoir - la taille de la goutte, la température, la pression (pression atmosphérique), l'humidité relative, le rayon humide de l'aérosol, sa masse volumique calculée suivant l'Équation 3-22, les charges électriques sur la goutte et l'aérosol. Par ailleurs, des efficacités de collecte extrema ont aussi été déterminées afin de tenir compte de l'incertitude expérimentale sur les charges électriques de la goutte et de l'aérosol. Finalement, pour les 70 mesures, 210 efficacités de collecte théoriques ont été calculées en utilisant le modèle développé dans ce travail (CHAPITRE 2). De la même manière, lorsque l'efficacité de collecte théorique est inférieure à 10^{-5} , on considère cette valeur seuil pour éviter des temps de calcul trop longs.

Sur la Figure 3-27, haut, la comparaison entre les mesures d'efficacité de collecte et la modélisation est présentée. Les barres d'incertitudes horizontales sont les incertitudes liées à la mesure, tandis que les barres verticales représentent l'encadrement de l'efficacité de collecte théorique tenant compte de l'incertitude de mesure sur le produit des charges. On constate de très bonnes similitudes (pour un paramètre comme l'efficacité de collecte qui varie sur plusieurs ordres de grandeur) entre les efficacités de collecte mesurées et théoriques où l'écart moyen est de 66 %. A noter que cette moyenne est quelque peu faussée par une partie des résultats, les 6 points de mesure les plus bas visibles sur la Figure 3-27 pour des efficacités de collecte théorique de 10^{-5} . Pour ces comparaisons, des imprécisions demeurent de par la valeur théorique seuillée à 10^{-5} . De plus, on constate des efficacités de collecte mesurées bien au-dessus des valeurs que prévoit le modèle, avec des écarts de 150 jusqu'à 1000 % pour ces très basses efficacités. Ces écarts importants peuvent s'expliquer par les conditions d'expérience. En effet, pour ces efficacités de collecte très basses, bien que les durées d'expériences soient entre 5 et 6 heures, la masse capturée par les gouttes est très proche de la limite de la détection qui est de 10^{-15} kg. À titre de comparaison, une particule de fluorescéine sodée de rayon sec de 250 nm a une masse de 10^{-16} kg. A ce niveau de détection, la pollution de l'opérateur lors des diverses étapes du protocole expérimental (présenté en Annexe D) est alors une source très importante d'incertitude sur la mesure. Cette incertitude n'est pas renseignée dans les incertitudes de mesure dès lors qu'elle est difficilement quantifiable. Pour réduire ce problème, il conviendrait de travailler en zone blanche ou alors, considérer non plus des heures mais des jours d'expériences. Néanmoins, mêmes pour les basses efficacités de collecte, les écarts sont très raisonnables pour un paramètre qui s'échelonne sur plusieurs ordres de grandeur. Notons que la moyenne des écarts, en ne considérant plus les 6 points vraisemblablement pollués, passe de 66 % à 38 %, ce qui semble valider les hypothèses de modélisation formulée en section 2.1.1.

Ajoutons de même qu'il existe une distribution de charge des particules, mais cette dernière étant très compliquée à caractériser, on raisonne en charge moyenne dans cette étude. Néanmoins, une incertitude demeure et n'a pas pu être évaluée. La distribution de charge sur les gouttes est, quant à elle, monodispersée ce qui s'illustre directement sur la Figure 3-9 (droite) où l'angle de déviation est constant entre les gouttes.

Sur la Figure 3-27, bas, les mesures réalisées sont aussi confrontées à la corrélation de Kraemer et Johnstone (1955) définie au CHAPITRE 1 (Équation 1-14). Modélisant uniquement les interactions électrostatiques coulombiennes attractives, la corrélation est seulement comparée aux mesures réalisées avec une charge de polarité opposée entre la goutte et la particule. On observe que les mesures sont en très bon accord avec la corrélation pour d'importants produits de charge. Néanmoins, on constate une sous-évaluation des efficacités de collecte lorsque les charges sont moins importantes. Cette tendance est normale dès lors que cette corrélation est valable lorsque les effets électrostatiques coulombiens attractifs dominent les autres mécanismes microphysiques. Cette observation illustre l'intérêt de considérer des modèles lagrangiens plutôt que d'utiliser des corrélations décrivant un processus microphysique séparément des autres. Bien que faciles d'implémentation, de telles corrélations mènent à une mauvaise appréciation de l'efficacité de collecte lorsque les contributions des effets microphysiques sont du même ordre de grandeur. Les résultats sont aussi comparés à la corrélation de Nielsen et Hill (1976) définie à l'Équation 1-15. Les

résultats sont très similaires et par conséquent, ne sont pas montrés dans cette section. Ce constat est justifié par le nombre de Stokes des particules qui, pour les tailles considérées, est proche de zéro. Les corrélations de Kraemer et Johnstone (1955) et Nielsen et Hill (1976) sont alors très proches.

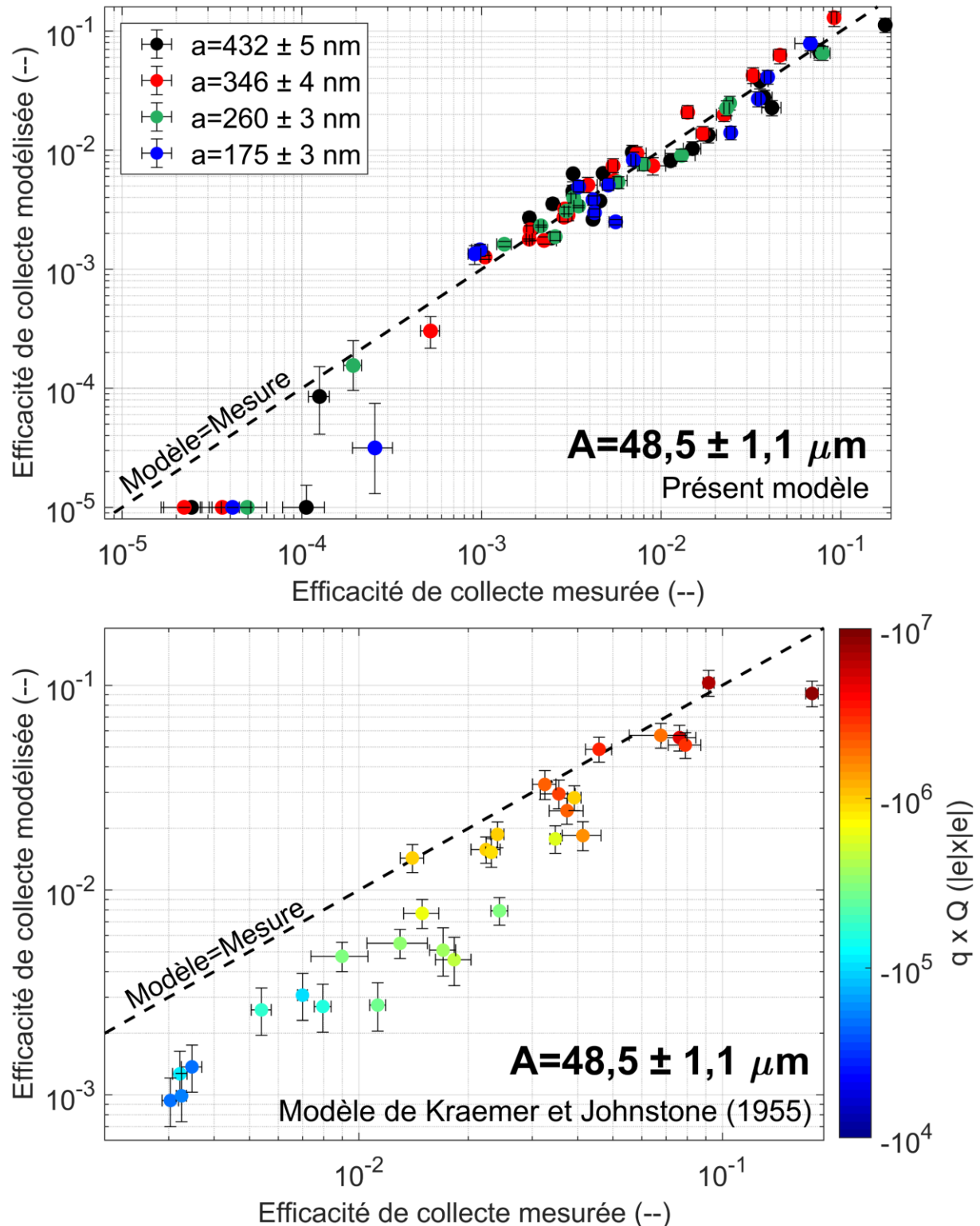


Figure 3-28 (Haut) Comparaison entre les 70 efficacités de collecte mesurées et théoriques, issues du modèle développé durant la thèse. La thermophorèse et la diffusiophorèse ont été ajoutées à la modélisation. (Bas) Comparaison des mesures avec des charges électriques sur la particule et la goutte de polarité opposée avec la corrélation de Kraemer et Johnstone (1955).

3.4 RÉSUMÉ DU CHAPITRE 3

L'expérience In-CASE a été dimensionnée et construite durant cette thèse pour mesurer l'efficacité de collecte de particules submicroniques par des gouttes microniques. Dans ce dispositif, la taille des gouttes et des aérosols est rigoureusement contrôlée. La charge électrique des aérosols et des gouttes est aussi complètement caractérisée, respectivement grâce à un chargeur par champ et un chargeur par induction électrostatique, tous deux conçus et caractérisés lors d'expériences *ex situ*. La température dans la chambre d'In-CASE fait, elle aussi, l'objet d'un contrôle qui permet de maintenir une humidité stable et précise durant toute la durée d'une expérience. L'étude de l'ensemble des mécanismes microphysiques agissant sur la collecte d'aérosol au sein des nuages est alors possible. Deux campagnes de mesures ont été réalisées afin d'étudier une partie de ces mécanismes sur l'efficacité de collecte.

Lors de la première campagne expérimentale, 18 efficacités de collecte ont été mesurées, réparties sur des humidités relatives de 71,1, 82,4 et 93,5 %, afin d'étudier les contributions de la thermophorèse et de la diffusiophorèse. Les gouttes et les aérosols ont été électriquement neutralisés durant cette phase. Une forte influence de l'humidité relative sur l'efficacité de collecte a été observée, plaçant la thermophorèse et la diffusiophorèse au premier ordre dans la collecte. Ces premières mesures ont été confrontées au modèle théorique développé, ainsi qu'au modèle bien connu de Wang et al. (1978). Les comparaisons montrent de très fortes similitudes entre les deux modèles et les mesures.

Dans un deuxième volet expérimental, les effets électrostatiques ont été étudiés par l'intermédiaire de 70 points de mesure, répartis suivant 1 taille de goutte, 4 tailles d'aérosol, 7 charges électriques sur la goutte et 2 ou 3 charges électriques sur l'aérosol suivant son rayon. L'humidité relative sur l'ensemble des expériences est de 95,1 % ($\pm 0,2$ %) afin de réduire au maximum la contribution de la thermophorèse et de la diffusiophorèse. Ces mesures d'efficacité ont ensuite été comparées au modèle implémenté. Finalement, avec des écarts moyens de 38 % sur 64 points de mesure (discuté à la section précédente, 6 points semblent avoir subi une pollution opérateur et ne sont ici pas pris en compte), le modèle et les hypothèses formulées offrent une très bonne description des effets observés. Notamment, le terme IAFD de l'équation 1-12 a été mis en évidence expérimentalement, ce qui n'avait jamais été illustré dans la littérature à notre connaissance. De la même manière, les corrélations de Kraemer et Johnstone (1955) et de Nielsen et Hill (1976) ont été confrontées aux mesures réalisées, montrant un très bon accord sous réserve que le produit des charges sur la goutte et l'aérosol est important. Dans le cas contraire, la contribution des effets électrostatiques n'est plus assez importante pour négliger les autres processus microphysiques - les efficacités de collecte sont alors sous-évaluées. Pour cette raison, les modèles lagrangiens sont les meilleurs candidats à une évaluation rigoureuse de l'efficacité de collecte. Notons aussi que les corrélations de Kraemer et Johnstone (1955) et de Nielsen et Hill (1976) sont uniquement valables pour des charges électriques sur la goutte et la particule de polarité opposée, ne représentant donc que le terme CLD attractif de l'Équation 1-12.

Dans ce deuxième volet expérimental, une contribution très importante des forces électrostatiques a été globalement observée, faisant varier l'efficacité de collecte sur 4 ordres de grandeur. Pour rappel, il a été estimé au CHAPITRE 1 jusqu'à 600 charges élémentaires sur l'aérosol radioactif émis dans les premiers rejets de l'accident du CNPE-FD (2011). Ainsi, il semble essentiel d'étudier l'effet des forces électrostatiques sur la capture d'aérosols radioactifs à méso-échelle - ce qui fait l'objet du prochain chapitre. Pour ce faire, les nouvelles efficacités de collecte tenant compte des effets électrostatiques seront incorporées à un modèle de nuage. Les efficacités de collecte théoriques du présent modèle, validé dans ce chapitre, seront utilisées afin de couvrir un spectre plus large de tailles et de charges de particule et de goutte.

CHAPITRE 4

ÉTUDE A MESO-ECHELLE DE L'IMPACT DES FORCES ELECTROSTATIQUES SUR LA CAPTURE DES AEROSOLS (RADIOACTIFS) PAR LES NUAGES - LE MODELE DESCAM

4.1 INTRODUCTION

Les CHAPITRES 2 et 3 ont mis en évidence une forte contribution des forces électrostatiques dans la collecte d'aérosols par des gouttes. Dans ce chapitre, on étudie à présent ces mêmes effets à méso-échelle, via l'incorporation de nouvelles valeurs d'efficacité de collecte dans le modèle de nuage DESCAM (DEtailed SCAvening Model). L'enjeu est ici d'examiner l'importance (ou non) de considérer les charges électriques des aérosols radioactifs et des gouttes dans le mécanisme de collecte au sein de deux types de nuage - convectif et stratiforme.

4.1.1 PRESENTATION DU MODELE DESCAM - MODELE DYNAMIQUE 1.5-D

Le modèle DESCAM (Flossmann et al., 1985 ; Flossmann, 1987 ; Flossmann et Wobrock, 2010) est un modèle à microphysique détaillée qui permet de simuler l'évolution d'un nuage dans l'atmosphère de sa formation jusqu'aux précipitations. Faisant l'hypothèse que les mécanismes microphysiques impliqués dans la capture des aérosols par le nuage sont des mécanismes se déroulant sur une dimension verticale - on néglige deux dimensions pour permettre un gain de temps de calcul. Ainsi, dans cette étude, le modèle DESCAM est couplé à un modèle dynamique 1.5-D.

4.1.1.1 LE MODELE DYNAMIQUE 1.5-D

Le modèle dynamique 1.5-D repose sur les travaux de Asai et Kasahara (1967) qui étudient la formation et l'évolution d'un nuage cumuliforme en définissant un système radialement symétrique composé de deux cylindres coaxiaux (Figure 4-1). Le cylindre extérieur, de rayon au moins 10 fois supérieur au rayon intérieur, représente l'environnement où toutes les variables physiques, à l'exception de la vitesse et de la masse volumique de l'air, sont constantes durant une simulation. Le cylindre intérieur est, quant à lui, le siège de processus microphysiques décrits par DESCAM (voir section 4.1.1.4). Le profil de pression reste constant pour l'environnement comme pour la colonne nuageuse.

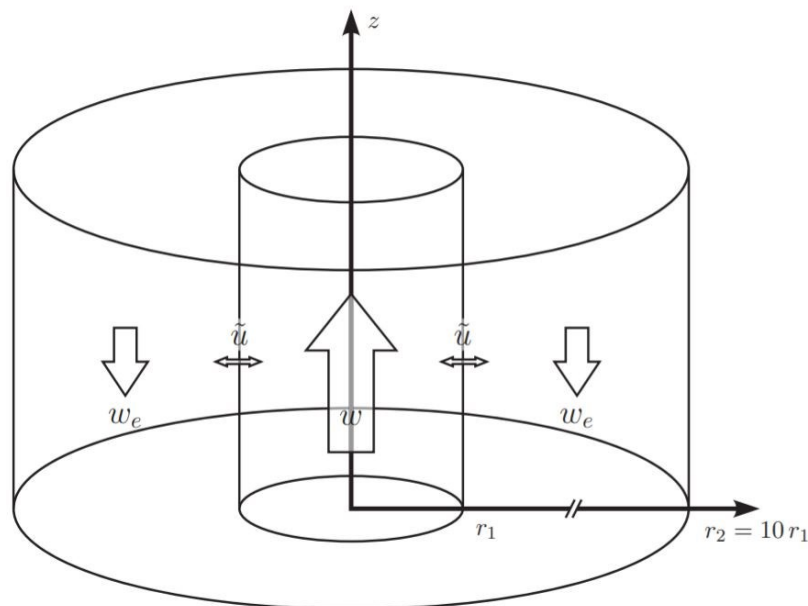


Figure 4-1 Modèle dynamique 1.5-D tiré de Asai et Kasahara (1967). Le cylindre intérieur (de rayon r_1) représente le nuage, le cylindre extérieur (de rayon r_2) est l'environnement. Les échanges horizontaux (\tilde{u}) y sont représentés ; ainsi que les vents verticaux (w) et (w_e) de sens opposé, respectivement dans les cylindres intérieur et extérieur.

Ce modèle est appelé à « 1.5-D » car il n'est pas strictement unidimensionnel. Des échanges horizontaux - via les vitesses (\tilde{u}) - sont modélisés entre les deux cylindres, afin de compenser les divergences ou les convergences entre les couches verticales. De plus, le mélange turbulent engendré par le cisaillement des vents verticaux entre les cylindres intérieur et extérieur est aussi modélisé.

À noter que les trois dernières altitudes de la colonne d'air sont prises comme couche tampon. Elles sont utilisées pour calculer l'évolution de la dynamique du nuage mais pas la thermodynamique. Durant toute la simulation, les températures pour ces altitudes sont égales aux températures du cylindre extérieur. Cette considération évite l'augmentation excessive des températures (par compression) à ces altitudes.

4.1.1.2 REPRESENTATION DES CONDITIONS ATMOSPHERIQUES

Dans le modèle dynamique 1.5-D utilisé dans DESCAM, l'évolution des principales variables thermodynamiques, à savoir, la température potentielle (θ), le contenu en vapeur (q_v), les vitesses verticales dans les cylindres intérieur (w) et extérieur (w_e), les vitesses horizontales (\tilde{u}) ainsi que la masse volumique de l'air (ρ) - est calculée suivant cinq équations couplées à une équation d'état (la loi des gaz parfaits) :

- L'équation de continuité permet de déduire la vitesse radiale (\tilde{u}) à l'interface des deux cylindres (Équation 4-1) :

$$0 = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial(\rho w)}{\partial z} - \frac{2}{r_1} \tilde{u} \quad \text{Équation 4-1}$$

- L'équation de la conservation de la masse permet d'obtenir la relation entre les vitesses verticales des cylindres intérieur et extérieur (Équation 4-2) :

$$w_e = -w \left(\frac{r_1^2}{r_2^2 - r_1^2} \right) \quad \text{Équation 4-2}$$

- La deuxième loi de Newton appliquée à la vitesse verticale (Équation 4-3) :

$$\frac{\partial(\rho w)}{\partial t} = \underbrace{-\frac{\partial(w\rho w)}{\partial z}}_{\textcircled{1}} - \underbrace{\frac{2}{r_1} \rho \tilde{w} \tilde{u}}_{\textcircled{2}} + \underbrace{\frac{2}{r_1} \alpha^2 \rho |w_e - w| (w_e - w)}_{\textcircled{3}} + \underbrace{\rho g \left[\left(\frac{\theta_v - \theta_{v,e}}{\theta_{v,e}} \right) - (q_c + q_i) \right]}_{\textcircled{4}} \quad \text{Équation 4-3}$$

- Le premier principe de la thermodynamique pour la conservation d'énergie (Équation 4-4) :

$$\frac{\partial(\rho \theta)}{\partial t} = \underbrace{-\frac{\partial(w\rho \theta)}{\partial z}}_{\textcircled{1}} - \underbrace{\frac{2}{r_1} \rho \tilde{\theta} \tilde{u}}_{\textcircled{2}} + \underbrace{\frac{2}{r_1} \alpha^2 \rho |w_e - w| (\theta_e - \theta)}_{\textcircled{3}} + \underbrace{\frac{L}{c_{p,air}} \frac{\partial(\rho q_v)}{\partial t}}_{\textcircled{5}} \Big|_{micro} + \underbrace{Q_{diab}}_{\textcircled{6}} \quad \text{Équation 4-4}$$

- L'équation de conservation pour la vapeur d'eau (Équation 4-5) :

$$\frac{\partial(\rho q_v)}{\partial t} = \underbrace{-\frac{\partial(w\rho q_v)}{\partial z}}_{\textcircled{1}} - \underbrace{\frac{2}{r_1} \rho \tilde{q}_v \tilde{u}}_{\textcircled{2}} + \underbrace{\frac{2}{r_1} \alpha^2 \rho |w_e - w| (q_{v,e} - q_v)}_{\textcircled{3}} + \underbrace{\frac{\partial(\rho q_v)}{\partial t}}_{\textcircled{7}} \Big|_{micro} \quad \text{Équation 4-5}$$

Où α est un coefficient lié à la turbulence ; \tilde{w} , $\tilde{\theta}$ et \tilde{q}_v les valeurs des paramètres thermodynamiques prises à l'interface des deux cylindres ; θ_v la température potentielle virtuelle. L'indice e fait référence au cylindre extérieur.

Le développement de ces équations est présenté en Annexe A de la thèse de Monier (2003). Dans les équations pronostiques (Équation 4-3 à 4-5), les premiers termes (①) représentent l'évolution de la variable due à la divergence verticale du flux de cette variable ; les deuxièmes termes (②) représentent les échanges latéraux de cette variable entre les deux cylindres ; les troisièmes termes (③) définissent les flux turbulents le long de l'interface. De plus, la vitesse verticale (Équation 4-3)

est aussi influencée par la force de flottabilité (④) ; la température (Équation 4-4) varie aussi suivant le dégagement de chaleur latente dû aux processus microphysiques (⑤) ainsi qu'avec les termes sources de chauffage diabatique (⑥) ; tandis que la vapeur d'eau (Équation 4-5) évolue elle aussi avec les processus microphysiques (⑦).

4.1.1.3 ADVECTION VERTICALE DES QUANTITES NON DIFFUSANTES

À chaque pas de temps, l'advection verticale des quantités non diffusantes se fait suivant le schéma de Smolarkievicz (1983). C'est notamment le cas des spectres des aérosols, des gouttes et des cristaux de glace, mais aussi de la chaleur (produit de la masse volumique, de la capacité thermique massique et de la température potentielle), du contenu en vapeur d'eau et de la quantité de mouvement de la parcelle d'air (le produit de la masse volumique et de la vitesse verticale).

4.1.1.4 LE MODELE A MICROPHYSIQUE DETAILLEE DESCAM

Le modèle à microphysique détaillée DESCAM suit explicitement les populations d'aérosol, au même titre que les populations de gouttes et de cristaux de glace formés par la condensation de vapeur d'eau sur les aérosols. Les granulométries des aérosols, gouttes et cristaux se décomposent en 39 classes de taille réparties sur une échelle logarithmique :

- De 1 nm à 6,3 µm pour les aérosols ;
- De 1 µm à 6,5 mm pour les gouttes ;
- De 1 µm à 6,7 mm pour les cristaux de glace.

À chaque pas de temps et à chaque altitude, plusieurs variables microphysiques sont mises à jour comme notamment :

- Les distributions en nombre des aérosols humides (f_{AP}), des gouttes (f_A) et des cristaux de glace (f_i) - respectivement discrétisées dans DESCAM en $CAP(i)$, $TANP(i)$ et $TNIC(i)$ suivant la classe i ($i \in [1; 39]$) ;
- La masse d'aérosols secs incluse dans ces trois populations suivies - discrétisée par $GCAP(i)$, $TMAP(i)$ et $TMIC(i)$, masse respectivement dans les aérosols humides, dans les gouttes et dans les cristaux de la classe i ;
- Les contenus en eau liquide (qc) et en glace (qi).

Ces variables microphysiques caractérisent la vapeur d'eau, les aérosols humides, les gouttes et les cristaux de glace - étant les quatre phases suivies dans DESCAM, dont leur évolution temporelle à une altitude donnée dépend notamment des mécanismes microphysiques modélisés - représentés sur la Figure 4-2. Dans ce chapitre, on cherche à étudier l'influence des effets électrostatiques sur la phase aérosol. Pour ce faire, le choix s'est porté sur sa distribution en nombre qui va évoluer suivant quatre processus microphysiques (Équation 4-6, a est le rayon de l'aérosol) :

$$\left. \frac{\partial f_{AP}(a)}{\partial t} \right|_{micro} = \left. \frac{\partial f_{AP}(a)}{\partial s_{v,eau}} \frac{\partial s_{v,eau}}{\partial t} \right|_{kappa,theo} + \left. \frac{\partial f_{AP}(a)}{\partial t} \right|_{act/desact} + \left. \frac{\partial f_{AP}(a)}{\partial t} \right|_{nucl,dep} + \left. \frac{\partial f_{AP}(a)}{\partial t} \right|_{col} \quad \text{Équation 4-6}$$

- Le grossissement ou la réduction hygroscopique ($|_{kappa,theo}$) de l'aérosol en équilibre avec le milieu humide suivant la kappa-théorie (Petters et Kreidenweis, 2007). La nouvelle taille des particules est déterminée suivant les variations de $\frac{\partial s_{v,eau}}{\partial t}$ où $s_{v,eau}$ représente la sursaturation de l'air par rapport à l'eau liquide ;
- L'activation des particules en gouttes de nuage ou la désactivation d'une goutte de nuage en aérosol ($|_{act/desact}$). Même si par définition, une goutte de nuage est un aérosol car elle est en suspension dans l'air, dans le modèle, ces deux ensembles (aérosol/goutte) sont disjoints. Un aérosol activé est donc transféré du « réservoir » des aérosols au « réservoir » des gouttes, et réciproquement une goutte désactivée est transférée du « réservoir » des gouttes au « réservoir » des aérosols ;

- La nucléation de glace par dépôt ($I_{nucl,dep}$). De la glace se dépose sur les particules pour former des cristaux à partir de vapeur sursaturée sans la formation préalable de liquide ;
- La collecte des particules par des gouttes (I_{col}). À noter que dans DESCAM, une fraction des aérosols est considérée glaçogène et alimente la phase glace à la suite d'une collecte - ce mécanisme s'appelle la glaciation par contact.

C'est dans ce dernier terme qu'est introduit l'effet des forces électrostatiques sur les collectes des aérosols par les gouttes. En effet, par définition la variation de la concentration en aérosol est corrélée au noyau de collecte (K) (Équation 4-7) :

$$\left. \frac{\partial f_{AP}(a)}{\partial t} \right|_{col} = - \int_0^{\infty} f_{AP}(a) \times f_A(A) \times K(a, A, HR) \times dA \quad \text{Équation 4-7}$$

Où a et A sont respectivement les rayons de l'aérosol et de la goutte. Or, le noyau de collecte défini dans l'Équation 2-17 est directement relié à l'efficacité de collecte (EC). En effet, DESCAM utilise des valeurs d'efficacité de collecte qui sont fonction des tailles de l'aérosol potentiellement collecté et de la goutte collectant, ainsi que de l'humidité relative de l'air ambiant. Cette matrice va être partiellement modifiée pour, dans nos classes de tailles étudiées, y faire intervenir l'effet des charges électriques de la goutte (Q) et de l'aérosol (q) (Équation 4-8) :

$$K(a, A, HR) = EC(a, A, HR) \times \pi(a + A)^2 |U_{\infty,A} - U_{\infty,a}| \Rightarrow$$

$$K(a, A, HR, q, Q) = EC(a, A, HR, q, Q) \times \pi(a + A)^2 |U_{\infty,A} - U_{\infty,a}| \quad \text{Équation 4-8}$$

$U_{\infty,A}$ et $U_{\infty,a}$ étant respectivement la vitesse terminale de la goutte et la vitesse de sédimentation de l'aérosol.

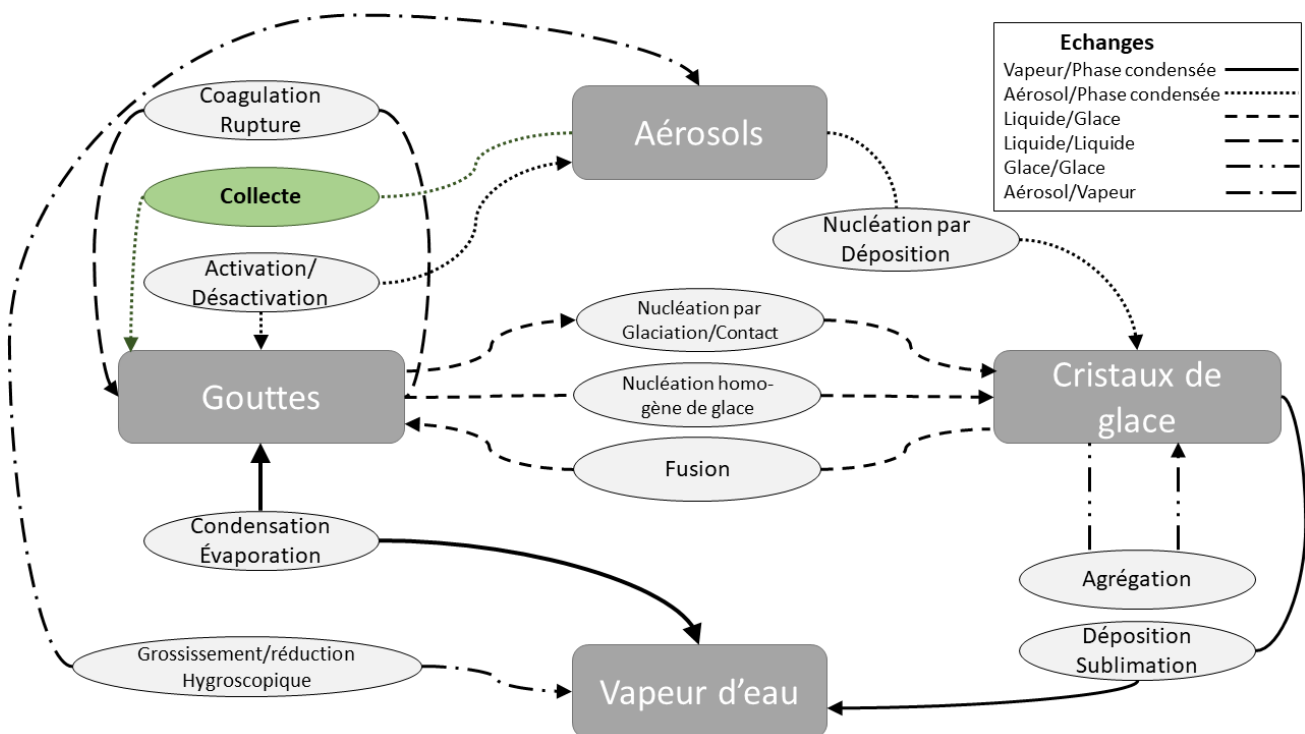


Figure 4-2 Processus microphysiques impliqués dans l'évolution des 4 phases dans DESCAM - aérosols, cristaux de glace, gouttes et vapeur d'eau.

4.1.2 CAS D'ETUDE SELECTIONNES - NUAGE CONVECTIF ET STRATIFORME

Pour étudier la contribution des forces électrostatiques sur la capture des aérosols (radioactifs) par les nuages, DESCAM 1.5-D a premièrement été initialisé afin de modéliser un cumulonimbus observé dans le cadre de la campagne CCOPE (Cooperative CONvective Precipitation Experiment) documentée par Dye et al. (1986). Fréquemment utilisé pour étudier la dynamique et la microphysique d'un nuage convectif (Hiron, 2017 ; Leroy, 2007 ; Monier, 2003), le cas réaliste CCOPE a aussi été préalablement utilisé pour étudier le rabattement des aérosols par la pluie (Quérel, 2012). En effet, avec des intensités pluviométriques de parfois plusieurs dizaines de millimètres par heure, le nuage convectif CCOPE est un cas d'étude de choix dès lors que le rabattement sous le nuage est directement corrélé aux précipitations.

Pour autant, dans le cas convectif CCOPE, la dynamique est très importante avec de forts vents ascendants engendrant de fortes humidités relatives (jusqu'à 102 % au sein de la partie « nuage liquide », Figure 4-8, gauche). Il est à prévoir que l'activation des aérosols sera très importante et toute la matière particulaire devrait passer en phase aqueuse par activation. Aussi, il est intéressant de considérer un nuage stratiforme où les maxima de sursaturation sont généralement de l'ordre de 0,5 % - laissant envisager une augmentation de la contribution du mécanisme de collecte des aérosols par les gouttes de nuage. De plus, bien qu'au niveau des tropiques les précipitations convectives - issues de nuages convectifs - soient majoritaires (Tremblay, 2005), pour nos latitudes (entre 23 et 60°) les précipitations stratiformes - issues de nuages stratiformes - constituent, au fil des saisons, les majeures parties des événements pluvieux (Ruiz-Leo et al., 2013 ; Rulfová et Kyselý, 2013 ; Feidas et Giannakos, 2012 ; Depuydt, 2013).

Le nuage stratiforme implémenté dans DESCAM est un nuage idéalisé, adapté du modèle de Zhang et al. (2004). Comme l'objectif de ce chapitre, les auteurs étudient la variation de la concentration en aérosol dans le nuage du fait des mécanismes microphysiques. Bien que la dynamique d'un nuage stratiforme soit essentiellement horizontale, l'hypothèse selon laquelle la microphysique (notamment le processus de collecte des aérosols par les gouttes de nuage) évolue verticalement demeure. Zhang et al. (2004) couplent donc un modèle de nuage à microphysique détaillée en imposant une dynamique purement verticale. *A fortiori*, l'implémentation de ce nuage stratiforme idéal est possible dans DESCAM 1.5-D mais, nous le verrons en section 4.1.2.2, nécessite quelques adaptations.

4.1.2.1 NUAGE CONVECTIF - CCOPE

4.1.2.1.1 CAMPAGNE CCOPE

La campagne CCOPE a été réalisée au cours de l'été 1981, aux alentours de Miles City dans le Montana (USA). L'épisode retenu durant cette campagne a été l'orage du 19 juillet où l'évolution d'un cumulonimbus a pu être observée depuis sa formation jusqu'aux précipitations. La Figure 4-3 présente le radiosondage de Miles City effectué peu de temps avant le début de l'épisode orageux. Durant la phase faiblement orageuse, trois avions ont traversé le nuage à différentes altitudes tandis qu'un planeur est monté dans l'ascendance principale. Les réflectivités et le déplacement du nuage ont été mesurés par l'intermédiaire de deux radars Doppler venant compléter les observations. De faibles vents ascendants ont permis de développer la structure nuageuse entre 3,9 km et 6,5 km d'altitude. Puis, le nuage s'est développé avec des vents ascendants de plus de 15 m.s⁻¹ entre 6 et 7 km, provoquant la formation d'une cellule convective jusqu'à une altitude de 10,5 km. Pour ces hautes altitudes, la phase liquide s'est solidifiée, accélérant le grossissement des hydrométéores jusqu'aux précipitations.

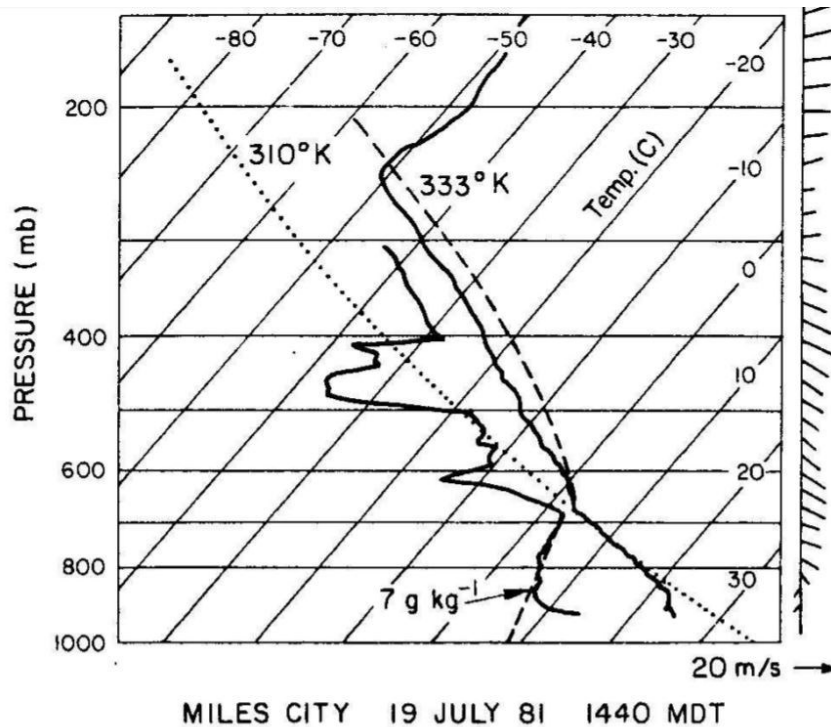


Figure 4-3 Radiosondage de Miles City effectué à 16h05 le 19 Juillet 1981, mesuré peu de temps avant la formation du nuage - tiré de Dye et al. (1986).

4.1.2.1.2 HYPOTHESES POUR LE CAS D'ETUDE CCOPE DANS DESCAM 1.5-D

Plusieurs hypothèses de modélisation sont formulées pour simuler le nuage convectif (CCOPE) dans DESCAM 1.5-D :

- Les paramètres thermodynamiques nécessaires pour initialiser la dynamique du modèle - la température, la pression et l'humidité - sont pris suivant le radiosondage effectué peu de temps avant la formation du nuage CCOPE présenté sur la Figure 4-3 ;
- La convection est déclenchée par l'intermédiaire d'un chauffage de $+2,3^{\circ}\text{C}$ au sol pendant les 10 premières minutes de la simulation ;
- La simulation dure 1 h sur une colonne de 10 km d'altitude, pour des résolutions temporelle et verticale fixées à 3 s et 100 m respectivement ;
- Lors de la campagne CCOPE, aucune mesure physico-chimique n'a été effectuée sur l'aérosol atmosphérique. Dès lors, le spectre granulométrique de l'aérosol atmosphérique est supposé être celui d'un aérosol continental de Jaenicke (1993) qui est un cas réaliste. Par la suite du manuscrit, l'aérosol atmosphérique est défini comme l'« aérosol de type 1 » dont sa distribution granulométrique est visible sur la Figure 4-15 ;
- La concentration initiale en aérosol est constante sur les 1000 premiers mètres d'altitude, puis décroît exponentiellement avec une hauteur d'échelle de 3000 m ;
- Durant toute la simulation, le sol est considéré comme une source constante d'humidité, de particules et de chaleur ;
- L'aérosol atmosphérique est constitué de sulfate d'ammonium. Dans DESCAM, le grossissement des aérosols est modélisé par la kappa-théorie (Petters et Kreidenweis, 2007). Le paramètre d'hygroscopicité de l'aérosol atmosphérique (type 1) est pris à 0,61 (similaire à du sulfate d'ammonium). La masse volumique est fixée à $1500 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ étant celle des nouvelles valeurs d'efficacité considérées (voir section 4.1.3) ;
- Dans DESCAM, la matrice d'efficacité de collecte affectée à l'aérosol atmosphérique (type 1) ne tient pas compte des effets électrostatiques (matrice référée « *Cas_Ref* » sur la Figure 4-14).

4.1.2.1.3 MODELISATION DE L'EPISODE DU 19 JUILLET DE CCOPE DANS DESCAM 1.5-D

Cette partie présente les principaux résultats de simulation de l'épisode du 19 juillet 1981 de CCOPE pour un aérosol atmosphérique - notamment les distributions spatio-temporelles des vents verticaux (Figure 4-4), du contenu en eau liquide et en glace (Figure 4-5), de la concentration en nombre de l'aérosol atmosphérique (Figure 4-6), ainsi que l'évolution temporelle de l'intensité pluviométrique au niveau du sol (Figure 4-7, droite).

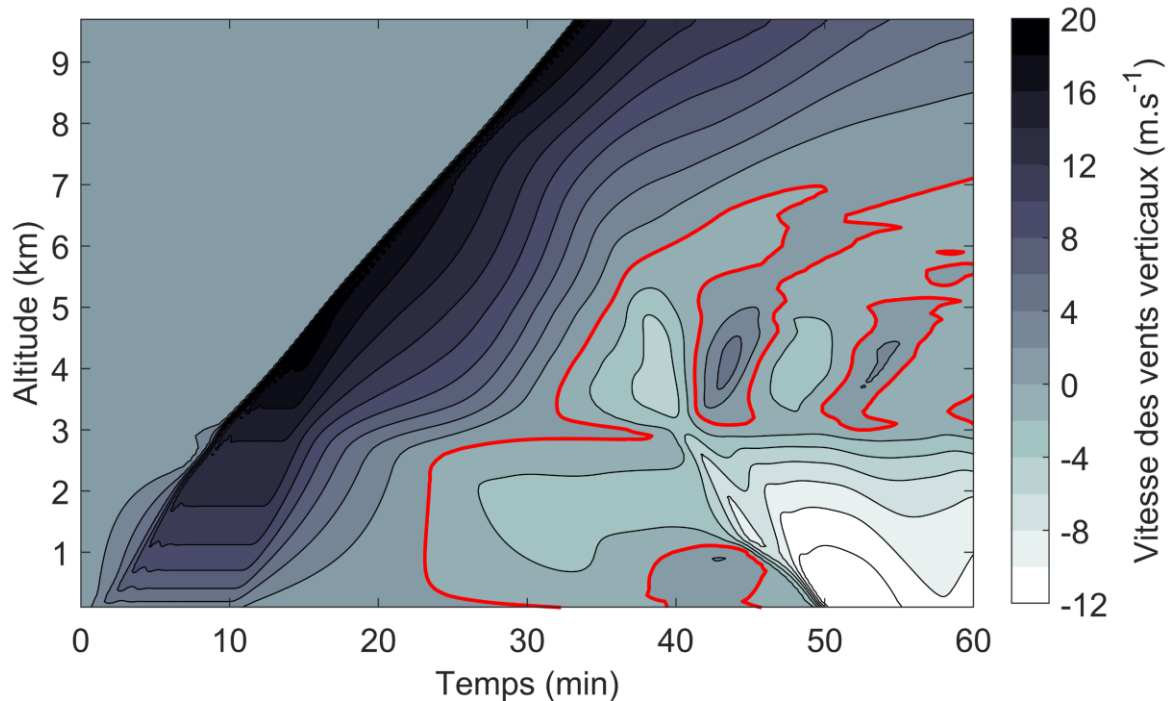


Figure 4-4 Distribution spatio-temporelle des vents verticaux - isocontour 0 m.s⁻¹ en rouge.

Lors des 10 premières minutes de simulation, la parcelle d'air chauffée au niveau du sol s'élève du fait de la force de flottabilité. La vitesse des vents ascendants augmente avec l'altitude (Figure 4-4) dès lors que la différence de température avec l'atmosphère au repos croît. Avec ces vents, la vapeur d'eau et les aérosols sont transportés, advectés, vers les altitudes supérieures. L'ascendance des aérosols est observable sur la Figure 4-6 où la concentration en aérosol augmente pour des altitudes inférieures à 3000 m. Lorsque la parcelle d'air atteint cette altitude (après 10 min de simulation), l'air devient saturé. Le nuage commence alors à se former par activation des aérosols en gouttes de nuage. Cela s'observe par l'apparition d'un contenu en eau liquide (Figure 4-5, gauche) et la diminution de la concentration en aérosol interstitiel dans l'air à partir de 10 min et 3000 m. La condensation de la phase vapeur dans cette région engendre un dégagement de chaleur latente qui devient la nouvelle source de convection et constitue la base du nuage. Ainsi, à 10 min après le début de la simulation, le chauffage au sol est stoppé.

La cellule nuageuse continue alors de se développer verticalement, gardant une base aux alentours de 3000 m. Après 15 min de simulation, les vents ascendants atteignent plus de 15 m.s⁻¹ vers 4000 m d'altitude (Figure 4-4) et, 40 min après l'initialisation, le nuage CCOPE modélisé atteint les 10 km d'altitude (Figure 4-5, droite).

Ce profil vertical est en accord avec les observations effectuées lors de la campagne CCOPE. D'ailleurs, l'analyse des mesures aéroportées de Dye et al. (1986) a montré que les précipitations se sont formées principalement via la phase glace, ce qui est observé dans la modélisation. A partir de 30 min de simulation, le nuage est suffisamment développé verticalement pour passer l'isotherme -37°C. Des cristaux de glace se forment alors (Figure 4-5, droite) par nucléation homogène des gouttes surfondues. Une fois les cristaux formés, ces derniers vont alors faire rapidement décroître le contenu en eau liquide par effet Bergeron (Figure 4-5, gauche) - d'abord en haute altitude puis, devenus rapidement massifs, vont précipiter et collecter l'eau liquide par givrage sur toute la hauteur du nuage. C'est pourquoi, l'apparition de la phase glace implique la disparition du contenu en eau liquide, visible sur la Figure 4-5. À noter que lorsque les grêlons passent l'isotherme 0°C située à la

base du nuage, la fonte commence et est considérée comme immédiate dans cette version du modèle. Les précipitations en dessous de 3 km d'altitude sont donc entièrement liquides (Figure 4-5), touchant le sol après 45 min (Figure 4-7, droite).

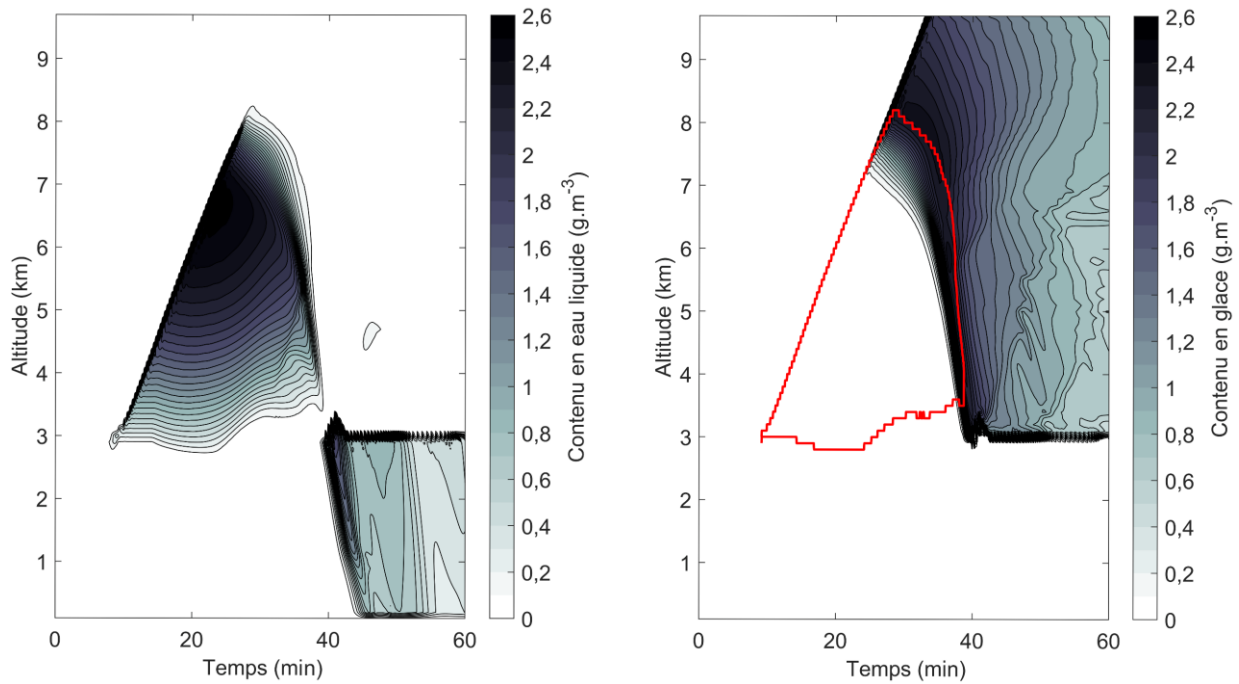


Figure 4-5 Distribution spatio-temporelle du contenu (**Gauche**) en eau liquide (q_c) et (**Droite**) en glace (q_i) de CCOPE. Les délimitations rouges représentent la partie « nuage liquide » du cas CCOPE où le contenu en eau liquide dépasse les $0,1 \text{ g.m}^{-3}$.

