

ETUDE THEORIQUE DU LESSIVAGE DES AEROSOLS PAR LES NUAGES

A. Dépée^{1,2}, P. Lemaître¹, T. Gelain¹, M. Monier^{2,3} et A. Flossmann^{2,3}

¹Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, (IRSN), PSN-RES, SCA, Gif-sur-Yvette, 91192 France

²Clermont Université, Université Blaise Pascal, Laboratoire de Météorologie Physique, F-63000 Clermont-Ferrand, France

³CNRS, INSU, UMR 6016, LaMP, F-63177 Aubière, France

*Courriel de l'orateur : alexis.depee@irsn.fr

THEORETICAL STUDY OF THE AEROSOL PARTICLE SCAVENGING BY CLOUDS

ABSTRACT

This article describes a new theoretical model which determines the efficiency with which aerosol particles are collected by water droplets in clouds. In this Lagrangian approach, we calculate the trajectories of submicron aerosol particles around a droplet. The airflow surrounding the droplet is computed related to the analytical expressions of Proudman-Pearson and Oseen. Then, the Newton's second law to aerosol particles is applied, considering the drag and the electrostatic forces only. For the aerosol particles range used, the Brownian motion must not be neglected. Thus, the Langevin approach is implemented to model it.

RESUME

Cet article décrit un nouveau modèle permettant de calculer théoriquement l'efficacité avec laquelle les aérosols sont collectés par les gouttelettes dans les nuages. Dans cette approche lagrangienne, nous calculons la trajectoire de particules submicroniques autour d'une gouttelette. Les écoulements autour de la gouttelette sont calculés à l'aide des expressions analytiques de Proudman-Pearson et Oseen. Puis, nous appliquons la deuxième loi de Newton aux particules en considérant les forces de traînée et électrostatiques. Pour la gamme de taille des particules étudiée, le mouvement Brownien ne peut pas être négligé. Pour le modéliser de façon lagrangienne, nous adoptons l'approche de Langevin.

KEYWORDS: clouds, wet scavenging, aerosol scavenging / **MOTS-CLÉS :** nuages, dépôt humide, lessivage des aérosols.

INTRODUCTION

Les aérosols sont une composante importante de l'atmosphère. Ils contribuent de manière significative au bilan radiatif de la Terre en interagissant directement avec le rayonnement solaire, mais aussi en servant de précurseurs à la formation des nuages (*Cloud Condensation Nuclei*, ou CCN) qui vont à leur tour interagir avec ce rayonnement. De plus, les propriétés physiques des particules en suspension dans l'atmosphère (taille, concentration, affinité avec l'eau, etc.) sont des paramètres essentiels pour juger de la qualité de l'air. Toutes ces raisons ont amené la communauté scientifique à étudier intensément la physique de ces aérosols atmosphériques. Le rabattement des aérosols par les nuages reste à ce jour modélisé de façon très simpliste, que ce soit dans les modèles météo-climatiques ou dans les calculs de l'IRSN pour les situations de crise. Les modèles de rabattement des aérosols appliqués dans les nuages sont en général les mêmes que ceux appliqués dans la pluie, alors que les processus sont de nature différente ou avec une différence d'ampleur de plusieurs ordres de grandeur.

Dans cet article, nous adoptons une approche théorique pour déterminer l'efficacité avec laquelle les aérosols (rayon $a \in [4 \text{ nm}; 1,3 \mu\text{m}]$) sont collectés par les gouttelettes constituant les nuages (rayon $A \in [15 \mu\text{m}; 100 \mu\text{m}]$). Cette approche est basée sur les travaux de Tinsley (2000 & 2006) pour prendre en considération les forces électrostatiques et sur les travaux récents de Cherrier *et al.*, (2017) pour modéliser le mouvement Brownien des particules. Dans une première partie, nous présenterons le modèle considéré et ses hypothèses. Puis, dans une seconde partie, nous présenterons les premiers résultats obtenus.

1. DESCRIPTION DU MODELE

1.1. Description générale

Dans l'étude, la goutte et les aérosols sont considérés sphériques. Bien que pour les tailles de gouttes considérées l'écoulement de l'air soit axisymétrique, le domaine d'étude est 3D à cause du mouvement Brownien qui agit suivant les 3 composantes du repère cartésien (x, y, z) considéré. La goutte est prise comme centre du repère et les aérosols sont injectés suivant un disque d'injection centré sur l'axe z à une distance de 8 rayons en dessous de la goutte (illustré en **Figure 1**). Le suivi d'une particule se fait jusqu'à sa collecte ou sa sortie du domaine d'étude, à savoir une distance de 6 rayons de goutte au-dessus de celle-ci.