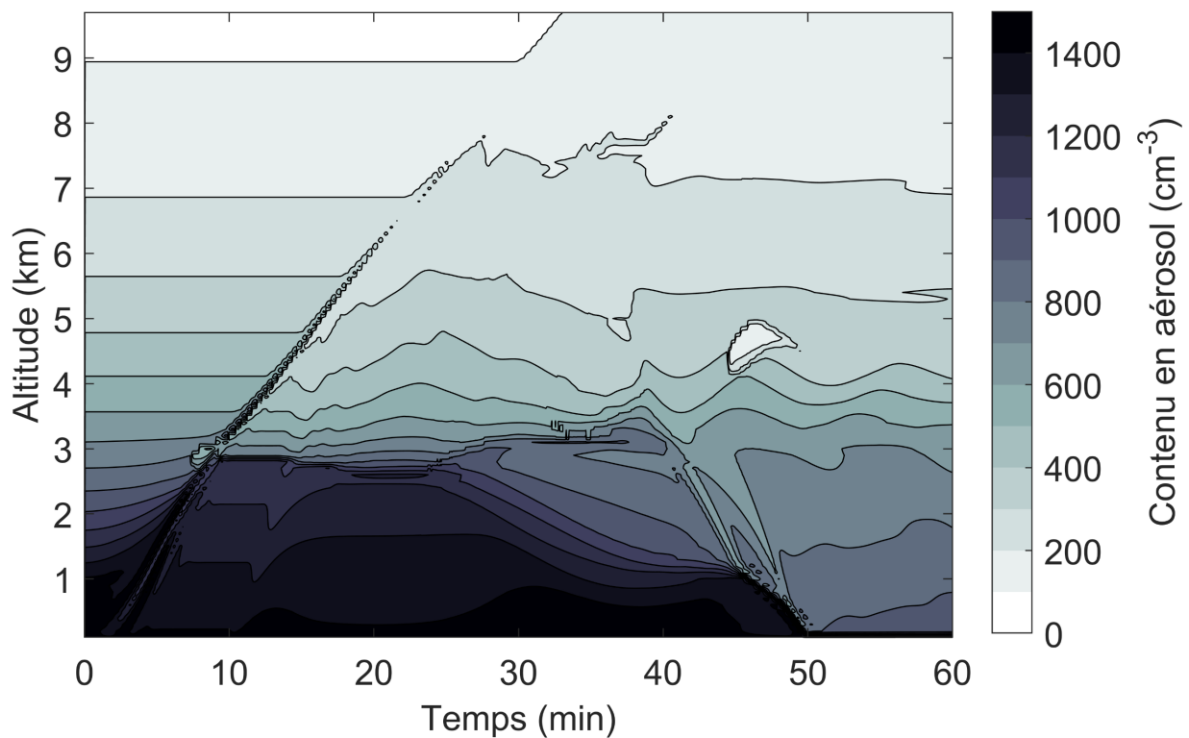


Figure 4-6 Distribution spatio-temporelle de la concentration totale en nombre de l'aérosol atmosphérique (type 1).

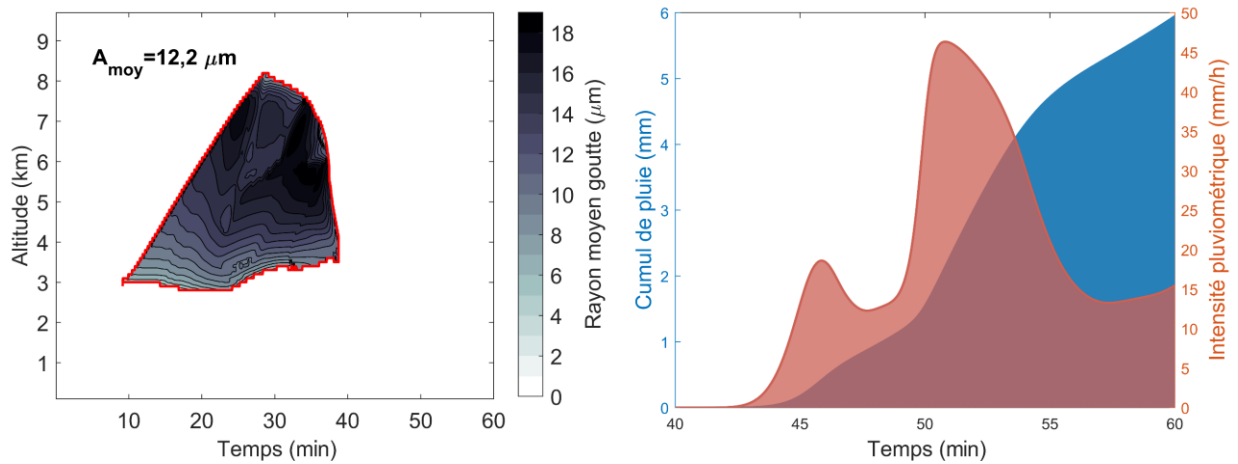


Figure 4-7 Distribution spatio-temporelle du rayon moyen de goutte de nuage dans la partie « nuage liquide » du cas CCOPE (Gauche) Intensité et cumul des précipitations au sol (Droite).

Pour étudier la capture des aérosols dans le nuage CCOPE, on considère la partie « nuage liquide » où le contenu en eau liquide dépasse les $0,1 \text{ g.m}^{-3}$. Comme visible sur la Figure 4-7 (gauche) dans cette zone, le rayon de goutte moyen ne dépasse pas $18 \text{ }\mu\text{m}$ (pour un rayon global moyen de $12,2 \text{ }\mu\text{m}$) soit la gamme de tailles où les effets électrostatiques sont introduits (voir section 4.1.3).

La Figure 4-8 montre le niveau de sursaturation (gauche) et le rayon d’activation de l’aérosol (droite) dans le nuage. Dans la partie liquide du nuage (zone rouge), la sursaturation moyenne est de 1 %. Avec une telle sursaturation, le rayon d’activation est de l’ordre de 80 nm (et un minimum inférieur à 20 nm). Ainsi, la plupart des aérosols interstitiels est activée en gouttes et le mécanisme de collecte sera de second ordre. D’où l’intérêt de disposer d’un modèle de nuage stratiforme avec des niveaux de sursaturation plus faibles.

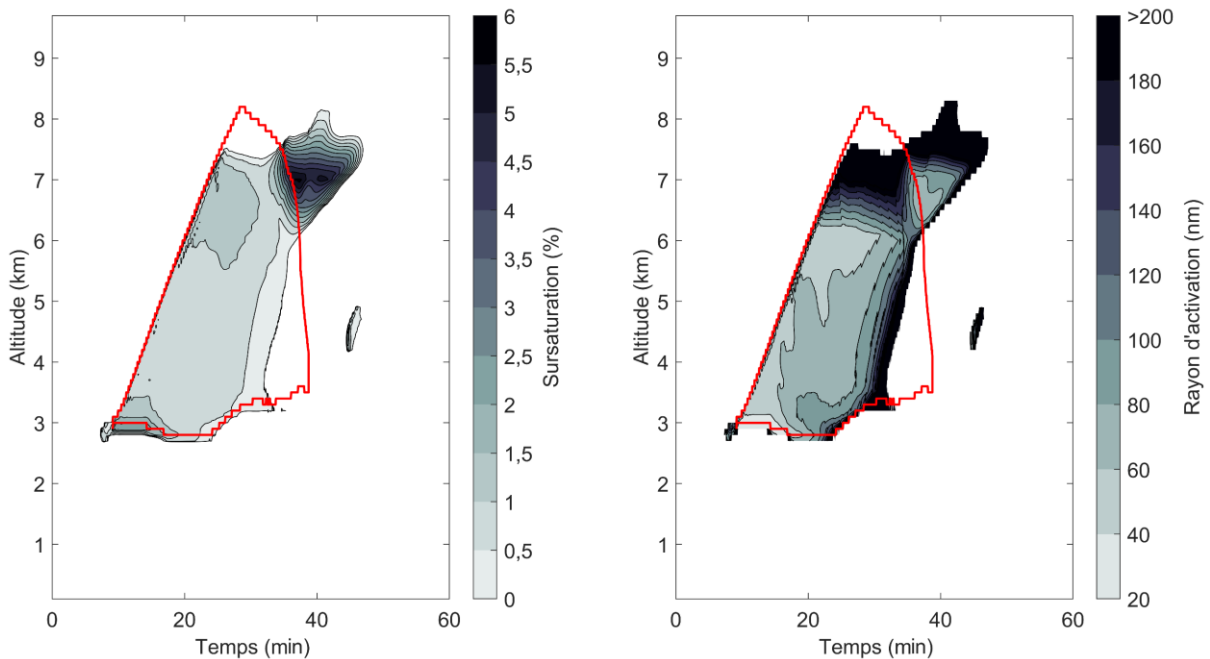


Figure 4-8 Sursaturation spatio-temporelle (Gauche) et rayon d’activation (Droite) du cas CCOPE. Les délimitations rouges représentent la partie « nuage liquide » du cas CCOPE où le contenu en eau liquide dépasse les $0,1 \text{ g.m}^{-3}$.

4.1.2.2 MODELE DE NUAGE STRATIFORME IDEAL - ADAPTE DE ZHANG ET AL. (2004)

La dynamique du nuage stratiforme implémentée dans DESCAM a été établie pour que les précipitations simulées soient de l'ordre de grandeur des pluies stratiformes en France allant de 0,1 jusqu'à 1 mm.h⁻¹ au maximum (Depuydt, 2013).

4.1.2.2.1 MODIFICATIONS APPORTEES A DESCAM 1.5-D

Dans la modélisation du nuage stratiforme, le spectre de l'aérosol atmosphérique est toujours celui d'un aérosol continental de Jaenicke (1993). Le paramètre d'hygroscopicité, la densité et la matrice d'efficacité considérés pour l'aérosol atmosphérique sont les mêmes que pour le cas convectif CCOPE. Pour autant, plusieurs modifications sont apportées.

Pour simplifier l'étude, on impose au nuage stratiforme une microphysique « chaude », c'est-à-dire, sans phase glace. Pour ce faire, la colonne verticale du modèle dynamique 1.5-D va de 0 m à 1800 m, pour une résolution de 30 m. On initialise les profils de pression, température et humidité relative de la même façon que Zhang et al. (2004) - présentés sur la Figure 4-9.

- La température suit une adiabatique sèche avec une température au sol de 15°C. Le sommet du nuage est fixé à 1290 m d'altitude. Après 1290 m, le profil de température est inversé. Ces considérations permettent de ne pas passer sous l'isotherme 0°C, justifiant l'hypothèse d'un nuage dépourvu de phase glace ;
- La pression est déduite de la relation fondamentale de la statique des fluides et des lois de Laplace ;
- Le nuage est fixé entre 690 m et 1290 m. L'humidité relative est initialisée à 95 %, 98,5 % et 95 %, respectivement sous, dans et au-dessus du nuage.

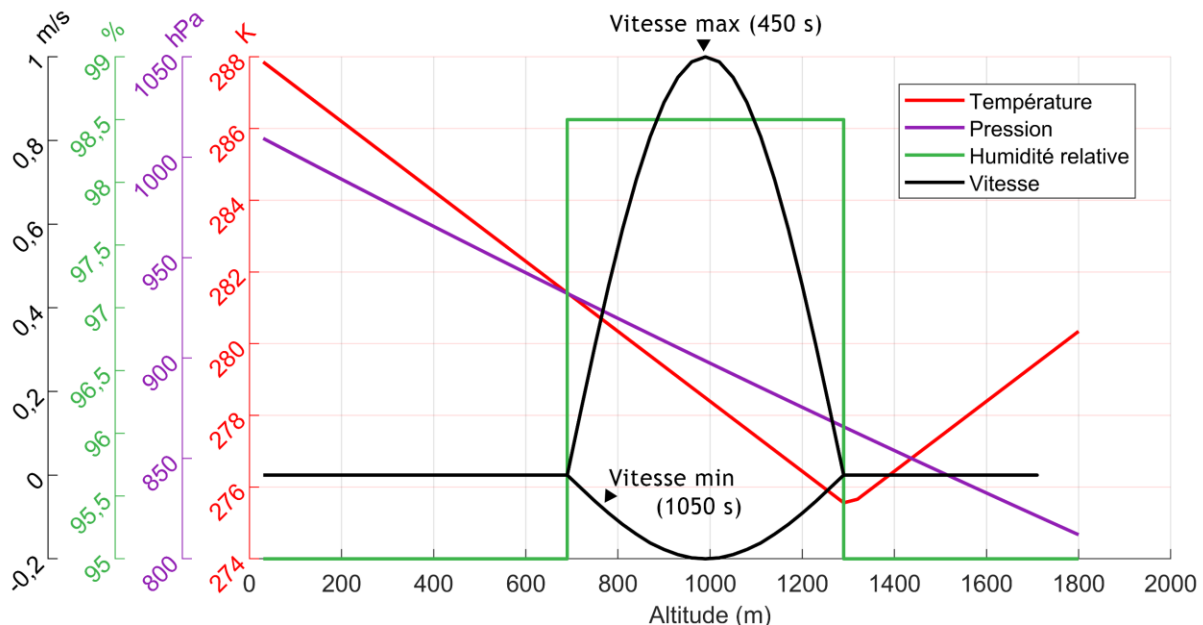


Figure 4-9 Profils initiaux de pression, température, humidité relative et vitesse (maximale à 450 s et minimale à 1050 s) pour le nuage stratiforme - tirés des travaux de Zhang et al. (2004).

Contrairement au nuage convectif CCOPE, la dynamique du nuage stratiforme idéal est complètement imposée, sans rétroaction de la microphysique sur la dynamique. Les vents ascendants étant si faibles dans un nuage stratiforme ($\leq 1 \text{ m.s}^{-1}$), les fixer permet de s'assurer d'un maintien du nuage sur plusieurs heures de simulation. Un profil idéal de vents ascendants (w) est alors pronostiqué durant toute la simulation, identique à celui de Zhang et al. (2004). Il est constitué d'une double modulation en altitude et en temps (Équations 4-9).

$$\begin{cases} w(z, t) = \cos\left(\pi \frac{z - z_c}{h_c}\right) \left[w_0 + w_1 \sin\left(\frac{2\pi t}{t_c}\right) \right] & \text{si } |z - z_c| \leq \frac{h_c}{2} \\ w(z, t) = 0 & \text{si } |z - z_c| > \frac{h_c}{2} \end{cases} \quad \text{Équations 4-9}$$

Où z_c , h_c et t_c sont respectivement l'altitude caractéristique du centre du nuage (=990 m), l'épaisseur du nuage (=600 m) et la période des oscillations (=1800 s). w_0 et w_1 sont les paramètres pilotant l'amplitude des vents ascendants, fixés à 0,2 et 0,8 m.s⁻¹ comme Zhang et al. (2004). Notons que w_1 dépend du temps ; que la vitesse maximale est au milieu du nuage et que les vents sont nuls en dehors du nuage.

Avec une dynamique de nuage plus faible que pour le cas convectif CCOPE, la résolution temporelle pour le cas stratiforme est de 5 s, pour des simulations de plusieurs heures. Une dernière modification concerne la concentration de l'aérosol atmosphérique sur la colonne verticale, considérée constante sur toute la hauteur de la colonne d'air (1800 m).

4.1.2.2.2 MODELISATION DU NUAGE STRATIFORME IDEAL DANS DESCAM 1.5-D

Les vents ascendants beaucoup plus faibles dans le nuage stratiforme (Figure 4-10, gauche) engendrent des niveaux de sursaturation entre 0 % et 0,5 % (Figure 4-12, haut), inférieurs à ceux observés dans le nuage liquide de CCOPE qui atteignent plus de 2 % (Figure 4-8, gauche). Ainsi, alors que pour le nuage liquide CCOPE, le rayon d'activation minimum est inférieur à 20 nm (Figure 4-8, droite), dans le nuage stratiforme idéalisé les aérosols de rayon supérieur à 90 nm sont susceptibles d'être activés (Figure 4-12, bas). Dans le nuage stratiforme, le contenu en eau liquide est au maximum de 1,55 g.m⁻³ (Figure 4-11, gauche), en-deçà de l'eau liquide présente dans le cas CCOPE - avec des contenus maxima de 2,6 g.m⁻³ (Figure 4-5, gauche). On constate une périodicité de la présence en eau liquide au sein du nuage, très marquée pour les altitudes supérieures, qui est corrélée au sens des vents verticaux. Quand ces derniers sont ascendants, la vapeur se condense sur les aérosols qui s'activent en gouttes. Ainsi, le contenu en eau liquide augmente (Figure 4-11, gauche) et la concentration en aérosol baisse (Figure 4-13). Au contraire, en phase de subsidence, l'air descendant s'assèche et le nuage se dissipe - le contenu en eau liquide diminue fortement (Figure 4-11, gauche). À noter que dans ces phases de vents descendants, la concentration en aérosol interstitiel augmente dès lors que des aérosols sont advectés depuis le sommet du nuage (Figure 4-13).

A la fin de la première période (vers 500 s), les premières précipitations atteignent le sol. Pour ce nuage stratiforme idéalisé, l'intensité pluviométrique maximale est de l'ordre de 1 mm.h⁻¹ (Figure 4-10, droite) en accord avec les observations réelles des pluies stratiformes (Depuydt, 2013). En dessous du nuage, une partie des gouttes précipitantes s'évaporent, ce qui explique l'augmentation de l'humidité sous le nuage au cours de la simulation. En ce qui concerne ce nuage modélisé, les gouttes de nuage sont plus petites que dans le nuage liquide de CCOPE, de rayon moyen 7,9 μm (Figure 4-11, droite).

Notons que le nuage stratiforme de Zhang et al. (2004) possède des niveaux inférieurs de sursaturation avec des maxima entre 0,1 et 0,2 %. L'intensité pluviométrique est, elle-aussi, inférieure pour les auteurs - de l'ordre de 0,1 mm.h⁻¹. Une explication possible de ces différences viendrait du schéma d'advection utilisé.

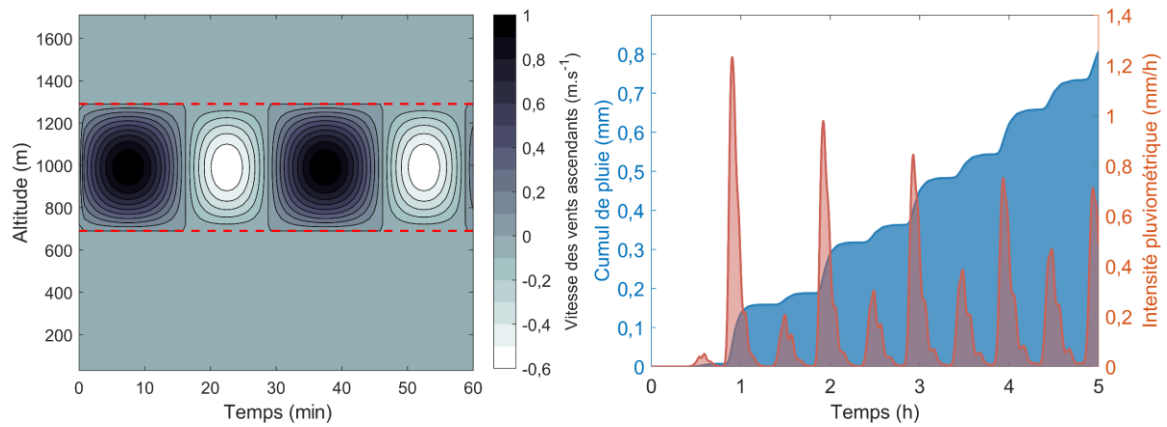


Figure 4-10 Distribution spatio-temporelle des vents verticaux (**Gauche**). Intensité pluviométrique et cumul des pluies au sol pour le nuage stratiforme (**Droite**).

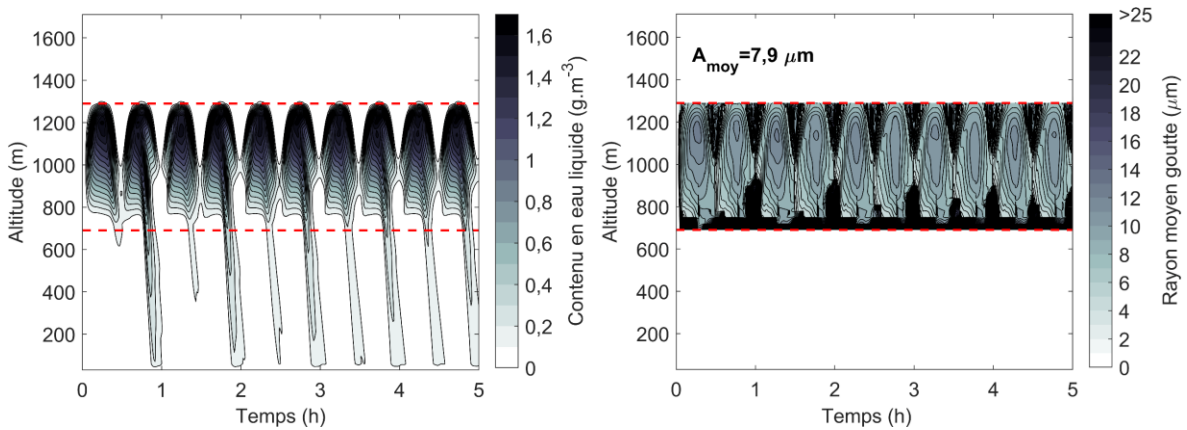


Figure 4-11 (**Gauche**) Distribution spatio-temporelle du contenu en eau liquide (q_c) et distribution spatio-temporelle du rayon moyen de goutte (**Droite**) dans le nuage stratiforme.

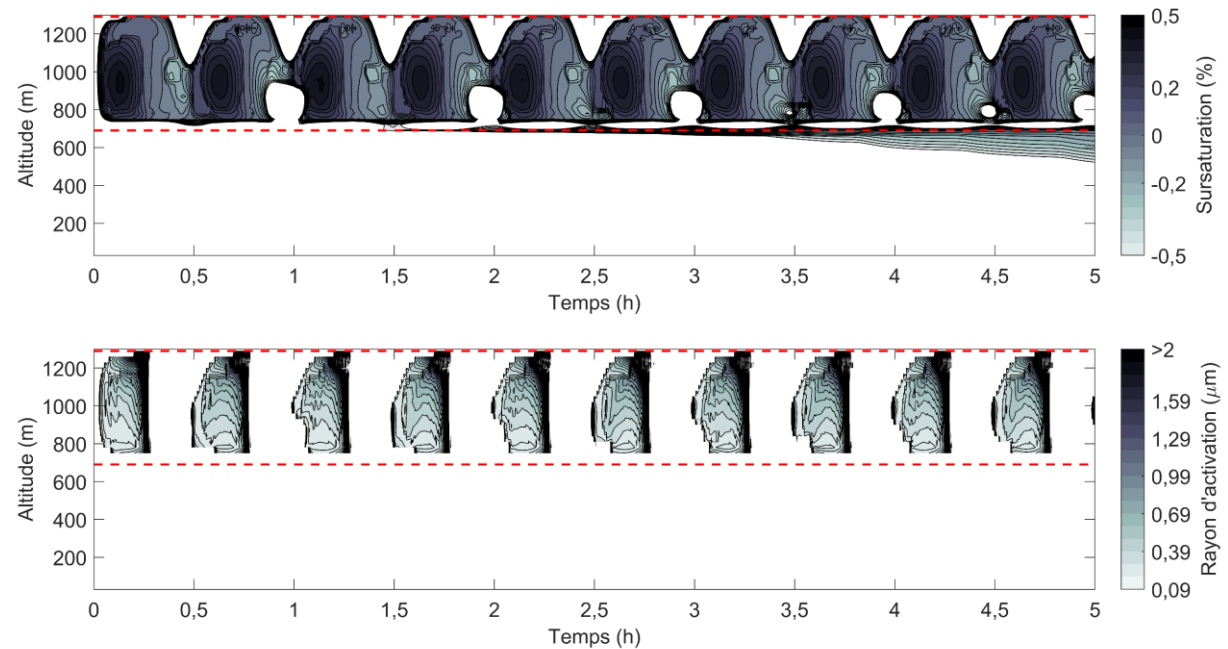


Figure 4-12 Distribution spatio-temporelle de la sursaturation (**Haut**) et du rayon d'activation de l'aérosol (**Bas**) pour le nuage stratiforme. Les traits tiretés délimitent le nuage.

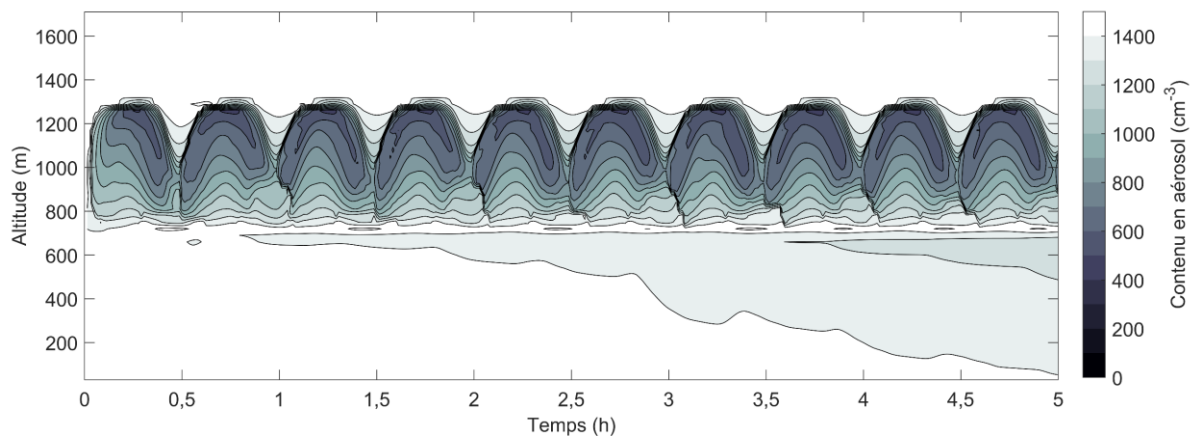


Figure 4-13 Distribution spatio-temporelle de la concentration totale en nombre (CAP) de l'aérosol atmosphérique (type 1).

4.1.3 MATRICE D'EFFICACITE DE COLLECTE DANS DESCAM

La matrice d'efficacités de collecte implémentée dans DESCAM (Flossmann et al., 1985) a été établie grâce à des mesures en laboratoire pour des rayons de goutte supérieurs à $300 \mu\text{m}$. C'est notamment le cas des travaux de Wang et Pruppacher (1977), de Lai et al. (1978), de Kerker et Hampl (1974) ou des mesures récemment ajoutées de Quérel et al. (2014). Pour des gouttes de rayon inférieur à $300 \mu\text{m}$ environ, la goutte ne subit aucune déformation et l'écoulement est purement laminaire. Dès lors, la modélisation est possible et les valeurs d'efficacité de collecte pour ces gammes de tailles de goutte sont issues des modèles de Wang et al. (1978) et Grover et al. (1977).

Ces données sont interpolées dans une matrice de 6084 efficacités de collecte pour 39 classes de taille de goutte, 39 classes de taille d'aérosol et 4 classes d'humidité relative (50, 75, 95 et 100 %). Pour des humidités relatives différentes, l'efficacité de collecte est déduite en interpolant les efficacités à 50, 75, 95 et 100 %.

Afin d'étudier les effets électrostatiques, une partie de la matrice est modifiée pour des rayons d'aérosols et de gouttes inférieurs à $1,3 \mu\text{m}$ et $100 \mu\text{m}$, respectivement, en interpolant les résultats numériques :

- Du CHAPITRE 2, présentés en Annexe F, pour des tailles de goutte entre 15 et $100 \mu\text{m}$;
- Pour des gouttes inférieures à $15 \mu\text{m}$, les résultats numériques présentés en documents complémentaires de Zhang et Tinsley (2018) sont considérés car les hypothèses de simulation du modèle développé (Dépée et al., 2019) ne sont valables que pour des gouttes mille fois plus massives que l'aérosol (voir section 2.1.1).

Pour ces efficacités de collecte modifiées, la masse volumique de l'aérosol est de $1500 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$, les conditions thermodynamiques sont celles de la troposphère moyenne (-17°C et 540 hPa). Ces conditions de pression et de température sont acceptables dans toutes les simulations présentées dans ce chapitre. En effet, Tinsley et Leddon (2013) estiment que l'efficacité de collecte varie de moins de 20 % si on passe des conditions thermodynamiques de la troposphère moyenne à celles du sol ($+15^\circ\text{C}$ et 1013 hPa) et de 40 % si on passe des conditions thermodynamiques de la troposphère moyenne à celles de la haute troposphère (-56°C et 180 hPa).

4.1.3.1 EFFICACITE DE COLLECTE SANS LES EFFETS ELECTROSTATIQUES

Pour étudier les effets électrostatiques avec DESCAM, il est nécessaire de pouvoir se comparer à un cas de référence sans les forces électrostatiques. Ainsi, comme énoncé précédemment, les résultats de notre modèle et de ceux de Zhang et Tinsley (2018) ont été utilisés, ici sans charge électrique sur la goutte et les aérosols. Lorsque l'humidité relative n'est pas à la saturation - pour 50, 75, et 95 % - les contributions de la thermophorèse et de la diffusiophorèse sont évaluées par le modèle de Wang et al. (1978) puis ajoutées aux efficacités de collecte déterminées pour une humidité relative de 100 %. Cette hypothèse permet de ne pas recalculer les efficacités pour ces 3 humidités relatives avec

notre modèle, ce qui aurait nécessité beaucoup de temps de calculs. Cette approche est justifiée dès lors que le modèle de Wang et al. (1978) a été comparé à notre modèle en section 2.4 - donnant des résultats très similaires - et validé par l'expérience In-CASE (voir section 3.3.4).

La nouvelle matrice d'efficacité de collecte ainsi établie est présentée sur la Figure 4-14 (gauche) et comparée à la matrice d'origine (droite) pour une humidité relative de 100 % (haut) et 50 % (bas). L'encadré rouge correspond à la partie de la matrice changée. On nommera la matrice modifiée « *Cas_Ref* ». On remarque des différences notables entre la matrice originale et la nouvelle (*Cas_Ref*). Ces différences peuvent être notamment attribuées à la masse volumique de l'aérosol et aux conditions thermodynamiques utilisées entre les deux matrices (et au type d'interpolation). En effet, Flossmann et al. (1985) n'énoncent pas la valeur de ces paramètres, utilisés lors de la création de l'ancienne matrice avec les modèles de Wang et al. (1978) et Grover et al. (1977).

Dans les simulations de ce chapitre, la matrice d'efficacité de collecte affectée à l'aérosol atmosphérique (type 1) est la nouvelle matrice dépourvue des effets électrostatiques (*Cas_Ref*).

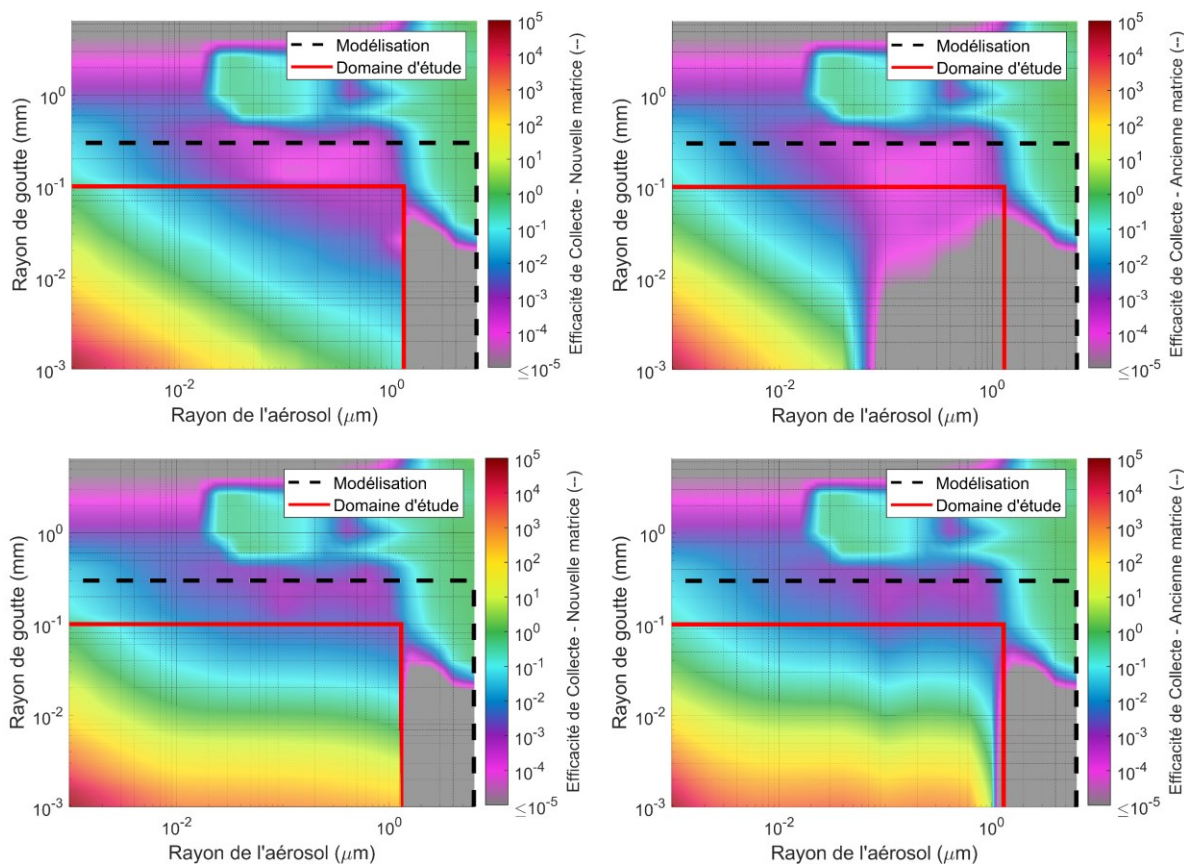


Figure 4-14 (Droite) Matrice originale et (Gauche) modifiée (« *Cas_Ref* ») d'efficacité de collecte sans les forces électrostatiques pour une humidité relative de (Haut) 100 % et (Bas) 50 %. L'encadré rouge est la partie modifiée de la matrice DESCAM d'origine. L'encadré noir représente les efficacités de collecte issues de la modélisation.

4.1.3.2 HYPOTHESES DE MODÉLISATION

L'ensemble des simulations présentées dans les sections suivantes repose sur plusieurs hypothèses :

- Pour étudier la variation de la contribution de la collecte dans la microphysique avec et sans les forces électrostatiques, un second type d'aérosol (nommé type 2) a été défini dans DESCAM. Afin que cet aérosol ne modifie pas la dynamique du nuage, son spectre granulométrique est le même que l'aérosol atmosphérique (type 1), mais sa concentration est diminuée d'un facteur 100. Le spectre des deux types est présenté sur la Figure 4-15 ;
- Dans le cas de référence sans les forces électrostatiques, la matrice d'efficacité de collecte affectée à l'aérosol de type 2 est la matrice de référence (*Cas_Ref*, Figure 4-14 à gauche) ;

- Lorsque l'étude porte sur les forces électrostatiques, on suppose que l'aérosol de type 2 est radioactif possédant les mêmes caractéristiques que les radionucléides mesurés par Adachi et al. (2013) à la suite de l'accident CNPE-FD de 2011. Comme vu en section 1.1.1, ces radionucléides ont un rayon moyen 1,3 μm pour une activité par particule de 1,4 Bq. Faisant l'hypothèse que l'activité des aérosols radioactifs est proportionnelle à leur masse, l'activité des aérosols radioactifs sur toute la grille de tailles d'aérosol dans DESCAM est déduite. Enfin, la charge électrique de ces aérosols est calculée en appliquant le modèle de Clement et Harrison (1992) dans le cas où l'aérosol radioactif est dilué dans l'aérosol atmosphérique (ce qui est le cas de l'aérosol de type 2 par rapport à l'aérosol type 1 dans les simulations). La loi de charge de l'aérosol radioactif (type 2) considérée dans les simulations de ce chapitre est présentée sur la Figure 4-16. Seuls les aérosols de rayon compris entre 49,6 nm et 1,26 μm possèdent une charge, les plus gros aérosols (>1,26 μm) sortent du domaine d'étude tandis que la charge électrique des plus petits (<49,6 nm) est calculée comme étant nulle. À noter que la charge est toujours positive (ce qui est caractéristique d'un émetteur Beta comme le Césium 134 et 137) ;

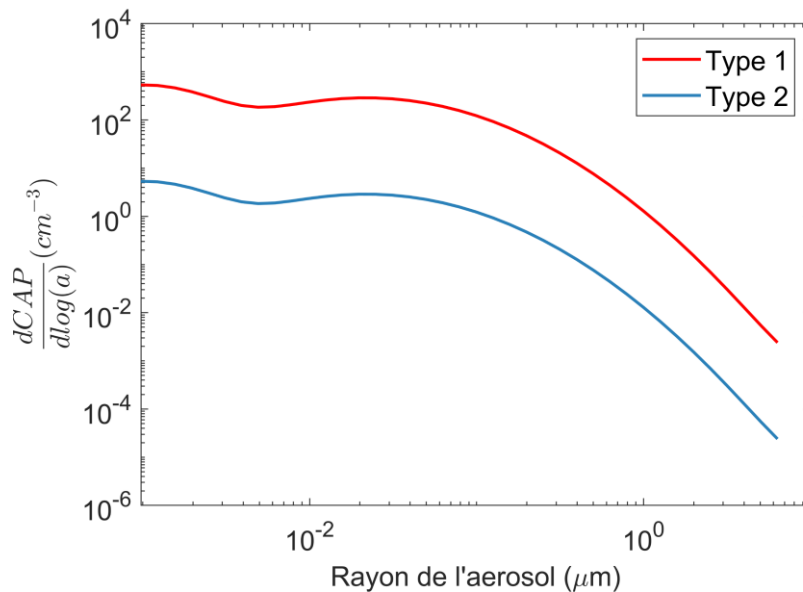


Figure 4-15 Spectre granulométrique de l'aérosol atmosphérique (type 1) dans DESCAM suivant le spectre d'un aérosol continental de Jaenicke (1993).

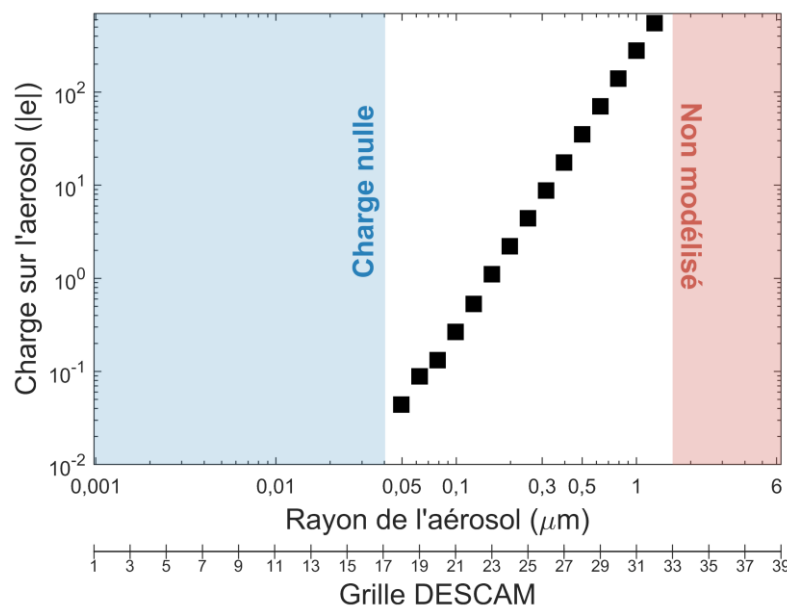


Figure 4-16 Charges considérées sur la grille aérosol des DESCAM.

- Les matrices d'efficacités de collecte avec les effets électrostatiques (présentées dans la section suivante) sont statiques et présupposent un aérosol sec. Pourtant, celui-ci est susceptible de grossir par hygroscopicité. Il change alors de classe de taille et, par conséquent, sa charge électrique est considérée comme plus importante suivant la corrélation de la Figure 4-16. Cette augmentation de la charge est un problème de conservation inhérent aux hypothèses faites dans DESCAM. Pour réduire cet effet, l'aérosol de type 2 possède un facteur d'hygroscopicité κ de 0,001 - soit 600 fois inférieur au κ du sulfate de sodium du type 1. Considérer une telle valeur de κ pour l'aérosol de type 2 possède d'autres avantages :
 - Il est caractéristique d'un aérosol très hydrophobe en accord avec les mesures d'Adachi et al. (2013) qui ont montré que le Césium-134 et 137 s'était attaché à des aérosols sphériques hydrophobes composés de métaux ;
 - Dans DESCAM, l'activation est régie par la théorie de Köhler (1936) où la contribution de Raoult est formulée suivant la κ -théorie (Petters et Kreidenweis, 2007). Sur la Figure 4-17, sont présentées des courbes d'équilibre du rayon humide d'un aérosol avec la sursaturation d'un air humide pour différents rayons d'aérosol sec et pour des valeurs de κ de 0,61 et 0,001, représentatifs de l'aérosol de type 1 et 2 respectivement. Dans DESCAM, un aérosol sec de type 1 avec un rayon de 30 nm sera activé pour une sursaturation d'environ 0,35 % - correspondant au maximum de la courbe. Pour le même rayon sec, l'aérosol de type 2 sera activé pour des sursaturations de plus de 3,11 %. Ainsi, les aérosols de type 2 sont moins sensibles à l'activation. Les aérosols de type 2 étant plus difficiles à activer, ils seront donc plus sensibles à la collecte.

À noter que les masses sont conservées dans DESCAM ; ainsi, une goutte qui se désactive remet en suspension la masse de particules qu'elle a intégrées depuis son activation. Comme les activités sont réparties massivement sur les aérosols, les charges électriques sont donc conservées lors de la désactivation des gouttes.

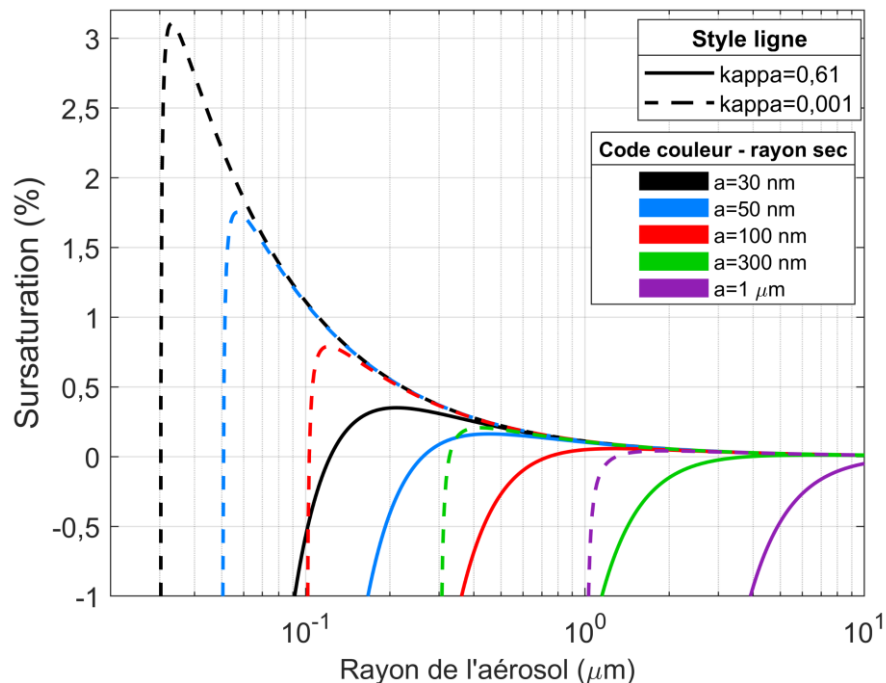


Figure 4-17 Courbes d'équilibre du rayon humide d'un aérosol avec la sursaturation de l'air par rapport à l'eau liquide (température +15 °C et tension de surface $7,38 \times 10^{-2} \text{ N.m}^{-1}$) pour différents rayons secs et des paramètres d'hygroscopicité de l'aérosol de 0,61 (type 1) et 0,001 (type 2). Issues de la théorie de Köhler (1936) où la contribution de la loi de Raoult est formulée suivant la κ -théorie (Petters et Kreidenweis, 2007).

- La charge sur la goutte est fixée suivant les mesures de Takahashi (1973), pour un nuage convectif et stratiforme (voir section 1.2.2) ;
- Lorsqu'une goutte capte un aérosol de type 2, sa charge électrique est supposée constante. L'hypothèse est justifiée lorsqu'une goutte d'un nuage convectif de rayon 100 μm , portant 400 000 charges élémentaires (Takahashi, 1973), capte un aérosol portant au maximum 550 charges élémentaires. Pour autant, l'hypothèse est beaucoup moins vraie pour une goutte d'un nuage stratiforme moins chargée - 200 charges élémentaires sur une goutte de rayon 15 μm (Takahashi, 1973). Néanmoins, la probabilité qu'une goutte capte plusieurs aérosols de type 2 est quasi nulle - dès lors que leur concentration est très faible (1 % de celle de l'aérosol atmosphérique de type 1) ;
- La polarité des gouttes de nuage n'est pas connue. Plusieurs hypothèses divergentes sont présentées dans la littérature. Tandis que certaines études font état d'une prédominance de charges négatives dans les nuages (Colgate et Romero, 1970 ; Magono et Kikuchi, 1961 ; Webb et Gunn, 1955), d'autres travaux trouvent des signes majoritairement positifs (Twomey, 1956 ; Gunn, 1952), alors que certains auteurs suggèrent une fraction égale de charges positives et négatives dans un nuage (Katsyka et al., 1961 ; Phillips et Kinzer, 1958). Une distribution tripolaire de charges dans les nuages avec une importante cellule convective est même proposée par Malan (1964; 1952). Dans le cadre de cette étude théorique, il a été choisi de considérer des charges de même polarité sur toutes les gouttes de nuage.

L'aérosol de type 2 possédant une charge électrique pour des rayons compris entre 49,6 nm et 1,26 μm (Figure 4-16), seules les efficacités comprises dans cet intervalle de taille sont modifiées (pour des tailles de gouttes inférieures à 100 μm). Quatre matrices sont alors calculées suivant les hypothèses précédentes :

- La matrice « *Conv_Attrac* » pour le cas CCOPE où les gouttes possèdent les charges caractéristiques d'un nuage convectif et de polarité opposée à l'aérosol ;
- La matrice « *Conv_Repuls* » pour le cas CCOPE où les gouttes possèdent les charges caractéristiques d'un nuage convectif et de polarité identique à l'aérosol ;
- La matrice « *Strat_Attrac* » pour les cas stratiformes idéaux où les gouttes possèdent les charges caractéristiques d'un nuage stratiforme et de polarité opposée à l'aérosol ;
- La matrice « *Strat_Repuls* » pour les cas stratiformes idéaux où les gouttes possèdent les charges caractéristiques d'un nuage stratiforme et de polarité identique à l'aérosol.

Au total, 3 simulations ont été réalisées pour chaque type de nuage - sans les forces électrostatiques, avec les forces électrostatiques où les deux polarités sur la goutte sont considérées.

4.1.3.3 MATRICES POUR LE NUAGE CONVECTIF CCOPE

Les deux matrices d'efficacités pour le cas CCOPE, *Conv_Attrac* et *Conv_Repuls*, sont respectivement présentées sur les Figures 4-18 et 4-19 pour une humidité relative de 50 % (gauche) et 100 % (droite).

Pour *Conv_Attrac*, la charge sur la goutte et l'aérosol sont de polarité opposée, ce qui induit des forces électrostatiques attractives pour des rayons d'aérosol compris entre 49,6 nm et 1,26 μm , venant combler la région où l'efficacité de collecte est minimale - le « Greenfield gap » (Greenfield, 1957). Pour des humidités relatives s'éloignant de la saturation (et décroissantes), les contributions de la thermophorèse et de la diffusiphorèse tendent à devenir de premier ordre, même si pour un aérosol micronique, les effets électrostatiques dominent toujours.

Pour *Conv_Repuls*, dès qu'une charge est considérée sur l'aérosol, la charge électrique d'une goutte d'un nuage convectif étant si importante, le terme Coulombien-Longue-Distance (CLD, voir section 2.4.4.2) est très répulsif. Pour simplifier, la valeur des efficacités est fixée à 10^{-5} , même si ces dernières sont rigoureusement plus basses.

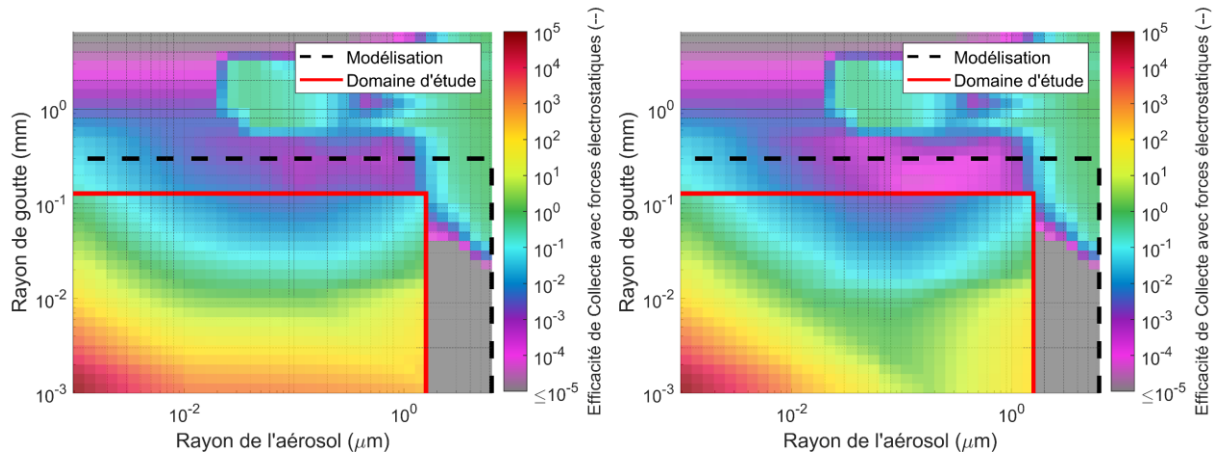


Figure 4-18 Matrice d'efficacité « *Conv_Attrac* » pour une humidité relative de 50 % (Gauche) et 100 % (Droite). L'encadré rouge est la partie modifiée de la matrice d'origine, l'encadré noir correspond aux tailles de goutte où les efficacités sont modélisées.

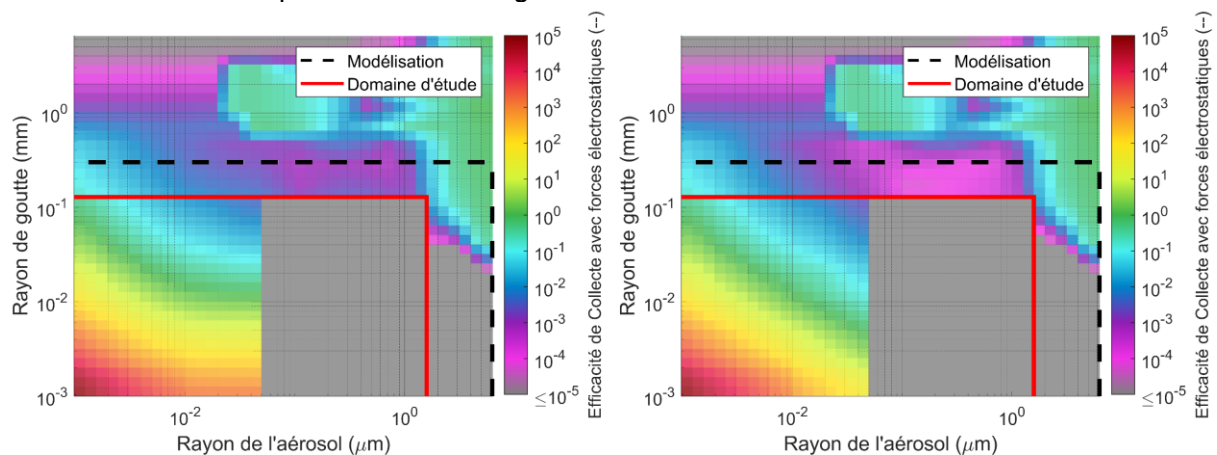


Figure 4-19 Matrice d'efficacité « *Conv_Repuls* » pour une humidité relative de 50 % (Gauche) et 100 % (Droite). L'encadré rouge est la partie modifiée de la matrice d'origine, l'encadré noir correspond aux tailles de goutte où les efficacités sont modélisées.

4.1.3.4 MATRICES POUR LE NUAGE STRATIFORME IDEAL

Les deux matrices d'efficacités pour les cas stratiformes idéaux, *Strat_Attrac* et *Strat_Repuls*, sont respectivement présentées sur les Figures 4-20 et 4-21 pour une humidité relative de 50 % (gauche) et 100 % (droite).

Les mêmes remarques pour les matrices du nuage CCOPE peuvent être formulées, à la différence que :

- Pour *Strat_Attrac*, les effets électrostatiques contribuent toujours à augmenter les efficacités de collecte au niveau du Greenfield gap, mais pour des aérosols plus gros (plus chargés) dès lors que la charge sur les gouttes d'un nuage stratiforme est plus faible ;
- Pour *Strat_Repuls*, les charges sur la goutte ne sont pas assez importantes pour que le terme CLD induise une diminution de l'efficacité de collecte. Au contraire, le terme Image-Attractif-Faible-Distance (IAFD, voir section 2.4.4.1) des forces électrostatiques augmente les efficacités de collecte. Pour ces charges de gouttes, le terme CLD a très peu d'influence, ce qui explique de très fortes similitudes entre les matrices *Strat_Attrac* et *Strat_Repuls*.

Il ressort de ces matrices que l'efficacité de collecte est augmentée par les forces électrostatiques dans un nuage stratiforme - peu importe la polarité des gouttes.

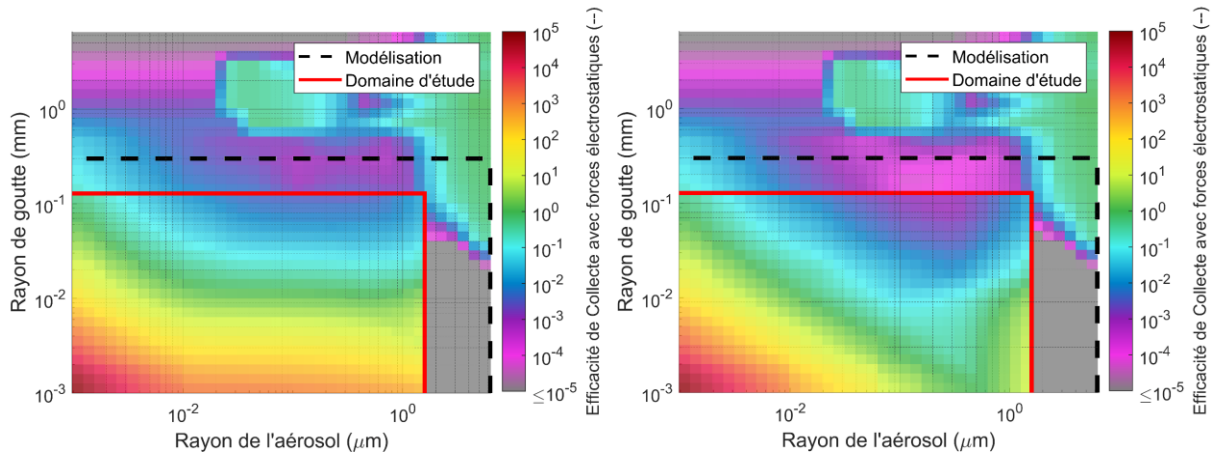


Figure 4-20 Matrice d'efficacité « *Strat_Attrac* » pour une humidité relative de 50 % (Gauche) et 100 % (Droite). L'encadré rouge est la partie modifiée de la matrice d'origine, l'encadré noir correspond aux tailles de goutte où les efficacités sont modélisées.

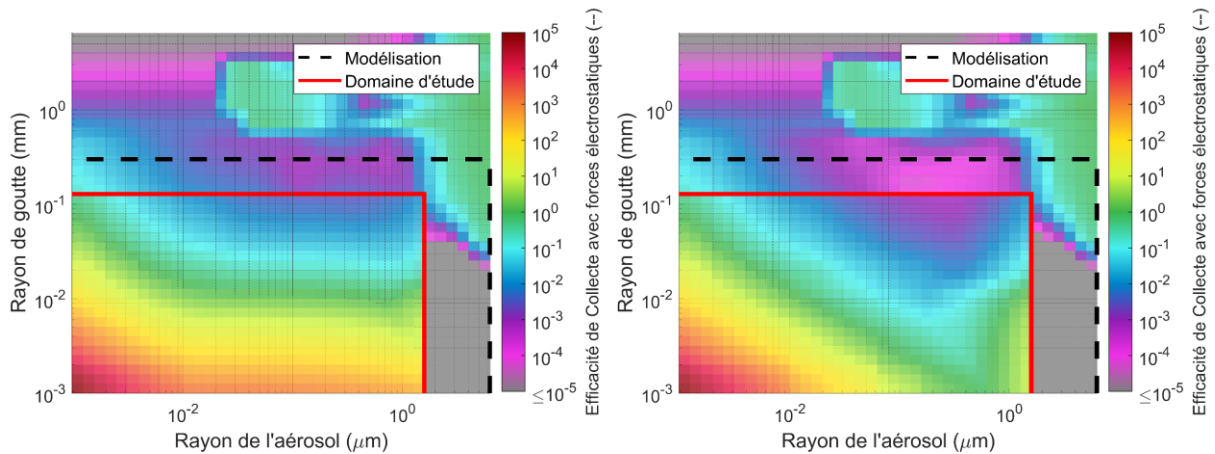


Figure 4-21 Matrice d'efficacité « *Strat_Repuls* » pour une humidité relative de 50 % (Gauche) et 100 % (Droite). L'encadré rouge est la partie modifiée de la matrice d'origine, l'encadré noir correspond aux tailles de goutte où les efficacités sont modélisées.

4.2 CONTRIBUTION DES MECANISMES IMPLIQUES DANS L'EVOLUTION DE LA CONCENTRATION DE L'AEROSOL DE TYPE 2 DANS LE NUAGE

Dans cette partie, on ne s'intéresse qu'à l'aérosol de type 2. À une altitude donnée, la distribution granulométrique (f_{AP}) de l'aérosol dans DESCAM évolue de façon eulérienne (Équation 4-10) :

$$\frac{df_{AP}(a)}{dt} = \left. \frac{\partial f_{AP}(a)}{\partial t} \right|_{advec} + \left. \frac{\partial f_{AP}(a)}{\partial t} \right|_{micro} \quad \text{Équation 4-10}$$

Durant un pas de temps et à une altitude donnée, le spectre granulométrique de l'aérosol est mis à jour suivant le logigramme présenté sur la Figure 4-22. Premièrement, l'advection ($|_{advec}$) modifie la concentration en aérosol (CAP) dans la couche puis, la microphysique ($|_{micro}$) fait évoluer la concentration suivant l'Équation 4-6. Dans cette section, pour étudier les différentes contributions, à chaque pas de temps et à chaque altitude, les variations liées à l'advection ($\Delta CAP|_{advec}$) et la microphysique ($\Delta CAP|_{micro}$) sont déterminées comme schématisé sur la Figure 4-22. Dans la microphysique, la variation liée à la collecte ($\Delta CAP|_{col}$) est considérée, tandis que les autres processus microphysiques sont regroupés ($\Delta CAP|_{aut}$).

Dans ce chapitre, on quantifiera :

- La contribution de la microphysique ($Cont_{micro}$) dans l'évolution totale de la concentration numérique en aérosol interstitiel définie par (Équation 4-11) :

$$Cont_{micro} = \frac{\Delta CAP|_{micro}}{|\Delta CAP|_{micro}| + |\Delta CAP|_{advec}|} \quad \text{Équation 4-11}$$

- La contribution du processus de collecte ($Cont_{col}$) dans la variation de la concentration numérique en aérosol interstitiel liée à la microphysique définie par (Équation 4-12) :

$$Cont_{col} = \frac{\Delta CAP|_{col}}{|\Delta CAP|_{col}| + |\Delta CAP|_{aut}|} \quad \text{Équation 4-12}$$

- L'évolution de la concentration numérique en aérosol interstitiel dans le nuage, liée au mécanisme de collecte. Pour ce faire, on utilisera par la suite un taux de capture de l'aérosol radioactif (χ_{col}), défini par (Équation 4-13) :

$$\chi_{col}(t) = -\frac{1}{CAP(t)} \frac{\Delta CAP(t)|_{col}}{\Delta t} \quad \text{Équation 4-13}$$

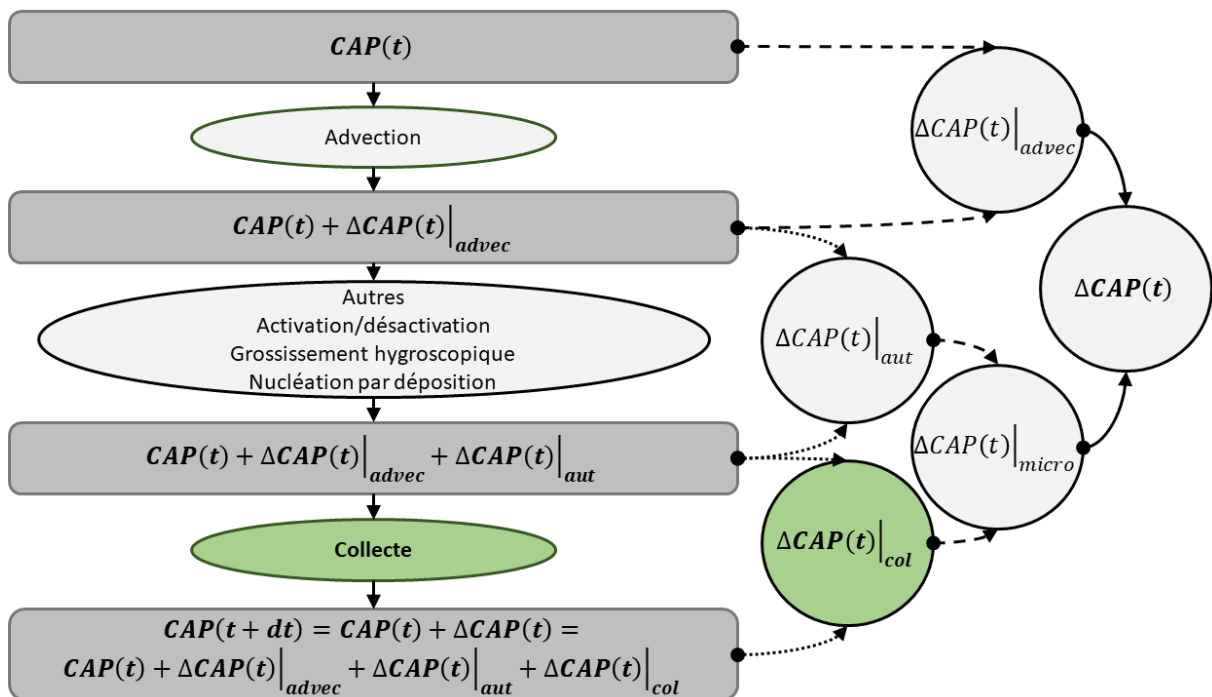


Figure 4-22 Évolution du spectre en nombre d'aérosols dans DESCAM durant un pas de temps - calcul des variations de concentration liées aux différents mécanismes.

4.2.1 ÉTUDE DU NUAGE CONVECTIF (LIQUIDE) DE CCOPE

4.2.1.1 TAUX DE CAPTURE

Sur la Figure 4-23, le taux de capture de l'aérosol radioactif (χ_{col}) est présenté dans le nuage liquide de CCOPE. L'effet des forces électrostatiques est très prononcé, notamment dans le cas de forces électrostatiques répulsives (matrice *Conv_Repuls*) qui diminuent fortement le mécanisme de collecte. Pour ces simulations, les efficacités de collecte sont mises à 10^{-5} pour des rayons d'aérosol compris entre 49,6 nm et 1,26 μm . Cette nouvelle valeur implique un taux de capture de l'ordre de 10^{-8} s^{-1} , bien en deçà du cas de référence (matrice *Cas_Ref*) sans les effets électrostatiques.

Lorsque les effets électrostatiques sont attractifs, on observe une augmentation du taux de capture plus significative pour les grosses particules, car celles-ci sont plus chargées. Ceci s'illustre sur la Figure 4-23 entre les cas de référence (*Cas_Ref*) et les nouvelles valeurs d'efficacité (*Conv_Attrac*). Alors que pour l'aérosol de 49,6 nm, le taux de capture est très peu modifié, pour un aérosol de 315 nm, le taux de capture est augmenté de deux ordres de grandeur. Pour un aérosol de 1,26 μm où les effets électrostatiques sont maximums (non illustré ici), le taux de capture passe de $4,2 \times 10^{-5}$ à $8,5 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ en considérant des forces électrostatiques attractives.

Pour une même taille d'aérosol, on distingue des différences du taux de capture durant la simulation (notamment en partie base de nuage à partir de 20 min et sur toute la hauteur du nuage liquide avant sa disparition). Ces variations viennent des gouttes au sein du nuage, dont la taille augmente (Figure 4-7, gauche) pour ces instants et altitudes. Comme vu en section 2.4.2 et visible sur la Figure 4-14, pour une même taille d'aérosol, lorsque le rayon de la goutte augmente, l'efficacité de collecte et taux de capture diminuent. De plus, la réduction totale du nombre de gouttes au profit de la phase glace contribue aussi à diminuer le taux de capture à partir de 35 min.

À noter que les régions blanches (Figure 4-23) représentent les zones dépourvues du mécanisme de collecte (le taux de capture n'étant donc plus défini) dès lors qu'il n'existe plus d'aérosol interstitiel. Ces zones blanches s'étendent lorsque la taille de l'aérosol augmente, la contribution du mécanisme de collecte étant restreinte à des zones³ très ciblées du nuage.

³ Par abus de langage, la « zone/région » du nuage fait référence dans tout le chapitre à la « zone/région » de l'espace-temps définissant le nuage liquide CCOPE et le nuage stratiforme idéalisé.

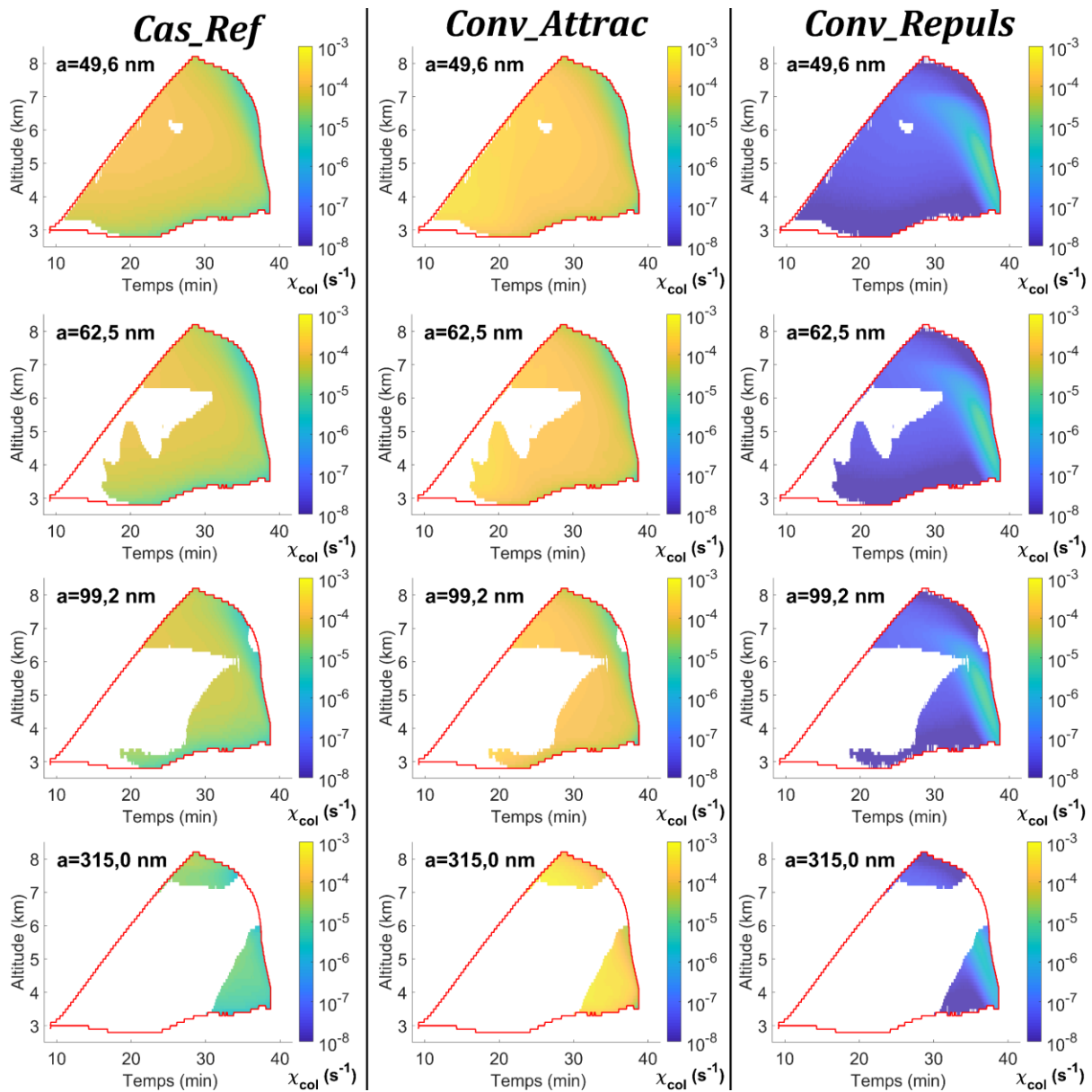


Figure 4-23 Taux de capture spatio-temporel dans la partie nuage liquide du cas CCOPE pour des rayons d'aérosols allant de 49,6 à 315 nm - tailles pour lesquelles l'efficacité de collecte est modifiée dans les matrices *Cas_Ref*, *Conv_Attrac* et *Conv_Repuls* par les effets électrostatiques.

La zone rouge représente la partie nuage liquide de CCOPE où le contenu en eau liquide est supérieur à $0,1 \text{ g.m}^{-3}$. Les régions blanches sont des régions vierges d'aérosol du rayon considéré.

4.2.1.2 CONTRIBUTION DU MECANISME DE COLLECTE

La contribution de la collecte dans l'ensemble des mécanismes microphysiques est présentée sur la Figure 4-24 pour les mêmes tailles d'aérosol que celles examinées précédemment. On remarque une quasi-binarité, où la variation de la concentration en aérosol est, soit exclusivement due au mécanisme de collecte, soit aux autres processus microphysiques.

En examinant de plus près les régions où les aérosols ne sont pas collectés par les gouttes (Figure 4-24), on remarque que celles-ci coïncident strictement avec les régions où le rayon d'activation (Figure 4-8, droite) est inférieur à la taille de l'aérosol considérée. Par exemple, sur la Figure 4-25 les distributions spatio-temporelles du taux de capture pour des aérosols de 62,5 et 315 nm sont rappelées, auxquelles on ajoute les iso-contours des rayons d'activations correspondants. Les régions délimitées par ces iso-contours, typiquement les zones blanches où il n'y a pas de mécanisme de collecte, correspondent aux altitudes du nuage où le rayon d'activation est inférieur au rayon de l'aérosol. Ainsi, dans ces régions, l'intégralité de la classe de taille de 62,5 nm (Figure 4-25, gauche) et de 315 nm (Figure 4-25, droite) est activée et passe dans le réservoir des gouttes. Dans DESCAM, durant un pas de temps, les aérosols sont d'abord activés avant le processus de collecte. Si une classe d'aérosol est activée, la collecte n'est donc plus efficace dès lors qu'il n'y a pas d'aérosols interstitiels.

On peut remarquer une région du nuage particulière - les altitudes proches de 8 km à 25 min - où la phase glace apparaît (Figure 4-5, droite). Dans cette région, les deux phases coexistent, l'air humide est sursaturé par rapport à la glace et sous-saturé par rapport à l'eau liquide (Figure 4-8, gauche). L'eau condensée des gouttes est transférée sur les cristaux par effet Bergeron - les gouttes diminuent en taille (peu visible mais vérifié sur la Figure 4-7, gauche) jusqu'à leur désactivation. *A fortiori*, la concentration en aérosol interstitiel augmente très nettement à 8 km (Figure 4-6). La partie basse du nuage après 35 min de simulation possède les mêmes caractéristiques, à l'exception que la désactivation est beaucoup moins prononcée et le mécanisme de collecte devient prépondérant.

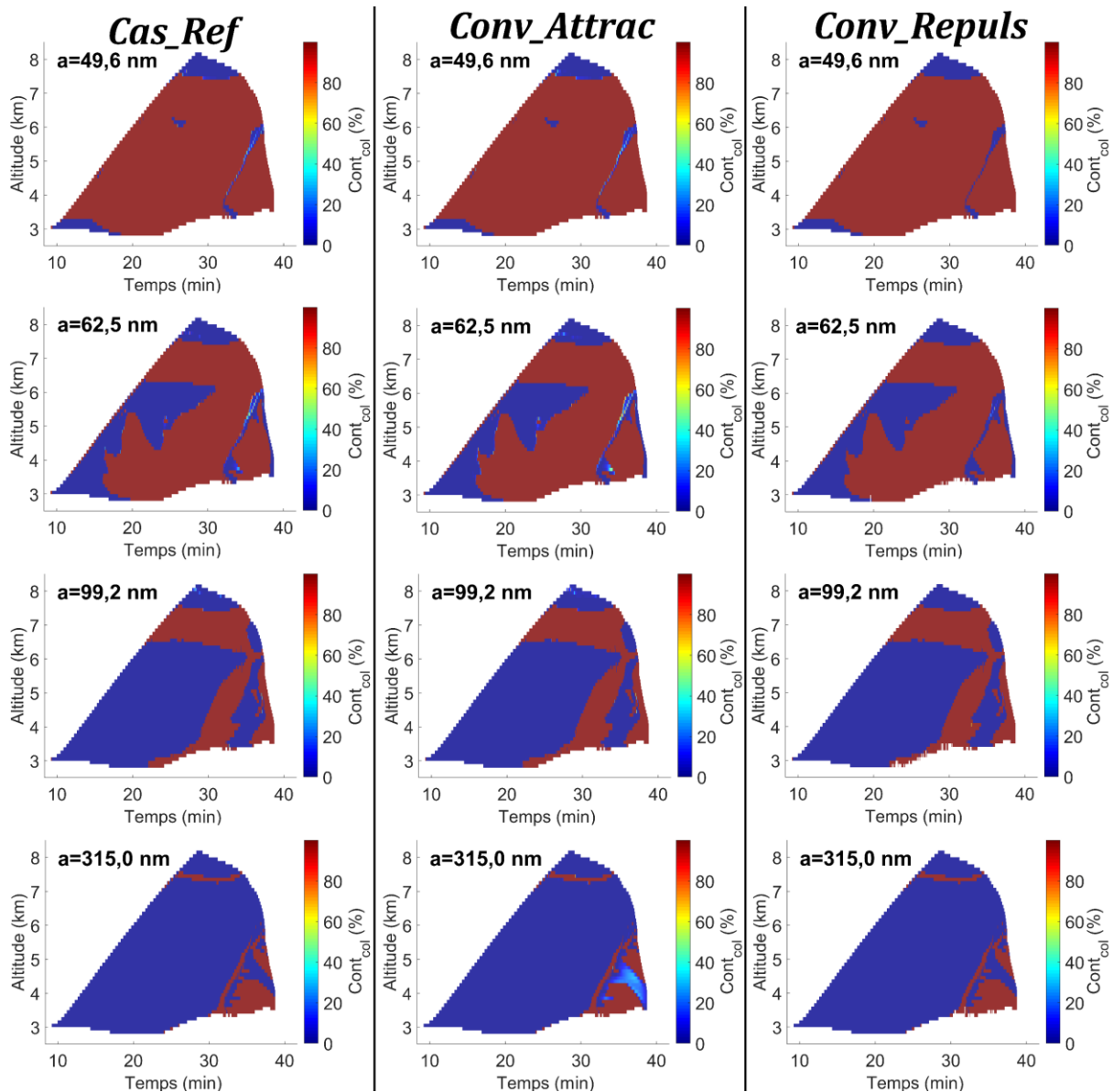


Figure 4-24 Contribution spatio-temporelle de la collecte dans la microphysique au sein du nuage liquide du cas CCOPE pour des rayons d'aérosols allant de 49,6 à 315 nm pour les trois matrices.

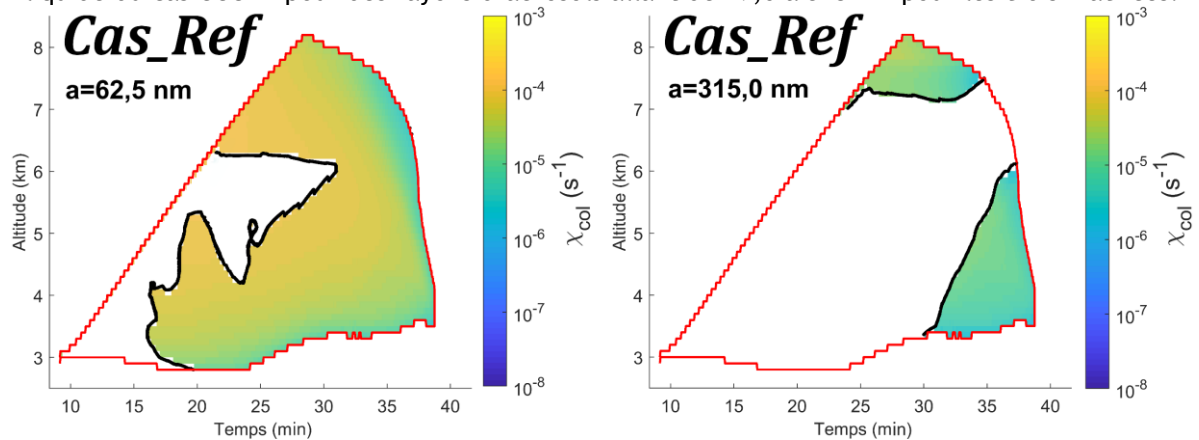


Figure 4-25 Distribution spatio-temporelle du taux de capture pour un aérosol de 62,5 nm (Gauche) et 315 nm (Droite). Le contour rouge représente le nuage liquide (contenu en eau liquide supérieur à $0,1 \text{ g}\cdot\text{m}^{-3}$), les traits noirs sont l'iso-contour du rayon d'activation à la taille d'aérosol considérée.

4.2.1.3 CONTRIBUTION DE LA MICROPHYSIQUE

Dans ses travaux de thèse, Arnaud Quérel (2012) a examiné l'évolution du spectre granulométrique d'un aérosol au cours de l'épisode pluvieux du même nuage (CCOPE). Il a notamment mis en évidence les effets de nouvelles efficacités de collecte sur le rabattement sous le nuage près du sol, en utilisant le même cadre dynamique (DESCAM) 1.5-D et la même approche que dans ce chapitre. Il mit cependant en garde sur le fait que la subsidence est le principal moteur de la décroissance de la concentration en aérosol. En effet, durant l'épisode pluvieux, les gouttes s'évaporent sous le nuage, ce qui refroidit l'air et génère des forts vents descendants (Figure 4-4). L'argument d'Arnaud Quérel était donc que ces subsidences amènent un air d'altitude moins chargé en particules, ce qui diminuait la concentration en aérosol proche du sol. Dans cette étude, le choix a été fait de discriminer la part de l'advection dans l'évolution totale du spectre granulométrique (Équation 4-10).

Sur la Figure 4-26, la contribution de la microphysique dans l'évolution totale de la concentration en aérosol (type 2) est présentée pour des rayons d'aérosol de 49,6 à 315 nm, pour les simulations faisant intervenir les 3 matrices d'efficacité (la matrice de référence *Cas_Ref* à gauche, *Conv_Attrac* au centre et *Cas_Repuls* à droite). On distingue que les zones du nuage où la microphysique contribue (régions vertes) suivent, comme sur la Figure 4-25, les isocontours du rayon d'activation. Globalement, c'est donc l'activation et l'advection qui priment au sein du nuage CCOPE.

Pour autant, les effets électrostatiques sont nettement visibles pour des aérosols de rayon 49,6 et 62,5 nm à 30 min de simulation aux alentours de 5000 m. À ces altitudes, alors que les vents ascendants dépassaient les 10 m.s⁻¹ à 15 minutes de simulation (engendrant de forts niveaux de sursaturation et, *a fortiori*, de l'activation), les vitesses ne sont plus que de l'ordre d'1 m.s⁻¹ à 30 min. Dès lors, il n'y a plus d'activation et, qui plus est, l'apport d'aérosols provenant des altitudes inférieures est beaucoup moins important. Pour rappel, la dynamique est inchangée en considérant les nouvelles valeurs d'efficacité de collecte avec les effets électrostatiques (car seul l'aérosol de type 2, fortement dilué dans l'aérosol atmosphérique se voit affecter de nouvelles efficacités). Dépourvue d'activation et de phase glace dans cette région, la variation de la contribution de la microphysique est donc exclusivement à attribuer aux forces électrostatiques.

Pour des rayons d'aérosol de 49,6 et 65,6 nm, l'augmentation de la contribution de la microphysique sur l'advection (cas *Conv_Attrac*) vient donc de l'augmentation du taux de capture (Figure 4-23). De la même manière, la disparition de la contribution du mécanisme de collecte pour la troisième simulation (cas *Conv_Repuls*) s'explique par le taux de capture de l'ordre de 10⁻⁸ (Figure 4-23, droite) pour des effets électrostatiques répulsifs.

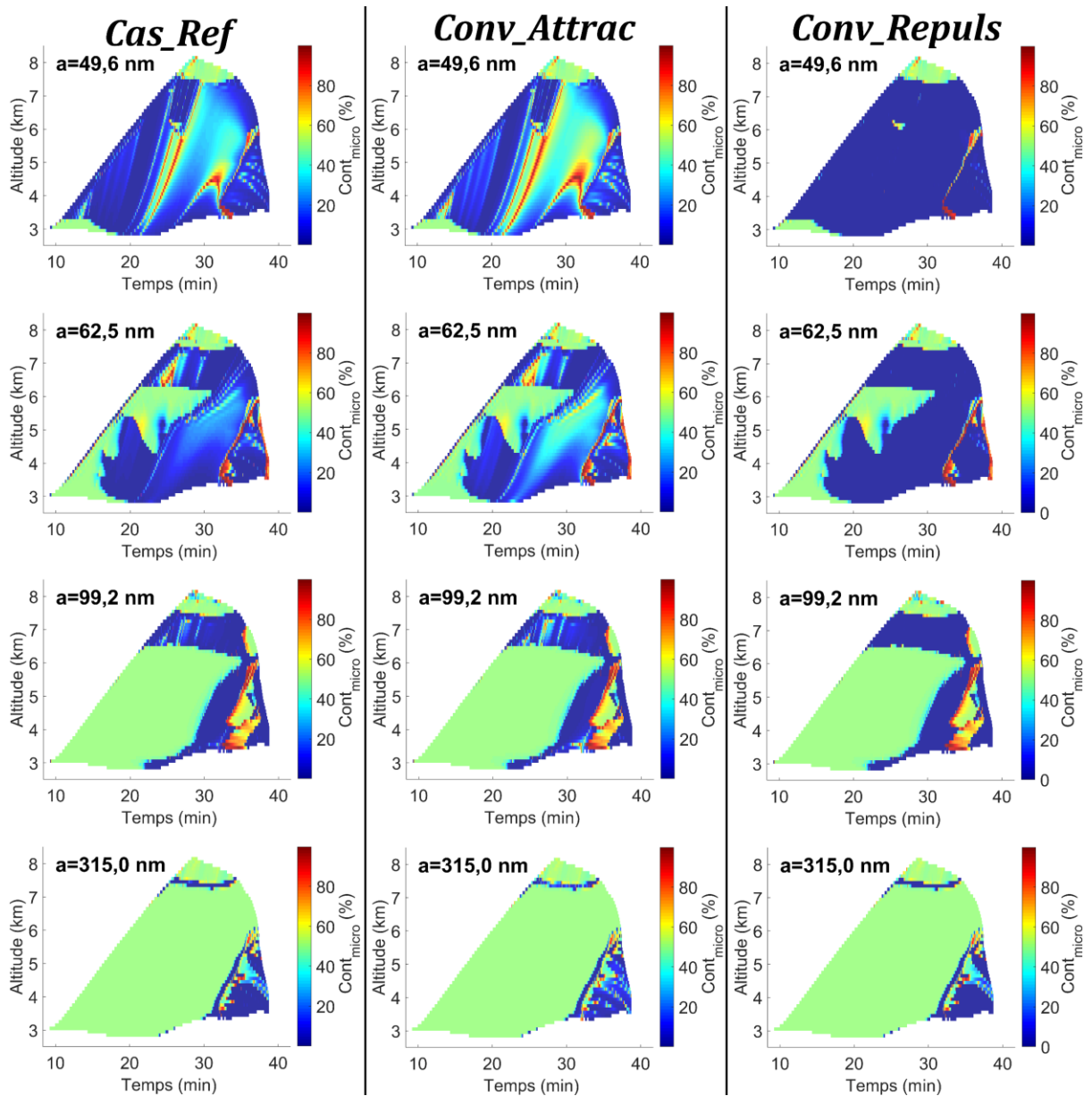


Figure 4-26 Contribution spatio-temporelle de la microphysique dans la variation d'aérosol au sein du nuage liquide du cas CCOPE pour des rayons d'aérosols allant de 49,6 à 315 nm - tailles pour lesquelles les efficacités de collecte sont modifiées dans les matrices *Cas_Ref*, *Conv_Attrac* et *Conv_Repuls* par les effets électrostatiques.

4.2.1.4 ÉVOLUTION DU SPECTRE GRANULOMETRIQUE DANS LE NUAGE

Le spectre granulométrique de l'aérosol de type 2 à 5200 m (soit au centre du nuage) est présenté sur la Figure 4-27 et ce, avant et après le passage du nuage liquide CCOPE - entre la 15^{ème} et 36^{ème} minute de simulation.

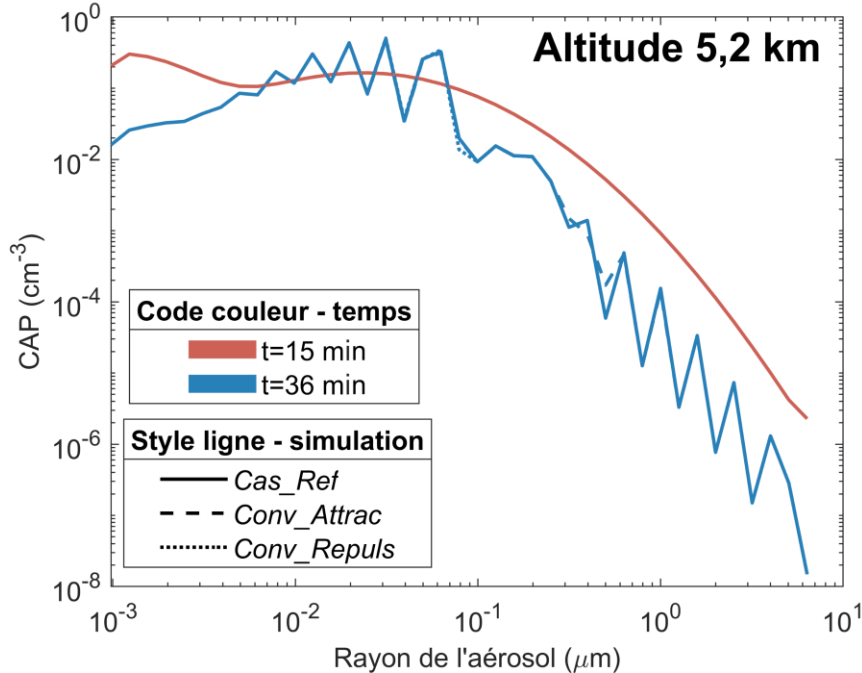


Figure 4-27 Spectre granulométrique de l'aérosol (type 2) à une altitude de 5200 m (milieu du nuage liquide) au début (15 min) et à la fin du nuage liquide de CCOPE (36 min).

Sur la Figure 4-28, les variations liées à la collecte (milieu) et aux autres processus microphysiques (haut) sont calculées sur toute la gamme de tailles d'aérosol, à la même altitude, durant cette même période et ce, pour les trois matrices d'efficacité. En examinant ces variations, il est donc possible d'expliquer l'évolution de la concentration de l'aérosol au sein du nuage liquide.

On remarque notamment que la diminution de la concentration en aérosol nanométrique par la microphysique est essentiellement due au mécanisme de collecte à travers des efficacités de collecte très importantes pour ces tailles d'aérosol, du fait de la diffusion brownienne. Bien qu'il n'y ait pas d'activation pour ces tailles d'aérosols (bien au-dessous du rayon d'activation), la variation liée aux processus microphysiques, autres que la collecte, n'est pas nulle (Figure 4-28, haut). Ceci vient du fait que, même si le paramètre d'hygroscopicité κ considéré pour l'aérosol de type 2 est très faible (0,001), les niveaux de sursaturation importants permettent le grossissement hygroscopique (faible) de ces aérosols. Les aérosols microniques sont, quant à eux, essentiellement transférés dans le réservoir des gouttes.

L'impact des nouvelles valeurs d'efficacité de collecte liées aux effets électrostatiques est visible dans la variation liée au mécanisme de collecte (graphique du milieu), notamment :

- Lorsque les forces électrostatiques sont répulsives (*Conv_Repuls*), les valeurs d'efficacités mises à 10^{-5} , pour les aérosols de rayon compris entre 49,6 nm et 1,26 μm , induisent une diminution de plus de deux ordres de grandeur de la variation liée à la collecte pour ces tailles d'aérosol. Notons que les valeurs d'efficacité de collecte sont ici seuilées et qu'en réalité, elles sont inférieures, au même titre que le taux de capture ;
- Lorsque les effets électrostatiques sont attractifs (*Conv_Attrac*), plus l'aérosol de type 2 (considéré radioactif ici) est gros, plus il est chargé électriquement. *A fortiori*, la variation de concentration liée au mécanisme de collecte avec les forces électrostatiques augmente avec la taille de l'aérosol. Par exemple, pour un aérosol de 1,26 μm , la variation (absolue) passe de $1,2 \times 10^{-6} \text{ cm}^{-3}$ pour le cas sans force électrostatique (*Conv_Repuls*) à $1,5 \times 10^{-4} \text{ cm}^{-3}$ avec les forces électrostatiques attractives.

Même si l'effet des forces électrostatiques est notable sur la variation de la concentration liée au processus de collecte, la contribution du mécanisme de collecte est marginale car l'activation est un processus dominant pour les tailles d'aérosols affectés d'une charge électrique. La microphysique est donc, au global, inchangée en intégrant les forces électrostatiques sur la collecte. Cette conclusion est directement visible sur la Figure 4-27 où les différentes matrices n'ont aucunement affecté l'allure des spectres.

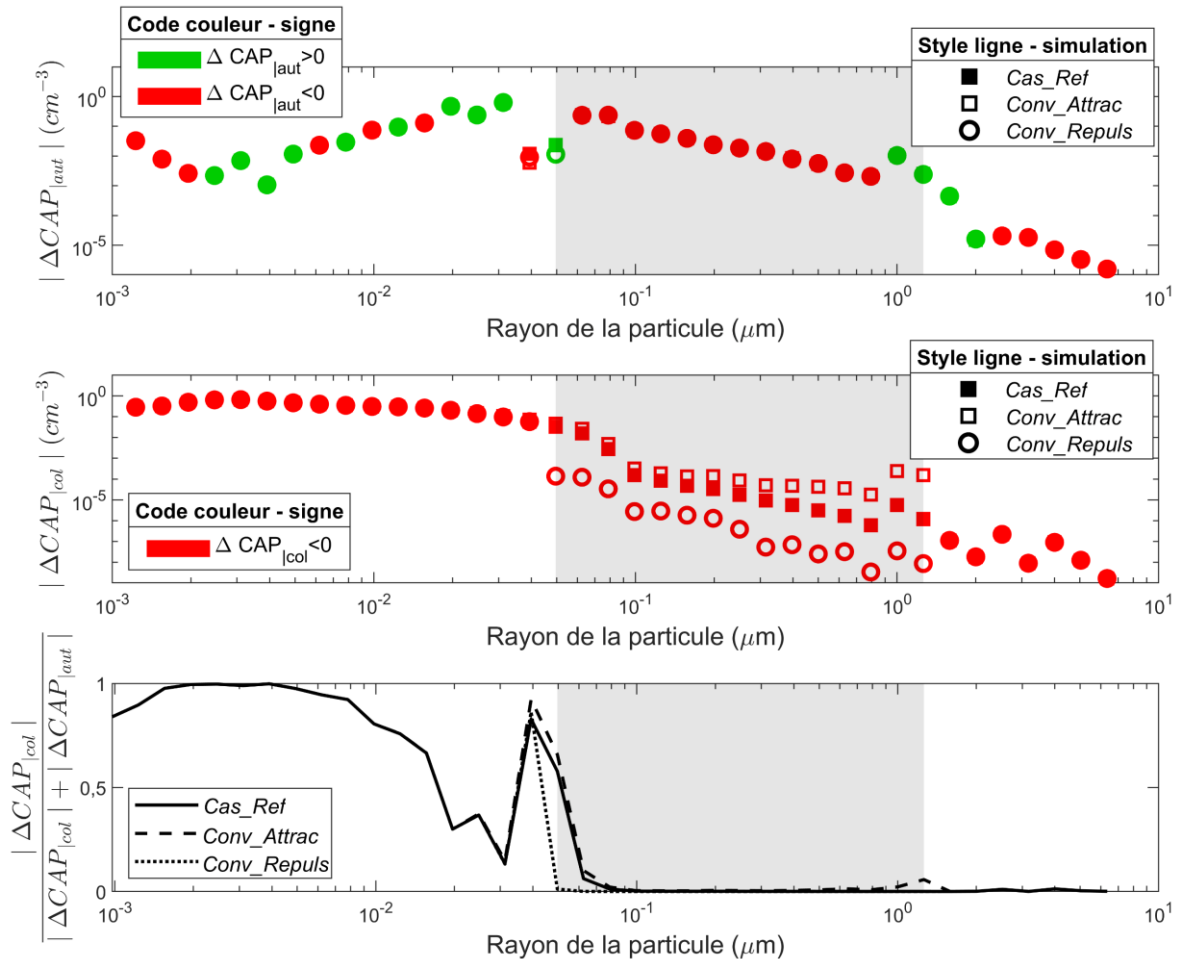


Figure 4-28 Variation de la concentration liée à la collecte (**Milieu**) et aux autres processus microphysiques (**Haut**) dans l'évolution, liée à la microphysique, du spectre granulométrique de l'aérosol de type 2 au centre de nuage liquide CCOPE (5200 m) entre la formation (après 15 min) et la disparition (après 36 min) du nuage liquide. Les résultats sont présentés pour les 3 simulations (pour les matrices *Cas_Ref*, *Conv_Attrac* et *Conv_Repuls*). En vert, la variation est positive - apport d'aérosol - en rouge, la variation est négative - réduction du nombre d'aérosols. Le rapport de la collecte sur la variation du fait de la microphysique est aussi présenté (**Bas**) pour les 3 simulations. La zone grisée représente les tailles d'aérosol où les efficacités de collecte sont modifiées par les effets électrostatiques.

On s'intéresse maintenant à la variation totale de la concentration en aérosol et des contributions respectives de l'advection et de la microphysique à la même altitude et sur la même période (Figure 4-29). Le sol étant défini comme un terme source, les vents forts ascendants (Figure 4-4) advectent l'ensemble du spectre d'aérosol vers des altitudes supérieures. Pour autant, à partir de 3000 m les niveaux de sursaturation sont si importants (Figure 4-8, gauche) que la microphysique est un puits pour les gros aérosols via l'activation (Figure 4-28, haut). Dans le nuage, les vents ascendants sont alors progressivement dépourvus en gros aérosols. À 5200 m, la variation liée à l'advection est finalement négative pour ces tailles (Figure 4-29, haut) - il y a plus d'aérosols transportés vers les altitudes supérieures que d'aérosols advectés depuis les altitudes inférieures. Le peu de ces aérosols

restant à 5200 m est majoritairement activé, d'où une variation totale de la concentration négative (Figure 4-29, milieu).

Les aérosols inférieurs à 200 nm, quant à eux, peu touchés par l'activation en partie basse du nuage, alimentent l'altitude 5200 m. Dès lors, la microphysique fait diminuer la concentration en aérosol interstitiel alors collecté par les gouttes (Figure 4-28, milieu). Pour ces tailles, la contribution de la microphysique est supérieure à celle de l'advection (rapport supérieur à 50 % sur la Figure 4-29, bas). Au global, la concentration pour ces tailles d'aérosol a diminué au passage du nuage liquide de CCOPE. La zone grisée sur la Figure 4-29 représente les tailles d'aérosols où les valeurs d'efficacités de collecte sont modifiées en introduisant les effets électrostatiques. Pour ces tailles, la microphysique est le principal contributeur dans l'évolution du spectre granulométrique - avec un rapport de la variation de la microphysique sur la variation totale supérieur à 75 % (Figure 4-29, bas). Pour autant, la variation liée à la microphysique n'est aucunement modifiée par les différentes matrices considérées lors des simulations car, comme vu précédemment, l'activation domine.

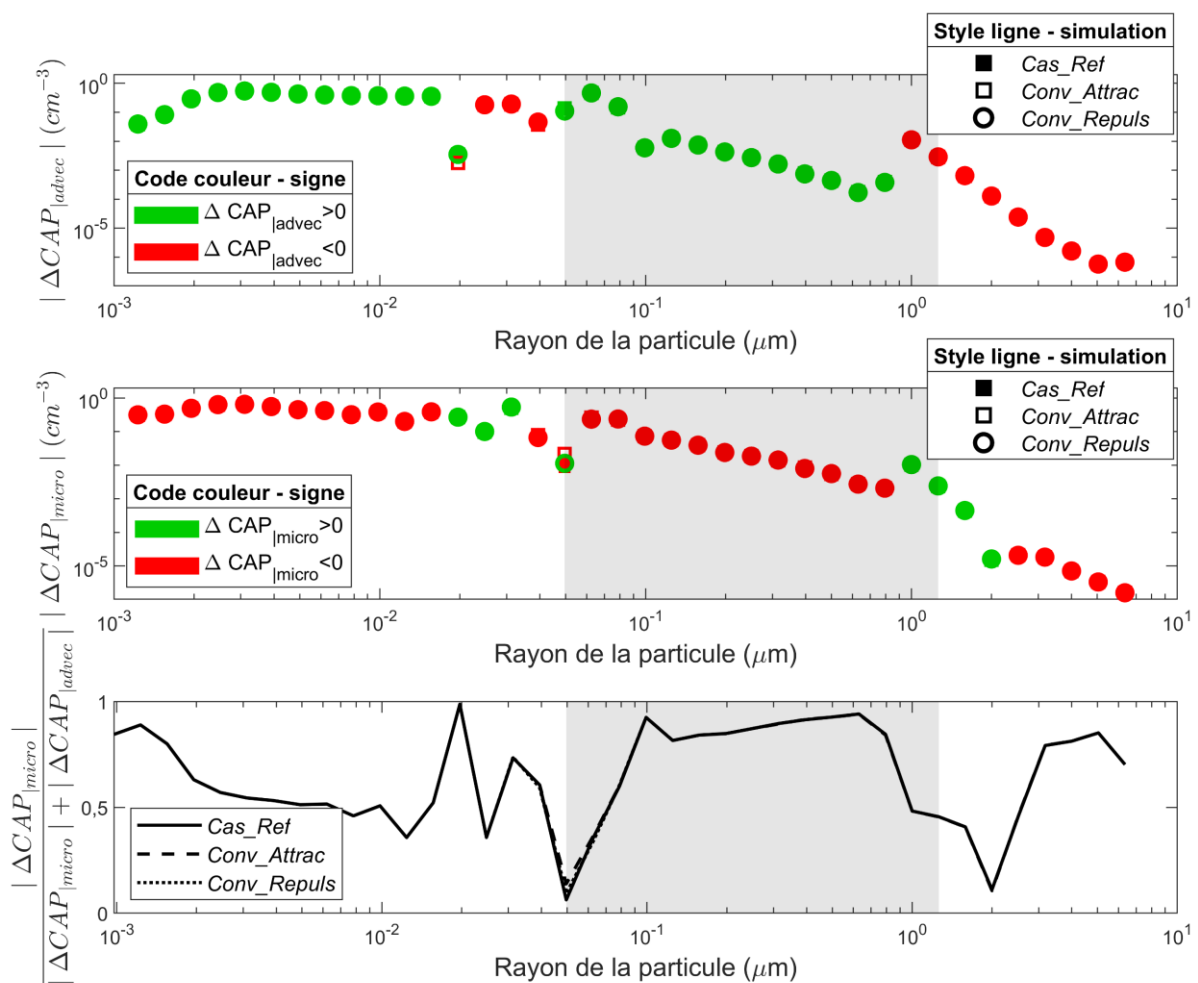


Figure 4-29 Variation de concentration liée à la microphysique (**Milieu**) et à l'advection (**Haut**) dans l'évolution totale du spectre granulométrique de l'aérosol de type 2 au centre de nuage liquide CCOPE (5200 m) entre la formation (après 15 min) et la disparition (après 36 min) du nuage liquide. Les résultats sont présentés pour les 3 simulations (pour les matrices *Cas_Ref*, *Conv_Attrac* et *Conv_Repuls*). En vert, la variation est positive - apport d'aérosol - en rouge, la variation est négative - réduction du nombre d'aérosols. Le rapport de la microphysique sur la variation totale est aussi présenté (**Bas**) pour les 3 simulations. La zone grisée représente les tailles d'aérosol où les efficacités de collecte sont modifiées par les effets électrostatiques.

Bien qu'en intégrant sur toute la durée de vie du nuage liquide CCOPE, la collecte est de second ordre, il existe des régions plus localisées au sein du nuage liquide CCOPE où ceci n'est plus vrai. Pour exemple, à cette même altitude (5200 m) mais entre la 28^{ème} et 32^{ème} minute (là où on observait un effet sur la Figure 4-26), le mécanisme de collecte est alors le seul contributeur dans la microphysique, comme visible sur la Figure 4-30 (bas), pour des aérosols de 49,6 et 62,5 nm. Dès lors, le processus de collecte n'est plus secondaire dans la variation totale de la concentration en aérosol - augmentant la contribution de la microphysique de 12 % et 14 %, respectivement pour les rayons de 49,6 et 62,5 nm, en considérant les effets électrostatiques attractifs (*Conv_Attrac*). Par contre, quand les effets électrostatiques sont répulsifs, la contribution de la microphysique devient nulle pour ces tailles (visible sur la Figure 4-26). Dans cette région du nuage, les effets électrostatiques ont alors un impact important et ce, même si les charges électriques sur les aérosols de 49,6 et 62,5 nm sont proches de zéro (Figure 4-16).

À noter qu'ici, l'effet des forces électrostatiques est intégré dès le début des simulations via les différentes matrices considérées. Examiner l'impact des forces électrostatiques sur la collecte entre la 28^{ème} et 32^{ème} minute possède donc des limites dès lors que la 28^{ème} minute n'est pas une référence strictement identique entre les trois simulations. Une méthode plus rigoureuse consisterait à utiliser la matrice de référence (*Cas_Ref*) pour les 3 simulations jusqu'à la 28^{ème} minute, puis de la remplacer par les matrices respectives (*Conv_Attrac* et *Conv_Repuls*). Néanmoins, l'activation qui domine jusqu'à la 28^{ème} minute rend l'impact des forces électrostatiques négligeable jusqu'à cet instant.

En revanche, prendre la 15^{ème} minute comme référence sur la Figure 4-27 est justifié par le fait qu'avant, le nuage n'est pas encore formé. Il n'y a donc pas de goutte, pas de mécanisme de collecte et finalement aucun impact des forces électrostatiques sur la concentration en aérosol à 5200 m dans les 15 premières minutes de simulation.

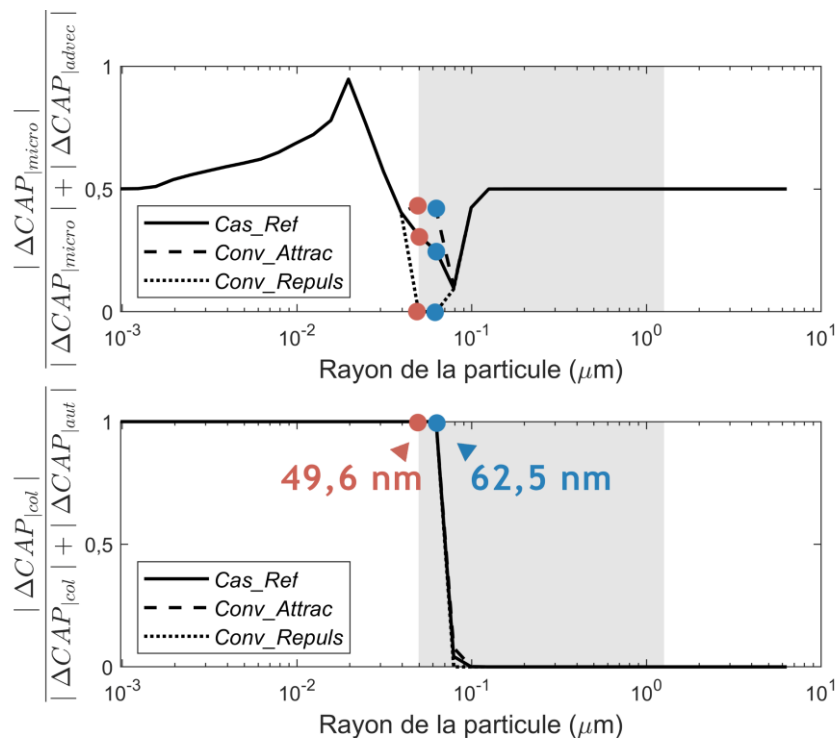


Figure 4-30 Contribution de la microphysique dans l'évolution totale du spectre d'aérosol (Haut) et de la collecte dans la microphysique (Bas) à la même altitude entre la 28^{ème} et 32^{ème} minute.

4.2.1.5 PARAMETRISATION DE LA CAPTURE DANS LE NUAGE CONVECTIF CCOPE

Sur les Figures 4-31 et 4-32, sont respectivement représentés le taux de capture intégré sur la hauteur du nuage convectif CCOPE et le flux massique (F) d'aérosol (dans les gouttes) sortant du nuage (à 3000 m) en fonction de l'intensité pluviométrique à la base du nuage et ce, avec et sans les effets électrostatiques. À noter que le flux d'aérosol est normalisé par la concentration initiale au sol (C_0) de l'aérosol de type 2. On considère ici tout le nuage et non seulement la partie liquide du nuage.

Ces deux figures intègrent l'ensemble du spectre granulométrique de l'aérosol. Comme on l'a vu précédemment, les effets électrostatiques impactent la capture à des endroits très localisés du nuage liquide CCOPE et pour une partie restreinte de la granulométrie de l'aérosol. Ainsi, du fait d'hypothèses de modélisation fortes et d'importants niveaux de sursaturation - les effets électrostatiques sont, au bilan, négligeables sur le taux de capture (Figure 4-31) et le flux massique d'aérosol (dans les gouttes) sortant du nuage (Figure 4-32).

Néanmoins, on peut noter deux faits intéressants :

- Sur la Figure 4-31, le taux de capture décroît progressivement entre la 10^{ème} et la 35^{ème} minute de simulation. Comme vu à la section 4.2.1.1, cette diminution vient de l'augmentation de la taille des gouttes durant ces instants, induisant la diminution de l'efficacité de collecte en considérant la même taille d'aérosol. La chute plus prononcée après la 35^{ème} minute vient de l'apparition de la phase glace (Figure 4-5, droite) qui engendre la disparition de la phase liquide (Figure 4-5, gauche) - le nombre de gouttes chute ;
- Sur la Figure 4-32, le flux massique d'aérosol (dans les gouttes) sortant du nuage est proportionnel à l'intensité pluviométrique à la base du nuage. C'est un résultat important dans un contexte de sûreté nucléaire. En effet, à la suite d'un accident nucléaire, la contamination des sols, du fait de la capture des radionucléides par le nuage convectif, peut être estimée par la mesure de l'intensité pluviométrique.

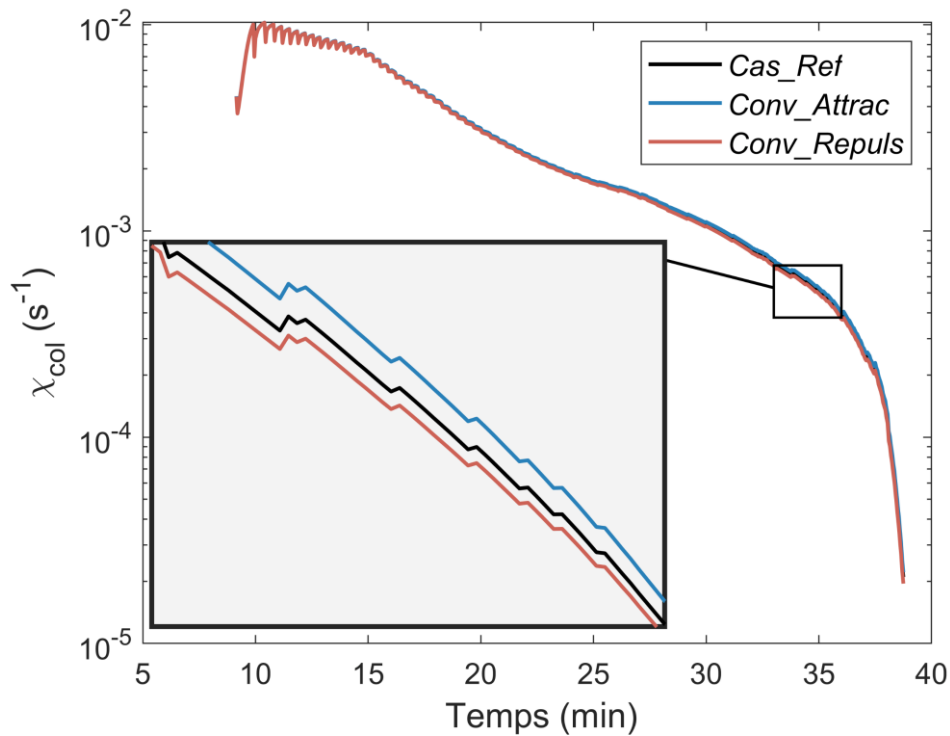


Figure 4-31 Taux de capture intégré sur toute la hauteur du nuage liquide de CCOPE.

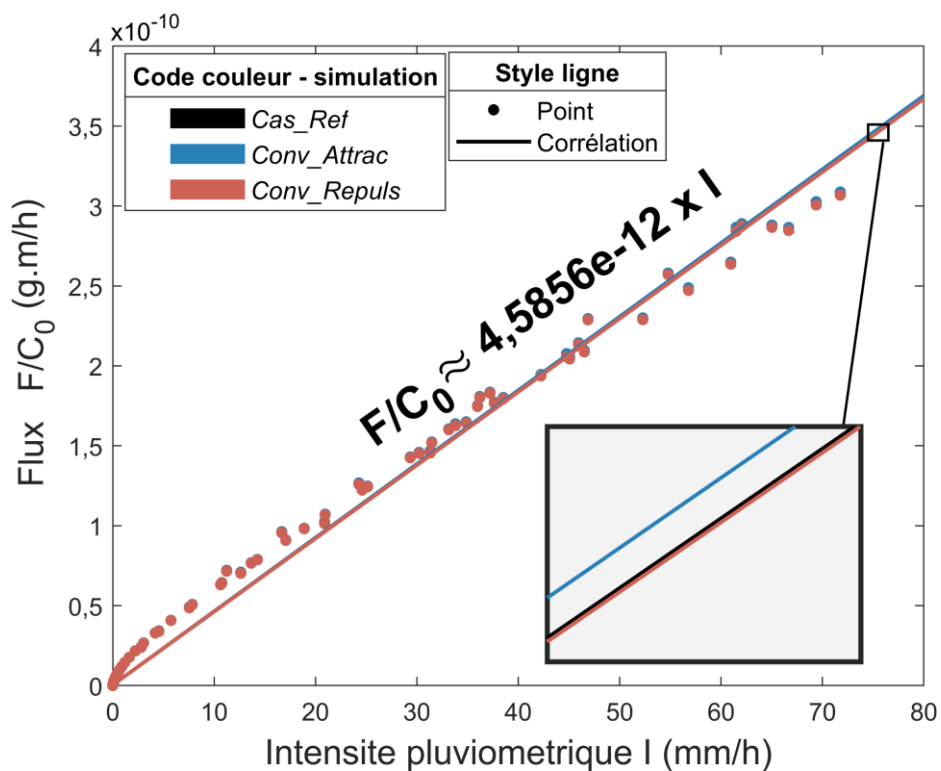


Figure 4-32 Flux massique (F) d'aérosol (dans les gouttes) sortant du nuage (3000 m), normalisé par la concentration initiale totale (C_0) de l'aérosol de type 2, en fonction de l'intensité pluviométrique à la base de nuage. On considère ici tout le nuage et non seulement la partie liquide du nuage.

4.2.1.6 CAS PARTICULIER - DISTRIBUTION EN TAILLE MONODISPERSEE DE L'AEROSOL RADIOACTIF

Comme il a été observé, les effets électrostatiques sont de second ordre sur la capture globale de l'aérosol de type 2 considéré ici comme radioactif.

Pour autant, ce fait vient notamment des hypothèses fortes formulées pour la modélisation, à savoir :

- La charge sur l'aérosol est considérée comme nulle pour des tailles inférieures à 49,6 nm. C'est pourtant pour les aérosols nanométriques que le mécanisme de collecte est de premier ordre sur la microphysique et sur l'évolution totale de la concentration en aérosol dans les nuages - visible sur les Figures 4-28 (bas), 4-29 (bas) et 4-30.
- Le spectre de l'aérosol de type 2 (radioactif) suit le spectre continental (Jaenicke, 1993) de l'aérosol atmosphérique. Les radionucléides (notamment les isotopes 134 et 137 du Césium) ont pourtant été libérés dans l'atmosphère suite aux accidents du CNPE-T (1986) et du CNPE-FD (2011) avec de faibles écarts-types (Baklanov et Sørensen, 2001 ; Terada et al., 2013 ; Adachi et al., 2013).

La distribution de l'aérosol de type 2 initial est ici considérée comme monodispersée, avec une concentration 100 fois inférieure à celle de l'aérosol atmosphérique de même taille (l'aérosol atmosphérique conserve le spectre d'un aérosol continental de Jaenicke (1993)). Des simulations ont été faites pour obtenir, comme à la section précédente, les taux de capture intégrés sur la hauteur du nuage convectif CCOPE et les flux massiques (F) dans les gouttes d'aérosol sortant du nuage (à 3000 m) en fonction de l'intensité pluviométrique à la base du nuage avec et sans les forces électrostatiques. À noter qu'on considère ici tout le nuage et non seulement la partie liquide du nuage pour obtenir la paramétrisation du flux d'aérosol en fonction des précipitations. Le flux d'aérosol est normalisé par la concentration initiale au sol (C_0) de l'aérosol de type 2.

Sur la Figure 4-33, sont présentés les résultats pour des aérosols allant de 49,6 à 315 nm. Dans les premières minutes de simulation, les oscillations et discontinuités du taux de capture illustrent les zones où le taux de capture est peu ou pas défini - s'atténuant plus tard pour des aérosols plus gros car les zones blanches (Figure 4-23) sont plus étendues.

L'écart entre le taux de capture avec (*Conv_Attrac*) et sans (*Cas_Ref*) les forces électrostatiques attractives augmente avec le rayon de l'aérosol dès lors que les effets électrostatiques croient via la charge électrique de l'aérosol. Néanmoins, il n'y a aucune modification du flux massique pour de gros aérosols. À partir de 99,2 nm (Figure 4-33), le mécanisme d'activation est moteur dans tout le nuage et le mécanisme de collecte est négligeable. Par contre, pour des aérosols de 49,6 et 62,5 nm, les régions très locales où le mécanisme de collecte est de premier ordre engendrent un impact global sur le flux d'aérosol sortant du nuage (à 3000 m). À une intensité pluviométrique de 70 mm.h⁻¹, le flux massique d'aérosol est augmenté de 50 % pour un aérosol de 49,6 nm alors que la charge électrique considérée sur cet aérosol est quasi nulle (0,05 charge élémentaire, Figure 4-16).

Ce résultat est d'une grande importance car la propagation des radionucléides dans l'atmosphère, à la suite d'un accident grave, peut être modifiée de par une capture augmentée au sein d'un nuage même fortement convectif, avec de fortes sursaturations comme le cas CCOPE.

Remarque importante : Dans DESCAM, la masse discrétisée $TMAP(i)$ d'aérosols secs incluse dans les gouttes de classe i intègre toutes les tailles d'aérosols. Ainsi, lorsqu'un aérosol passe dans le réservoir goutte, on perd l'information sur sa taille. C'est pourquoi, si on veut étudier le flux massique d'une taille précise d'aérosol (dans les gouttes) en sortie de nuage, des simulations supplémentaires sont nécessaires - considérant une distribution en taille de l'aérosol initialement monodispersée.

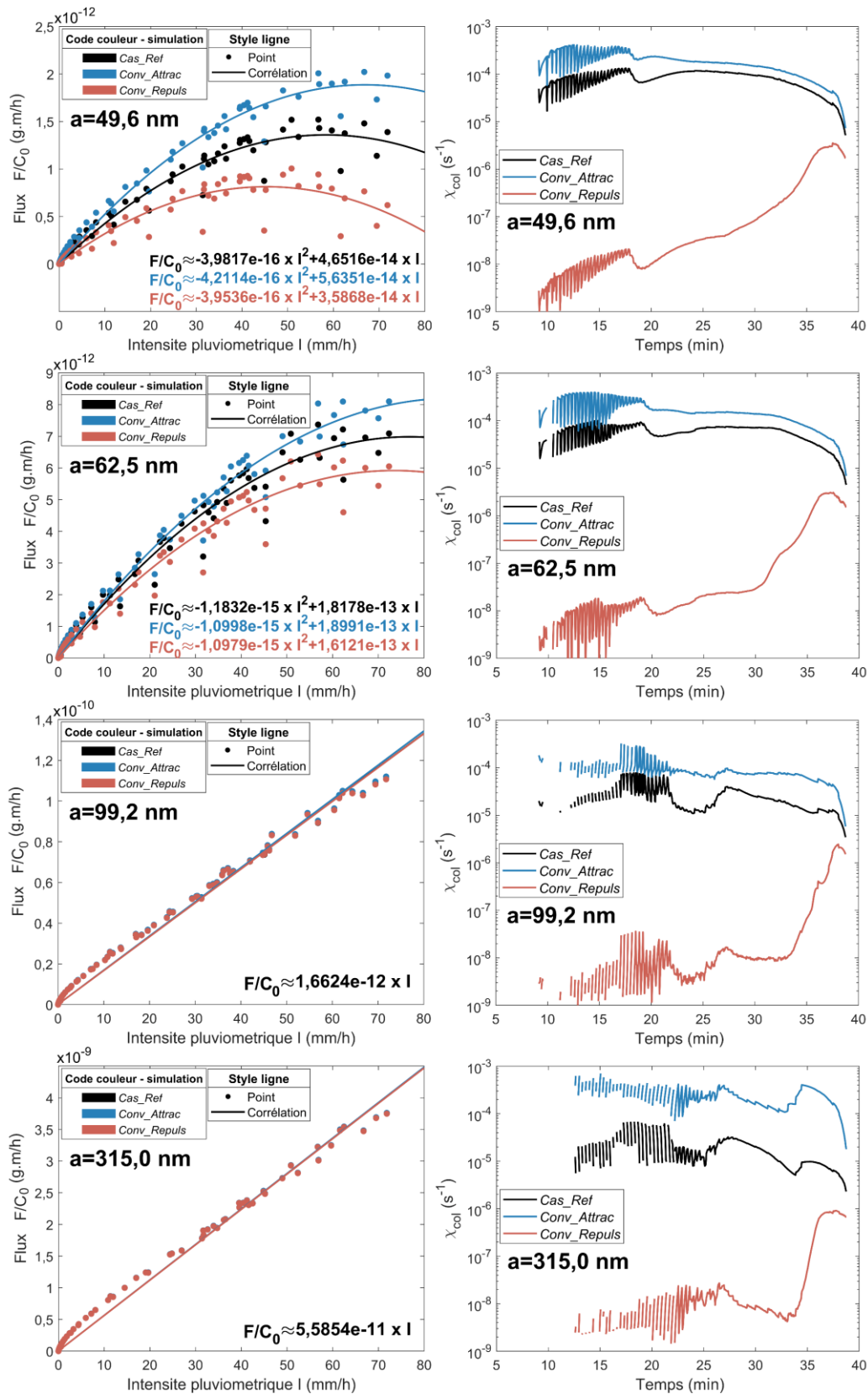


Figure 4-33 Taux de capture intégrés sur toute la hauteur du nuage liquide de CCOPE (Droite) et flux massiques (F) d'aérosol (dans les gouttes) sortant du nuage à 3000 m, normalisés par la concentration initiale (C_0) en aérosol de type 2, en fonction de l'intensité pluviométrique à la base de nuage (Gauche) pour un aérosol de type 2 de rayon entre 49,6 nm (Haut) et 315 nm (Bas).

4.2.2 ÉTUDE DU NUAGE STRATIFORME IDEAL

Dans cette section, on insistera principalement sur les différences avec le nuage convectif CCOPE. Aucune différence n'a été observée, qu'on examine la première cellule nuage ou la dernière (après 5 h). On se concentre donc sur la première heure de simulation, illustrant deux cellules nuageuses.

4.2.2.1 TAUX DE CAPTURE

Le taux de capture spatio-temporel est présenté sur la Figure 4-34 pour des tailles d'aérosols allant de 315 nm à 1,26 μm . Du fait de charges sur les gouttes beaucoup plus faibles pour un nuage stratiforme (d'un facteur 100 approximativement), les forces électrostatiques induisent des modifications du taux de capture à partir d'aérosol plus gros comparé au cas du nuage convectif CCOPE. Comme pour le cas convectif, les zones blanches sont l'indicateur de régions où l'activation domine et où les aérosols se retrouvent exclusivement dans les gouttes. Ces régions augmentent avec le rayon de l'aérosol suivant les isocontours du rayon d'activation à la taille considérée.

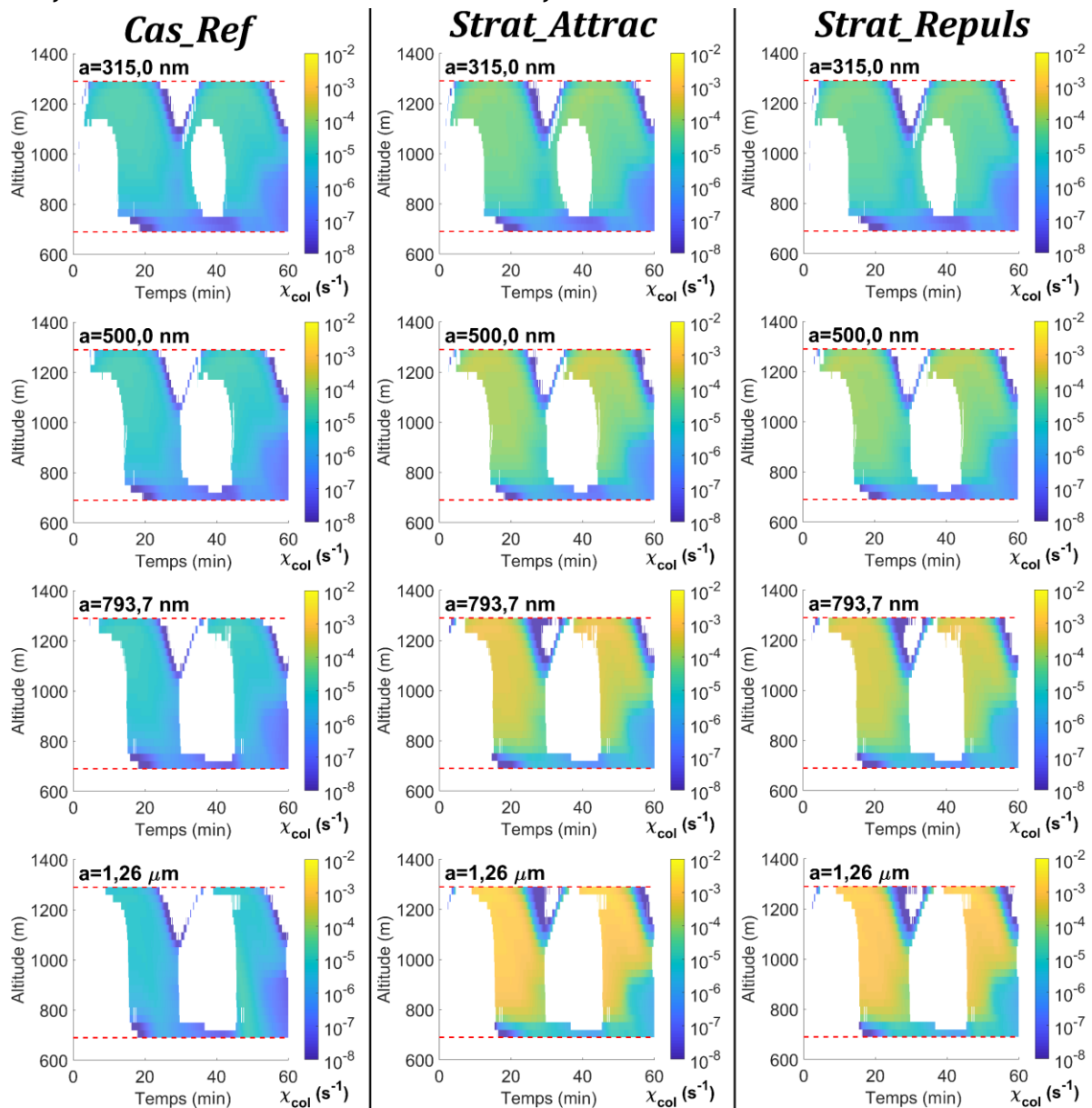


Figure 4-34 Taux de capture spatio-temporel dans le nuage stratiforme idéalisé sur une heure de simulation pour des rayons d'aérosols allant de 315,0 nm à 1,26 μm - tailles pour lesquelles les efficacités de collecte sont modifiées dans les matrices *Cas_Ref*, *Strat_Attrac* et *Strat_Repuls* par les effets électrostatiques. Les lignes rouges tiretées délimitent le nuage. Les régions blanches sont des régions vierges d'aérosol du rayon considéré.

Par ailleurs, on observe, contrairement au cas CCOPE, une augmentation du taux de capture aussi bien lorsque les charges sur les gouttes et l'aérosol sont de polarité opposée (*Strat_Attrac*) ou identique (*Strat_Repuls*) par rapport au cas sans les forces électrostatiques (*Cas_Ref*). Ce constat est lié aux faibles charges sur les gouttes qui induisent une faible contribution du terme CLD répulsif. Ainsi, c'est le terme IAFD qui domine, augmentant le taux de capture via les efficacités de collecte. Les taux de capture sont semblables entre les matrices *Strat_Attract* et *Strat_Repuls*, dès lors que les efficacités de collecte sont relativement proches - visible sur les Figures 4-20 et 4-21.

4.2.2.2 CONTRIBUTION DE LA COLLECTE ET DE LA MICROPHYSIQUE

Sur la Figure 4-35 est présentée la contribution du mécanisme de collecte dans la microphysique pour le nuage stratiforme idéalisé. De la même manière, la contribution de la microphysique dans l'évolution totale en concentration d'aérosol de type 2 est visible sur la Figure 4-36.

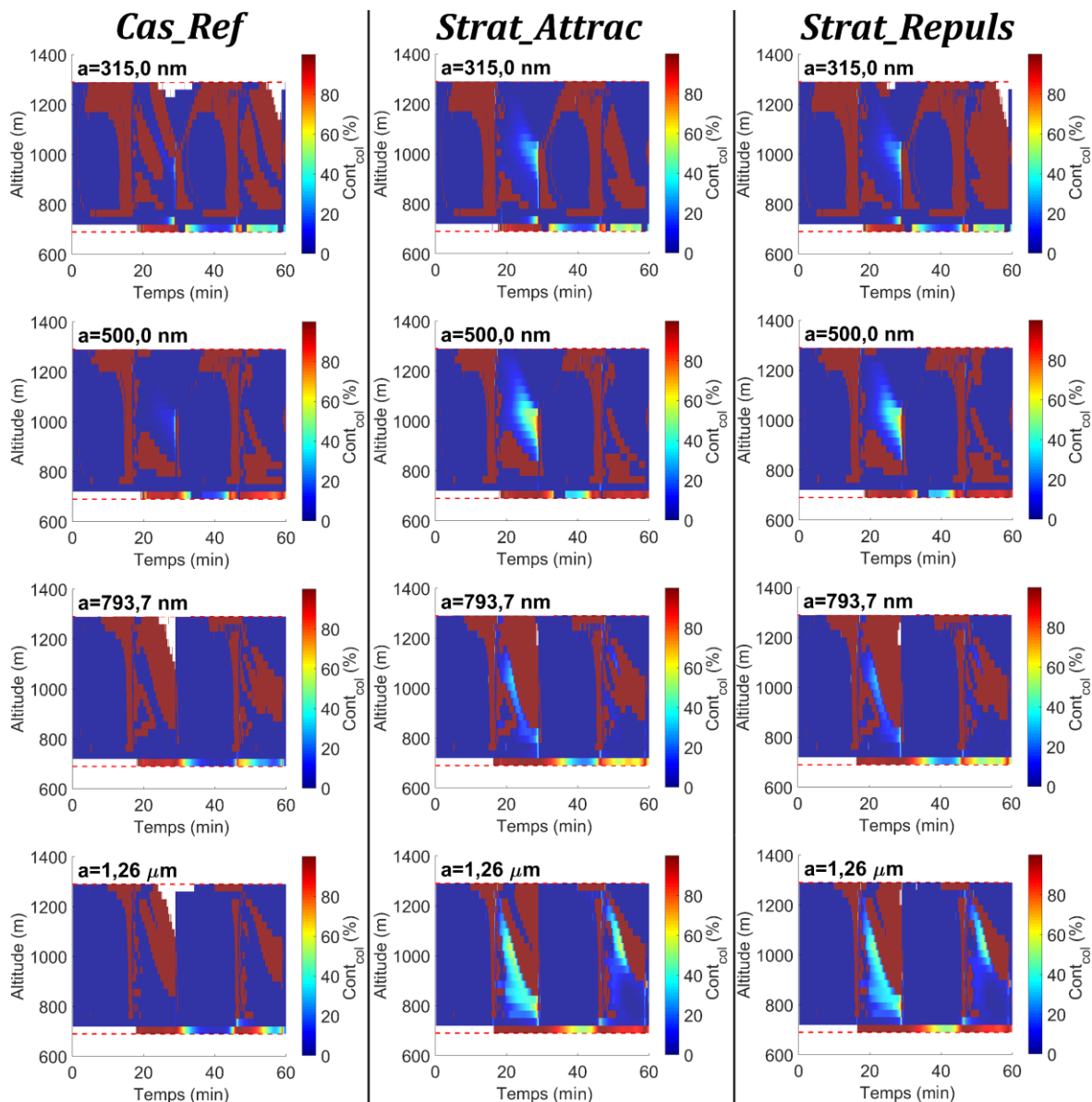


Figure 4-35 Contribution spatio-temporelle de la collecte dans la microphysique au sein du nuage stratiforme idéal pour des rayons d'aérosols allant de 315 nm à 1,26 μm pour les trois matrices d'efficacité de collecte (*Cas_Ref*, *Strat_Attrac* et *Strat_Repuls*).

Durant les phases où les vents verticaux sont ascendants (Figure 4-10, gauche), par exemple, durant les 15 premières minutes sur les Figures 4-35 et 4-36, le rayon d'activation est de l'ordre de 300 nm (Figure 4-12, bas). Les aérosols de rayon compris entre 315 nm et 1,26 μm participent alors à la nucléation de gouttes - l'activation domine le mécanisme de collecte. Le processus de collecte s'affirme uniquement dans les régions du nuage où les vents ascendants sont faibles. La collecte est aussi majoritaire dans les phases de subsidence où le nuage précipite (Figure 4-10, droite). Dans la zone de précipitation, l'air est sous-saturé (Figure 4-12, haut), l'activation est nulle et les vents sont faibles.

Dans ces phases de vents descendants, l'advection domine (Figure 4-36), apportant notamment des aérosols interstitiels depuis le sommet du nuage (la concentration en aérosol augmente alors en partie haute du nuage, Figure 4-13). Le mécanisme de collecte devient le principal effet microphysique impliqué dans la variation de la concentration en aérosol, surtout pour de gros aérosols où les efficacités de collecte sont importantes. Entre le centre et la base du nuage où l'air est sous-saturé en vapeur (Figure 4-12, haut), une partie des gouttes se désactive. Des aérosols sont alors libérés dont une fraction est collectée durant le même pas de temps. Pour rappel, dans DESCAM, l'activation et la désactivation ont lieu avant la collecte durant un pas de temps. Cela s'observe dans les régions où la collecte et les autres processus microphysiques (ici essentiellement la désactivation car le grossissement hygroscopique est négligeable et il n'y pas de phase glace) contribuent à parts égales (zones bleu clair, Figure 4-35). Dans ces zones très localisées, l'effet des forces électrostatiques est notamment visible par l'augmentation de ces zones bleu clair entre le cas de référence (*Cas_Ref*) et les matrices considérant les effets électrostatiques (*Strat_Attrac* et *Strat_Repuls*). Notons que pour le cas stratiforme, les matrices avec les forces électrostatiques augmentent la collecte (voir 4.1.3.4).

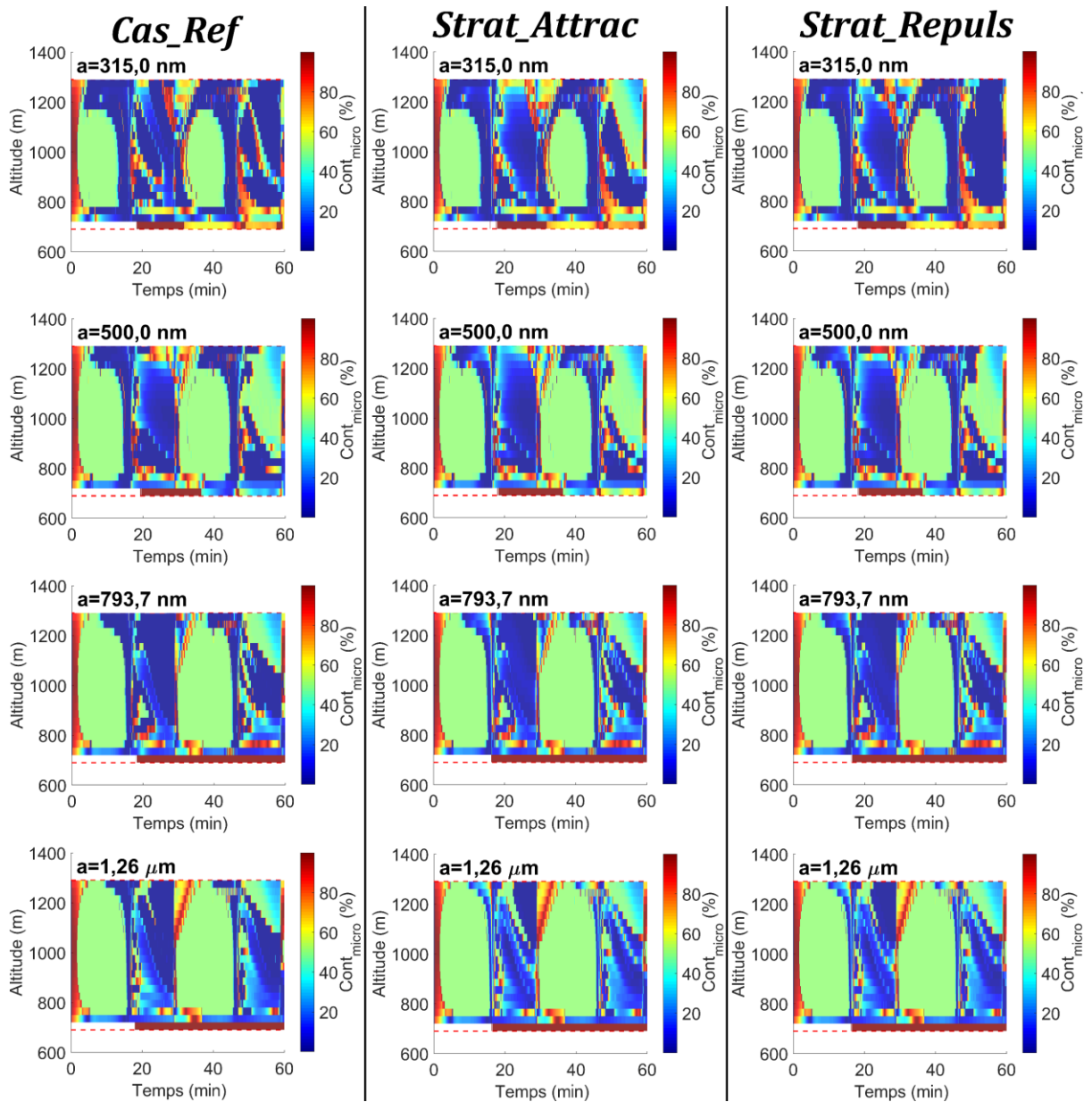


Figure 4-36 Contribution spatio-temporelle de la microphysique dans la variation d'aérosol au sein du nuage stratiforme idéalisé pour des rayons d'aérosol allant de 315 nm à 1,26 μm - tailles pour lesquelles les efficacités de collecte sont modifiées dans les matrices *Cas_Ref*, *Strat_Attrac* et *Strat_Repuls* par les effets électrostatiques.

4.2.2.3 ÉVOLUTION DU SPECTRE GRANULOMETRIQUE DANS LE NUAGE

Le spectre granulométrique de l'aérosol de type 2 au centre du nuage (990 m) est présenté sur la Figure 4-37 au début (0 min) et à la fin (60 min) de la deuxième période - soit deux cellules nuageuses.

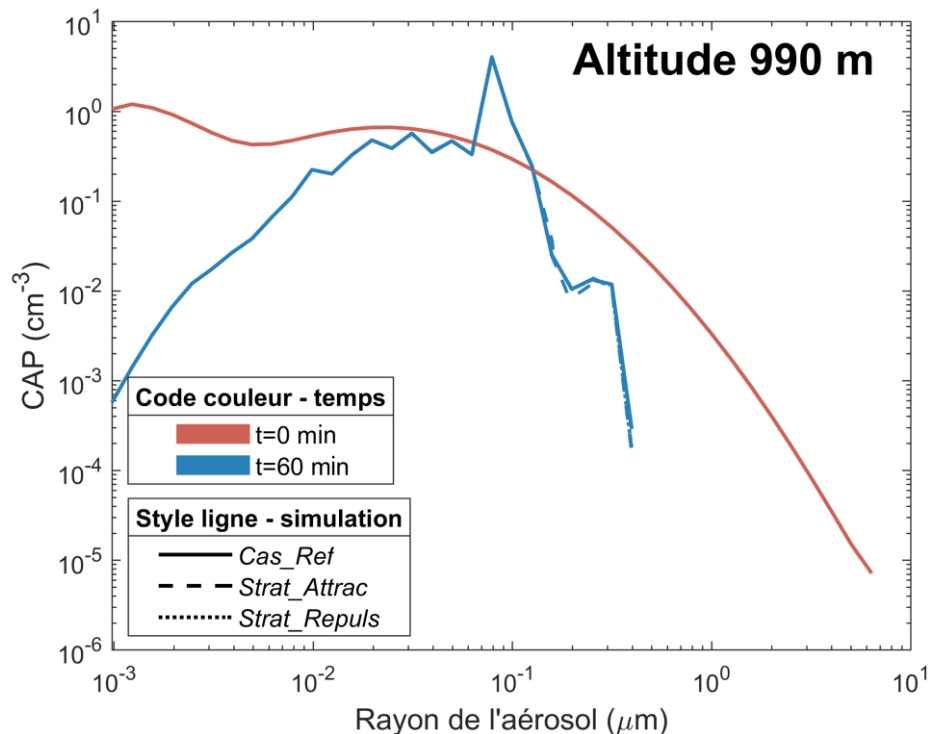


Figure 4-37 Spectre granulométrique de l'aérosol (type 2) à une altitude de 990 m (milieu du nuage stratiforme idéalisé) entre le début et la 60^{ème} minute de simulation.

De la même manière que pour le nuage convectif CCOPE, on examine les variations du spectre, à cette altitude durant les deux premières périodes, liées au mécanisme de collecte dans la microphysique (Figure 4-38) et de la microphysique dans la variation totale de la concentration en aérosol (Figure 4-39).

Pour un aérosol de 1,26 μm , comme pour le cas convectif, la variation liée à la collecte a été augmentée en considérant les effets électrostatiques, passant de $1,5 \times 10^{-7} \text{ cm}^{-3}$ pour le cas sans force électrostatique (*Conv_Repuls*) à $1,9 \times 10^{-5} \text{ cm}^{-3}$ pour les deux matrices (Figure 4-38) considérant les effets électrostatiques (*Strat_Attrac* et *Strat_Repuls*). Néanmoins, les forces électrostatiques étant proportionnelles aux produits des charges, l'effet sur la variation liée à la collecte devient alors significatif pour des aérosols bien plus gros que pour le cas CCOPE dès lors que les charges électriques associées aux gouttes sont inférieures dans le nuage stratiforme modélisé. C'est seulement à partir de 315 nm, que l'on distingue les différences entre les 3 matrices alors que, pour CCOPE, dès 49,6 nm les effets électrostatiques étaient importants.

Même si les niveaux de sursaturation sont plus faibles dans le nuage stratiforme idéalisé (max 0,5 %, Figure 4-12, haut) que dans le nuage liquide CCOPE (max 2 %, Figure 4-8, gauche), le rayon d'activation minimum au centre du nuage est de l'ordre de 300 nm dans les phases de vents ascendants (Figure 4-44, gauche). En témoigne, le rapport de la contribution de la collecte sur la microphysique quasi nul (Figure 4-38, bas). La variation des gros aérosols entre les deux spectres (Figure 4-37) vient donc essentiellement du processus d'activation. Ces aérosols, où les effets électrostatiques sont susceptibles d'être de premier ordre, ont alors tous servi de noyau de nucléation.

Notons que la domination de la collecte dans la microphysique, qui intervient en deuxième partie de période (durant la phase de subsidence), est bien trop marginale pour qu'au bilan, les forces électrostatiques influent sur le spectre granulométrique à cette altitude.

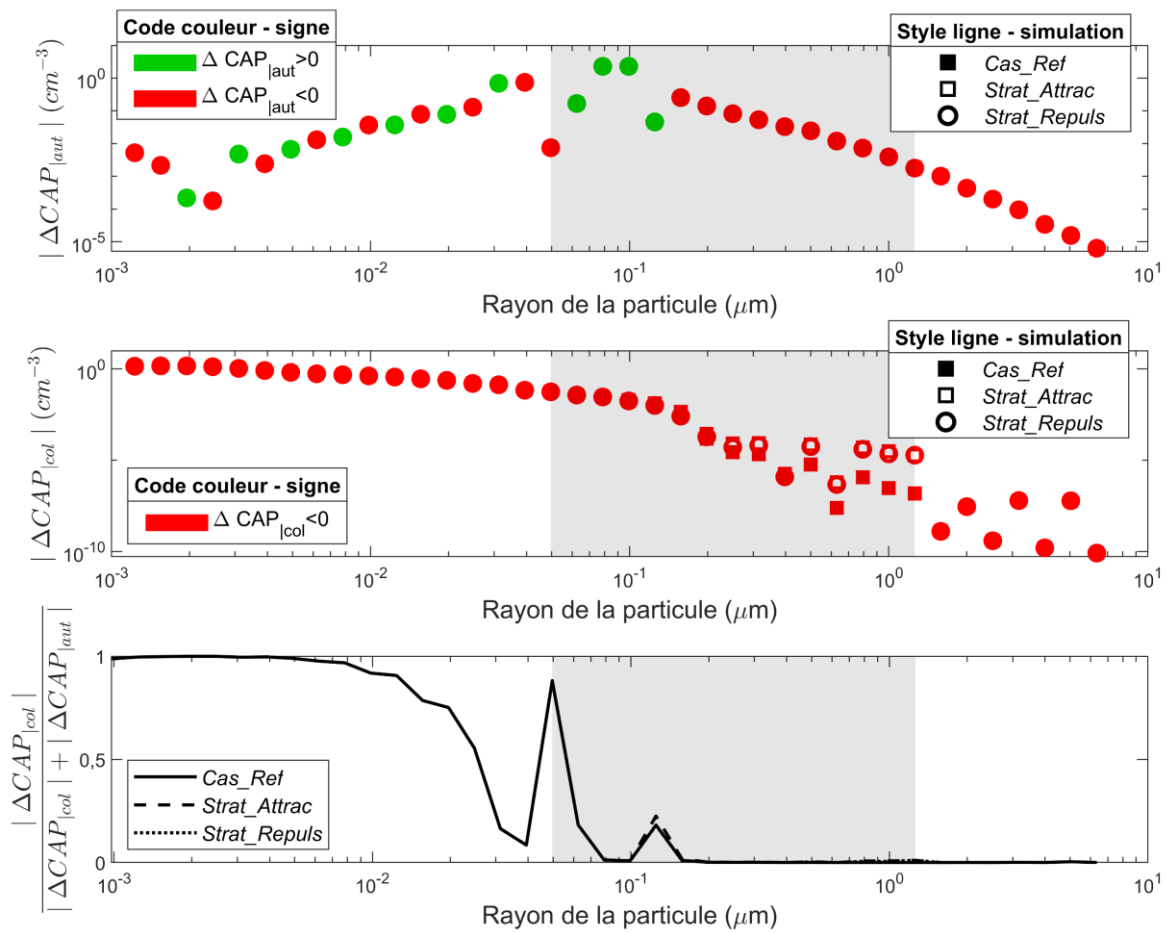


Figure 4-38 Variation de concentration liée à la collecte (**Milieu**) et aux autres processus microphysiques (**Haut**) dans l'évolution du spectre granulométrique de l'aérosol de type 2 au centre de nuage stratiforme idéalisé (990 m) entre le début de la simulation et la 60^{ème} minute. Les résultats sont présentés pour les 3 simulations (pour les matrices *Cas_Ref*, *Strat_Attrac* et *Strat_Repuls*). En vert, la variation est positive - apport d'aérosol - en rouge, la variation est négative - réduction du nombre d'aérosols. Le rapport de la collecte sur la variation du fait de la microphysique est aussi présenté (**Bas**) pour les 3 simulations. La zone grisée représente les tailles d'aérosol où les efficacités de collecte sont modifiées par les effets électrostatiques.

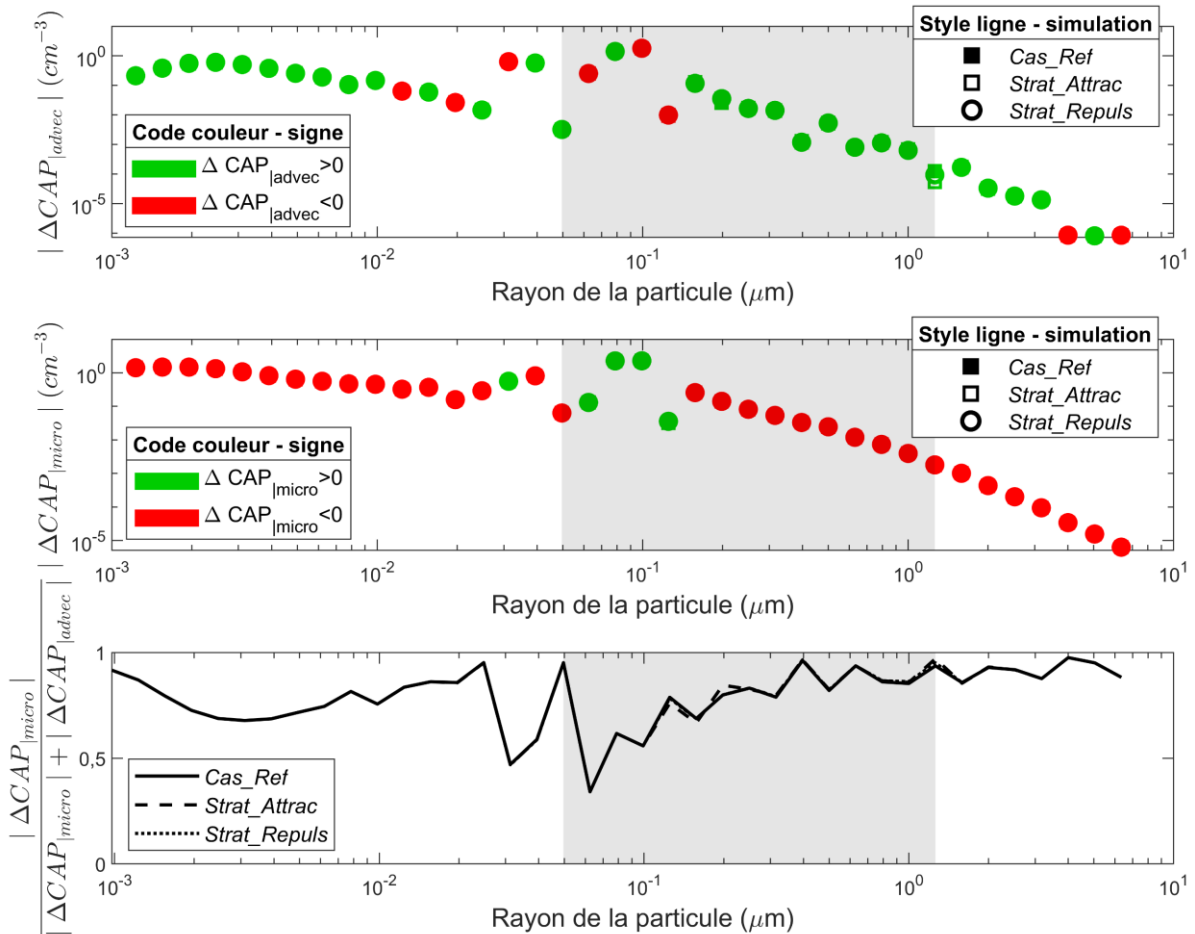


Figure 4-39 Variation de concentration liée à la microphysique (**Milieu**) et à l'advection (**Haut**) dans l'évolution du spectre granulométrique de l'aérosol de type 2 au centre de nuage stratiforme idéalisé (990 m) entre le début de la simulation et la 60^{ème} minute. Les résultats sont présentés pour les 3 simulations (pour les matrices *Cas_Ref*, *Strat_Attrac* et *Strat_Repuls*). En vert, la variation est positive - apport d'aérosol - en rouge, la variation est négative - réduction du nombre d'aérosols. Le rapport de la microphysique sur la variation totale de concentration est aussi présenté (**Bas**) pour les 3 simulations. La zone grisée représente les tailles d'aérosol où les efficacités de collecte sont modifiées par les effets électrostatiques.

4.2.2.4 PARAMETRISATION DE LA CAPTURE DANS LE NUAGE STRATIFORME IDEALISE

Sur les Figures 4-40 et 4-41, le taux de capture intégré sur toute la hauteur du nuage (entre 690 et 1290 m), ainsi que le flux massique (F) d'aérosol (dans les gouttes) sortant du nuage (à 690 m) en fonction de l'intensité pluviométrique sont présentés pour les 3 simulations. Le flux massique est normalisé par la concentration initiale (C_0) en aérosol de type 2. Comme pour le cas convectif CCOPE, les forces électrostatiques n'ont aucun impact sur le taux de capture et la masse d'aérosol précipitante selon les hypothèses de simulation formulées.

Le flux massique d'aérosol (dans les gouttes) sortant du nuage est aussi proportionnel à l'intensité pluviométrique dans un nuage stratiforme. À la suite d'un accident nucléaire, la contamination des sols liée à la capture des radionucléides par le nuage stratiforme peut donc être évaluée grâce à la mesure de l'intensité pluviométrique.

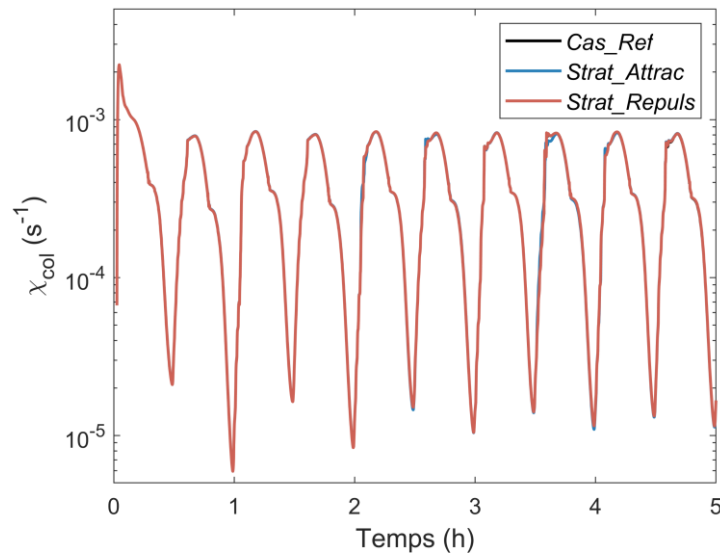


Figure 4-40 Taux de capture intégré sur toute la hauteur du nuage stratiforme idéalisé.

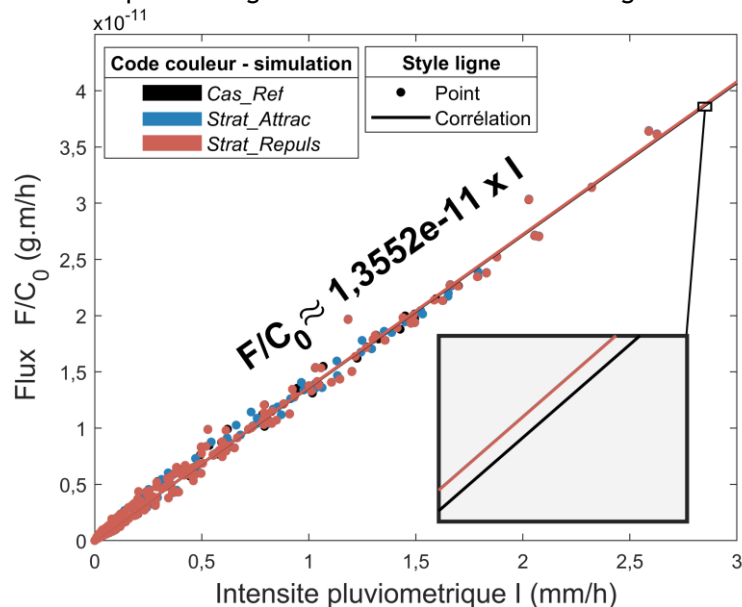


Figure 4-41 Flux d'aérosol (F) dans les gouttes sortant du nuage (690 m), normalisé par la concentration initiale (C_0) en aérosol de type 2, fonction de l'intensité pluviométrique à la base de nuage.

4.2.2.5 CAS PARTICULIER - DISTRIBUTION EN TAILLE MONODISPERSEE DE L'AEROSOL RADIOACTIF

Comme pour le nuage convectif CCOPE, dans cette partie on considère la distribution en taille de l'aérosol de type 2 initialement monodispersée au sein du nuage stratiforme idéal, 100 fois moins concentré que l'aérosol atmosphérique à la même taille. Sur la Figure 4-42 à gauche, pour des aérosols de 315 nm à 1,26 μm , le flux massique (F) d'aérosol de type 2 (dans les gouttes) en fonction de l'intensité pluviométrique est présenté. Ce flux est normalisé par la concentration initiale au sol (C_0) de l'aérosol de type 2. À droite, le coefficient de capture intégré sur la hauteur du nuage est visible. Suivant la loi de charge affectée à l'aérosol de type 2 (Figure 4-16) et des charges électriques plus faibles sur les gouttes du nuage stratiforme (comparé au cas convectif CCOPE), l'effet des forces électrostatiques est significatif sur le taux de capture à partir de 315 nm - augmentant pour des aérosols plus gros. Néanmoins, la masse sortante du nuage est inchangée entre les différentes simulations car à partir de 300 nm, l'activation est motrice de la microphysique. Les oscillations du taux de capture illustrent les zones où le taux de capture est peu ou pas défini (zones blanches sur la Figure 4-34).

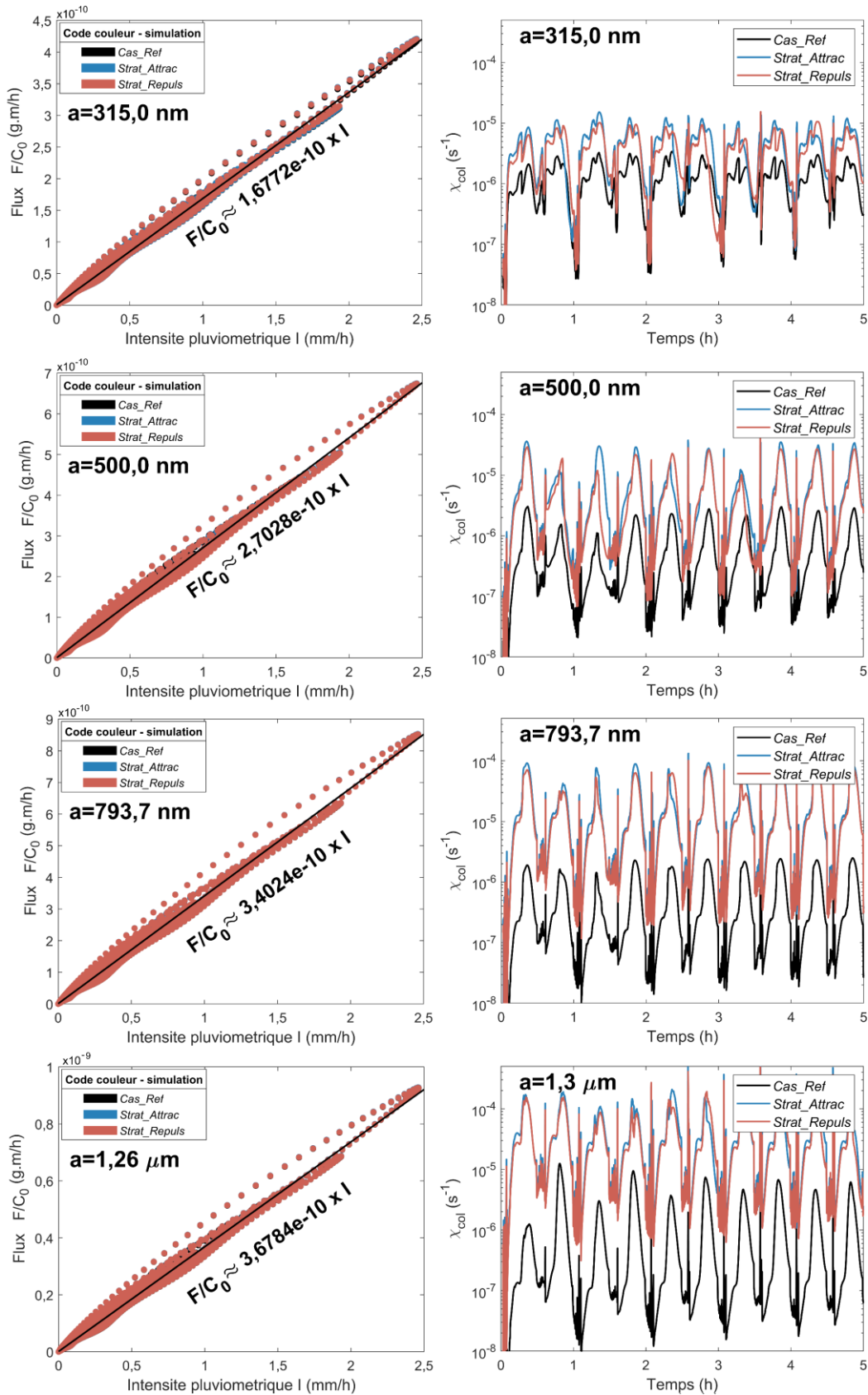


Figure 4-42 Taux de capture intégrés sur toute la hauteur du stratiforme idéalisé (Droite) et flux massique (F) d'aérosol (dans les gouttes) sortant du nuage, normalisés par la concentration initiale totale (C_0) d'aérosol de type 2, en fonction de l'intensité pluviométrique à la base de nuage (Gauche) pour un aérosol de type 2 de rayon compris entre 315 nm (Haut) et 1,26 μm (Bas).

4.3 RESUME DU CHAPITRE 4 ET PERSPECTIVES

4.3.1 RESUME DES RESULTATS

Dans ce chapitre, la contribution au sein du nuage du mécanisme de collecte a été étudiée à travers deux types de nuage - un nuage convectif simulant les observations CCOPE et un nuage stratiforme idéalisé inspiré des travaux de Zhang et al. (2004). Deux types d'aérosol ont été considérés dans les simulations. Le premier définit l'aérosol atmosphérique dont sa distribution granulométrique suit celle d'un aérosol continental de Jaenicke (1993), de charge électrique nulle et de paramètre d'hygroscopicité égal à celui du sulfate de sodium. Le deuxième type d'aérosol, considéré comme radioactif, possède la même distribution que l'aérosol atmosphérique mais de concentration diminuée d'un facteur 100 pour ne pas perturber la dynamique du nuage. Les hypothèses menant à la loi de charge de l'aérosol radioactif tiennent compte de la caractérisation des isotopes de Césium 134 et 137 émis à la suite de l'accident du CNPE-FD en 2011. Par ailleurs, l'aérosol caractérisé à la suite de l'accident est hydrophobe, essentiellement constitué de métal. Le paramètre d'hygroscopicité considéré sur le type 2 a alors été abaissé. Sur le spectre granulométrique défini, seuls les aérosols entre 49,6 nm et 1,26 μm sont considérés électriquement chargés - les plus gros aérosols étant des noyaux de nucléation pour les gouttes (et dont les hypothèses du CHAPITRE 2 ne permettent pas leur évaluation) tandis que la charge des plus petits est calculée nulle. Différentes matrices d'efficacité de collecte ont alors été établies afin d'intégrer l'effet des forces électrostatiques, suivant que l'aérosol est considéré non chargé, de même polarité que les gouttes nuageuses ou de polarité opposée.

Pour le nuage convectif CCOPE, l'effet des forces électrostatiques est significatif dès 49,6 nm (même si la charge considérée est inférieure à 1 charge élémentaire). En revanche, on observe un impact des nouvelles matrices à partir de rayons d'aérosol supérieurs à 300 nm dans le nuage stratiforme idéalisé. Cette différence est à attribuer aux charges électriques portées par les gouttes du nuage stratiforme, plus faibles que dans un nuage convectif. Dans les deux types de nuages, le taux de capture est augmenté de plus de deux ordres de grandeur pour les aérosols les plus chargés de rayon 1,26 μm , lorsque les gouttes et les aérosols sont de polarité opposée. Dans le nuage stratiforme idéalisé, cette augmentation s'observe aussi pour des charges de même polarité dès lors que les charges électriques sur les gouttes sont insuffisantes pour repousser les particules. En revanche, ce fait n'est plus vérifié dans un nuage convectif où le terme CLD est suffisamment répulsif pour induire une diminution significative du taux de capture de plusieurs ordres de grandeur.

Au sein du nuage liquide CCOPE, les niveaux de sursaturation sont de l'ordre d'1 % avec des pics à 2 %. Dès lors, le mécanisme de collecte devient négligeable pour des aérosols supérieurs à 70 nm qui sont alors des noyaux de condensation. Pour des aérosols plus petits, la collecte domine et les effets électrostatiques sont de premier ordre sur le flux massique d'aérosol dans les gouttes sortant du nuage. Cela a notamment été observé pour une distribution en taille monodispersée d'un aérosol de 49,6 et 62,5 nm et ce, même si leur charge électrique moyenne est inférieure à 1 charge élémentaire. Pour rappel, une activité de 1,4 Bq a été considérée pour un aérosol de 1,3 μm de rayon (Adachi et al., 2013). Un rapport de masse permet d'obtenir l'activité des aérosols pour tous les rayons de la grille DESCAM pour ensuite évaluer leur charge électrique via le modèle de Clement et Harrison (1992). Cette hypothèse induit des charges nulles sur les aérosols inférieurs à 49,6 nm. Néanmoins, cette évaluation est une valeur moyenne. En réalité, une fraction de ces particules est chargée et, même faiblement, pourrait avoir une incidence majeure sur le mécanisme de collecte, dominant la microphysique pour ces tailles. De plus, pour des rejets avec des activités par particule plus importantes, les charges électriques sur les aérosols nanométriques se verraient augmentées. À terme, l'impact des forces électrostatiques sur un nuage aussi convectif que CCOPE (avec de forts vents ascendants et d'importants niveaux de sursaturation), bien que déjà observé, serait accentué.

Dans le nuage stratiforme, les niveaux de sursaturation sont inférieurs au nuage convectif, avec des maxima à 0,5 %. Pour autant, le rayon d'activation (durant les phases de vents ascendants) est de l'ordre de 300 nm (Figure 4-44, gauche) au centre de nuage. Pour les aérosols supérieurs à 300 nm, où les effets électrostatiques deviennent pourtant significatifs, l'activation domine le processus de collecte. Dans ce nuage stratiforme idéalisé, la loi de charge considérée sur l'aérosol rend donc l'effet des forces électrostatiques négligeable. Néanmoins, pour des charges plus importantes sur les aérosols

nanométriques, la collecte domine la microphysique et il y a tout lieu de penser que l'impact des forces électrostatiques est important.

Bien que les effets électrostatiques soient de second ordre, comparés à l'activation au sein du nuage, des paramétrisations du flux massique d'aérosol, dans les gouttes, en sortie du nuage ont été déterminées. Aussi bien pour un nuage convectif que stratiforme, le flux massique est proportionnel à l'intensité pluviométrique à la base du nuage. Ce résultat est très important dans un contexte de sûreté nucléaire. En effet, à la suite d'un accident nucléaire, la mesure de l'intensité pluviométrique peut permettre d'évaluer la contamination des sols liée à la capture des radionucléides par les nuages.

4.3.2 REMARQUES SUR LE MODELE DESCAM

Dans DESCAM, lorsqu'un aérosol est activé, celui-ci quitte le réservoir d'aérosol. Le processus de collecte entre cet aérosol, dorénavant vu comme une goutte, et une goutte est remplacé par le processus de coalescence entre gouttes. Ce processus est décrit de la même façon dans DESCAM que pour la collecte, faisant intervenir des valeurs d'efficacité. Pour autant, la matrice considérée est tirée des données de Hall (1980). Les effets de la densité de cet ancien aérosol, de l'humidité relative et des charges électriques sont tous négligés. Les centaines de charges élémentaires sur un aérosol de $1,26 \mu\text{m}$ ne sont alors plus considérées. Pourtant, la charge électrique de cette nouvelle goutte (de quelques micromètres) augmenterait l'efficacité de coalescence avec d'autres gouttes de nuage, elles aussi chargées.

L'activation dans le modèle DESCAM est régie avant le processus de collecte et, le plus souvent, inhibe complètement ce dernier. En effet, lorsqu'une classe de tailles est supérieure au rayon d'activation et que la quantité de vapeur disponible est suffisante, ce sont tous les aérosols de cette taille qui passent dans le réservoir des gouttes et qui ne pourront pas être collectés. Pour autant, considérer le processus d'activation avant la collecte, durant un pas de temps, se justifie par le fait que l'équilibre entre le milieu humide et les aérosols se fait quasi instantanément. Néanmoins, il serait intéressant d'inverser cet ordonnancement afin d'évaluer, dans DESCAM, l'impact sur la contribution du mécanisme de collecte.

Visible sur la Figure 4-14, l'efficacité de collecte des plus petites gouttes tend, dans DESCAM, vers zéro pour des aérosols microniques ($a > 1,3 \mu\text{m}$), du fait du modèle de Wang et al. (1978) considéré. Pourtant, le mécanisme d'impaction inertiel implique, à une taille de goutte fixée, une augmentation de l'efficacité de collecte pour des aérosols microniques. Cette mauvaise évaluation des efficacités de collecte pour ces tailles d'aérosols microniques, est néanmoins compensée par le fait que, dans un nuage, ces aérosols soient globalement tous activés. Pourtant, il peut exister des régions localisées du nuage (convectif ou stratiforme comme montré dans ce chapitre) où les niveaux d'humidité relative ne permettent pas l'activation de ces gros aérosols ($a > 1,3 \mu\text{m}$). Dans ce cas, ces aérosols interstitiels ne seront pourtant pas collectés par les gouttes, dès lors que les efficacités de collecte sont anormalement basses (jusqu'à 10^{-37}). À terme, il est possible qu'une partie du mécanisme de collecte soit, à tort, inhibée.

4.3.3 AXES D'ETUDE ENVISAGÉS

4.3.3.1 PARAMETRE D'HYGROSCOPICITE

Dans ce chapitre, le paramètre d'hygroscopicité de l'aérosol de type 2 a été fixé à 0,001, ce qui est caractéristique d'un aérosol faiblement hygroscopique (Petters et Kreidenweis, 2007). Néanmoins, il est possible de se placer dans le cas extrême d'un aérosol non hygroscopique, de paramètre d'hygroscopicité nul. Adachi et al. (2013) considèrent d'ailleurs cette valeur dans leurs simulations, dès lors qu'ils ont caractérisé des radionucléides essentiellement composés de métaux dans les rejets engendrés par l'accident du CNPE-FD.

Sur la Figure 4-43, l'équilibre du rayon humide de l'aérosol avec la sursaturation d'un air humide est présenté pour plusieurs tailles d'aérosols avec le paramètre d'hygroscopicité utilisé dans le chapitre, égal à 0,001. Un facteur d'hygroscopicité nul est aussi présenté sur la figure. Pour ce dernier,

uniquement l'effet de Kelvin (Köhler, 1936), lié à la courbure de l'aérosol, détermine le niveau de sursaturation nécessaire à l'activation. Ce cas minimise le mécanisme d'activation dans le nuage et maximise le processus de collecte.

En perspective, des simulations ont alors été faites afin d'observer l'impact sur le flux massique d'aérosol de type 2 (dans les gouttes) sortant des nuages convectif CCOPE et stratiforme idéalisé. Néanmoins, aucun effet notable n'a été observé pour les rayons examinés (99,2 nm et 300 nm pour le cas CCOPE ; entre 300 nm et 1,26 μm pour le nuage stratiforme). Cela peut s'expliquer par les niveaux de sursaturation nécessaires pour l'activation de l'aérosol, très proches pour des paramètres d'hygroscopicité de 0,001 et 0. Sur la Figure 4-43, pour un aérosol de rayon sec 30 nm, le niveau de sursaturation nécessaire à l'activation passe de 3,11 % à 3,77 % en considérant non plus le paramètre d'hygroscopicité utilisé dans ce chapitre, mais le cas extrême d'un aérosol non hygroscopique. Pour l'aérosol atmosphérique de type 1 (de paramètre d'hygroscopicité 0,61), le même rayon d'aérosol sec s'active pour une sursaturation de 0,35 % (Figure 4-17).

Pour autant, l'étude a été très succincte et nécessite un approfondissement. La minimisation de l'activation implique nécessairement une incidence dans le nuage convectif CCOPE, comme dans le nuage stratiforme idéalisé.

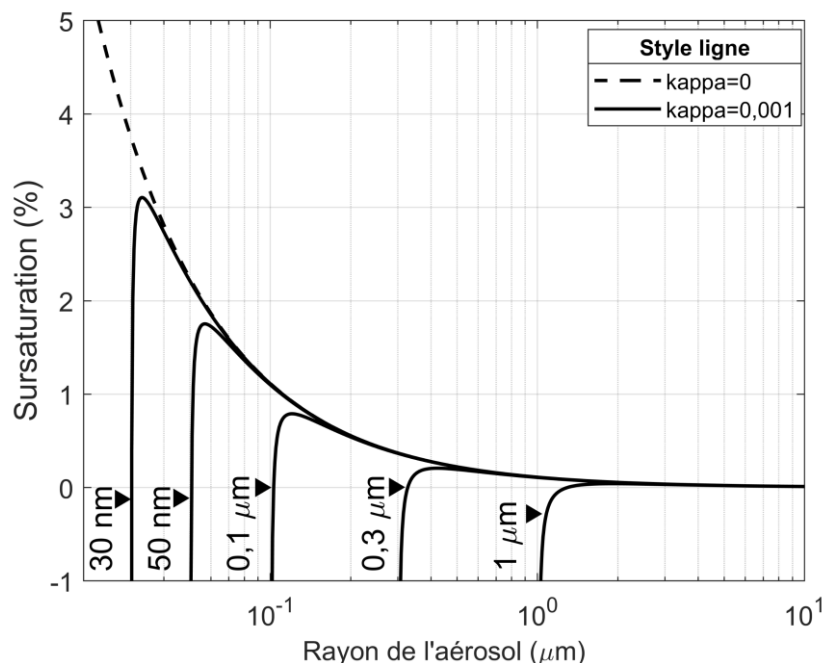


Figure 4-43 Courbes d'équilibre du rayon humide d'un aérosol avec la sursaturation de l'air par rapport à l'eau liquide (température +15 °C et tension de surface $7,38 \times 10^{-2} \text{ N.m}^{-1}$) pour différents rayons secs avec un paramètre d'hygroscopicité de l'aérosol de 0,001 (Petters et Kreidenweis, 2007). La courbe tiretée représente l'effet de Kelvin (Köhler, 1936) pour un paramètre d'hygroscopicité nul.

4.3.3.2 NUAGE STRATIFORME IDEALISE - DIMINUTION DES VENTS ASCENDANTS

Le nuage stratiforme idéalisé qui a été modélisé dans ce chapitre se caractérise par des pics d'intensité pluviométrique à 1 mm.h^{-1} (Figure 4-10, droite), ce qui est représentatif des maxima de taux de précipitation stratiforme, observés en France (Depuydt, 2013). Dans le futur, un axe d'étude intéressant consisterait à modéliser cette fois la borne inférieure des intensités pluviométriques de nuage stratiforme, de l'ordre de $0,1 \text{ mm.h}^{-1}$ (Depuydt, 2013).

Pour ce faire, il est possible de modifier les valeurs des vents verticaux, à travers les paramètres w_0 et w_1 (Équations 4-9). L'intensité pluviométrique et le cumul des précipitations au sol sont présentés sur la Figure 4-44 à droite pour des paramètres w_0 et w_1 abaissés respectivement à 0,03 et $0,15 \text{ m.s}^{-1}$ ($w_0 = 0,2$ et $w_1 = 0,8 \text{ m.s}^{-1}$ pour le stratiforme idéalisé développé dans ce chapitre). Ces

nouveaux paramètres induisent des intensités maximales de l'ordre de $0,1 \text{ mm}\cdot\text{h}^{-1}$. À terme, les niveaux maximums de saturation sont diminués à environ $0,2 \%$ ($0,5 \%$ précédemment, Figure 4-12, gauche).

Pour ce nouveau nuage stratiforme, le processus d'activation est donc diminué, comme en témoigne la Figure 4-44 (gauche) où sont présentés les maxima locaux du rayon d'activation dans les deux cas. Alors que pour le nuage étudié dans ce chapitre, à partir de 300 nm les aérosols étaient activés - avec les vents ascendants abaissés, uniquement les aérosols supérieurs à 510 nm vont passer dans le réservoir des gouttes. Pour rappel, les effets électrostatiques sont significatifs à partir de 300 nm . Finalement, alors que dans le premier nuage stratiforme les forces électrostatiques ne pouvaient pas influencer la masse sortante du nuage, pour ce deuxième nuage on observe une incidence - visible sur la Figure 4-45.

On remarque notamment que :

- Les forces électrostatiques (matrices *Strat_Attrac* et *Strat_Repuls*) augmentent significativement la masse d'aérosol qui sort du nuage pour un aérosol de 315 nm , comparé au cas sans forces électrostatiques (matrice *Cas_Ref*) ;
- Cette contribution des forces électrostatiques augmente visiblement entre un aérosol de 315 nm et 500 nm car la charge électrique sur l'aérosol croît ;
- Pour un rayon d'aérosol supérieur à 500 nm , l'effet des forces électrostatiques diminue quand on augmente la taille de l'aérosol. Le rayon d'activation étant de l'ordre de 510 nm (Figure 4-44, gauche), la contribution de l'activation augmente donc à partir de 500 nm , au détriment des forces électrostatiques.

À noter que la relation liant le flux massique en aérosol (dans les gouttes) sortant du nuage avec l'intensité pluviométrique semble beaucoup moins évidente que précédemment où les corrélations étaient essentiellement linéaires. Ces nouveaux résultats demandent encore à être approfondis mais cette différence est possiblement due :

- Au taux de saturation qui devient stable seulement à partir de 4 h (illustré par le rayon d'activation qui atteint un palier sur la Figure 4-44). Le rapport des contributions de la collecte et de l'activation varie alors beaucoup avant 4 h ;
- Aux vents verticaux qui sont si faibles que la quantité d'aérosol advectée depuis le sommet du nuage vers son centre est possiblement insuffisante. La concentration au centre du nuage baisse alors drastiquement durant la simulation, et la normalisation par la concentration initiale est peut-être mal adaptée. Normaliser par la concentration totale dans le nuage au cours du temps serait peut-être plus justifié.

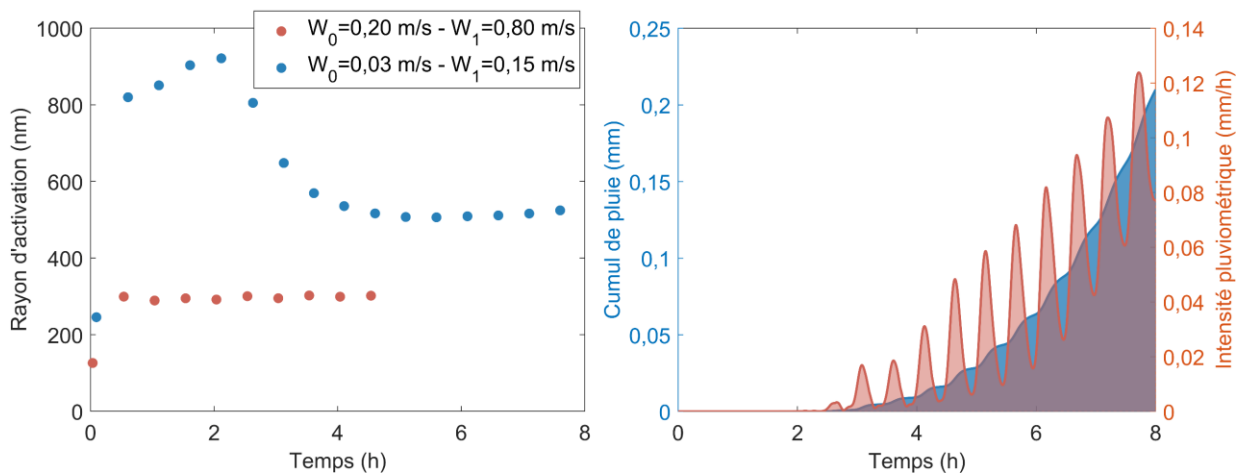


Figure 4-44 (Gauche) Maxima locaux (durant les phases de vents ascendants) du rayon d'activation au centre du nuage (990 m) pour deux profils de vents verticaux. (Droite) Intensité pluviométrique et cumul de pluie au sol pour le nuage stratiforme ($w_0 = 0,03 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ et $w_1 = 0,15 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$).

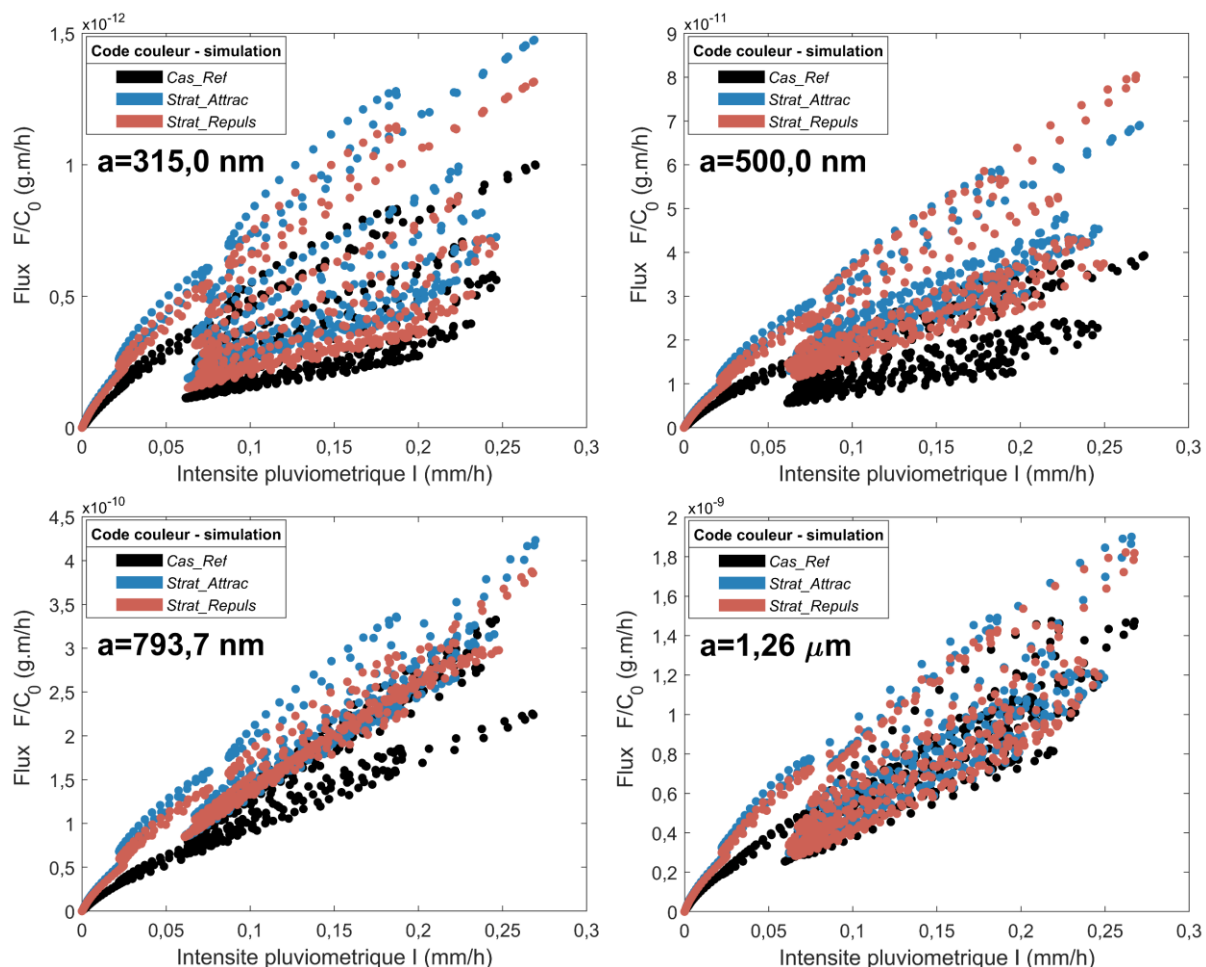


Figure 4-45 Flux (F) massique (dans les gouttes) sortant du nuage (690 m), normalisé par la concentration initiale (C_0) de l'aérosol (type 2), en fonction de l'intensité pluviométrique à la base de nuage pour un aérosol de rayon compris entre 315 nm (Haut, Gauche) et 1,26 μm (Bas, Droite).

4.3.3.3 NUAGE STRATIFORME IDEALISE - RABATTEMENT SOUS LE NUAGE

Dans la partie nuage liquide de CCOPE et dans le nuage stratiforme idéalisé, les rayons de goutte moyens sont respectivement de 12,2 μm (Figure 4-7, gauche) et de 7,9 μm (Figure 4-11, droite). Ces tailles de goutte ne correspondent qu'à une petite partie des efficacités modifiées dans DESCAM qui vont jusqu'à des rayons de goutte de 100 μm .

Pour le nuage convectif CCOPE, la concentration commence à diminuer à partir de 45 min dans les trois premiers kilomètres (Figure 4-13). Ce moment correspond au début des précipitations qui, avec la subsidence, œuvrent à rabattre les aérosols situés sous le nuage. On observe aussi une diminution de la concentration en aérosol sous le nuage stratiforme idéalisé (Figure 4-13) qui, contrairement au cas convectif CCOPE, est entièrement à attribuer au rabattement par la pluie. En effet, il n'y a pas de subsidence pour ce nuage, la vitesse des vents est nulle en dessous de 690 m.

Partant de ce constat, il serait intéressant d'examiner l'impact des forces électrostatiques sur le rabattement par les précipitations. Pour le nuage convectif CCOPE, les rayons de goutte sont de l'ordre du millimètre. Quant à savoir si les effets électrostatiques ont une incidence pour des gouttes millimétriques - ce qui n'a pas été vu expérimentalement dans les travaux de Sow et Lemaitre (2016) dès lors que les effets dynamiques sont importants - ici, il n'y en aura aucune. En effet, comme indiqué précédemment, seules les efficacités de collecte pour des rayons de goutte inférieurs à 100 μm ont été changées.

En revanche, sous le nuage stratiforme idéalisé, le rayon moyen est de $78,8 \mu\text{m}$. Les nouvelles matrices d'efficacité peuvent modifier le rabattement des aérosols sous un tel nuage. Pour étudier cela, l'initialisation du nuage stratiforme est la même qu'en section 4.1.2, à quelques différences près. Ici, on définit l'aérosol de type 2 comme étant monodispersé de rayon $1,26 \mu\text{m}$, de concentration 100 fois inférieure à l'aérosol atmosphérique (type 1) et constante entre le sol et l'altitude 660 m (sous le nuage). À partir de 690 m, sa concentration est fixée à zéro. Ainsi, la masse de l'aérosol de type 2, que l'on retrouve dans une goutte qui touche le sol, vient uniquement du rabattement sous le nuage.

Sur la Figure 4-46, le cumul de la masse d'aérosol de type 2 dans les gouttes au niveau du sol est présenté avec et sans les forces électrostatiques. Au bilan des 5 heures de simulation, les forces électrostatiques ont induit une augmentation de la masse captée par les gouttes de 49 % (*Strat_Repuls*) et 62 % (*Strat_Attrac*) par rapport au cas de référence (*Cas_Ref*) dépourvu de ces effets. Le rabattement sous le nuage par les effets électrostatiques est alors un axe de recherche important - les pluies stratiformes constituant, pour nos latitudes (entre 23° et 60°), la majeure partie des événements pluvieux (Ruiz-Leo et al., 2013 ; Rulfová et Kyselý, 2013 ; Feidas et Giannakos, 2012 ; Depuydt, 2013).

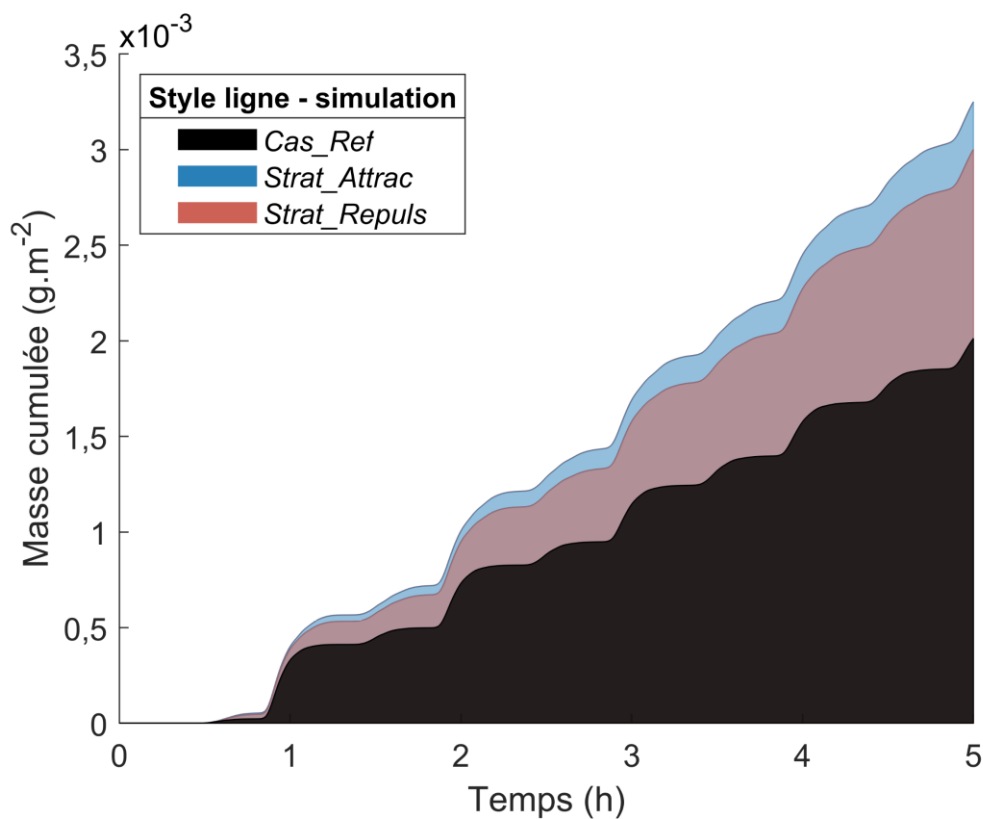


Figure 4-46 Cumul au sol de la masse d'aérosol (type 2) dans les gouttes au cours du temps avec (*Strat_Attrac*, *Strat_Repuls*) et sans (*Cas_Ref*) les forces électrostatiques.

CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES

Dans l'éventualité d'un rejet accidentel de radionucléides dans l'atmosphère, l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) développe des modèles de dispersion et de dépôt des particules porteuses de radioactivité. L'accident du Centre Nucléaire de Production d'Électricité de Fukushima en 2011 a permis de déployer ces modèles de crise et d'en tirer plusieurs enseignements. Aujourd'hui, la modélisation de la propagation du panache radioactif et du dépôt - sec ou humide - des aérosols radioactifs ne permet pas une estimation fine de la contamination des sols (Renaud et Gurriaran, 2009 ; Mathieu et al., 2012). Parmi les études menées afin d'améliorer la connaissance des dépôts, les travaux présentés dans ce manuscrit se focalisent sur la collecte des particules par les nuages qui est le mécanisme principal du dépôt humide (Flossmann, 1998 ; Laguionie et al., 2014). Au sein du nuage, il y a deux méthodes pour que les particules entrent dans la phase liquide - par mécanisme d'activation en servant de noyau de condensation ou par processus de collecte. Dans cette thèse, le choix a été fait de se focaliser sur la collecte des particules par les gouttes de nuage. Plus particulièrement, après avoir évalué à plusieurs centaines de charges élémentaires la charge électrique des aérosols radioactifs émis à la suite de l'accident du Centre Nucléaire de Production d'Électricité du Fukushima Daiichi (2011), il a semblé essentiel d'étudier l'impact des forces électrostatiques sur le mécanisme de collecte. D'autant plus que beaucoup de mesures *in situ* mettent en évidence un grand nombre de charges portées par les gouttes dans les nuages.

Dans la gamme de taille considérée, la modélisation de l'écoulement de l'air autour d'une goutte est possible. Au travers de l'étude de la littérature, il est apparu qu'aucun modèle disponible ne décrivait tous les mécanismes microphysiques menant une particule à être collectée par une goutte de nuage - le poids, l'inertie, le mouvement brownien des particules, les forces de thermophorèse et de diffusiophorèse et, les forces électrostatiques - pour les tailles et charges sur la goutte et les particules étudiées. Il a été décidé de développer un modèle lagrangien tridimensionnel de suivi des particules. De ce nouveau modèle, un paramètre microphysique décrivant la collecte est calculé - l'efficacité de collecte des aérosols par les gouttes. Dès lors, près de 3000 efficacités de collecte ont théoriquement été établies, pour des charges et des tailles de gouttes et des aérosols, respectivement représentatives des nuages convectifs et stratiformes et de l'aérosol atmosphérique radioactif ou non. Cette première approche microphysique a permis de mettre en évidence une variation sur cinq ordres de grandeur de l'efficacité de collecte du fait des forces électrostatiques considérées tout en examinant la contribution de chacun des mécanismes pour différentes gammes de taille d'aérosols et de particules. À terme, il est aussi apparu important de considérer les forces de thermophorèse et de diffusiophorèse qui influent au premier ordre sur la collecte. Ces effets interviennent notamment dans un air sous-saturé et deviennent très vite de premier ordre lorsque l'humidité relative diminue.

Par la suite, ces nouvelles efficacités de collecte ont nécessité une validation expérimentale. Après une revue des mesures disponibles, il s'est avéré que la plupart des auteurs s'étaient heurtés aux difficultés de contrôler l'ensemble des paramètres d'influence. Leurs mesures sont donc difficilement inter-comparables, entachées d'incertitudes et limitées pour valider le modèle développé. De ce constat, l'expérience In-CASE (In-Cloud Aerosol Scavenging Experiment) a été construite afin de permettre la mesure de l'efficacité de collecte d'aérosols submicroniques par des gouttes microniques en contrôlant rigoureusement à la fois les conditions thermodynamiques et les charges électriques des gouttes et des particules. Pour ce faire, un dispositif de charge par induction électrostatique et un chargeur par champ ont été construits et caractérisés durant la thèse afin de charger les gouttes et les particules respectivement. Dans cette expérience, l'humidité relative est indirectement asservie via un système thermostaté fixant la température. Deux campagnes de mesures ont alors été réalisées pour la validation du modèle. La première visait à étudier l'influence de l'humidité relative sur l'efficacité de collecte. Pour ce faire, 18 mesures d'efficacité de collecte ont été réalisées, réparties sur trois humidités relatives (71,1, 82,4 et 93,5 %), six diamètres secs d'aérosol (compris entre 100 et 600 nm) et un diamètre de goutte de 100 μm . Ces premières mesures, inexistantes dans la littérature, ont montré de très bonnes similitudes avec les résultats du modèle et, par la même occasion, avec un autre modèle de la littérature ne tenant pas compte des forces électrostatiques. Dans la deuxième campagne de mesures, l'impact des charges électriques à cette fois-ci été examiné au travers de 70 mesures, correspondant à sept charges différentes sur des gouttes de 100 μm de diamètre et un aérosol de charges électriques variables suivant son diamètre sec considéré (entre 200 et 500 nm). Ces nouvelles mesures ont validé les variations de l'efficacité de

collecte que prévoit le modèle développé, avec une dépendance s'échelonnant sur 3 ordres de grandeur suivant les charges et les tailles considérées. De plus, une augmentation de l'efficacité de collecte a été mise en évidence lorsque l'on augmente la charge sur l'aérosol alors même que la goutte a été préalablement neutralisée. Cette observation est un résultat d'importance, validant l'existence d'une distribution surfacique de charge qui s'établit sur la goutte au passage des particules chargées et qui, *a fortiori*, augmente l'efficacité de collecte. À notre connaissance, cet effet n'avait encore jamais été montré expérimentalement. Finalement, ces deux campagnes de mesure ont permis de valider les hypothèses formulées lors de l'implémentation du modèle lagrangien. Par ailleurs, les mesures avec des fortes charges de polarité opposée sur la goutte et les particules ont été confrontées à des corrélations de la littérature considérant uniquement les forces électrostatiques coulombiennes attractives. Les comparaisons ont là-aussi validé les hypothèses de modélisation.

Dans une dernière étape, les efficacités de collecte théoriques ont été incorporées au modèle de nuage DESCAM (Flossmann et al., 1985) pour étudier l'impact des forces électrostatiques à méso-échelle. Ce modèle a premièrement été appliqué à un cas réel d'un nuage convectif observé lors de CCOPE (Dye et al., 1986). Puis, des modifications ont été apportées au modèle DESCAM afin de considérer un cas de nuage stratiforme idéal sur la base des travaux de Zhang et al. (2004). Dans les deux types de nuage, des charges électriques de polarité opposée entre les gouttes et les aérosols induisent une augmentation jusqu'à deux ordres de grandeur du taux de capture. Le même constat a été observé pour une même polarité lorsque la charge sur la goutte est faible, caractéristique du nuage stratiforme idéalisé. En revanche, pour des gouttes de nuage convectif fortement chargées, le terme répulsif des forces électrostatiques est suffisamment important pour diminuer significativement la collecte. Néanmoins, l'étude a montré que l'impact des forces électrostatiques était en moyenne négligeable dans la capture au sein des deux nuages modélisés et ce, suivant les hypothèses établies concernant les distributions de tailles et des charges de l'aérosol radioactif. Ce résultat est attribuable aux forces électrostatiques qui deviennent significatives pour des tailles d'aérosol où l'activation est motrice du rabattement. Cependant, des paramétrisations du flux massique d'aérosol dans les gouttes en sortie du nuage ont été déterminées pour les deux types de nuage. Une relation de proportionnalité liant ce flux massique et l'intensité pluviométrique à la base du nuage a été mise en évidence. De telles paramétrisations sont importantes dans un contexte de sûreté nucléaire. Elles permettent de quantifier simplement le rabattement des aérosols radioactifs par les nuages et, à terme, de déterminer la contamination des sols à la suite d'un rejet accidentel dans l'atmosphère.

Les perspectives de cette étude sont multiples. A court terme, il peut être mentionné :

- Les simulations effectuées pour le nuage convectif CCOPE avec une distribution en taille de particules monodispersée ont montré la même dépendance linéaire du flux massique de particules (dans les gouttes en sortie du nuage) à l'intensité pluviométrique pour les plus gros aérosols étudiés. En revanche, pour les aérosols les plus petits (de rayons 49,6 et 62,5 nm) possédant une charge, l'activation dans le nuage n'est pas le mécanisme moteur de leur rabattement, et un fort impact des forces électrostatiques des gouttes sur le flux massique a été observé. Ce résultat montre l'impact des hypothèses de simulation formulées autour de la loi de charge des aérosols et de leur distribution en taille. Il serait intéressant de poursuivre les simulations pour divers couples de taille et de charge sur les particules, les forces électrostatiques ayant une influence significative sur le rabattement.
- La finalisation du nuage stratiforme idéalisé avec de très faibles vitesses verticales de vent présentée en perspective au CHAPITRE 4 serait un axe d'étude à envisager. Dans un tel nuage, on peut supposer que le mécanisme d'activation intervient pour des tailles d'aérosol plus grandes et laisse entrevoir alors un effet plus important des forces électrostatiques sur le rabattement. De plus, il a été observé une nette augmentation du rabattement des aérosols du fait des forces électrostatiques par les pluies stratiformes qui constituent dans nos latitudes la majorité des précipitations annuelles. Ce résultat est donc très important dans un contexte de sûreté nucléaire et mérite notamment d'étendre l'étude à différentes tailles et charges des aérosols sous le nuage pour établir des paramétrisations applicables à différents termes sources.

- Il serait aussi nécessaire d'étudier le rabattement par les pluies convectives qui, bien que moins fréquentes pour nos latitudes, possèdent les plus grands taux de rabattement - étant globalement proportionnel à l'intensité pluviométrique comme il a été vu au CHAPITRE 4. De plus, l'étude de Chate et Pranessa (2004) sur l'impact du taux de rabattement par la pluie au cours de plusieurs épisodes orageux a mis en évidence une augmentation de plusieurs ordres de grandeur due aux effets électrostatiques. Dans cette perspective, il est nécessaire d'étendre les tailles de goutte considérées au CHAPITRE 2 ($A \leq 100 \mu\text{m}$), sachant que les gouttes de pluie dans le nuage convectif CCOPE sont de l'ordre du millimètre. Dans un premier temps, des efficacités de collecte peuvent être recalculées jusqu'à des rayons de $600 \mu\text{m}$ où la modélisation le permet. Au-delà, l'extrapolation est nécessaire ou alors, l'utilisation de corrélation de la littérature comme celle de Kraemer et Johnstone (1955) qui été validée au CHAPITRE 3 (pour un rayon de goutte d'environ $50 \mu\text{m}$) ou encore par Wang et al. (1983) (jusqu'à un rayon de goutte de $250 \mu\text{m}$).

Au-delà, de la phase liquide exclusivement étudiée dans cette thèse, les forces électrostatiques peuvent avoir un rôle déterminant sur la phase glace au sein du nuage.

Actuellement, dans DESCAM, une fraction des particules d'aérosol est définie comme glaçogène. Dans les différents mécanismes qui mènent à la formation hétérogène de la glace, les processus de nucléation par immersion ou par contact induisent une impaction entre particules et gouttes de nuage. Actuellement, ces processus sont décrits par une paramétrisation empirique qui lie la fraction des particules susceptibles de congeler les gouttes lors de leur impaction à la température. Plus cette dernière est froide, plus la fraction d'aérosol glaçogène est importante. L'impact des forces électrostatiques sur la glaciation par contact n'est actuellement pas considéré dans le modèle DESCAM. Pourtant, comme il a été vu expérimentalement et numériquement au cours de notre étude, les forces électrostatiques peuvent augmenter de plusieurs ordres de grandeur l'efficacité de collecte d'aérosols glaçogènes par des gouttes. Ainsi, la probabilité qu'une goutte surfondue capte un aérosol glaçogène est décuplée.

Les forces électrostatiques vont aussi contribuer de manière directe à augmenter le taux de glaciation des gouttes surfondues thermodynamiquement instables que ce soit :

- Par contact : L'amplitude des forces électrostatiques variant avec l'inverse du carré de la distance entre la particule et la goutte surfondue, la vitesse de la particule avant impact augmente significativement. À l'impact, l'énergie cinétique de la particule peut être alors suffisante pour déformer la goutte et augmenter sa surface. La tension superficielle augmente donc à l'interface. Dès lors, ce transfert d'énergie peut être suffisant pour franchir la barrière d'énergie nécessaire à la glaciation (Fukuta, 1975a ; Fukuta, 1975b) ;
- Par déposition de vapeur : Gavish et al. (1992) ont montré expérimentalement que la vapeur d'eau condensait pour des températures supérieures lorsqu'il s'agit de cristaux polaires par rapport à des cristaux apolaires ;
- Par immersion : Pruppacher et al. (1968) mettent en évidence l'augmentation du taux de glaciation d'une solution aqueuse (NaCl) en présence de forces électrostatiques. Par ailleurs, Borzsák et Cummings (1997) ont montré que la cristallisation d'une goutte surfondue pouvait être initiée par un champ électrostatique.

Comme on a pu le voir pour le cas CCOPE, l'apparition de la phase glace fait disparaître la phase liquide au profit du grossissement des cristaux de glace par effet Bergeron mais aussi via le givrage. S'ensuit très vite le début des précipitations. Les forces électrostatiques peuvent donc - via l'augmentation du taux de glaciation dans les nuages - accentuer les précipitations, allant même jusqu'à les forcer. L'incidence des effets électrostatiques sur le taux de glaciation est alors un axe d'étude crucial qui va bien au-delà des enjeux de sûreté nucléaire qui ont donné lieu à cette thèse. Changer la dynamique d'un nuage, change son cycle de vie. C'est une étude qu'il faut donc mener dans un objectif de mieux comprendre le cycle de l'eau et le bilan énergétique de notre planète.

Moyennant quelques modifications, le modèle DESCAM serait un outil performant pour étudier numériquement l'impact des forces électrostatiques sur la phase glace. En outre, l'expérience In-CASE développée durant cette thèse est adaptée pour étudier les propriétés glaçogènes des aérosols suivant les forces électrostatiques. En effet, In-CASE permet le contrôle rigoureux des charges électriques sur la goutte et les aérosols et son système de refroidissement permet de descendre à des températures très basses. Pour étudier par exemple la glaciation par contact, il s'agirait d'injecter des gouttes chargées surfondues dans le flux d'aérosols chargés et de visualiser en partie basse de chambre la fraction des gouttes devenue des cristaux de glace.

D'autres applications peuvent aussi bénéficier des résultats de cette thèse, notamment pour les thématiques relatives aux électro-sprays. En effet, le modèle développé au CHAPITRE 2 est adaptable à un système de collecteurs multiples. Il s'agirait de modéliser l'écoulement d'air autour d'un ensemble de gouttes via un solveur numérique puis, le bilan des forces s'appliquant sur une particule pourrait tenir compte de la thermophorèse, de la diffusiophorèse et des forces électrostatiques entre la particule et l'ensemble des gouttes considérées. Dans la plupart des modèles actuels de ce type, le mouvement brownien n'est aucunement modélisé et les forces électrostatiques ne sont réduites qu'aux interactions coulombiennes attractives qui peuvent exister entre les gouttes et les particules. Dans un contexte de sûreté nucléaire, utiliser des électro-sprays permettrait de favoriser grandement le rabattement au sol dans les chantiers de démantèlement par exemple. En effet, comme il l'a été vu expérimentalement, l'efficacité de collecte est grandement augmentée par les charges sur la goutte représentatives des nuages convectifs. Pour autant, ces charges sont bien loin de la limite de Rayleigh des gouttes. Il est donc possible d'accentuer encore plus la capture des aérosols radioactifs grâce aux électro-sprays. De tels dispositifs pourraient tout aussi bien être déployés dans les sites à risque qui, lors d'un rejet accidentel, seraient au plus près de la source afin de réduire au maximum la dispersion des radionucléides dans l'environnement.

ANNEXES

ANNEXE A. DEFINITION DES PARAMETRES D'INTERET

Paramètre	Définition	Expression/Valeur	Unité	Source
B_v	Coefficient lié à la diffusion des particules due au mouvement brownien	$\sqrt{\frac{2k_b T_{air}}{m_p \tau_p}}$	[m.s ^{-3/2}]	Tinsley et al. (2001)
B_p	Mobilité de la particule	$\frac{C_u}{6\pi\eta_{air}a}$	[s.kg ⁻¹]	Tinsley et al. (2001)
C_u	Coefficient correctif de Stokes-Cunningham	$1 + \left(1,257 + 0,4e^{-\frac{1,10}{K_n}}\right) K_n$	[-]	Pruppacher et Klett (1997), Sect. 11.2
C_{df}	Coefficient pour la diffusiophorèse	$-6\pi\eta_{air}a \frac{0,74D_v M_{air} A (\rho_{v,air} - \rho_{v,s}) f_v}{C_u M_{eau} \rho_{air}}$	[kg.m ³ .s ⁻²]	Wang et al. (1978)
C_{th}	Coefficient pour la thermophorèse	$\frac{-12\pi\eta_{air}a (k_{air} + 2,5k_p K_n) k_{air} A (T_{air} - T_{s,g}) f_h}{5P_{air} (1 + 3K_n) (2k_{air} + k_p + 5k_p K_n)}$	[kg.m ³ .s ⁻²]	
D_b	Coefficient de diffusion de Stokes-Einstein	$\frac{C_u k_b T_{air}}{6\pi\eta_{air}a}$	[m ² .s ⁻¹]	Pruppacher et Klett (1997), Sect. 11.2
D_v	Coefficient de diffusion de la vapeur d'eau	$2,11 \times 10^{-5} \times \left(\frac{T_{air}}{273,15}\right)^{1,94} \frac{101325}{P_{air}}$	[m ² .s ⁻¹]	Tinsley et al. (2006)
f_h	Flux de ventilation de chaleur	$\approx f_v$	[-]	Beard et Pruppacher (1971)
f_v	Flux de ventilation de vapeur d'eau	$\begin{cases} 0,78 + 0,308 Sc_w^{\frac{1}{3}} Re^{\frac{1}{2}} & \text{si } Sc_w^{\frac{1}{3}} Re^{\frac{1}{2}} \geq 1,4 \\ 1,0 + 0,108 \left(Sc_w^{\frac{1}{3}} Re^{\frac{1}{2}}\right)^2 & \text{sinon} \end{cases}$	[-]	Beard et Pruppacher (1971)
f_p	Flux de ventilation de particules	$1 + 0,530 Ne^{-\frac{1,1}{N}}$	[-]	Tinsley et Zhou (2015)
$F_{fl,G}$	Force de flottabilité de la particule	$m_g \frac{\rho_{eau} - \rho_{air}}{\rho_{eau}} g$	[kg.m.s ⁻²]	–
$F_{fl,p}$	Force de flottabilité de la particule	$m_p \frac{\rho_p - \rho_{air}}{\rho_p} g$	[kg.m.s ⁻²]	–
k_{air}	Conductivité thermique de l'air sec	$(2,38 + 0,0071 \times (T_{air} - 273,15)) \times 10^{-2}$	[m.kg.s ⁻³ .K ⁻¹]	Tinsley et al. (2006)
K_n	Nombre de Knudsen	$\frac{\lambda_{air}}{a}$	–	Pruppacher et Klett (1997), Sect. 11.1
$K_{bro,Wang}$	Noyau de collecte de la diffusion brownienne	$4\pi A f_p D_b$	[m ³ .s ⁻¹]	Wang et al. (1978)
K_{Wang}	Noyau général de collecte (diffusion brownienne, thermophorèse, diffusiophorèse)	$\frac{4\pi B_p (C_{df} + C_{th})}{\left(e^{\frac{B_p (C_{df} + C_{th})}{AD_b f_p}} - 1\right)}$	[m ³ .s ⁻¹]	Wang et al. (1978)
N	Racine cubique du nombre de Péclet	$\left(\frac{2AU_{\infty,A}}{D_b}\right)^{\frac{1}{3}}$	[-]	Tinsley et Zhou (2015)
Sc_w	Nombre de Schmidt pour la vapeur d'eau	$\frac{\eta_{air}}{\rho_{air} D_v}$	[-]	–
$U_{\infty,a}$	Vitesse de sédimentation de la particule	$\frac{2C_u (\rho_p - \rho_{air}) a^2 g}{9\eta_{air}}$	[m.s ⁻¹]	–

Paramètre	Définition	Expression/Valeur	Unité	Source
η_{air}	Viscosité dynamique de l'air	$1,496 \times 10^{-6} \frac{T_{air}^{1,5}}{T_{air} + 120}$	[kg.m ⁻¹ .s ⁻¹]	Tinsley et al. (2006)
λ_{air}	Libre parcours moyen des molécules dans l'air	$21,55 \eta_{air} \frac{T_{air}^{0,5}}{P_{air}}$	[m]	Tinsley et al. (2006)
ρ_{air}	Densité de l'air	$1,293 \frac{273,15 P_{air}}{T_{air} P_0}$	[kg.m ⁻³]	Loi des gaz parfaits
τ_p	Temps de relaxation de la particule	$\frac{2C_u \rho_p a^2}{9\eta_{air}}$	[s]	Minier et Peirano (2001)

ANNEXE B. MODÈLE MICROPHYSIQUE 2D

B. 1. MÉTHODOLOGIE

B.1.1. CALCUL DE L'EFFICACITE DE COLLECTE

Une première approche consiste à modéliser la capture unitaire de particules par une goutte en 2D - similaire aux travaux de Tinsley et al. (2000) et Tinsley et al. (2001). Ce modèle est notamment utilisé en section 2.2.3.2.1 afin d'optimiser le rayon du disque d'injection.

Une unique particule est injectée dans l'axe de symétrie de l'écoulement (Z , Figure 2-1), à une distance de huit rayons de goutte en amont de celle-ci. Cette particule est suivie dans une approche lagrangienne afin de déterminer si celle-ci est collectée par la goutte, suivant le critère géométrique de collecte (distance normalisée par le rayon de la goutte A) exprimé par (Équation B-1) :

$$r^* \leq 1 + \frac{a}{A} \quad \text{Équation B-1}$$

Avec a le rayon de la particule et r^* la distance goutte/particule normalisée.

Si la particule est collectée par la goutte durant son suivi, une nouvelle trajectoire de particule est calculée en incrémentant la distance initiale à l'axe Z . Un processus itératif est alors utilisé jusqu'au suivi lagrangien de la particule menant à sa sortie du domaine sans contact avec la goutte. *In fine*, on en déduit la distance initiale x_{max} d'injection de la particule de l'axe Z (normalisée par le rayon de la goutte) menant à la collecte de la particule par la goutte. Le volume effectif contenant les particules collectées par la goutte lors de sa chute pendant un intervalle de temps Δt est alors $\pi(Ax_{max})^2 |U_{\infty,A} - U_{\infty,a}| \Delta t$ - avec $U_{\infty,a}$ la vitesse de sédimentation de la particule - tandis que le volume balayé par la goutte est $\pi(A+a)^2 |U_{\infty,A} - U_{\infty,a}| \Delta t$. L'efficacité de collecte est alors déduite à l'aide de l'Équation B-2 :

$$EC = \frac{\pi(Ax_{max})^2 |U_{\infty,A} - U_{\infty,a}| \Delta t}{\pi(A+a)^2 |U_{\infty,A} - U_{\infty,a}| \Delta t} = \frac{x_{max}^2}{\left(1 + \frac{a}{A}\right)^2} \approx x_{max}^2 \quad \text{Équation B-2}$$

B.1.2. SUIVI LAGRANGIEN DES PARTICULES

Seuls la force de traînée et les effets phorétiques (diffusiophorèse F_{df} , électrophorèse F_{el} et thermophorèse F_{th}) sont étudiées dans cette partie. Le mouvement brownien des particules, mais aussi leur poids et leur inertie ne sont pas modélisés. Ainsi, la résolution de la deuxième loi de Newton est directe (Tinsley et al., 2000) (Équations B-3) :

$$\begin{cases} r^*(t + \Delta t) = r^*(t) + \frac{\Delta t}{A} [B_p (F_{df} + F_{el} + F_{th}) + U_{f@p}(t)]_{r^*} \\ \theta(t + \Delta t) = \theta(t) + \frac{\Delta t}{Ar^*(t)} U_{f@p}(t)_{\theta} \end{cases} \quad \text{Équations B-3}$$

Où (r^*, θ) est le système de coordonnées polaires présenté en Figure 2-1, Δt le pas de temps, B_p la mobilité de la particule (Annexe A). Les expressions analytiques des forces sont données au CHAPITRE 1. Contrairement aux travaux de Tinsley et al. (2000) qui utilisent l'expression analytique de Stokes, la vitesse de l'écoulement de l'air à la position de la particule $U_{f@p}(t)$ est ici calculée de la même façon qu'à la section 2.2.2.

B. 2. RÉSULTATS ET DISCUSSIONS

B.2.1. SIMULATIONS SANS FORCES ELECTROSTATIQUES

Des trajectoires de particules autour d'une goutte de 15 μm de rayon sont présentées en Figure B- 1 pour trois tailles d'aérosol dans des conditions de pression et de température caractéristiques de la troposphère moyenne (-17 °C, 540 hPa). L'air est saturé (pas de diffusiophorèse et de thermophorèse). Particules et goutte sont considérées électriquement neutres. Les trajectoires noires sont les simulations menant à une collecte tandis que la trajectoire rouge illustre une particule qui sort du domaine de simulation sans avoir été collectée.

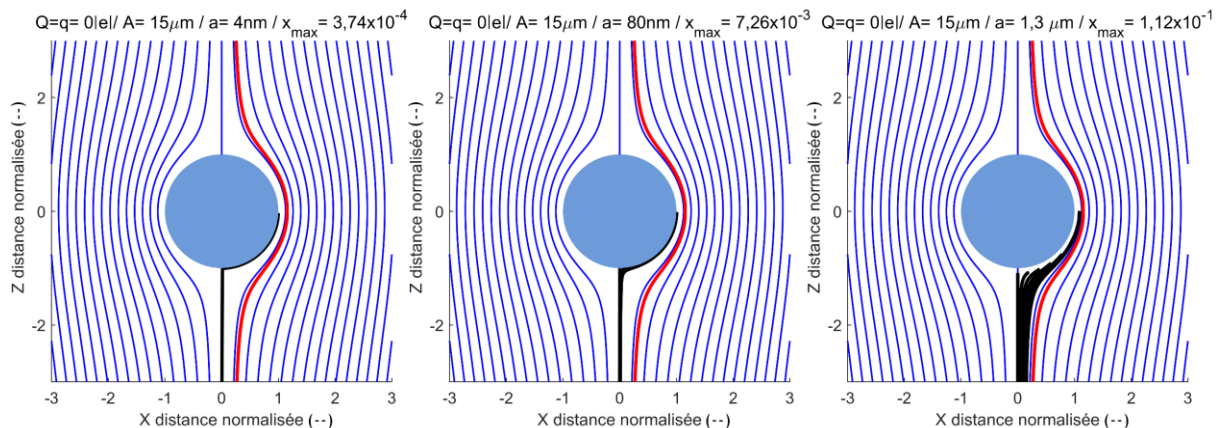


Figure B- 1 Simulation 2D - trajectoires de particule de rayon 4 nm (**Gauche**), 80 nm (**Milieu**) et 1,3 μm (**Droite**) autour d'une goutte de 15 μm en rayon. Goutte et particule sont neutres électriquement. Les trajectoires noires mènent à la collecte tandis que pour les rouges, la collecte a été manquée. Les lignes bleues sont les lignes de courant.

Plus la taille d'un aérosol est grande, plus la distance initiale maximale x_{max} de l'axe Z augmente et finalement plus son efficacité de collecte est importante. Négligeant ici l'inertie, le poids, et le mouvement brownien, les particules suivent strictement les lignes de courant. La collecte d'une particule par la goutte se fait donc uniquement de par sa dimension géométrique. Ainsi, les valeurs d'efficacité de collecte calculées depuis ces simulations sont caractéristiques du mécanisme d'interception et peuvent être confrontées au modèle proposé par Slinn (1974). La Figure B- 2 confronte cette approche au modèle de Slinn (1974) pour deux tailles de goutte. Ici, l'efficacité de collecte est définie par l'Équation B-4 :

$$Ec \approx x_{max}^2 + \left(\frac{2a}{A}\right)^2 \quad \text{Équation B-4}$$

Dans cette équation, le second membre de droite corrige une approximation de l'Équation B-2. En effet, un aérosol positionné initialement sur l'axe de la goutte ($x_{max} = 0$) va suivre la ligne de courant verticale et être collecté par celle-ci. Slinn (1974) développe l'idée et stipule qu'un aérosol à une distance inférieure ou égale au rayon de l'aérosol sera automatiquement collecté. Ainsi, l'efficacité élémentaire de collecte liée à l'interception ne peut être nulle, mais possède un minimum égal au second membre de l'Équation B-4.

La correspondance entre le présent modèle 2D et le modèle d'efficacité élémentaire de collecte de Slinn (1974) pour l'interception sont en parfait accord - validant les hypothèses de Slinn (1974).

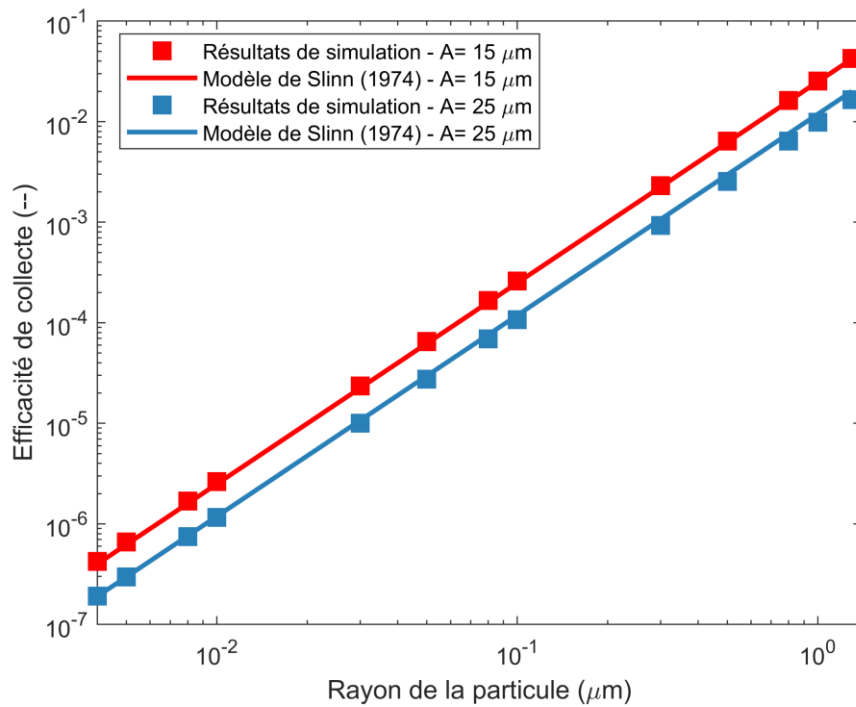


Figure B- 2 Résultats de simulation 2D pour de goutte de rayon 15 et 25 μm - confrontation avec le modèle de Slinn (1974) pour le mécanisme d'interception.

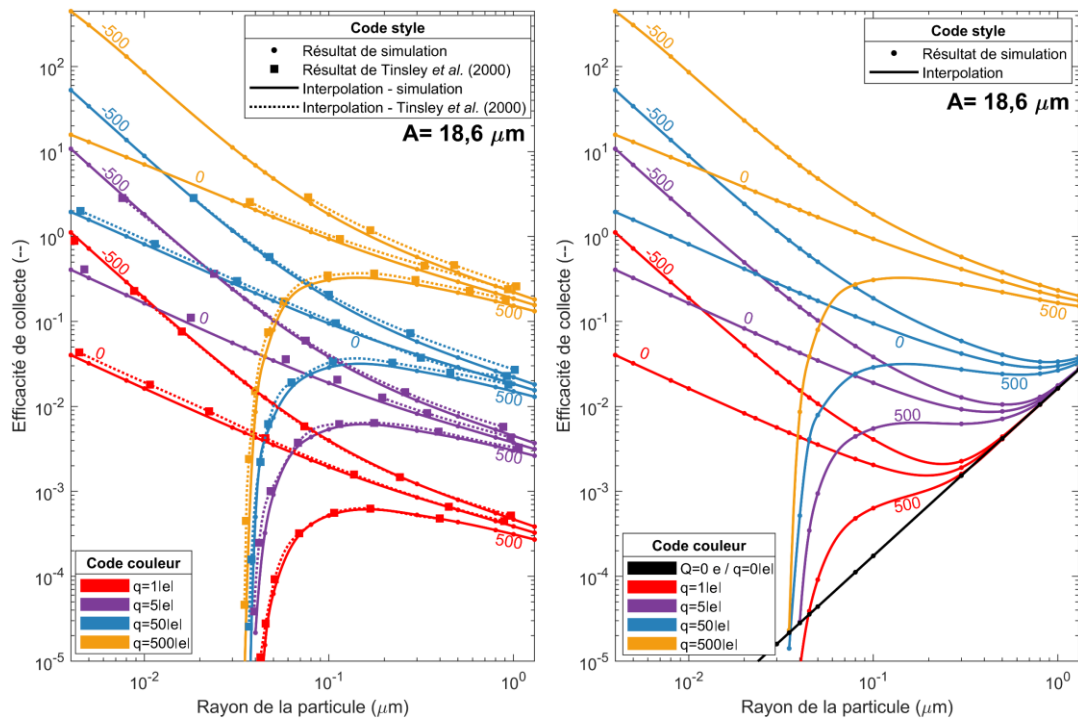


Figure B- 3 Résultats de simulation 2D d'efficacité de collecte pour une goutte de 18,6 μm de rayon pour différents couples de charge sur la goutte (Q) et l'aérosol (q). La charge de la goutte est directement renseignée sur la courbe. **(Gauche)** Confrontation des résultats avec les résultats de Tinsley et al. (2000). La condition de capture est ici $r^* < 1$ et l'efficacité de collecte est déduite de l'Équation B-2. **(Droite)** Résultats du modèle 2D avec la condition de capture de l'Équation B-1 et l'efficacité de collecte est déduite de l'Équation B-4.

B.2.2. SIMULATIONS AVEC FORCES ELECTROSTATIQUES

La Figure B- 3 présente des simulations pour une goutte de 15 μm et des aérosols de 4 et 80 nm en rayon. Ici, des charges sur la goutte et les aérosols sont considérées afin d'étudier l'influence des forces électrostatiques sur l'efficacité de collecte. Le milieu est à la saturation (pas de diffusiphorèse et de thermophorèse). Certaines observations peuvent être déduites :

- Lorsque les charges sur l'aérosol et la goutte sont de polarité opposée, la distance maximale (x_{max}) augmente fortement grâce aux effets électriques. Cette observation est toujours vraie, même dans le cas où la goutte est électriquement neutre du fait du terme image-attractif-faible-distance (IAFD) dans l'Équation 1-12.
- Plus la particule est petite et plus l'influence des forces électrostatiques est importante du fait d'une mobilité électrique plus grande.
- Les particules de grande mobilité électrique possédant une charge de même signe que la goutte sont repoussées à longue distance et ne sont pas collectées. Il existe pour autant une taille d'aérosol limite à partir de laquelle la distance x_{max} est augmentée alors même que les charges sont de même signe. En effet, la mobilité électrique n'est plus suffisamment importante pour que la répulsion électrique liée au terme coulombien-longue-distance (CLD) - Équation 1-12 - domine les effets dynamiques. Dans ce cas, la particule se rapproche suffisamment de la goutte pour que le terme IAFD domine - la particule est alors collectée.

B.2.3. RESULTATS D'EFFICACITE DE COLLECTE POUR LE MODELE 2D

La Figure B- 4 présente les efficacités de collecte de particules de rayon compris entre 4 nm et 1,3 μm autour d'une goutte de 18,6 μm de rayon pour diverses charges sur la goutte et la particule.

A gauche sur la Figure B- 4, une première validation est effectuée par comparaison aux résultats du modèle de Tinsley et al. (2000) qui utilisent la même équation pour le suivi des particules (Équation B-3). L'efficacité de collecte est calculée depuis l'Équation B-2 tandis que la condition de collecte est prise identique aux travaux de Tinsley et al. (2000), à savoir, lorsque la distance entre les centres de l'aérosol et de la goutte est inférieure au rayon de celle-ci ($r^* < 1$). Malgré l'utilisation d'un écoulement de Stokes afin de modéliser l'écoulement d'air autour de la goutte dans les travaux de Tinsley et al. (2000), les résultats sont similaires.

Sur la Figure B- 4 (Droite), la condition de capture et la définition de l'efficacité de collecte sont respectivement celles de l'Équation B-1 et l'Équation B-4 afin notamment d'intégrer la contribution de l'interception (courbe noire sur la Figure B- 4, droite). On remarque que :

- Pour les gros aérosols, la contribution de l'interception domine pour les faibles charges sur l'aérosol ($q < 500 |e|$). Pour 500 charges positives sur l'aérosol, les effets électrostatiques pilotent l'efficacité de collecte qui est alors augmentée de près d'un ordre de grandeur.
- Pour des aérosols de rayon supérieur à 50 nm, les effets électrostatiques sont impliqués dans l'augmentation de l'efficacité de collecte quel que soit le signe du couple de charge goutte/aérosol (Q/q). Cette observation témoigne d'une contribution du terme IAFD pour ces tailles d'aérosol.
- Pour des aérosols de rayon inférieur à 50 nm ($a \leq 50$ nm), l'influence des forces électrostatiques sur la collecte dépend des polarités respectives sur la goutte et l'aérosol. En effet, l'efficacité de collecte est augmentée de plusieurs ordres de grandeur pour des polarités opposées par rapport au cas électriquement neutre - courbe noire sur la Figure B- 4 (droite). Mais dès lors que les charges sur la goutte et l'aérosol sont de même polarité, l'efficacité de collecte chute pour les aérosols de grande mobilité électrique du fait de la contribution du terme CLD dans l'Équation 1-12- abaissant l'efficacité de collecte comparé au cas sans les forces électrostatiques.
- La charge de l'aérosol à une influence de premier ordre sur les effets électrostatiques. Considérant une charge sur l'aérosol portant une charge puis 500 charges élémentaires ($q = 1 |e|$ et $500 |e|$), respectivement représentatif d'un aérosol atmosphérique et d'un aérosol radioactif rejeté après l'accident en 2011 du CNPE-FD (voir section 1.1.2) - l'efficacité de collecte est alors augmentée de près d'un ordre de grandeur pour des aérosols micrométriques et de près de trois ordres de grandeur pour des aérosols nanométriques avec une charge sur la goutte de signe opposé.

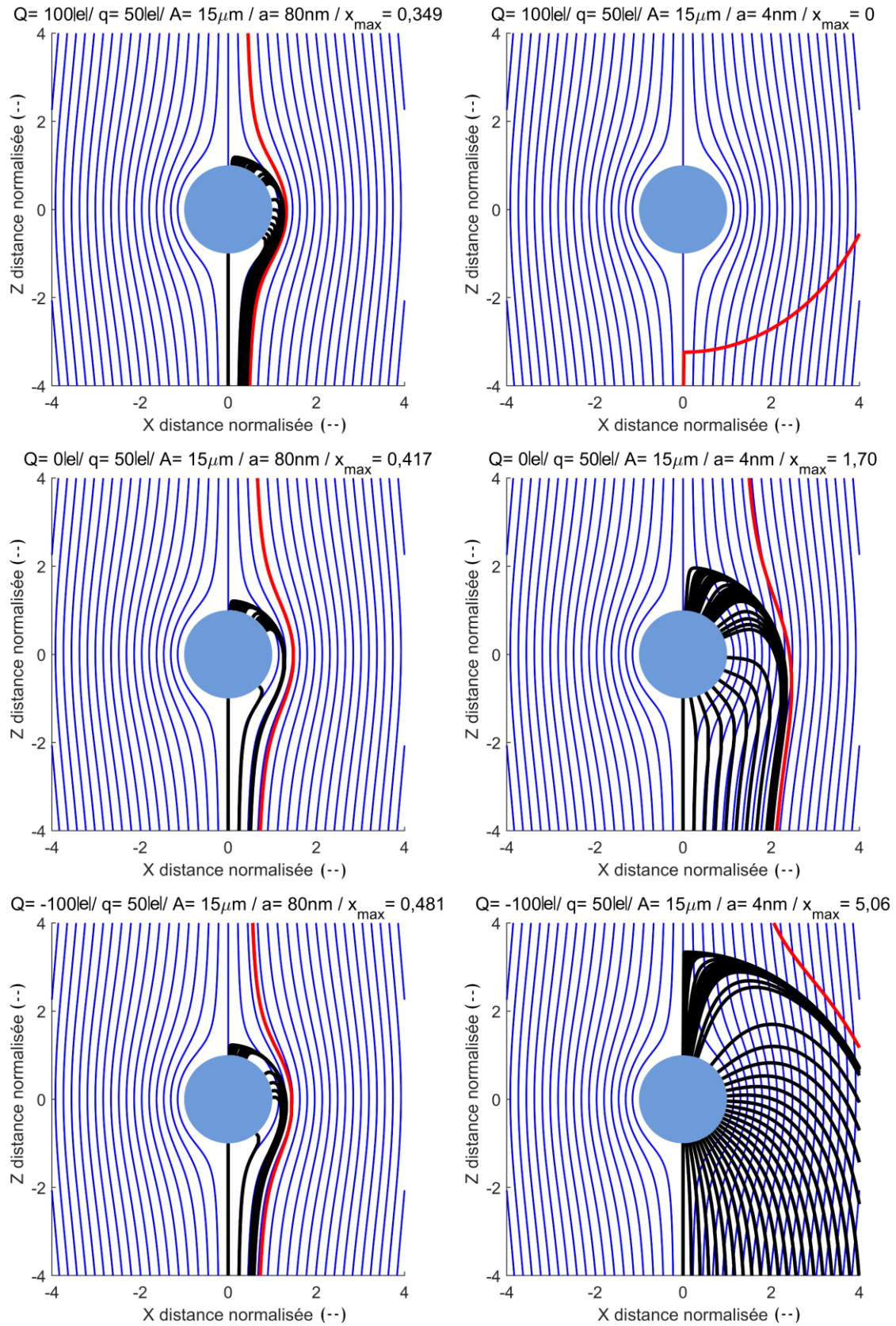


Figure B- 4 Simulation 2D - trajectoires particule de rayon 80 nm (**Gauche**) et 4 nm (**Droite**) autour d'une goutte de $15\ \mu\text{m}$ en rayon. La charge sur l'aérosol est de $50\ |e|$ et la charge sur la goutte de $+100\ |e|$ (**Haut**), $0\ |e|$ (**Milieu**) et $-100\ |e|$ (**Bas**). Les trajectoires noires mènent à la collecte tandis que pour les rouges, la collecte a été manquée. Les lignes bleues sont les lignes de courant.

ANNEXE C. MODELE D'EVAPORATION DES GOUTTES

Le processus itératif permettant l'évaluation de la taille de la goutte au cours du temps est défini par les conditions initiales dans les Équations C-1 et des Équations bouclées sur le temps de C-2 à C-13. Des précisions sont données en section 13.2 de Pruppacher et Klett (1997). Les paramètres non explicités ici sont définis en Annexe A.

$$\begin{cases} A(t=0) = A_0 \\ T_g = T_{air} \end{cases} \quad \text{Équations C-1}$$

$t = \Delta t \rightarrow \infty \{$

Coefficient de diffusion de la vapeur (D_v) modifié pour prendre en compte la cinétique du gaz (Équation C-2) :

$$D_v^*(t) = \frac{D_v}{\frac{A(t)}{A(t) + \lambda_{air}} + \frac{D_v}{A(t)} \sqrt{\frac{2\pi M_{eau}}{RT_g(t)}}} \quad \text{Équation C-2}$$

Conductivité thermique de l'air (k_{air}) modifiée pour prendre en compte la cinétique du gaz (Équation C-3) :

$$k_{air}^*(t) = \frac{k_{air}}{\frac{A(t)}{A(t) + \lambda_{air}} + \frac{k_{air}}{A(t)\rho_{air}c_{p,air}} \sqrt{\frac{2\pi M_{eau}}{RT_g(t)}}} \quad \text{Équation C-3}$$

Calcul de la chaleur latente de l'eau à la température de la goutte (T_g) - interpolation de données issues de tables (Équation C-4) :

$$L_{eau}(T_g(t)) = \left[2500,8 - 2,36(T_g(t) - 273,15) + 0,0016(T_g(t) - 273,15)^2 - 0,00006(T_g(t) - 273,15)^3 \right] \times 1000 \quad \text{Équation C-4}$$

Calcul de la pression de vapeur saturante à la température de la goutte (Équation C-5) :

$$e_{sat,s}(T_g(t)) = e_{sat,air}(T_{air}) e^{\frac{L_{eau}(T_g(t))M_{eau}(T_g(t)-T_{air})}{R \times T_g(t) \times T_{air}}} \quad \text{Équation C-5}$$

Cette pression est corrigée pour prendre en compte l'effet Kelvin qui tient compte de la courbure à l'interface (Équation C-6) :

$$e_{sat,s}(T_g(t))^* = e_{sat,s}(T_g(t)) e^{\frac{2M_{eau}\sigma(T_g(t))}{R\rho_{eau}T_{air}A(t)}} \quad \text{Équation C-6}$$

Avec la tension de surface prise à la température de la goutte (Mareš et Kalová, 2014) (Équation C-7) :

$$\sigma(T_g(t)) = 235,8 \times 10^{-3} \left(\frac{647,15 - T_g(t)}{647,15} \right)^{1,256} \left(1 - 0,625 \left(\frac{647,15 - T_g(t)}{647,15} \right) \right) \quad \text{Équation C-7}$$

Bilan de masse sur la goutte durant le pas de temps Δt (Équation C-8) :

$$\frac{\Delta m_g(t)}{\Delta t} = 4\pi \frac{A(t)D_v^*(t)M_{eau}}{R} \left(\frac{e_{sat,air}(T_{air}) \times HR}{T_{air}} - \frac{e_{sat,s}(T_g(t))^*}{T_g(t)} \right) \quad \text{Équation C-8}$$

Déduit la masse de la goutte à la fin du pas de temps (Équation C-9) :

$$m_g(t + \Delta t) = m_g(t) + \frac{\Delta m_g(t)}{\Delta t} \times \Delta t \quad \text{Équation C-9}$$

Finalement la taille de la goutte mise à jour (Équation C-10) :

$$A(t + \Delta t) = \left(\frac{3m_g(t + \Delta t)}{4\pi\rho_{eau}} \right)^{\frac{1}{3}} \quad \text{Équation C-10}$$

Par un bilan d'énergie, le transfert de chaleur entre la goutte et le milieu s'écrit (Équation C-11) :

$$\frac{\Delta q(t)}{\Delta t} = 4\pi A(t)k_{air}^*(t) (T_{air} - T_g(t)) \quad \text{Équation C-11}$$

La variation de la température de la goutte durant le pas de temps Δt est définie par (Équation C-12) :

$$\frac{\Delta T_g(t)}{\Delta t} = \frac{\left[L_{eau}(T_g(t)) \frac{\Delta m_g(t)}{\Delta t} + \frac{\Delta q(t)}{\Delta t} \right]}{m_g(t + \Delta t)c_{p,eau}} \quad \text{Équation C-12}$$

La nouvelle température de goutte est alors (Équation C-13) :

$$T_g(t + \Delta t) = T_g(t) + \frac{\Delta T_g(t)}{\Delta t} \times \Delta t \quad \text{Équation C-13}$$

} Fin de la boucle temporelle

ANNEXE D. PROTOCOLE EXPERIMENTAL

But de l'action	Action à effectuer	Remarque
1. Initialiser l'expérience.	–	–
1.1. Nettoyer In-Case.	Vider la colonne en aérosol.	Renouveler 5 fois le volume d'air d'In-CASE (=3l) dans un filtre.
1.2. Régler la température et l'humidité relative.	Allumage du système de refroidissement et de mise en température.	Environ 30 mn pour atteindre 1°C et 90 % d'humidité.
1.3. Préparer la solution de fluorescéine.	Dissolution de fluorescéine.	Action ponctuelle. Solution stockée au frigo entre deux expériences.
1.4. Nettoyer le volume de récupération de goutte dans l'impacteur.	Test de fluorescence avec de l'eau ammoniacquée.	Rinçage tant que la limite de détection de la fluorescéine est atteinte.
1.5. Remplacer les filtres sur la ligne de génération des aérosols.	Porte-filtre et exhaust en sortie de DMA (Figure 3-1).	–
2. Initialiser le jet de gouttes.	–	–
2.1. Mettre la partie basse de In-CASE à l'air libre.	Enlever l'impacteur.	La génération des gouttes implique un jet préliminaire qui arrose la partie basse de la chambre.
2.2. Disposer le piézoélectrique dans la pièce 3D de charge par induction (Figure 3-7).	Vérifier l'état des plaques en INOX. Les rincer avec de l'éthanol.	Un système de détrompeur permet de s'assurer d'une position constante des plaques entre deux expériences.
2.3. Mettre en place la solution d'eau salée dans la bouteille.	–	Eau ultra pure filtrée de concentration 3,33 g.l ⁻¹ en NaCl.
2.4. Mettre en place la pièce 3D en partie haute d'In-Case (Figure 3-7).	Mettre en place l'hydraulique et le câblage électrique pour le piézoélectrique et les plaques.	S'assurer que les joints sont bien en place et la tête serrée pour empêcher les fuites.
2.5. Générer le jet de goutte.	Régler la pression dans la bouteille. Fixer les paramètres du générateur piézoélectrique à l'identique que lors de la paramétrisation présentée en Figure 3-12. Notamment, la fréquence de génération doit être de 25 Hz pour éviter des problèmes de coalescence.	S'assurer que la pression soit bien constante et qu'il n'y a pas de goutte satellite.
3. Contrôler la charge des gouttes.	–	–
3.1. Relier les plaques à induction électrostatique à l'alimentation stabilisée basse tension.	–	Vérifier les continuités avec un voltmètre.
3.2. Régler la différentielle de potentiel entre les plaques pour obtenir la charge sur la goutte souhaitée (grâce à la loi de charge Figure 3-12).	–	Vérifier la tension exacte avec un voltmètre de précision.
4. Initialiser le flux d'aérosol.	–	–
4.1. Relier la sortie du DMA à un exhaust non visible en Figure 3-1.	–	Permet de régler les débits sans polluer la chambre et le chargeur.
4.2. S'assurer que l'impacteur du DMA soit propre et correctement choisi.	–	Pour éviter qu'il se bouche et empêche la génération des aérosols.
4.3. Configurer le débit d'air propre dans le DMA.	–	Il doit être 10 fois supérieur au débit d'aérosol.
4.4. Régler la pression dans le système de traitement d'air.	–	La mettre entre 1 et 2 bars. Cette pression influe sur la distribution granulométrique de l'aérosol.

4.5.	Ouvrir la pression en entrée d'atomiseur.	—	—
4.6.	Allumer la pompe au niveau de l'exhaust.	—	Exhaust en amont du DMA - visible en Figure 3-1.
4.7.	Régler la vanne de précision au niveau de l'exhaust en amont du DMA afin d'avoir le débit voulu en entrée de DMA.	—	Le DMA donne l'information sur le débit d'entrée.
5. Initialiser les flux dans In-CASE.			
5.1.	Relier l'entrée de chargeur aérosol (ou simplement l'entrée de In-CASE dans le cas sans forces électrostatiques) à un filtre.	—	Permet de mettre en place les flux dans In-CASE sans polluer avec l'aérosol.
5.2.	Essuyer l'intérieur de la partie basse d'In-CASE et éponger la gouttière de la partie convergente de l'impacteur (Figure 3-2).	—	La génération des gouttes et la mise en température de la colonne engendre beaucoup d'eau sur les parois qui ruisselle. Cette tâche permet d'éviter qu'un débordement d'eau dans la gouttière se retrouve dans le volume de contrôle de l'impacteur.
5.3.	Mettre en place l'impacteur avec le volume de contrôle en partie basse d'In-CASE.	—	Les gouttes sont générées et tombent dans le volume de récupération. La colonne est propre et le flux d'aérosol étant à ce niveau relié à un exhaust, aucune pollution à la fluorescéine n'a lieu dans le volume de récupération. Ces gouttes d'eau salée dépourvues de fluorescéine n'ont aucun impact sur la mesure dès lors qu'on sèche l'eau une fois l'expérience terminée - voir tâche 11.
5.4.	Régler le contre-courant en Argon.	Ouvrir la bouteille d'Argon et fixer le régulateur de débit à 0,4 l.min ⁻¹ .	Des débitmètres massiques sont disposés sur chaque branche du circuit aéraulique pour suivre chaque débit au cours du temps.
5.5.	Régler le débit d'aspiration sur le porte-filtre.	Allumer la pompe en aval du porte filtre et fixer le régulateur de débit à 1,9 l.min ⁻¹ pour les forces électrostatiques, entre 0,8 ou 1 l.min ⁻¹ sinon.	Le réglage des flux (avec un mélange d'Argon et d'air) se fait par l'intermédiaire d'un débitmètre à bulle. Les réglages de chaque régulateur de débit sont régulièrement vérifiés.
5.6.	Régler le débit d'air propre ajouté en entrée de chargeur.	Allumer la pompe en amont du chargeur aérosol et fixer le régulateur de débit pour avoir, avec le débit d'aérosol en sortie de DMA, un débit dans le chargeur de 1,5 l.min ⁻¹ .	—
5.7.	Allumer la ventilation dans la pièce.	—	En sortie de porte filtre, l'air est mélangé à de l'Argon qui est évacué via la ventilation générale.
6. Initialiser la charge sur l'aérosol.			
6.1.	Raccorder électriquement le chargeur aérosol et le générateur haute tension.	—	Vérifier les continuités avec un voltmètre.
6.2.	Régler la haute tension suivant la charge sur l'aérosol souhaitée - Figure 3-21.	—	Un afficheur avec 3 digits permet d'avoir l'information sur la tension.
7. Lancer l'expérience.			
7.1.	Relier l'entrée du DMA à l'entrée du chargeur aérosol (ou directement In-CASE dans le cas sans forces électrostatiques).	—	Ces parties sont simultanées du fait d'un système de deux vannes trois voies non présentées en Figure 3-1.

7.2.	Fermer l'exhaust en sortie de DMA de la tâche 4.1.	—	
7.3.	Fermer le prélèvement sur le filtre de la tâche 5.1.	—	
7.4.	Lancer le chronomètre.	—	Le début de l'expérience commence.
8.	Action en cours d'expérience.	—	—
8.1.	Vérifier que la pression dans la bouteille ne change pas.	—	—
8.2.	Vérifier qu'aucune goutte satellite apparait.	—	Si oui, jouer sur la pression dans la bouteille.
8.3.	Relever température, humidité relative sur les capteurs en partie haute et basse d'In-CASE au cours de l'expérience.	—	—
8.4.	Vérifier que le débit d'aérosol en entrée de DMA ne varie pas.	Jouer sur la vanne de précision au niveau de l'exhaust en amont du DMA sinon (Figure 3-1).	Au cours de l'expérience, le filtre au niveau de l'exhaust se colmate et sa perte de charge augmente.
8.5.	Vérifier que l'impacteur du DMA ne se bouche pas au cours de l'expérience.	Ouvrir régulièrement et nettoyer le dépôt formé sur l'impacteur DMA.	La présence d'un dépôt peut boucher l'impacteur et empêcher la génération. Un débit d'aérosol augmentant en entrée de DMA peut être l'indicateur d'un dépôt important.
8.6.	Mesurer la taille de la goutte en début et fin d'expérience.	Zoomer le plus possible et ne pas oublier de faire la calibration de l'image avec la règle millimétrique.	Un mouvement trop brutal de la caméra peut faire bouger In-CASE et arrêter la génération des gouttes.
9.	Fin de l'expérience.	—	—
9.1.	Relier l'entrée du DMA à un exhaust.	—	Identique à la tâche 4.1.
9.2.	Remplacer ce flux d'aérosol en tirant sur un filtre en entrée de chargeur aérosol (ou directement en entrée d'In-CASE si les forces électrostatiques ne sont pas étudiées).	—	Identique à la tâche 5.1.
9.3.	Eteindre la génération des gouttes.	—	—
9.4.	Arrêter le chronomètre.	—	—
9.5.	Attendre qu'In-CASE se vide complètement en aérosol.	—	Renouveler 5 fois le volume d'air d'In-CASE ($\approx 3l$) - 10 minutes à $1,5 \text{ l.min}^{-1}$.
10.	Extraction.	—	—
10.1.	Détacher doucement l'impacteur en partie basse d'In-CASE et récupérer le volume de contrôle avec les gouttes.	—	Attention aux pollutions extérieures.
10.2.	Mettre le volume de contrôle dans une hotte ventilée et propre durant le stockage.	—	—
10.3.	Placer un pot d'eau ammoniaquée propre à côté du volume de contrôle.	—	Pot témoin pour s'assurer qu'aucune pollution n'a lieu durant le stockage.
10.4.	Récupérer le filtre dans le porte-filtre (Figure 3-1) et le mettre dans un flacon hermétique contenant 100 ml d'eau ammoniaquée.	—	L'ajout d'ammoniaque sert à maintenir le pH de l'eau supérieur à 9. En effet, en milieu neutre (pH=6-7) son rendement de fluorescence n'est pas stable et décroît (Boutaric et Roy, 1939 ; Mota et al., 1991) - faussant les mesures.

11. Analyse de fluorescence du volume de contrôle	—	—
11.1. Attendre que les gouttes dans le volume de contrôle soient complètement évaporées.	—	Laisser le volume de contrôle 3 ou 4 heures sous la hotte ventilée dans une température ambiante et peu éclairée.
11.2. Mettre 2 ml d'eau ammoniaquée dans le volume de contrôle contenant la masse de fluorescéine sèche, captée par les gouttes.	—	Utiliser une pipette Pasteur de précision.
11.3. Attendre 30 minutes que la fluorescéine se dissolvent bien dans les 2 ml.	—	Il a été déterminé expérimentalement et ce, pour plusieurs concentrations tests, qu'en 30 minutes l'ensemble de la fluorescéine sèche présente dans le volume de contrôle se dissout dans 2 ml d'eau ammoniaquée.
11.4. Faire un test de fluorescence sur le pot témoin stocké avec le volume de contrôle.	—	Si l'analyse est à la limite de détection du fluorimètre, le test sur le volume de contrôle peut se faire.
11.5. Prélever une partie des 2 ml à l'aide d'une pipette adéquate à l'analyse de fluorescence.	—	En pratique 1,5 ml suffit.
11.6. Faire l'analyse de fluorescence pour en déduire la concentration massique dans les 2 ml et finalement, déduire la masse captée par les gouttes ($m_{flu,G}$).	—	Au préalable un test à blanc doit être fait pour être sûr que le volume d'analyse de fluorimètre ne soit pas pollué.
12. Analyse de fluorescence du volume de contrôle	—	—
12.1. Attendre que la fluorescéine sur le filtre soit complètement dissoute dans les 100 ml d'eau ammoniaquée.	—	Quelques heures suffisent. Le flacon est mis dans le bac à ultrason durant 15 minutes avant le test.
12.2. Prélever un volume suffisant pour l'analyse de fluorescence	—	Parfois, le fluorimètre est saturé et une dilution est nécessaire.
12.3. Faire l'analyse de fluorescence pour en déduire la concentration massique dans les 100 ml et finalement, déduire la masse déposée sur le filtre ($m_{flu,F}$).	—	Au préalable, un test à blanc doit être fait pour être sûr que le volume d'analyse de fluorimètre ne soit pas pollué.

ANNEXE E. MESURES D'EFFICACITE DE COLLECTE

E.1. INFLUENCE DE L'HUMIDITE RELATIVE

Dans cette section, les mesures d'efficacités de collecte réalisées à différentes humidités relatives sont regroupées dans le tableau ci-dessous. Elles ont été présentées au CHAPITRE 3, section 3.3.4.

<i>HR = 93,5 %</i>	
Rayon humide (nm)	Efficacité de collecte mesurée (--)
79	$3,92 \times 10^{-3}$
119	$2,98 \times 10^{-3}$
154	$3,17 \times 10^{-3}$
235	$2,48 \times 10^{-3}$
314	$2,18 \times 10^{-3}$
393	$1,93 \times 10^{-3}$
<i>HR = 82,4 %</i>	
Rayon humide (nm)	Efficacité de collecte mesurée (--)
64	$7,15 \times 10^{-3}$
96	$5,52 \times 10^{-3}$
125	$5,16 \times 10^{-3}$
191	$5,20 \times 10^{-3}$
254	$4,69 \times 10^{-3}$
318	$4,51 \times 10^{-3}$
<i>HR = 71,1 %</i>	
Rayon humide (nm)	Efficacité de collecte mesurée (--)
58	$1,18 \times 10^{-2}$
88	$1,12 \times 10^{-2}$
114	$8,94 \times 10^{-3}$
174	$8,50 \times 10^{-3}$
232	$7,31 \times 10^{-3}$
290	$7,32 \times 10^{-3}$

E.2. INFLUENCE DES CHARGES ELECTRIQUES

Dans cette section, les mesures d'efficacités de collecte réalisées pour différentes charges sur la goutte (Q) et les particules (q) sont regroupées dans le tableau ci-dessous. Elles ont été présentées au CHAPITRE 3, section 3.3.5.

Rayon humide 175 nm							
Q (e) \ q (e)	$9,6 \times 10^4$	$3,0 \times 10^4$	$5,0 \times 10^3$	0	$-5,0 \times 10^3$	$-1,0 \times 10^4$	$-3,0 \times 10^4$
-10	$3,91 \times 10^{-2}$	$2,44 \times 10^{-2}$	$3,47 \times 10^{-3}$	$4,17 \times 10^{-3}$	$5,58 \times 10^{-3}$	$9,81 \times 10^{-4}$	$2,55 \times 10^{-4}$
-20	$6,77 \times 10^{-2}$	$3,47 \times 10^{-2}$	$6,99 \times 10^{-3}$	$5,07 \times 10^{-3}$	$4,25 \times 10^{-3}$	$9,17 \times 10^{-4}$	$4,12 \times 10^{-5}$

Rayon humide 260 nm							
Q (e) \ q (e)	$9,6 \times 10^4$	$3,0 \times 10^4$	$5,0 \times 10^3$	0	$-5,0 \times 10^3$	$-1,0 \times 10^4$	$-3,0 \times 10^4$
-11	$2,41 \times 10^{-2}$	$1,30 \times 10^{-2}$	$3,25 \times 10^{-3}$	$2,97 \times 10^{-3}$	$2,14 \times 10^{-3}$	$1,34 \times 10^{-3}$	$1,93 \times 10^{-4}$
-30	$7,91 \times 10^{-2}$	$2,31 \times 10^{-2}$	$7,96 \times 10^{-3}$	$5,75 \times 10^{-3}$	$3,47 \times 10^{-3}$	$2,57 \times 10^{-3}$	$4,97 \times 10^{-5}$

Rayon humide 346 nm							
Q (e) \ q (e)	$9,6 \times 10^4$	$3,0 \times 10^4$	$5,0 \times 10^3$	0	$-5,0 \times 10^3$	$-1,0 \times 10^4$	$-3,0 \times 10^4$
-10	$2,24 \times 10^{-2}$	$8,98 \times 10^{-3}$	$3,03 \times 10^{-3}$	$1,86 \times 10^{-3}$	$1,84 \times 10^{-3}$	$1,05 \times 10^{-3}$	$5,20 \times 10^{-4}$
-34	$4,58 \times 10^{-2}$	$1,40 \times 10^{-2}$	$5,39 \times 10^{-3}$	$3,91 \times 10^{-3}$	$2,90 \times 10^{-3}$	$2,23 \times 10^{-3}$	$3,60 \times 10^{-5}$
-71	$9,17 \times 10^{-2}$	$3,25 \times 10^{-2}$	$1,70 \times 10^{-2}$	$7,33 \times 10^{-3}$	$5,51 \times 10^{-3}$	$2,88 \times 10^{-3}$	$2,21 \times 10^{-5}$

Rayon humide 432 nm							
Q (e) \ q (e)	$9,6 \times 10^4$	$3,0 \times 10^4$	$5,0 \times 10^3$	0	$-5,0 \times 10^3$	$-1,0 \times 10^4$	$-3,0 \times 10^4$
-22	$3,74 \times 10^{-2}$	$1,49 \times 10^{-2}$	$3,22 \times 10^{-3}$	$2,49 \times 10^{-3}$	$1,85 \times 10^{-3}$	$2,44 \times 10^{-3}$	$1,25 \times 10^{-4}$
-52	$7,62 \times 10^{-2}$	$4,13 \times 10^{-2}$	$1,13 \times 10^{-2}$	$3,23 \times 10^{-3}$	$3,23 \times 10^{-3}$	$4,17 \times 10^{-3}$	$1,06 \times 10^{-4}$
-90	$1,77 \times 10^{-1}$	$3,55 \times 10^{-2}$	$1,83 \times 10^{-2}$	$6,90 \times 10^{-3}$	$4,75 \times 10^{-3}$	$4,56 \times 10^{-3}$	$2,43 \times 10^{-5}$

ANNEXE F. EFFICACITES DE COLLECTE THEORIQUES

Les efficacités de collecte théoriques regroupées dans cette section proviennent des documents complémentaires de Dépée et al. (2019). Les basses efficacités de collecte sont seuillées à 10^{-5} . Une partie de ces efficacités est présentée au CHAPITRE 2. Ces dernières ont servi à déterminer les matrices *Cas_Ref*, *Conv_Attrac*, *Conv_Repuls*, *Strat_Attrac*, *Strat_Repuls* utilisées au CHAPITRE 3 pour l'étude à méso-échelle, avec DESCAM, des forces électrostatiques.

F.1. GOUTTE DE RAYON 15 MICROMETRES

Charge sur la goutte (e) / Charge sur l'aérosol (e)									
Rayon aérosol (μm)	-10000	-2000	-200	-100	0	100	200	2000	10000
	5	5	5	5	5	5	5	5	5
0,004	1,97E+02	4,91E+01	5,94E+00	3,76E+00	2,05E+00	9,48E-01	3,74E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,005	1,35E+02	3,28E+01	3,98E+00	2,57E+00	1,47E+00	7,67E-01	3,32E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,008	6,03E+01	1,37E+01	1,71E+00	1,18E+00	7,45E-01	4,40E-01	2,28E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,01	4,09E+01	9,08E+00	1,17E+00	8,22E-01	5,48E-01	3,37E-01	1,94E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,03	5,60E+00	1,16E+00	2,04E-01	1,65E-01	1,34E-01	1,06E-01	7,98E-02	1,63E-05	1,00E-05
0,05	2,20E+00	4,58E-01	9,72E-02	8,30E-02	7,03E-02	5,89E-02	4,86E-02	1,50E-04	1,00E-05
0,08	9,77E-01	2,07E-01	5,30E-02	4,68E-02	4,14E-02	3,61E-02	3,12E-02	5,42E-04	1,00E-05
0,1	6,74E-01	1,43E-01	4,01E-02	3,60E-02	3,21E-02	2,85E-02	2,51E-02	7,93E-04	1,00E-05
0,3	1,30E-01	3,00E-02	1,18E-02	1,10E-02	1,02E-02	9,63E-03	9,20E-03	1,51E-03	1,00E-05
0,5	6,85E-02	1,63E-02	7,33E-03	7,04E-03	6,60E-03	6,22E-03	5,87E-03	1,56E-03	1,00E-05
0,8	3,74E-02	8,86E-03	4,31E-03	4,11E-03	3,96E-03	3,78E-03	3,54E-03	1,35E-03	1,00E-05
1	2,71E-02	5,81E-03	2,85E-03	2,73E-03	2,62E-03	2,51E-03	2,43E-03	1,06E-03	1,00E-05
1,3	1,77E-02	3,24E-03	1,62E-03	1,54E-03	1,47E-03	1,42E-03	1,35E-03	5,73E-04	1,00E-05

Charge sur la goutte (e) / Charge sur l'aérosol (e)									
Rayon aérosol (μm)	-10000	-2000	-200	-100	0	100	200	2000	10000
	20	20	20	20	20	20	20	20	20
0,004	5,61E+02	1,63E+02	2,12E+01	1,14E+01	3,05E+00	1,93E-01	2,76E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,005	4,09E+02	1,13E+02	1,40E+01	7,63E+00	2,25E+00	1,98E-01	4,46E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,008	1,99E+02	4,94E+01	5,92E+00	3,29E+00	1,21E+00	2,06E-01	1,27E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,01	1,37E+02	3,33E+01	3,89E+00	2,23E+00	9,22E-01	2,10E-01	1,99E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,03	2,07E+01	4,47E+00	5,91E-01	4,10E-01	2,60E-01	1,43E-01	6,20E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,05	8,43E+00	1,78E+00	2,74E-01	2,11E-01	1,47E-01	1,02E-01	5,99E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,08	3,79E+00	8,00E-01	1,48E-01	1,19E-01	9,24E-02	6,97E-02	5,02E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,1	2,62E+00	5,57E-01	1,12E-01	9,21E-02	7,49E-02	5,88E-02	4,47E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,3	5,14E-01	1,15E-01	3,52E-02	3,14E-02	2,82E-02	2,50E-02	2,18E-02	5,13E-05	1,00E-05
0,5	2,70E-01	6,21E-02	2,18E-02	1,99E-02	1,80E-02	1,62E-02	1,44E-02	1,48E-04	1,00E-05
0,8	1,48E-01	3,49E-02	1,18E-02	1,07E-02	9,66E-03	8,57E-03	7,63E-03	1,18E-04	1,00E-05
1	1,11E-01	2,52E-02	7,46E-03	6,58E-03	5,87E-03	5,17E-03	4,50E-03	7,98E-05	1,00E-05
1,3	7,99E-02	1,60E-02	3,61E-03	3,17E-03	2,76E-03	2,38E-03	2,04E-03	3,39E-05	1,00E-05

Charge sur la goutte (|e|) / Charge sur l'aérosol (|e|)

Rayon aérosol (μm)	-10000	-2000	-200	-100	0	100	200	2000	10000
	50	50	50	50	50	50	50	50	50
0,004	1,07E+03	3,37E+02	4,89E+01	2,66E+01	5,06E+00	1,25E-02	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,005	7,98E+02	2,41E+02	3,30E+01	1,78E+01	3,86E+00	2,31E-02	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,008	4,10E+02	1,10E+02	1,41E+01	7,73E+00	2,20E+00	7,78E-02	7,03E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,01	2,93E+02	7,52E+01	9,34E+00	5,29E+00	1,70E+00	1,21E-01	3,88E-04	1,00E-05	1,00E-05
0,03	4,75E+01	1,08E+01	1,41E+00	9,40E-01	5,45E-01	2,40E-01	6,53E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,05	2,00E+01	4,36E+00	6,50E-01	4,87E-01	3,29E-01	1,97E-01	1,02E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,08	9,19E+00	1,95E+00	3,49E-01	2,79E-01	2,10E-01	1,51E-01	1,01E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,1	6,33E+00	1,35E+00	2,65E-01	2,26E-01	1,72E-01	1,31E-01	9,74E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,3	1,26E+00	2,82E-01	8,70E-02	7,80E-02	6,95E-02	6,12E-02	5,34E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,5	6,57E-01	1,55E-01	5,63E-02	5,15E-02	4,72E-02	4,28E-02	3,84E-02	1,44E-04	1,00E-05
0,8	3,66E-01	8,95E-02	3,54E-02	3,26E-02	3,01E-02	2,76E-02	2,53E-02	2,24E-04	1,00E-05
1	2,77E-01	6,81E-02	2,64E-02	2,44E-02	2,22E-02	2,03E-02	1,83E-02	6,45E-05	1,00E-05
1,3	2,02E-01	4,83E-02	1,66E-02	1,49E-02	1,34E-02	1,18E-02	1,03E-02	1,00E-05	1,00E-05

Charge sur la goutte (|e|) / Charge sur l'aérosol (|e|)

Rayon aérosol (μm)	-10000	-2000	-200	-100	0	100	200	2000	10000
	600	600	600	600	600	600	600	600	600
0,004	5,80E+03	1,95E+03	3,85E+02	2,27E+02	3,26E+01	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,005	4,39E+03	1,46E+03	2,80E+02	1,61E+02	2,63E+01	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,008	2,33E+03	7,68E+02	1,31E+02	7,34E+01	1,72E+01	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,01	1,75E+03	5,62E+02	8,99E+01	5,09E+01	1,41E+01	2,45E-03	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,03	3,84E+02	1,03E+02	1,51E+01	9,80E+00	5,36E+00	1,98E+00	2,49E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,05	1,81E+02	4,45E+01	7,08E+00	5,13E+00	3,44E+00	2,01E+00	9,16E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,08	8,75E+01	2,10E+01	3,87E+00	3,06E+00	2,32E+00	1,66E+00	1,09E+00	1,00E-05	1,00E-05
0,1	6,32E+01	1,48E+01	3,00E+00	2,45E+00	1,92E+00	1,47E+00	1,06E+00	1,00E-05	1,00E-05
0,3	1,40E+01	3,23E+00	1,04E+00	9,41E-01	8,44E-01	7,62E-01	6,70E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,5	7,45E+00	1,81E+00	7,04E-01	6,50E-01	6,02E-01	5,52E-01	5,06E-01	1,23E-02	1,00E-05
0,8	4,20E+00	1,08E+00	4,87E-01	4,59E-01	4,30E-01	4,06E-01	3,80E-01	4,61E-02	1,00E-05
1	3,20E+00	8,48E-01	4,11E-01	3,84E-01	3,64E-01	3,46E-01	3,27E-01	5,70E-02	1,00E-05
1,3	2,34E+00	6,44E-01	3,29E-01	3,11E-01	2,96E-01	2,81E-01	2,67E-01	6,16E-02	1,00E-05

Pas de charge	
Rayon aérosol (μm)	0
0,004	1,78E+00
0,005	1,27E+00
0,008	6,35E-01
0,01	4,70E-01
0,03	1,03E-01
0,05	5,45E-02
0,08	3,17E-02
0,1	2,45E-02
0,3	8,16E-03
0,5	5,68E-03
0,8	3,58E-03
1	2,43E-03
1,3	1,40E-03

F.2. GOUTTE DE RAYON 25 MICROMETRES

Charge sur la goutte (|e|) / Charge sur l'aérosol (|e|)

Rayon aérosol (μm)	-30000 5	-8000 5	-400 5	-200 5	0 5	200 5	400 5	8000 5	30000 5
0,004	8,69E+01	2,65E+01	1,69E+00	1,12E+00	6,63E-01	3,63E-01	1,70E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,005	5,86E+01	1,76E+01	1,14E+00	7,83E-01	4,90E-01	2,87E-01	1,48E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,008	2,52E+01	7,29E+00	5,17E-01	3,76E-01	2,58E-01	1,75E-01	1,07E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,01	1,68E+01	4,80E+00	3,58E-01	2,68E-01	1,93E-01	1,36E-01	8,91E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,03	2,27E+00	6,49E-01	6,94E-02	5,87E-02	4,84E-02	4,01E-02	3,20E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,05	9,15E-01	2,65E-01	3,35E-02	2,89E-02	2,50E-02	2,25E-02	1,91E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,08	4,23E-01	1,25E-01	1,94E-02	1,74E-02	1,56E-02	1,42E-02	1,24E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,1	2,97E-01	8,87E-02	1,53E-02	1,39E-02	1,26E-02	1,16E-02	1,05E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,3	6,35E-02	1,81E-02	5,42E-03	5,29E-03	5,14E-03	4,98E-03	4,78E-03	3,43E-04	1,00E-05
0,5	3,51E-02	1,22E-02	4,26E-03	4,12E-03	4,04E-03	3,97E-03	3,85E-03	6,25E-04	1,00E-05
0,8	1,86E-02	4,74E-03	1,55E-03	1,52E-03	1,49E-03	1,46E-03	1,43E-03	4,05E-04	1,00E-05
1	1,08E-02	1,59E-03	4,29E-04	4,16E-04	4,05E-04	3,96E-04	3,87E-04	1,62E-04	1,00E-05
1,3	4,29E-03	3,49E-04	8,26E-05	7,96E-05	7,75E-05	7,54E-05	7,35E-05	1,54E-05	1,00E-05

Charge sur la goutte (|e|) / Charge sur l'aérosol (|e|)

Rayon aérosol (μm)	-30000 20	-8000 20	-400 20	-200 20	0 20	200 20	400 20	8000 20	30000 20
0,004	2,71E+02	9,13E+01	5,93E+00	3,19E+00	9,90E-01	9,64E-02	2,34E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,005	1,90E+02	6,21E+01	3,91E+00	2,17E+00	7,48E-01	1,05E-01	4,43E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,008	8,80E+01	2,67E+01	1,66E+00	9,78E-01	4,22E-01	1,08E-01	1,29E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,01	5,94E+01	1,78E+01	1,11E+00	6,77E-01	3,23E-01	1,04E-01	1,93E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,03	8,47E+00	2,42E+00	1,93E-01	1,41E-01	9,58E-02	5,86E-02	3,06E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,05	3,40E+00	9,75E-01	9,30E-02	7,29E-02	5,42E-02	3,87E-02	2,48E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,08	1,56E+00	4,53E-01	5,17E-02	4,25E-02	3,35E-02	2,58E-02	1,93E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,1	1,09E+00	3,19E-01	3,93E-02	3,27E-02	2,68E-02	2,13E-02	1,63E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,3	2,28E-01	6,93E-02	1,18E-02	1,05E-02	9,18E-03	7,98E-03	7,14E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,5	1,26E-01	3,89E-02	7,75E-03	6,94E-03	6,45E-03	5,94E-03	5,34E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,8	7,11E-02	2,09E-02	2,91E-03	2,69E-03	2,52E-03	2,41E-03	2,27E-03	1,00E-05	1,00E-05
1	5,28E-02	1,27E-02	9,93E-04	9,04E-04	8,43E-04	7,54E-04	6,56E-04	1,00E-05	1,00E-05
1,3	3,69E-02	5,62E-03	1,59E-04	1,37E-04	1,23E-04	1,13E-04	9,59E-05	1,00E-05	1,00E-05

Charge sur la goutte (|e|) / Charge sur l'aérosol (|e|)

Rayon aérosol (μm)	-30000 50	-8000 50	-400 50	-200 50	0 50	200 50	400 50	8000 50	30000 50
0,004	5,39E+02	1,96E+02	1,40E+01	7,50E+00	1,70E+00	1,17E-02	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,005	3,84E+02	1,38E+02	9,32E+00	5,02E+00	1,32E+00	2,39E-02	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,008	1,88E+02	6,15E+01	3,94E+00	2,21E+00	7,86E-01	7,22E-02	3,22E-04	1,00E-05	1,00E-05
0,01	1,32E+02	4,12E+01	2,61E+00	1,53E+00	6,18E-01	9,69E-02	1,68E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,03	1,99E+01	5,75E+00	4,45E-01	3,19E-01	2,05E-01	1,13E-01	4,58E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,05	8,09E+00	2,31E+00	2,18E-01	1,70E-01	1,25E-01	8,55E-02	5,13E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,08	3,72E+00	1,07E+00	1,24E-01	1,02E-01	8,14E-02	6,20E-02	4,45E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,1	2,60E+00	7,51E-01	9,58E-02	8,09E-02	6,63E-02	5,24E-02	3,98E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,3	5,40E-01	1,62E-01	3,04E-02	2,71E-02	2,38E-02	2,14E-02	1,91E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,5	2,94E-01	9,16E-02	1,95E-02	1,77E-02	1,59E-02	1,46E-02	1,33E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,8	1,69E-01	5,25E-02	9,84E-03	8,91E-03	7,99E-03	7,28E-03	6,57E-03	1,00E-05	1,00E-05
1	1,29E-01	3,80E-02	4,30E-03	4,01E-03	3,62E-03	3,22E-03	2,94E-03	1,00E-05	1,00E-05
1,3	9,44E-02	2,58E-02	1,06E-03	8,21E-04	6,52E-04	5,57E-04	4,33E-04	1,00E-05	1,00E-05

Charge sur la goutte (e) / Charge sur l'aérosol (e)									
Rayon aérosol (μm)	-30000	-8000	-400	-200	0	200	400	8000	30000
	600	600	600	600	600	600	600	600	600
0,004	3,28E+03	1,30E+03	1,30E+02	7,31E+01	1,27E+01	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,005	2,41E+03	9,34E+02	8,97E+01	4,97E+01	1,04E+01	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,008	1,24E+03	4,62E+02	3,97E+01	2,25E+01	6,79E+00	2,86E-02	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,01	8,99E+02	3,31E+02	2,68E+01	1,57E+01	5,55E+00	2,54E-01	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,03	1,77E+02	5,70E+01	4,60E+00	3,28E+00	2,11E+00	1,14E+00	4,46E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,05	7,92E+01	2,43E+01	2,30E+00	1,79E+00	1,34E+00	9,44E-01	6,04E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,08	3,75E+01	1,12E+01	1,33E+00	1,11E+00	9,10E-01	7,30E-01	5,61E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,1	2,68E+01	7,88E+00	1,04E+00	8,98E-01	7,59E-01	6,34E-01	5,08E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,3	5,68E+00	1,69E+00	3,89E-01	3,61E-01	3,33E-01	3,14E-01	2,84E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,5	3,08E+00	9,45E-01	2,70E-01	2,55E-01	2,40E-01	2,29E-01	2,12E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,8	1,75E+00	5,64E-01	1,91E-01	1,83E-01	1,75E-01	1,68E-01	1,59E-01	1,00E-05	1,00E-05
1	1,34E+00	4,41E-01	1,60E-01	1,54E-01	1,48E-01	1,44E-01	1,39E-01	1,00E-05	1,00E-05
1,3	9,99E-01	3,37E-01	1,31E-01	1,26E-01	1,22E-01	1,17E-01	1,12E-01	4,69E-05	1,00E-05

Pas de charge	
Rayon aérosol (μm)	0
0,004	5,62E-01
0,005	4,14E-01
0,008	2,13E-01
0,01	1,57E-01
0,03	3,79E-02
0,05	2,06E-02
0,08	1,28E-02
0,1	1,02E-02
0,3	4,44E-03
0,5	3,77E-03
0,8	1,41E-03
1	3,82E-04
1,3	7,21E-05

F.3. GOUTTE DE RAYON 37,5 MICROMETRES

Charge sur la goutte (e) / Charge sur l'aérosol (e)									
Rayon aérosol (μm)	-60000	-6000	-700	-200	0	200	700	6000	60000
	5	5	5	5	5	5	5	5	5
0,004	3,81E+01	4,27E+00	6,06E-01	3,39E-01	2,60E-01	1,96E-01	8,20E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,005	2,55E+01	2,78E+00	4,05E-01	2,42E-01	1,92E-01	1,50E-01	7,04E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,008	1,06E+01	1,09E+00	1,79E-01	1,20E-01	1,00E-01	8,30E-02	4,88E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,01	6,83E+00	7,05E-01	1,25E-01	8,61E-02	7,36E-02	6,33E-02	4,01E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,03	8,47E-01	8,65E-02	2,44E-02	2,04E-02	1,90E-02	1,76E-02	1,43E-02	5,83E-04	1,00E-05
0,05	3,30E-01	3,47E-02	1,26E-02	1,10E-02	1,05E-02	9,97E-03	8,91E-03	1,14E-03	1,00E-05
0,08	1,46E-01	1,64E-02	7,47E-03	6,70E-03	6,44E-03	6,20E-03	5,63E-03	1,44E-03	1,00E-05
0,1	9,76E-02	1,18E-02	5,90E-03	5,36E-03	5,19E-03	5,03E-03	4,66E-03	1,49E-03	1,00E-05
0,3	1,89E-02	3,44E-03	2,34E-03	2,22E-03	2,19E-03	2,16E-03	2,07E-03	1,24E-03	1,00E-05
0,5	1,02E-02	2,25E-03	1,67E-03	1,64E-03	1,62E-03	1,60E-03	1,55E-03	1,08E-03	1,00E-05
0,8	5,82E-03	1,54E-03	1,24E-03	1,22E-03	1,21E-03	1,20E-03	1,17E-03	9,28E-04	1,58E-05
1	4,24E-03	1,26E-03	1,04E-03	1,02E-03	1,01E-03	9,98E-04	9,78E-04	8,17E-04	4,37E-05
1,3	2,50E-03	8,48E-04	7,42E-04	7,32E-04	7,30E-04	7,28E-04	7,19E-04	6,22E-04	8,70E-05

Charge sur la goutte (e) / Charge sur l'aérosol (e)									
Rayon aérosol (μm)	-60000	-6000	-700	-200	0	200	700	6000	60000
	20	20	20	20	20	20	20	20	20
0,004	1,32E+02	1,65E+01	2,05E+00	7,71E-01	3,83E-01	1,51E-01	2,76E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,005	8,89E+01	1,07E+01	1,34E+00	5,31E-01	2,92E-01	1,29E-01	5,10E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,008	3,84E+01	4,32E+00	5,55E-01	2,58E-01	1,61E-01	9,36E-02	1,18E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,01	2,58E+01	2,79E+00	3,68E-01	1,83E-01	1,21E-01	7,75E-02	1,51E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,03	3,34E+00	3,42E-01	6,24E-02	4,28E-02	3,62E-02	3,01E-02	1,73E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,05	1,30E+00	1,34E-01	3,12E-02	2,39E-02	2,13E-02	1,90E-02	1,34E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,08	5,74E-01	6,06E-02	1,78E-02	1,50E-02	1,37E-02	1,26E-02	1,01E-02	6,98E-05	1,00E-05
0,1	3,96E-01	4,25E-02	1,41E-02	1,21E-02	1,13E-02	1,05E-02	8,72E-03	2,22E-04	1,00E-05
0,3	7,50E-02	1,02E-02	5,47E-03	5,05E-03	4,93E-03	4,79E-03	4,38E-03	1,39E-03	1,00E-05
0,5	3,94E-02	6,21E-03	3,76E-03	3,50E-03	3,47E-03	3,43E-03	3,16E-03	1,37E-03	1,00E-05
0,8	2,20E-02	3,81E-03	2,35E-03	2,28E-03	2,25E-03	2,22E-03	2,10E-03	9,62E-04	1,00E-05
1	1,67E-02	2,74E-03	1,70E-03	1,60E-03	1,58E-03	1,56E-03	1,47E-03	7,44E-04	1,00E-05
1,3	1,16E-02	1,58E-03	1,01E-03	9,73E-04	9,58E-04	9,43E-04	8,94E-04	5,18E-04	1,00E-05

Charge sur la goutte (e) / Charge sur l'aérosol (e)									
Rayon aérosol (μm)	-60000	-6000	-700	-200	0	200	700	6000	60000
	50	50	50	50	50	50	50	50	50
0,004	2,94E+02	3,81E+01	5,02E+00	1,73E+00	6,98E-01	1,24E-01	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,005	1,98E+02	2,55E+01	3,28E+00	1,19E+00	5,33E-01	1,34E-01	2,56E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,008	8,69E+01	1,05E+01	1,34E+00	5,62E-01	3,15E-01	1,35E-01	1,43E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,01	5,91E+01	6,92E+00	8,93E-01	4,01E-01	2,45E-01	1,25E-01	4,57E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,03	8,20E+00	8,55E-01	1,48E-01	9,55E-02	7,73E-02	6,25E-02	2,85E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,05	3,21E+00	3,48E-01	7,25E-02	5,38E-02	4,67E-02	4,03E-02	2,62E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,08	1,42E+00	1,51E-01	4,14E-02	3,34E-02	3,05E-02	2,76E-02	2,10E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,1	9,73E-01	1,07E-01	3,26E-02	2,71E-02	2,51E-02	2,31E-02	1,84E-02	1,42E-05	1,00E-05
0,3	1,88E-01	2,47E-02	1,21E-02	1,12E-02	1,08E-02	1,04E-02	9,48E-03	2,25E-03	1,00E-05
0,5	9,82E-02	1,46E-02	8,42E-03	7,80E-03	7,61E-03	7,40E-03	6,92E-03	2,69E-03	1,00E-05
0,8	5,50E-02	9,08E-03	5,68E-03	5,37E-03	5,27E-03	5,17E-03	4,87E-03	2,32E-03	1,00E-05
1	4,16E-02	7,01E-03	4,43E-03	4,18E-03	4,14E-03	4,10E-03	3,83E-03	1,80E-03	1,00E-05
1,3	3,04E-02	4,71E-03	2,72E-03	2,55E-03	2,52E-03	2,49E-03	2,29E-03	9,40E-04	1,00E-05

Charge sur la goutte (e) / Charge sur l'aérosol (e)									
Rayon aérosol (μm)	-60000	-6000	-700	-200	0	200	700	6000	60000
	600	600	600	600	600	600	600	600	600
0,004	1,90E+03	3,39E+02	5,27E+01	1,84E+01	6,01E+00	1,56E-01	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,005	1,41E+03	2,33E+02	3,52E+01	1,27E+01	4,85E+00	4,68E-01	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,008	7,03E+02	1,03E+02	1,52E+01	6,12E+00	3,09E+00	9,99E-01	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,01	5,07E+02	6,98E+01	1,02E+01	4,41E+00	2,51E+00	1,08E+00	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,03	8,08E+01	9,82E+00	1,73E+00	1,12E+00	8,96E-01	7,01E-01	3,00E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,05	3,46E+01	3,94E+00	8,69E-01	6,40E-01	5,62E-01	4,81E-01	3,10E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,08	1,61E+01	1,80E+00	5,02E-01	4,04E-01	3,64E-01	3,33E-01	2,50E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,1	1,13E+01	1,26E+00	3,92E-01	3,29E-01	3,06E-01	2,80E-01	2,22E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,3	2,23E+00	2,98E-01	1,47E-01	1,35E-01	1,31E-01	1,25E-01	1,12E-01	2,40E-02	1,00E-05
0,5	1,17E+00	1,76E-01	9,99E-02	9,39E-02	9,23E-02	8,92E-02	8,28E-02	3,13E-02	1,00E-05
0,8	6,55E-01	1,12E-01	7,12E-02	6,78E-02	6,64E-02	6,53E-02	6,21E-02	3,12E-02	1,00E-05
1	4,95E-01	9,13E-02	6,09E-02	5,82E-02	5,71E-02	5,64E-02	5,40E-02	2,97E-02	1,00E-05
1,3	3,63E-01	7,25E-02	5,06E-02	4,87E-02	4,80E-02	4,72E-02	4,52E-02	2,73E-02	1,00E-05

Pas de charge	
Rayon aérosol (μm)	0
0,004	2,31E-01
0,005	1,69E-01
0,008	8,57E-02
0,01	6,29E-02
0,03	1,55E-02
0,05	8,48E-03
0,08	5,07E-03
0,1	4,08E-03
0,3	1,82E-03
0,5	1,44E-03
0,8	1,14E-03
1	9,62E-04
1,3	7,14E-04

F.4. GOUTTE DE RAYON 50 MICROMETRES

Charge sur la goutte (e) / Charge sur l'aérosol (e)									
Rayon aérosol (μm)	-100000	-10000	-1000	-100	0	100	1000	10000	100000
	5	5	5	5	5	5	5	5	5
0,004	2,22E+01	2,37E+00	2,97E-01	1,66E-01	1,47E-01	1,36E-01	5,70E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,005	1,45E+01	1,53E+00	2,04E-01	1,16E-01	1,09E-01	1,01E-01	4,81E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,008	5,89E+00	6,07E-01	9,26E-02	6,03E-02	5,70E-02	5,43E-02	3,22E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,01	3,85E+00	3,96E-01	6,50E-02	4,45E-02	4,25E-02	4,10E-02	2,60E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,03	4,71E-01	4,74E-02	1,37E-02	1,13E-02	1,12E-02	1,08E-02	9,22E-03	5,25E-04	1,00E-05
0,05	1,84E-01	1,93E-02	7,37E-03	6,46E-03	6,35E-03	6,29E-03	5,49E-03	9,66E-04	1,00E-05
0,08	7,82E-02	9,48E-03	4,46E-03	4,04E-03	4,03E-03	3,98E-03	3,61E-03	1,15E-03	1,00E-05
0,1	5,38E-02	7,05E-03	3,59E-03	3,33E-03	3,32E-03	3,31E-03	3,00E-03	1,17E-03	1,00E-05
0,3	1,07E-02	2,29E-03	1,63E-03	1,58E-03	1,57E-03	1,56E-03	1,49E-03	1,02E-03	1,00E-05
0,5	6,02E-03	1,61E-03	1,27E-03	1,24E-03	1,23E-03	1,22E-03	1,20E-03	9,46E-04	1,21E-05
0,8	3,59E-03	1,24E-03	1,07E-03	1,06E-03	1,05E-03	1,04E-03	1,03E-03	8,87E-04	1,08E-04
1	2,72E-03	1,09E-03	9,88E-04	9,85E-04	9,81E-04	9,77E-04	9,75E-04	8,65E-04	2,15E-04
1,3	1,85E-03	1,03E-03	9,59E-04	9,58E-04	9,57E-04	9,56E-04	9,55E-04	8,83E-04	4,00E-04

Charge sur la goutte (e) / Charge sur l'aérosol (e)									
Rayon aérosol (μm)	-100000	-10000	-1000	-100	0	100	1000	10000	100000
	20	20	20	20	20	20	20	20	20
0,004	7,86E+01	9,21E+00	9,90E-01	2,76E-01	2,17E-01	1,66E-01	4,67E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,005	5,30E+01	6,03E+00	6,42E-01	2,04E-01	1,65E-01	1,32E-01	7,27E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,008	2,25E+01	2,40E+00	2,74E-01	1,06E-01	9,18E-02	7,93E-02	1,28E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,01	1,48E+01	1,55E+00	1,81E-01	7,94E-02	7,04E-02	6,24E-02	1,44E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,03	1,85E+00	1,90E-01	3,29E-02	2,20E-02	2,10E-02	2,00E-02	1,20E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,05	7,15E-01	7,43E-02	1,69E-02	1,29E-02	1,26E-02	1,22E-02	8,84E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,08	3,15E-01	3,35E-02	1,00E-02	8,39E-03	8,19E-03	7,97E-03	6,49E-03	1,44E-04	1,00E-05
0,1	2,15E-01	2,34E-02	8,30E-03	7,05E-03	6,92E-03	6,68E-03	5,63E-03	3,42E-04	1,00E-05
0,3	4,15E-02	6,06E-03	3,48E-03	3,23E-03	3,20E-03	3,17E-03	2,95E-03	1,22E-03	1,00E-05
0,5	2,19E-02	3,86E-03	2,49E-03	2,35E-03	2,34E-03	2,33E-03	2,20E-03	1,19E-03	1,00E-05
0,8	1,24E-02	2,52E-03	1,72E-03	1,66E-03	1,63E-03	1,61E-03	1,55E-03	9,49E-04	1,00E-05
1	9,52E-03	1,93E-03	1,38E-03	1,33E-03	1,32E-03	1,30E-03	1,25E-03	8,46E-04	1,00E-05
1,3	6,94E-03	1,41E-03	1,12E-03	1,10E-03	1,09E-03	1,08E-03	1,05E-03	8,37E-04	1,00E-05

Charge sur la goutte (e) / Charge sur l'aérosol (e)									
Rayon aérosol (μm)	-100000	-10000	-1000	-100	0	100	1000	10000	100000
	50	50	50	50	50	50	50	50	50
0,004	1,77E+02	2,20E+01	2,43E+00	5,42E-01	3,86E-01	2,60E-01	3,16E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,005	1,20E+02	1,47E+01	1,58E+00	3,98E-01	3,06E-01	2,16E-01	2,47E-04	1,00E-05	1,00E-05
0,008	5,25E+01	5,96E+00	6,61E-01	2,15E-01	1,77E-01	1,43E-01	4,29E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,01	3,48E+01	3,86E+00	4,44E-01	1,63E-01	1,38E-01	1,17E-01	8,93E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,03	4,55E+00	4,78E-01	7,65E-02	4,75E-02	4,45E-02	4,18E-02	2,10E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,05	1,78E+00	1,84E-01	3,90E-02	2,81E-02	2,71E-02	2,61E-02	1,74E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,08	7,87E-01	8,28E-02	2,28E-02	1,81E-02	1,77E-02	1,73E-02	1,33E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,1	5,45E-01	5,83E-02	1,81E-02	1,50E-02	1,47E-02	1,43E-02	1,16E-02	9,33E-05	1,00E-05
0,3	1,04E-01	1,40E-02	7,26E-03	6,76E-03	6,67E-03	6,54E-03	5,98E-03	1,93E-03	1,00E-05
0,5	5,42E-02	8,54E-03	5,23E-03	4,94E-03	4,90E-03	4,81E-03	4,53E-03	2,12E-03	1,00E-05
0,8	3,04E-02	5,67E-03	3,73E-03	3,62E-03	3,59E-03	3,49E-03	3,33E-03	1,86E-03	1,00E-05
1	2,36E-02	4,71E-03	3,08E-03	2,91E-03	2,89E-03	2,87E-03	2,73E-03	1,58E-03	1,00E-05
1,3	1,71E-02	3,23E-03	2,06E-03	2,00E-03	1,98E-03	1,96E-03	1,87E-03	1,11E-03	1,00E-05

Charge sur la goutte (e) / Charge sur l'aérosol (e)									
Rayon aérosol (μm)	-100000	-10000	-1000	-100	0	100	1000	10000	100000
	600	600	600	600	600	600	600	600	600
0,004	1,28E+03	2,08E+02	2,70E+01	5,45E+00	3,62E+00	2,10E+00	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,005	9,17E+02	1,40E+02	1,77E+01	4,13E+00	2,94E+00	1,91E+00	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,008	4,53E+02	6,14E+01	7,58E+00	2,32E+00	1,85E+00	1,44E+00	2,28E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,01	3,19E+02	4,12E+01	5,09E+00	1,80E+00	1,49E+00	1,23E+00	1,36E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,03	4,81E+01	5,55E+00	9,13E-01	5,61E-01	5,22E-01	4,91E-01	2,30E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,05	2,01E+01	2,21E+00	4,68E-01	3,40E-01	3,24E-01	3,12E-01	2,00E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,08	9,06E+00	9,97E-01	2,72E-01	2,17E-01	2,12E-01	2,04E-01	1,56E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,1	6,31E+00	7,06E-01	2,16E-01	1,80E-01	1,76E-01	1,71E-01	1,35E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,3	1,24E+00	1,70E-01	8,25E-02	7,50E-02	7,45E-02	7,39E-02	6,69E-02	1,72E-02	1,00E-05
0,5	6,48E-01	9,86E-02	5,69E-02	5,34E-02	5,30E-02	5,27E-02	4,90E-02	2,04E-02	1,00E-05
0,8	3,64E-01	6,41E-02	4,15E-02	3,94E-02	3,92E-02	3,91E-02	3,72E-02	1,99E-02	1,00E-05
1	2,75E-01	5,26E-02	3,57E-02	3,43E-02	3,40E-02	3,37E-02	3,23E-02	1,90E-02	1,00E-05
1,3	2,01E-01	4,29E-02	3,06E-02	2,95E-02	2,94E-02	2,92E-02	2,81E-02	1,80E-02	1,00E-05

Pas de charge	
Rayon aérosol (μm)	0
0,004	1,32E-01
0,005	9,60E-02
0,008	5,00E-02
0,01	3,70E-02
0,03	9,46E-03
0,05	5,19E-03
0,08	3,22E-03
0,1	2,64E-03
0,3	1,34E-03
0,5	1,16E-03
0,8	1,02E-03
1	9,68E-04
1,3	9,55E-04

F.5. GOUTTE DE RAYON 75 MICROMETRES

Charge sur la goutte (|e|) / Charge sur l'aérosol (|e|)

Rayon aérosol (μm)	-200000	-20000	-2000	-200	0	200	2000	20000	200000
	5	5	5	5	5	5	5	5	5
0,004	1,04E+01	1,08E+00	1,41E-01	7,65E-02	7,10E-02	6,56E-02	3,04E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,005	6,80E+00	7,03E-01	9,42E-02	5,63E-02	5,28E-02	4,93E-02	2,55E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,008	2,72E+00	2,77E-01	4,39E-02	3,08E-02	2,91E-02	2,70E-02	1,69E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,01	1,75E+00	1,78E-01	3,13E-02	2,29E-02	2,13E-02	2,05E-02	1,40E-02	1,98E-05	1,00E-05
0,03	2,11E-01	2,18E-02	6,95E-03	5,89E-03	5,85E-03	5,82E-03	4,86E-03	4,95E-04	1,00E-05
0,05	8,14E-02	9,23E-03	3,84E-03	3,48E-03	3,44E-03	3,39E-03	3,03E-03	7,39E-04	1,00E-05
0,08	3,56E-02	4,78E-03	2,46E-03	2,27E-03	2,26E-03	2,25E-03	2,02E-03	7,95E-04	1,00E-05
0,1	2,46E-02	3,53E-03	2,03E-03	1,88E-03	1,87E-03	1,86E-03	1,70E-03	7,85E-04	1,00E-05
0,3	5,45E-03	1,21E-03	8,77E-04	8,55E-04	8,51E-04	8,42E-04	8,18E-04	5,83E-04	1,00E-05
0,5	3,14E-03	8,25E-04	6,72E-04	6,63E-04	6,61E-04	6,57E-04	6,42E-04	5,23E-04	2,69E-05
0,8	2,06E-03	7,01E-04	6,19E-04	6,15E-04	6,13E-04	6,12E-04	6,04E-04	5,58E-04	1,55E-04
1	1,66E-03	7,16E-04	6,81E-04	6,73E-04	6,68E-04	6,63E-04	6,58E-04	6,08E-04	2,76E-04
1,3	1,29E-03	9,12E-04	8,80E-04	8,72E-04	8,70E-04	8,69E-04	8,68E-04	8,38E-04	5,28E-04

Charge sur la goutte (|e|) / Charge sur l'aérosol (|e|)

Rayon aérosol (μm)	-200000	-20000	-2000	-200	0	200	2000	20000	200000
	20	20	20	20	20	20	20	20	20
0,004	3,87E+01	4,27E+00	4,56E-01	1,32E-01	1,07E-01	8,28E-02	3,81E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,005	2,53E+01	2,79E+00	2,98E-01	9,50E-02	7,94E-02	6,55E-02	5,58E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,008	1,05E+01	1,09E+00	1,25E-01	5,15E-02	4,53E-02	3,96E-02	8,54E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,01	6,87E+00	7,06E-01	8,43E-02	3,97E-02	3,53E-02	3,14E-02	9,24E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,03	8,41E-01	8,61E-02	1,59E-02	1,14E-02	1,09E-02	1,04E-02	6,91E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,05	3,36E-01	3,38E-02	8,52E-03	6,77E-03	6,61E-03	6,45E-03	5,06E-03	2,17E-05	1,00E-05
0,08	1,43E-01	1,54E-02	5,31E-03	4,55E-03	4,43E-03	4,34E-03	3,74E-03	2,24E-04	1,00E-05
0,1	9,88E-02	1,11E-02	4,37E-03	3,89E-03	3,80E-03	3,72E-03	3,21E-03	3,87E-04	1,00E-05
0,3	1,90E-02	3,30E-03	1,98E-03	1,91E-03	1,89E-03	1,86E-03	1,76E-03	8,49E-04	1,00E-05
0,5	1,03E-02	2,20E-03	1,46E-03	1,39E-03	1,38E-03	1,37E-03	1,30E-03	7,61E-04	1,00E-05
0,8	6,36E-03	1,49E-03	1,02E-03	9,82E-04	9,79E-04	9,76E-04	9,37E-04	6,14E-04	1,00E-05
1	5,17E-03	1,19E-03	8,83E-04	8,62E-04	8,56E-04	8,50E-04	8,26E-04	6,11E-04	1,00E-05
1,3	4,11E-03	1,12E-03	9,75E-04	9,60E-04	9,58E-04	9,54E-04	9,60E-04	8,07E-04	1,93E-05

Charge sur la goutte (|e|) / Charge sur l'aérosol (|e|)

Rayon aérosol (μm)	-200000	-20000	-2000	-200	0	200	2000	20000	200000
	50	50	50	50	50	50	50	50	50
0,004	8,86E+01	1,04E+01	1,11E+00	2,57E-01	1,92E-01	1,35E-01	7,38E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,005	5,98E+01	6,79E+00	7,29E-01	1,90E-01	1,49E-01	1,10E-01	4,74E-04	1,00E-05	1,00E-05
0,008	2,53E+01	2,71E+00	3,05E-01	1,07E-01	8,77E-02	7,24E-02	4,52E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,01	1,67E+01	1,75E+00	2,11E-01	7,94E-02	6,91E-02	5,91E-02	7,59E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,03	2,08E+00	2,15E-01	3,64E-02	2,38E-02	2,25E-02	2,12E-02	1,19E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,05	8,13E-01	8,40E-02	1,90E-02	1,45E-02	1,38E-02	1,34E-02	9,53E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,08	3,57E-01	3,82E-02	1,14E-02	9,48E-03	9,27E-03	9,00E-03	7,25E-03	5,47E-05	1,00E-05
0,1	2,48E-01	2,69E-02	9,20E-03	7,88E-03	7,75E-03	7,67E-03	6,32E-03	2,56E-04	1,00E-05
0,3	4,70E-02	7,23E-03	3,99E-03	3,77E-03	3,75E-03	3,72E-03	3,43E-03	1,43E-03	1,00E-05
0,5	2,52E-02	4,58E-03	2,96E-03	2,88E-03	2,86E-03	2,84E-03	2,71E-03	1,47E-03	1,00E-05
0,8	1,45E-02	3,27E-03	2,34E-03	2,23E-03	2,22E-03	2,21E-03	2,13E-03	1,35E-03	1,00E-05
1	1,15E-02	2,76E-03	2,01E-03	1,95E-03	1,93E-03	1,91E-03	1,83E-03	1,19E-03	1,00E-05
1,3	9,85E-03	2,14E-03	1,56E-03	1,48E-03	1,48E-03	1,48E-03	1,42E-03	1,03E-03	1,00E-05

Charge sur la goutte (e) / Charge sur l'aérosol (e)									
Rayon aérosol (μm)	-200000	-20000	-2000	-200	0	200	2000	20000	200000
	600	600	600	600	600	600	600	600	600
0,004	7,28E+02	1,04E+02	1,28E+01	2,72E+00	1,88E+00	1,19E+00	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,005	5,13E+02	6,99E+01	8,39E+00	2,06E+00	1,51E+00	1,06E+00	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,008	2,36E+02	3,00E+01	3,56E+00	1,16E+00	9,56E-01	7,75E-01	4,43E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,01	1,60E+02	1,97E+01	2,39E+00	9,01E-01	7,70E-01	6,48E-01	3,44E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,03	2,34E+01	2,55E+00	4,34E-01	2,78E-01	2,63E-01	2,48E-01	1,32E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,05	9,40E+00	1,01E+00	2,28E-01	1,70E-01	1,63E-01	1,57E-01	1,09E-01	1,00E-05	1,00E-05
0,08	4,18E+00	4,61E-01	1,35E-01	1,08E-01	1,06E-01	1,03E-01	8,11E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,1	2,90E+00	3,21E-01	1,05E-01	8,87E-02	8,70E-02	8,53E-02	7,01E-02	5,68E-04	1,00E-05
0,3	5,66E-01	7,76E-02	4,14E-02	3,83E-02	3,76E-02	3,71E-02	3,41E-02	1,16E-02	1,00E-05
0,5	2,95E-01	4,69E-02	2,88E-02	2,76E-02	2,71E-02	2,66E-02	2,50E-02	1,24E-02	1,00E-05
0,8	1,66E-01	3,10E-02	2,20E-02	2,07E-02	2,06E-02	2,04E-02	1,95E-02	1,20E-02	1,00E-05
1	1,27E-01	2,70E-02	1,97E-02	1,90E-02	1,88E-02	1,86E-02	1,77E-02	1,19E-02	1,00E-05
1,3	9,77E-02	2,41E-02	1,84E-02	1,80E-02	1,80E-02	1,79E-02	1,74E-02	1,24E-02	1,00E-05

Pas de charge	
Rayon aérosol (μm)	0
0,004	6,44E-02
0,005	4,77E-02
0,008	2,53E-02
0,01	1,90E-02
0,03	4,81E-03
0,05	2,86E-03
0,08	1,78E-03
0,1	1,46E-03
0,3	7,15E-04
0,5	6,00E-04
0,8	5,90E-04
1	6,45E-04
1,3	8,74E-04

F.6. GOUTTE DE RAYON 100 MICROMETRES

Charge sur la goutte (e) / Charge sur l'aérosol (e)									
Rayon aérosol (μm)	-400000	-40000	-3000	-300	0	300	3000	40000	400000
	5	5	5	5	5	5	5	5	5
0,004	7,82E+00	8,07E-01	7,97E-02	4,73E-02	4,45E-02	4,17E-02	2,20E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,005	5,07E+00	5,12E-01	5,49E-02	3,48E-02	3,31E-02	3,14E-02	1,83E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,008	2,01E+00	2,02E-01	2,60E-02	1,86E-02	1,77E-02	1,71E-02	1,18E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,01	1,29E+00	1,28E-01	1,85E-02	1,40E-02	1,34E-02	1,30E-02	9,47E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,03	1,56E-01	1,52E-02	4,41E-03	4,02E-03	3,94E-03	3,79E-03	3,31E-03	3,06E-04	1,00E-05
0,05	5,87E-02	6,58E-03	2,63E-03	2,40E-03	2,38E-03	2,35E-03	2,16E-03	5,57E-04	1,00E-05
0,08	2,52E-02	3,31E-03	1,71E-03	1,62E-03	1,61E-03	1,58E-03	1,51E-03	6,62E-04	1,00E-05
0,1	1,74E-02	2,51E-03	1,44E-03	1,40E-03	1,38E-03	1,36E-03	1,32E-03	6,72E-04	1,00E-05
0,3	4,03E-03	9,58E-04	7,74E-04	7,67E-04	7,59E-04	7,56E-04	7,44E-04	6,21E-04	7,02E-05
0,5	2,12E-03	8,08E-04	7,30E-04	7,22E-04	7,19E-04	7,16E-04	7,08E-04	6,42E-04	2,44E-04
0,8	1,42E-03	8,85E-04	8,54E-04	8,51E-04	8,50E-04	8,46E-04	8,45E-04	8,05E-04	4,77E-04
1	1,42E-03	1,06E-03	1,05E-03	1,04E-03	1,03E-03	1,02E-03	1,01E-03	9,99E-04	7,11E-04
1,3	2,00E-03	1,65E-03	1,61E-03	1,58E-03	1,57E-03	1,56E-03	1,55E-03	1,53E-03	1,29E-03

Charge sur la goutte (e) / Charge sur l'aérosol (e)									
Rayon aérosol (μm)	-400000	-40000	-3000	-300	0	300	3000	40000	400000
	20	20	20	20	20	20	20	20	20
0,004	2,94E+01	3,16E+00	2,54E-01	7,83E-02	6,54E-02	5,39E-02	4,90E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,005	1,94E+01	2,05E+00	1,63E-01	5,80E-02	4,97E-02	4,25E-02	6,21E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,008	7,86E+00	8,07E-01	6,96E-02	3,17E-02	2,87E-02	2,56E-02	7,79E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,01	5,16E+00	5,23E-01	4,74E-02	2,40E-02	2,21E-02	2,01E-02	7,74E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,03	6,23E-01	6,13E-02	9,69E-03	7,31E-03	7,03E-03	6,76E-03	4,85E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,05	2,41E-01	2,35E-02	5,45E-03	4,65E-03	4,44E-03	4,30E-03	3,58E-03	1,46E-05	1,00E-05
0,08	1,03E-01	1,07E-02	3,50E-03	3,08E-03	3,04E-03	3,01E-03	2,65E-03	2,14E-04	1,00E-05
0,1	7,05E-02	7,95E-03	2,93E-03	2,66E-03	2,63E-03	2,60E-03	2,35E-03	3,72E-04	1,00E-05
0,3	1,33E-02	2,40E-03	1,45E-03	1,42E-03	1,41E-03	1,39E-03	1,34E-03	7,90E-04	1,00E-05
0,5	7,47E-03	1,54E-03	1,12E-03	1,10E-03	1,09E-03	1,09E-03	1,07E-03	7,64E-04	1,00E-05
0,8	4,85E-03	1,20E-03	1,03E-03	1,01E-03	1,00E-03	9,99E-04	9,89E-04	8,13E-04	4,27E-05
1	4,52E-03	1,26E-03	1,14E-03	1,13E-03	1,12E-03	1,11E-03	1,10E-03	9,97E-04	1,88E-04
1,3	4,35E-03	1,77E-03	1,64E-03	1,62E-03	1,61E-03	1,60E-03	1,59E-03	1,51E-03	5,33E-04

Charge sur la goutte (e) / Charge sur l'aérosol (e)									
Rayon aérosol (μm)	-400000	-40000	-3000	-300	0	300	3000	40000	400000
	50	50	50	50	50	50	50	50	50
0,004	6,82E+01	7,88E+00	6,29E-01	1,54E-01	1,20E-01	8,82E-02	4,12E-04	1,00E-05	1,00E-05
0,005	4,58E+01	5,08E+00	4,10E-01	1,14E-01	9,30E-02	7,26E-02	1,48E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,008	1,90E+01	2,02E+00	1,70E-01	6,41E-02	5,52E-02	4,72E-02	6,44E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,01	1,26E+01	1,30E+00	1,14E-01	4,90E-02	4,35E-02	3,83E-02	8,30E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,03	1,55E+00	1,54E-01	2,13E-02	1,48E-02	1,42E-02	1,35E-02	8,78E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,05	5,97E-01	6,01E-02	1,14E-02	9,30E-03	9,07E-03	8,58E-03	6,83E-03	1,00E-05	1,00E-05
0,08	2,61E-01	2,66E-02	7,09E-03	6,17E-03	6,00E-03	5,84E-03	5,04E-03	3,86E-05	1,00E-05
0,1	1,78E-01	1,85E-02	5,93E-03	5,21E-03	5,14E-03	5,06E-03	4,47E-03	2,10E-04	1,00E-05
0,3	3,36E-02	5,03E-03	2,82E-03	2,73E-03	2,71E-03	2,69E-03	2,59E-03	1,15E-03	1,00E-05
0,5	1,76E-02	3,32E-03	2,22E-03	2,15E-03	2,14E-03	2,13E-03	2,05E-03	1,20E-03	1,00E-05
0,8	1,06E-02	2,48E-03	1,78E-03	1,75E-03	1,74E-03	1,73E-03	1,67E-03	1,21E-03	1,00E-05
1	9,40E-03	2,34E-03	1,69E-03	1,66E-03	1,64E-03	1,63E-03	1,61E-03	1,25E-03	1,00E-05
1,3	9,13E-03	2,52E-03	2,07E-03	2,06E-03	2,04E-03	2,01E-03	1,98E-03	1,63E-03	1,00E-05

Charge sur la goutte (e) / Charge sur l'aérosol (e)									
Rayon aérosol (μm)	-400000 600	-40000 600	-3000 600	-300 600	0 600	300 600	3000 600	40000 600	400000 600
0,004	5,85E+02	7,98E+01	7,23E+00	1,68E+00	1,23E+00	8,50E-01	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,005	4,10E+02	5,40E+01	4,81E+00	1,28E+00	9,88E-01	7,41E-01	1,00E-05	1,00E-05	1,00E-05
0,008	1,82E+02	2,28E+01	2,03E+00	7,34E-01	6,23E-01	5,28E-01	2,44E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,01	1,24E+02	1,50E+01	1,37E+00	5,71E-01	4,97E-01	4,33E-01	5,66E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,03	1,76E+01	1,89E+00	2,60E-01	1,78E-01	1,69E-01	1,59E-01	9,59E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,05	7,08E+00	7,42E-01	1,39E-01	1,05E-01	1,02E-01	9,93E-02	7,34E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,08	3,11E+00	3,30E-01	8,10E-02	6,81E-02	6,67E-02	6,51E-02	5,37E-02	1,00E-05	1,00E-05
0,1	2,15E+00	2,32E-01	6,44E-02	5,60E-02	5,51E-02	5,42E-02	4,59E-02	1,17E-04	1,00E-05
0,3	4,16E-01	5,24E-02	2,56E-02	2,40E-02	2,38E-02	2,37E-02	2,20E-02	6,80E-03	1,00E-05
0,5	2,14E-01	3,13E-02	1,80E-02	1,72E-02	1,71E-02	1,70E-02	1,62E-02	7,59E-03	1,00E-05
0,8	1,20E-01	2,10E-02	1,39E-02	1,35E-02	1,34E-02	1,33E-02	1,31E-02	7,89E-03	1,00E-05
1	9,16E-02	1,89E-02	1,34E-02	1,31E-02	1,30E-02	1,29E-02	1,27E-02	8,72E-03	1,00E-05
1,3	7,61E-02	1,99E-02	1,55E-02	1,52E-02	1,52E-02	1,52E-02	1,48E-02	1,09E-02	1,00E-05

Pas de charge	
Rayon aérosol (μm)	0
0,004	4,04E-02
0,005	2,97E-02
0,008	1,59E-02
0,01	1,17E-02
0,03	3,22E-03
0,05	1,94E-03
0,08	1,31E-03
0,1	1,10E-03
0,3	6,78E-04
0,5	6,76E-04
0,8	8,28E-04
1	1,02E-03
1,3	1,57E-03

REFERENCES

- Adachi, K., Kajino, M., Zaizen, Y., & Igarashi, Y. (2013). Emission of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident. *Scientific reports*, 3, 2554.
- Adam, J. R., & Semonin, R. G. (1971). Collection efficiencies of raindrops for submicron particulates. (No. CONF-700601--), Illinois State Water Survey, Urbana.
- Al-Azzawi, H. K., & Owen, I. (1984). Measuring the thermal conductivity of uranin. *International journal of heat and fluid flow*, 5(1), 57-59.
- Anderson, J. O., Thundiyil, J. G., & Stolbach, A. (2012). Clearing the air: a review of the effects of particulate matter air pollution on human health. *Journal of Medical Toxicology*, 8(2), 166-175.
- Ardon-Dryer, K., Huang, Y. W., & Cziczo, D. J. (2015). Laboratory studies of collection efficiency of sub-micrometer aerosol particles by cloud droplets on a single-droplet basis. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(16), 9159-9171.
- Asai, T., & Kasahara, A. (1967). A theoretical study of the compensating downward motions associated with cumulus clouds. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 24(5), 487-496.
- Baklanov, A., & Sørensen, J. H. (2001). Parameterisation of radionuclide deposition in atmospheric long-range transport modelling. *Physics and Chemistry of the Earth, Part B: Hydrology, Oceans and Atmosphere.*, 26(10), 787-799.
- Barlow, A. K., & Latham, J. (1983). A laboratory study of the scavenging of sub-micron aerosol by charged raindrops. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 109(462), 763-770.
- Beard, K. V. (1974). Experimental and numerical collision efficiencies for submicron particles scavenged by small raindrops. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 31(6), 1595-1603.
- Beard, K. V. (1976). Terminal velocity and shape of cloud and precipitation drops aloft. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 33(5), 851-864.
- Beard, K. V., & Grover, S. N. (1974). Numerical collision efficiencies for small raindrops colliding with micron size particles. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 31(2), 543-550.
- Beard, K. V., & Pruppacher, H. R. (1971). A wind tunnel investigation of the rate of evaporation of small water drops falling at terminal velocity in air. *Journal of the atmospheric Sciences*, 28(8), 1455-1464.
- Bell, M. L., Davis, D. L., & Fletcher, T. (2004). A retrospective assessment of mortality from the London smog episode of 1952: the role of influenza and pollution. *Environmental health perspectives*, 112(1), 6-8.
- Bonka, H., Horn, H.-G., Kösters, G., Küppers, M. M., Maqua, M., & Oberschachtsiek, D. (1987). Meßergebnisse in Aachen nach dem Kernreaktorunfall in Tschernobyl. 7. Fachgespräch Überwachung der Umweltradioaktivität "Der Reaktorunfall in Tschernobyl: Ergebnisse, Erfahrungen, Folgerungen", Institut für Strahlenhygiene des Bundesgesundheitsamtes, 16-17.
- Bonka, H., Horn, H.-G., Küppers, J., & Maqua, M. (1986). Radiologische Messungen und Strahlenexposition der Bevölkerung in Aachen nach dem Kernreaktorunfall in Tschernobyl. *Wiss. Umwelt*, 1.
- Borovikov, A. M., Gaivoronsky, I. I., Zak, E. G., Kostarev, V. V., Mazin, I. P., Minervin, V. E., & Shmeter, S. M. (1963). Cloud Physics, Leningrad, Hydrometeoizdat, 1961, Transl. by Israel Program Scientific. *Translation, US Dept. Commerce, Washington*.
- Borzák, I., & Cummings, P. T. (1997). Electrofreezing of water in molecular dynamics simulation accelerated by oscillatory shear. *Physical Review E*, 56(6), R6279.
- Boutaric, A., & Roy, M. (1939). Pouvoir fluorescent des solutions d'uranine en fonction de leur concentration en ions H⁺. *Compt. Rend. Acad. Sci.*, 209, 162.
- Box, G. E., & Muller, M. E. (1958). A note on the generation of random normal deviates. *The annals of mathematical statistics*, 29(2), 610-611.
- Bricard, J. (1977). Physique des Aérosols; 1ère Partie: Propriété Générale. Théorie Cinétique.
- Brock, J. R. (1962). On the theory of thermal forces acting on aerosol particles. *Journal of Colloid Science*, 17(8), 768-780.
- Byrne, M. A., & Jennings, S. G. (1993). Scavenging of sub-micrometre aerosol particles by water drops. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 27(14), 2099-2105.
- Cabane, M. G., Krien, P., Madelaine, G., & Bricard, J. (1976). Mobility spectra of ions created in gases under atmospheric pressure. *Journal of Colloid and Interface Science*, 57(2), 289-300.

- Chate, D. M. (2005). Study of scavenging of submicron-sized aerosol particles by thunderstorm rain events. *Atmospheric Environment*, 39(35), 6608-6619.
- Chate, D. M., & Pranesha, T. S. (2004). Field studies of scavenging of aerosols by rain events. *Journal of Aerosol Science*, 35(6), 695-706.
- Chate, D. M., Rao, P. S., Naik, M. S., Momin, G. A., Safai, P. D., & Ali, K. (2003). Scavenging of aerosols and their chemical species by rain. *Atmospheric Environment*, 37(18), 2477-2484.
- Cherrier, G., Belut, E., Gerardin, F., Tanière, A., & Rimbart, N. (2017). Aerosol particles scavenging by a droplet: Microphysical modeling in the Greenfield gap. *Atmospheric environment*, 166, 519-530.
- Clement, C. F., & Harrison, R. G. (1992). The charging of radioactive aerosols. *Journal of aerosol science*, 23(5), 481-504.
- Clement, C. F., & Harrison, R. G. (1995). Electrical behaviour of radioactive aerosol in the environment. *Journal of Aerosol Science*, vol. 26, p. S571-S572.
- Clement, C. F., & Harrison, R. G. (2000). Enhanced localised charging of radioactive aerosols. *Journal of aerosol science*, vol. 31, no 3, p. 363-378.
- Clement, C. F., Clement, R. A., & Harrison, R. G. (1995). Charge distributions and coagulation of radioactive aerosols. *Journal of Aerosol Science*, vol. 26, no 8, p. 1207-1225.
- Colgate, S. A., & Romero, J. M. (1970). Charge versus drop size in an electrified cloud. *Journal of Geophysical Research*, 75(30), 5873-5881.
- Crouse, D. L., Peters, P. A., van Donkelaar, A., Goldberg, M. S., Villeneuve, P. J., Brion, O., & Brauer, M. (2012). Risk of nonaccidental and cardiovascular mortality in relation to long-term exposure to low concentrations of fine particulate matter: a Canadian national-level cohort study. *Environmental health perspectives*, 120(5), 708-714.
- Davenport, H. M., & Peters, L. K. (1978). Field studies of atmospheric particulate concentration changes during precipitation. *Atmospheric Environment*, (1967), 12(5), 997-1008.
- Davis, M. H. (1964). Two charged spherical conductors in a uniform electric field: Forces and field strength. *The Quarterly Journal of Mechanics and Applied Mathematics*, 17(4), 499-511.
- Davis, M. H. (1969). Electrostatic field and force on a dielectric sphere near a conducting plane—A note on the application of electrostatic theory to water droplets. *American Journal of Physics*, vol. 37, no 1, p. 26-29.
- Dépée, A., Lemaitre, P., Gelain, T., Mathieu, A., Monier, M., & Flossmann, A. (2019). Theoretical study of aerosol particle electroscavenging by clouds. *Journal of Aerosol Science*, 135, 1-20.
- Depuydt, G. (2013). Etude expérimentale in situ du potentiel de lessivage de l'aérosol atmosphérique par les précipitations. (*Doctoral dissertation*).
- Devell, L., Tovedal, H., Bergström, U., Appelgren, A., Chyssler, J., & Andersson, L. (1986). Initial observations of fallout from the reactor accident at Chernobyl. *Nature*, 321(6067), 192.
- Dorrian, M. D. (1997). Particle size distributions of radioactive aerosols in the environment. *Radiation Protection Dosimetry*, 69(2), 117-132.
- Dye, J. E., Jones, J. J., Winn, W. P., & Cerni, T. A. (1986). Dye, J. E., Jones, J. J., Winn, W. P., Cerni, T. A., Gardiner, B., Lamb, D., ... & Saunders, C. P. R. (1986). Early electrification and precipitation development in a small, isolated Montana cumulonimbus. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 91(D1), 1231-1247.
- Ehrenhaft, F. (1925). LXVIII. The electrical behaviour of radioactive colloidal particles of the order of 10– 5 cm. as observed separately in a gas. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 49(292), 633-648.
- Einstein, A. (1956). Investigations on the Theory of the Brownian Movement. *Courier Corporation*.
- Feidas, H., & Giannakos, A. (2012). Classifying convective and stratiform rain using multispectral infrared Meteosat Second Generation satellite data. *Theoretical and applied climatology*, 108(3-4), 613-630.
- Firket, J. (1931). The cause of the symptoms found in the Meuse Valley during the fog of December, 1930. *Bull Acad R Med Belg*, 11, 683-741.
- Flossmann, A. I. (1987). A theoretical investigation of the removal of atmospheric trace constituents by means of a dynamic model. (*Doctoral dissertation, Verlag nicht ermittelbar*).
- Flossmann, A. I. (1998). Interaction of aerosol particles and clouds. *Journal of the atmospheric sciences*, 55(5), 879-887.
- Flossmann, A. I., & 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(4), 478-497.

- Flossmann, A. I., Hall, W. D., & Pruppacher, H. R. (1985). A theoretical study of the wet removal of atmospheric pollutants. Part I: The redistribution of aerosol particles captured through nucleation and impaction scavenging by growing cloud drops. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 42(6), 583-606.
- Fuchs, N. A., Daisley, R. E., Fuchs, M., Davies, C. N., & Straumanis, M. E. (1965). The mechanics of aerosols. *Physics Today*, 18, 73.
- Fukuta, N. (1975a). A study of the mechanism of contact ice nucleation. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 32(8), 1597-1603.
- Fukuta, N. (1975b). Comments on "A possible mechanism for contact nucleation". *Journal of the Atmospheric Sciences*, 32(12), 2371-2373.
- Garland, J. A. (1967). The adsorption of iodine by atmospheric particles. *Journal of Nuclear Energy*, 21(9), 687-700.
- Gavish, M., Wang, J. L., Eisenstein, M., Lahav, M., & Leiserowitz, L. (1992). The role of crystal polarity in alpha-amino acid crystals for induced nucleation of ice. *Science*, 256(5058), 815-818.
- Gensdarmes, F., Boulaud, D., & Renoux, A. (2001). Electrical charging of radioactive aerosols—comparison of the Clement-Harrison models with new experiments. *Journal of aerosol science*, 32(12), 1437-1458.
- Gossard, E. E. (1994). Measurement of cloud droplet size spectra by Doppler radar. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 11(3), 712-726.
- Greenfield, S. M. (1957). Rain scavenging of radioactive particulate matter from the atmosphere. *Journal of Meteorology*, 14(2), 115-125.
- Grover, S. N., & 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(11), 2156-2165.
- Grover, S. N., Pruppacher, H. R., & 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(10), 1655-1663.
- Gunn, R. (1952). The electrification of cloud droplets in non-precipitating cumuli. *Journal of Meteorology*, 9(6), 397-402.
- Gunn, R., & Woessner, R. H. (1956). Measurements of the systematic electrification of aerosols. *Journal of Colloid Science*, 11(3), 254-259.
- Hall, W. D. (1980). A detailed microphysical model within a two-dimensional dynamic framework: Model description and preliminary results. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 37(11), 2486-2507.
- Hall, W. D., & Beard, K. V. (1975). Electrostatic force between a conducting sphere and a dielectric sphere. *Pure and applied geophysics*, vol. 113, no 1, p. 515-524.
- Hamielec, A. E., & Johnson, A. I. (1962). Viscous flow around fluid spheres at intermediate Reynolds numbers. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 40(2), 41-45.
- Henry, C., Minier, J. P., Mohaupt, M., Profeta, C., Pozorski, J., & Tanière, A. (2014). A stochastic approach for the simulation of collisions between colloidal particles at large time steps. *International Journal of Multiphase Flow*, 61, 94-107.
- Hidy, G. M., & Brock, J. R. (1967). Photophoresis and the descent of particles into the lower stratosphere. *Journal of Geophysical Research*, 72(2), 455-460.
- Hinds, W. C. (2012). *Aerosol technology: properties, behavior, and measurement of airborne particles*. John Wiley & Sons.
- Hiron, T. (2017). *Experimental and modeling study of heterogeneous ice nucleation on mineral aerosol particles and its impact on a convective cloud*. (Doctoral dissertation).
- Hobbs, P. V. (1993). *Aerosol-cloud-climate interactions*. (Vol. 54). Academic Press.
- Hocking, L. M. (1959). The collision efficiency of small drops. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 85(363), 44-50.
- Itô, K., & McKean, H. P. (1965). *Diffusion processes and their Sample Paths*. Springer-Verlag.
- Ivanov, V. D., Kirichenko, V. N., & Petryanov, I. (1969). Charging of alpha-active aerosols by secondary electron emission. *In Soviet Physics Doklady*, (Vol. 13, p. 902).
- Jackson, J. D. (1999). *Classical Electrodynamics*.
- Jaenicke, R. (1984). Our knowledge about the atmospheric aerosol. *In : International Commission for Cloud Physics 11 th Intern. Conf. on Atmospheric Aerosols, Condensation and Ice Nuclei*.
- Jaenicke, R. (1993). Tropospheric aerosols. *International Geophysics*, 54, 1-31.

- Jaworek, A., Adamiak, K., Balachandran, W., Krupa, A., Castle, P., & Machowski, W. (2002). Numerical simulation of scavenging of small particles by charged droplets. *Aerosol Science & Technology*, 36(9), 913-924.
- Jost, D. T., Gäggeler, H. W., Baltensperger, U., Zinder, B., & Haller, P. (1986). Chernobyl fallout in size-fractionated aerosol. *Nature*, 324(6092), 22-23.
- Kaneyasu, N., Ohashi, H., Suzuki, F., Okuda, T., & Ikemori, F. (2012). Sulfate aerosol as a potential transport medium of radiocesium from the Fukushima nuclear accident. *Environmental science & technology*, 46(11), 5720-5726.
- Katsyka, A. P., Máhotkin, L. G., Petrov, G. D., & Bolin, C. (1961). Electrical charges of the droplets of clouds and fogs. *Bull. Acad. Sci. USSR Geophys. Ser.*, 1, 162-165.
- Kerker, M., & Hampl, V. (1974). Scavenging of Aerosol Particles by a Falling Water Drop and Calculation of Washout Coefficients. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 31(5), 1368-1376.
- Khain, A., Arkhipov, V., Pinsky, M., Feldman, Y., & Ryabov, Y. (2004). Rain enhancement and fog elimination by seeding with charged droplets. Part I: Theory and numerical simulations. *Journal of applied meteorology*, 43(10), 1513-1529.
- Klett, J. D., & Davis, M. H. (1973). Theoretical collision efficiencies of cloud droplets at small Reynolds numbers. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 30(1), 107-117.
- Köhler, H. (1936). The nucleus in and the growth of hygroscopic droplets. *Transactions of the Faraday Society*, 32, 1152-1161.
- Kraemer, H. F., & Johnstone, H. F. (1955). Collection of aerosol particles in presence of electrostatic fields. *Industrial & Engineering Chemistry*, 47(12), 2426-2434.
- Laakso, L., Grönholm, T., Rannik, Ü., Kosmale, M., Fiedler, V., Vehkamäki, H., & Kulmala, M. (2003). Ultrafine particle scavenging coefficients calculated from 6 years field measurements. *Atmospheric Environment*, 37(25), 3605-3613.
- Ladino, L., Stetzer, O., Hattendorf, B., Günther, D., Croft, B., & Lohmann, U. (2011). Experimental study of collection efficiencies between submicron aerosols and cloud droplets. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 68(9), 1853-1864.
- Laguionie, P., Rouspard, P., Maro, D., Solier, L., Rozet, M., Hébert, D., & Connan, O. (2014). Simultaneous quantification of the contributions of dry, washout and rainout deposition to the total deposition of particle-bound ⁷Be and ²¹⁰Pb on an urban catchment area on a monthly scale. *Journal of Aerosol Science*, 77, 67-84.
- Lai, K. Y., Dayan, N., & Kerker, M. (1978). Scavenging of aerosol particles by a falling water drop. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 35(4), 674-682.
- Langevin, P. (1908). Sur la théorie du mouvement brownien. *Compt. Rendus*, 146, 530-533.
- LeClair, B. P., Hamielec, A. E., Pruppacher, H. R., & Hall, W. D. (1972). A Theoretical and Experimental Study of the Internal Circulation in Water Drops Falling at Terminal Velocity in Air. *Journal of Atmospheric Sciences*, 29, 728-740.
- Lemaitre, P., Querel, A., Monier, M., Menard, T., Porcheron, E., & Flossmann, A. I. (2017). Experimental evidence of the rear capture of aerosol particles by raindrops. *Atmospheric Chemistry & Physics*, 17(6).
- Leong, K. H., Beard, K. V., & Ochs III, H. T. (1982). Laboratory measurements of particle capture by evaporating cloud drops. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 39(5), 1130-1140.
- Leroy, D. (2007). Développement d'un modèle de nuage tridimensionnel à microphysique détaillée- Application à la simulation de cas de convection profonde. (*Doctoral dissertation*).
- Limbach, L. K., Wick, P., Manser, P., Grass, R. N., Bruinink, A., & Stark, W. J. (2007). Exposure of engineered nanoparticles to human lung epithelial cells: influence of chemical composition and catalytic activity on oxidative stress. *Environmental science & technology*, 41(11), 4158-4163.
- Lin, C. L., & Lee, S. C. (1976). Collision efficiency of water drops in the atmosphere. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 32(7), 1412-1418.
- Lira, I. (2003). *Evaluating the measurement uncertainty: fundamentals and practical guidance*.
- Loeb, L. B. (1960). Basic processes of gaseous electronics. *Univ of California Press*.
- Mackowski, D. W. (1989). Photophoresis of aerosol particles in the free molecular and slip-flow regimes. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 32(5), 843-854.
- Madelaine, G. (1982). Mesure de l'aérosol troposphérique. *IVe symposium sur la recherche en matière de pollution atmosphérique*, Minist. Env. T.2.
- Magono, C., & Kikuchi, K. (1961). On the electric charge of relatively large natural cloud particles. *Journal of the Meteorological Society of Japan*, Ser. II, 39(5), 258-268.

- Malan, D. J. (1952). Les décharges dans l'air et la charge inférieure positive d'un nuage orageux. *In Annales de Geophysique*, (Vol. 8, p. 385).
- Malan, D. J. (1964). *Physics of lightning. English Universities Press.*
- Malardel, S. (2005). *Fondamentaux de météorologie: à l'école du temps.* (Vol. 45). Cepadues.
- Mareš, R., & Kalová, J. (2014). *The experimental determination of surface tension of supercooled water.* In EPJ Web of Conferences (Vol. 67, p. 02072). EDP Sciences.
- Masson, O., Baeza, A., Bieringer, J., Brudecki, K., Bucci, S., Cappai, M., & Didier, D. (2011). Tracking of airborne radionuclides from the damaged Fukushima Dai-ichi nuclear reactors by European networks. *Environmental Science & Technology*, 45(18), 7670-7677.
- Mathieu, A., Korsakissok, I., Quélo, D., Saunier, O., Groëll, J., Didier, D., & Bocquet, M. (2013). État de la modélisation pour simuler l'accident nucléaire de la centrale Fukushima Daiichi. 2268-3798.
- Meszaros, A. (1965). Concentration et distribution dimensionnelle des gouttelettes de brouillards atmosphériques. *J. Rech. Atmos*, 2, 53-64.
- Miles, N. L., Verlinde, J., & Clothiaux, E. E. (2000). Cloud droplet size distributions in low-level stratiform clouds. *Journal of the atmospheric sciences.*, 57(2), 295-311.
- Miller, G. H., Geirsdóttir, Á., Zhong, Y., Larsen, D. J., Otto-Bliesner, B. L., Holland, M. M., & Anderson, C. (2012). Abrupt onset of the Little Ice Age triggered by volcanism and sustained by sea-ice/ocean feedbacks. *Geophysical Research Letters*, 39(2).
- Minier, J. P., & Peirano, E. (2001). The PDF approach to turbulent polydispersed two-phase flows. *Physics reports*, 352(1-3), 1-214.
- Mohaupt, M., Minier, J. P., & Tanière, A. (2011). A new approach for the detection of particle interactions for large-inertia and colloidal particles in a turbulent flow. *International Journal of Multiphase Flow*, 37(7), 746-755.
- Mohnen, V. A. (1976). Formation, nature, and mobility of ions of atmospheric importance. *In Electrical processes in atmospheres.*, (pp. 1-17). Steinkopff.
- Monier, M. (2003). Développement d'un modèle de cirrus à microphysique détaillée. (*Doctoral dissertation, Clermont-Ferrand 2*).
- Mota, M. C., Carvalho, P., Ramalho, J., & Leite, E. (1991). Spectrophotometric analysis of sodium fluorescein aqueous solutions. Determination of molar absorption coefficient. *International ophthalmology.*, 15(5), 321-326.
- Nielsen, K. A., & Hill, J. C. (1976). Collection of inertialess particles on spheres with electrical forces. *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals*, 15(3), 149-157.
- Norville, K., Baker, M., & Latham, J. (1991). A numerical study of thunderstorm electrification: Model development and case study. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres.*, 96(D4), 7463-7481.
- Officer, C. B., Hallam, A., Drake, C. L., & Devine, J. D. (1987). Late Cretaceous and paroxysmal Cretaceous/Tertiary extinctions. *Nature*, 326(6109), 143.
- Oliver, D. L., & Chung, J. N. (1987). Flow about a fluid sphere at low to moderate Reynolds numbers. *Journal of Fluid Mechanics*, 177, 1-18.
- Oseen, C. W. (1910). Über die Stokes' sche Formel und Über eine verwandte Aufgabe in der Hydrodynamik. *Arkiv Mat. Astron. och Fysik*, 6, 1.
- Pauthenier, M., & Moreau-Hanot, M. (1932). La charge des particules sphériques dans un champ ionisé. *J. Phys. Radium*, 3(12), 590-613.
- Petters, M. D., & Kreidenweis, S. M. (2007). A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(8), 1961-1971.
- Phillips, B. B., & Kinzer, G. D. (1958). Measurements of the size and electrification of droplets in cumuliform clouds. *Journal of Meteorology*, 15(4), 369-374.
- Pinsky, M., Khain, A., & Shapiro, M. (2001). Collision efficiency of drops in a wide range of Reynolds numbers: Effects of pressure on spectrum evolution. *Journal of the atmospheric sciences*, 58(7), 742-764.
- Pöllänen, R., Valkama, I., & Toivonen, H. (1997). Transport of radioactive particles from the Chernobyl accident. *Atmospheric Environment*, 31(21), 3575-3590.
- Preining, O. (1966). Photophoresis. *Aerosol science*, 111-135.
- Proudman, I., & Pearson, J. A. (1957). Expansions at small Reynolds numbers for the flow past a sphere and a circular cylinder. *Journal of Fluid Mechanics*, 2(3), 237-262.

- Pruppacher, H. R., & Beard, K. V. (1970). A wind tunnel investigation of the internal circulation and shape of water drops falling at terminal velocity in air. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 96(408), 247-256.
- Pruppacher, H. R., & Klett, J. D. (1997). *Microphysics of Clouds and Precipitation*. (Dordrecht/Boston/London).
- Quarteroni, A., Sacco, R., & Saleri, F. (2000). *Méthodes numériques pour le calcul scientifique*. . Edition Springer,(00).
- Quérel, A. (2012). *Lessivage de l'atmosphère par la pluie: approche microphysique*. (Doctoral dissertation, Université Blaise Pascal-Clermont-Ferrand II).
- Quérel, A., Lemaitre, P., Monier, M., Porcheron, E., Flossmann, A. I., Flossmann, A. I., & Hervo, M. (2014). An experiment to measure raindrop collection efficiencies: influence of rear capture. *Atmospheric Measurement Techniques*, 7(5), 1321-1330.
- Quérel, A., Monier, M., Flossmann, A. I., Lemaitre, P., & Porcheron, E. (2014). The importance of new collection efficiency values including the effect of rear capture for the below-cloud scavenging of aerosol particles. *Atmospheric research*, 142, 57-66.
- Reischl, G. P., John, W., & Devor, W. (1977). Uniform electrical charging of monodisperse aerosols. *Journal of Aerosol Science*, 8(1), 55-65.
- Reiter, R. (1994). Charges on particles of different size from bubbles of Mediterranean Sea surf and from waterfalls. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 99(D5), 10807-10812.
- Renaud, P. H., & Gurriaran, R. (2009). Réflexion sur l'évolution des concentrations en radionucléides artificiels dans l'environnement français, les doses associées et l'adaptation des techniques d'analyse aux besoins de la surveillance. *Radioprotection*, 44(2), 169-186.
- Renoux, A., & Boulaud, D. (1998). *Les aérosols: physique et métrologie*.
- Rosman, K. J., Chisholm, W., Boutron, C. F., Candelone, J. P., & Patterson, C. C. (1994). Anthropogenic lead isotopes in Antarctica. *Geophysical Research Letters*, 21(24), 2669-2672.
- Ruiz-Leo, A. M., Hernández, E., Queralt, S., & Maqueda, G. (2013). Convective and stratiform precipitation trends in the Spanish Mediterranean coast. *Atmospheric Research*, 119, 46-55.
- Rulfová, Z., & Kyselý, J. (2013). Disaggregating convective and stratiform precipitation from station weather data. *Atmospheric research*, 134, 100-115.
- Santachiara, G., Prodi, F., & Belosi, F. (2012). A review of termo-and diffusio-phoresis in the atmospheric aerosol scavenging process. Part 1: Drop scavenging. *Atmospheric and Climate Sciences*, 2(02), 148.
- Saunders, C. Z. (2008). Charge separation mechanisms in clouds. In *Planetary Atmospheric Electricity*, (pp. 335-353). Springer, New York, NY.
- Saunders, C. P., Keith, W. D., & Mitzeva, R. P. (1991). The effect of liquid water on thunderstorm charging. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 96(D6), 11007-11017.
- Shapiro, S. S., & Wilk, M. B. (1965). An analysis of variance test for normality (complete samples). *Biometrika*, 52(3/4), 591-611.
- Sharp, D. H. (1983). Overview of Rayleigh-taylor instability. (No. LA-UR-83-2130; CONF-8305110-2). Los Alamos National Lab., NM (USA).
- Shaw, R. A. (2003). Particle-turbulence interactions in atmospheric clouds. *Annual Review of Fluid Mechanics*, 35 (1), 183-227.
- Slinn, W. G. (1974). Precipitation scavenging: some problems, approximate solutions and suggestions for future research. (No. BNWL-SA-5062 (Rev.)). Battelle Pacific Northwest Labs., Richland, Wash.(USA).
- Slinn, W. G., & Hales, J. M. (1971). A reevaluation of the role of thermophoresis as a mechanism of in-and below-cloud scavenging. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 28(8), 1465-1471.
- Smolarkiewicz, P. K. (1983). A simple positive definite advection scheme with small implicit diffusion. *Monthly weather review*, 111(3), 479-486.
- Sparmacher, H., Fülber, K., & Bonka, H. (1993). Below-cloud scavenging of aerosol particles: particle-bound radionuclides—experimental. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 27(4), 605-618.
- Takahashi, T. (1973). Measurement of electric charge of cloud droplets, drizzle, and raindrops. *Reviews of Geophysics*, 11(4), 903-924.
- Takahashi, T. (1978). Riming electrification as a charge generation mechanism in thunderstorms. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 35(8), 1536-1548.
- Tanière, A. (n.d.). Habilitation à diriger les recherches de l'Université Henri Poincaré-Nancy I.
- Tao, W. K., Chen, J. P., Li, Z., Wang, C., & Zhang, C. (2012). Impact of aerosols on convective clouds and precipitation. *Reviews of Geophysics*, 50(2).

- Tav, J. (2017). Etude du dépôt de radionucléides par les gouttelettes de brouillards et de nuages sur les végétaux à partir d'expérimentations in situ. (Doctoral dissertation).
- Terada, H., Katata, G., Chino, M., & Nagai, H. (2012). Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. Part II: verification of the source term and analysis of regional-scale atmospheric dispersion. *Journal of environmental radioactivity*, 112, 141-154.
- Tinsley, B. A. (2010). Electric charge modulation of aerosol scavenging in clouds: Rate coefficients with Monte Carlo simulation of diffusion. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 115(D23).
- Tinsley, B. A., & Leddon, D. B. (2013). Charge modulation of scavenging in clouds: Extension of Monte Carlo simulations and initial parameterization. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 118(15), 8612-8624.
- Tinsley, B. A., & Zhou, L. (2015). Parameterization of aerosol scavenging due to atmospheric ionization. 120(16), 8389-8410. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 120(16), 8389-8410.
- Tinsley, B. A., Rohrbaugh, R. P., & Hei, M. (2001). Electroscavenging in clouds with broad droplet size distributions and weak electrification. *Atmospheric Research*, 59, 115-135.
- Tinsley, B. A., Rohrbaugh, R. P., Hei, M., & Beard, K. V. (2000). Effects of image charges on the scavenging of aerosol particles by cloud droplets and on droplet charging and possible ice nucleation processes. *Journal of the atmospheric sciences*, 57(13), 2118-2134.
- Tinsley, B. A., Zhou, L., & Plemmons, A. (2006). Changes in scavenging of particles by droplets due to weak electrification in clouds. *Atmospheric Research*, 79(3), 266-295.
- Topping, D. O., McFiggans, G. B., & Coe, H. (2005). A curved multi-component aerosol hygroscopicity model framework: Part 2-Including organic compounds. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(5), 1223-1242.
- Tremblay, A. (2005). The stratiform and convective components of surface precipitation. *Journal of the atmospheric sciences*, vol. 62, no 5, p. 1513-1528.
- Tronko, M. D., Bogdanova, T. I., Komissarenko, I. V., Epstein, O. V., Oliynyk, V., Kovalenko, A., & LiVolsi, V. A. (1999). Thyroid carcinoma in children and adolescents in Ukraine after the Chernobyl nuclear accident: statistical data and clinicomorphologic characteristics. *Cancer: Interdisciplinary International Journal of the American Cancer Society*, 86(1), 149-156.
- Twomey, S. (1956). The electrification of individual cloud droplets. *Tellus*, 8(4), 445-452.
- Twomey, S. (1974). Pollution and the planetary albedo. *Atmospheric Environment*, 8(12), 1251-1256.
- Unger, L. (2001). Charge d'aérosol par décharge électrique pour la filtration d'effluents particuliers. (Doctoral dissertation, Paris 11).
- Unger, L., Boulaud, D., & Borra, J. P. (2004). Unipolar field charging of particles by electrical discharge: effect of particle shape. *Journal of Aerosol Science*, 35(8), 965-979.
- Ungethüm, E. (1974). The mobilities of small ions in the atmosphere and their relationship. *Journal of Aerosol Science*, 5(1), 25-37.
- Volken, M., & Schumann, T. (1993). A critical review of below-cloud aerosol scavenging results on Mt. Rigi. *Water, Air, and Soil Pollution*, 68(1-2), 15-28.
- Waldmann, L., & Schmitt, K. H. (1966). Thermo-phoresis and diffusiophoresis of aerosols. *Aerosol Science*, 137-162.
- Walton, W. H., & Woolcock, A. (1960). The suppression of airborne dust by water spray. *International journal of air pollution*, 3, 129.
- Wang, H. C., Leong, K. H., Stukel, J. J., & Hopke, P. K. (1983). Collection of hydrophilic and hydrophobic charged submicron particles by charged water droplets. *Journal of aerosol science*, 14(6), 703-712.
- Wang, P. K., & Pruppacher, H. R. (1977). An experimental determination of the efficiency with which aerosol particles are collected by water drops in subsaturated air. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 34(10), 1664-1669.
- Wang, P. K., Grover, S. N., & Pruppacher, H. R. (1978). On the effect of electric charges on the scavenging of aerosol particles by clouds and small raindrops. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 35(9), 1735-1743.
- Webb, W. L., & Gunn, R. (1955). The net electrification of natural cloud droplets at the earth's surface. *Journal of Meteorology*, 12(3), 211-214.
- Weber, E. (1969). Stand und Ziel der Grundlagenforschung bei der Nassentstaubung. *Staub-Reinhalte. Luft*, 29, 272-277.

- Whitby, K. T. (1973, September). On the multimodal nature of atmospheric aerosol size distribution. *In VIII International Conference on Nucleation, Leningrad.*
- Wiedensohler, A. (1988). Technical Note: An Approximation of the Bipolar Charge Distribution for Particles in the Submicron Range. *Journal of Aerosol Science*, 19:3/387-389.
- Wilkins, E. T. (1954). Air pollution and the London fog of December, 1952. . *Journal of the Royal Sanitary Institute*, 74(1), 1-21.
- Yeh, H. C., Newton, G. J., & Teague, S. V. (1978). Charge distribution on plutonium-containing aerosols produced in mixed-oxide reactor fuel fabrication and the laboratory. *Health physics*, 35(3), 500-503.
- Yeh, H. C., Newton, G. J., Raabe, O. G., & Boor, D. (1976). Self-charging of ¹⁹⁸Au-labeled monodisperse gold aerosols studied with a miniature electrical mobility spectrometer. *Journal of Aerosol Science*, 7(3), 245-253.
- Zhang, L., & Tinsley, B. A. (2018). Parameterization of In-Cloud Aerosol Scavenging Due To Atmospheric Ionization: 2. Effects of Varying Particle Density. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 123(6), 3099-3115.
- Zhang, L., Michelangeli, D. V., & Taylor, P. A. (2004). Numerical studies of aerosol scavenging by low-level, warm stratiform clouds and precipitation. *Atmospheric Environment*, 38(28), 4653-4665.
- Zhang, L., Tinsley, B. A., & Zhou, L. (2018). Parameterization of In-Cloud Aerosol Scavenging Due to Atmospheric Ionization: Part 3. Effects of Varying Droplet Radius. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 123(18), 10-546.

Étude expérimentale et théorique des mécanismes microphysiques mis en jeu dans la capture des aérosols radioactifs par les nuages.

Les particules atmosphériques sont un sujet d'importance dans plusieurs couches de la société. Leur présence dans l'atmosphère est aussi bien une problématique météorologique et climatique qu'un enjeu de santé publique, notamment de par l'accroissement des maladies cardiovasculaires. En particulier, les particules radioactives émises dans l'atmosphère à la suite d'un accident nucléaire peuvent polluer les écosystèmes durant plusieurs années. Le récent accident du Centre Nucléaire de Production d'Électricité de Fukushima Daiichi en 2011 nous rappelle que, même aujourd'hui, le risque zéro n'existe pas.

À la suite d'une émission dans l'atmosphère, les particules nanométriques diffusent et s'agglomèrent alors que les particules de plusieurs micromètres sédimentent. Les tailles intermédiaires vont, quant à elles, pouvoir être transportées à l'échelle globale dont le mécanisme principal de rabattement au sol provient des interactions avec les nuages et les précipitations. Afin d'améliorer la connaissance de la contamination des sols consécutive à de tels accidents, la compréhension de la capture des aérosols par les nuages est alors essentielle. Dans ce but, un modèle microphysique est implémenté dans ce travail, considérant les mécanismes microphysiques qui interviennent dans la capture des aérosols par des gouttes de nuage, notamment les forces électrostatiques dès lors que les radionucléides ont pour propriété de fortement se charger. Des mesures en laboratoire sont alors réalisées à l'aide de In-CASE (In-Cloud Aerosols Scavenging Experiment), expérience conçue dans ce travail, afin de comparer le modèle développé aux observations, et ce, toujours à une échelle microphysique où les paramètres d'influence régissant la capture au sein du nuage sont contrôlés. Par ailleurs, des systèmes de charge des particules et des gouttes sont conçus pour soigneusement maîtriser les charges électriques, tandis que l'humidité relative est précisément pilotée. Les nouvelles connaissances de la capture des particules par des gouttes de nuage qui en découlent, concernant entre autres les effets électrostatiques, sont ensuite incorporées au modèle de nuage convectif DESCAM (Detailed SCAvenging Model). Ce modèle à microphysique détaillée décrit un nuage de sa formation jusqu'aux précipitations, permettant d'étudier l'impact des nouvelles données sur le rabattement des particules à méso-échelle. De plus, des modifications sont apportées à DESCAM pour élargir l'étude aux nuages stratiformes qui constituent en France, la majorité des précipitations. À terme, cette étude ouvre la voie à l'amélioration de la modélisation du rabattement atmosphérique des particules, et notamment à la contamination des sols dans les modèles de crise de l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire.

Experimental study and modelling of the microphysical effects involved in the aerosol particle scavenging by clouds.

Atmospheric particles are a key topic in many social issues. Their presence in this atmosphere is a meteorological and climatic subject, as well as a public health concern since these particles are correlated with the increase of cardiovascular diseases. Specially, radioactive particles emitted as a result of a nuclear accident can jeopardise ecosystems for decades. The recent accident at the Fukushima Daiichi's nuclear power plant in 2011 reminds us that the risk, even extremely unlikely, exists.

After a release of nuclear material in the atmosphere, nanometric particles diffuse and coagulate, while micrometric particles settle due to gravity. Nevertheless, the intermediate size particles can be transported at a global scale when the main mechanism involved in their scavenging comes from the interaction with clouds and their precipitations. To enhance the ground contamination knowledge after such accidental releases, the understanding of the particle in-cloud collection is thus essential. For this purpose, a microphysical model is implemented in this work, including the whole microphysical mechanisms acting on the particle collection by cloud droplets like the electrostatic forces since radionuclides are well-known to become significantly charged. Laboratory measurements are then conducted through In-CASE (In-Cloud Aerosols Scavenging Experiment), a novel experiment built in this work, to get comparisons between modelling and observations, once again at a microphysical scale where every parameter influencing the particle in-cloud collection is controlled. Furthermore, two systems to electrically charge particles and droplets are constructed to set the electric charges carefully while the relative humidity level is also regulated. These new research results related to the particle collection by cloud droplets following the electrostatic forces, among others effects, are thus incorporated into the convective cloud model DESCAM (Detailed SCAvenging Model). This detailed microphysical model describes a cloud from its formation to the precipitations, allowing the study at a meso-scale of the impact of the new data on the particle scavenging. Moreover, some changes are made in DESCAM to expand the study to stratiform clouds since the major part of the French precipitations come from the stratiform ones. Finally, this work paves the way for the enhancement of the atmospheric particle scavenging modelling, including the ground contamination in the crisis model used by the French Institute in Radiological Protection and Nuclear Safety.