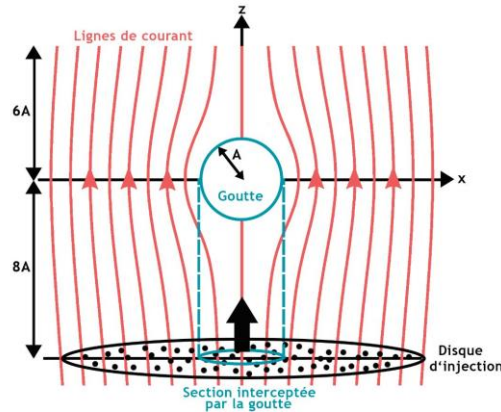


Figure 1. Domaine d'étude et disque d'injection des aérosols

1.2. Suivi lagrangien des aérosols

Le suivi de l'aérosol se fait selon l'approche de Langevin décrite par Mohaupt *et al.*, (2011) (équation 1) :

$$\begin{cases} d\mathbf{X}_p(t) = \mathbf{U}_p(t)dt \\ d\mathbf{U}_p(t) = \frac{\mathbf{U}_{f@p}(t) - \mathbf{U}_p(t)}{\tau_p} dt + B_\theta d\mathbf{W}_t' \end{cases} \quad (1)$$

où \mathbf{X}_p et \mathbf{U}_p sont les vecteurs position et vitesse de la particule, $\mathbf{U}_{f@p}$ la vitesse de l'air à la position de la particule, τ_p le temps de relaxation de la particule, $d\mathbf{W}_t'$ l'incrément d'un processus de Wiener et B_θ le coefficient de diffusion relatif au mouvement Brownien.

Le processus de Wiener étant un processus stochastique, les règles dites "classiques" d'intégration d'équation différentielle de Reimann-Stieltjes ne sont pas applicables pour résoudre l'équation 1. Dès lors, Mohaupt *et al.*, (2011) proposent la résolution de l'équation suivant les règles d'intégration d'équations différentielles stochastiques d'Itô, résumée par le schéma numérique représenté par l'équation 2 :

$$\left\{ \begin{aligned} \mathbf{X}_p(t + \Delta t) &= \mathbf{X}_p(t) + \mathbf{U}_p(t)\tau_p \left(1 - e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right) + \mathbf{U}_{f@p}(t) \left[\Delta t - \tau_p \left(1 - e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right)\right] + B_\theta \tau_p \sqrt{\Delta t - 2\tau_p \frac{\left(1 - e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right)}{\left(1 + e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right)}} \boldsymbol{\xi}_\psi \\ &\quad + B_\theta \tau_p^2 \frac{\left(1 - e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right)^2}{\sqrt{2\tau_p \left(1 - e^{-\frac{2\Delta t}{\tau_p}}\right)}} \boldsymbol{\xi}_\phi \\ \mathbf{U}_p(t + \Delta t) &= \mathbf{U}_p(t) e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}} + \mathbf{U}_{f@p}(t) \left(1 - e^{-\frac{\Delta t}{\tau_p}}\right) + B_\theta \frac{\tau_p}{2} \left(1 - e^{-\frac{2\Delta t}{\tau_p}}\right) \boldsymbol{\xi}_\phi \end{aligned} \right. , \quad (2)$$

où $\boldsymbol{\xi}_\phi$ et $\boldsymbol{\xi}_\psi$ représentent des vecteurs de variables aléatoires pour les trois composantes de l'espace, provenant d'une distribution normale $\mathcal{N}(0,1)$ et générés par une méthode Box-Muller. Δt est le pas de temps, établi en accord avec le schéma numérique de Mohaupt *et al.*, (2011), variant de $10^3 \times \tau_p$ à $10^{-1} \times \tau_p$ quand le rayon de la particule varie de 4 nm à 1,3 μm .

Afin de prendre en considération les forces électrostatiques (\mathbf{F}_{elec}) dans le schéma de Mohaupt *et al.*, (2011), la vitesse de l'air à la position de l'aérosol $\mathbf{U}_{f@p}$ est remplacée dans l'équation 2 par la vitesse résultante à la position de l'aérosol $\mathbf{U}_{res@p}$ définie par l'équation 3 :

$$\mathbf{U}_{res@p}(t) = \mathbf{U}_{f@p}(t) + \frac{\tau_p}{m_p} \mathbf{F}_{elec} = \mathbf{U}_{f@p}(t) + \frac{\tau_p}{m_p} \left(\frac{q^2}{4\pi\epsilon_0 A^2} \left[-\frac{r}{\left(\left(\frac{r}{A}\right)^2 - 1\right)^2} + \left(\frac{A}{r}\right)^2 \left(\frac{Q}{q} + \frac{A}{r}\right) \right] \right) \quad (3)$$

où l'expression des forces électrostatiques (\mathbf{F}_{elec}) est formulée selon la théorie de deux points charges (Tinsley *et al.*, 2000), ϵ_0 est la permittivité du vide, A le rayon de la goutte de charge électrique Q, a le rayon de l'aérosol de charge électrique q et r la distance goutte-aérosol.

1.3. Modélisation des écoulements autour des gouttelettes

Pour les tailles de gouttes inférieures à 30 μm , correspondant à de faibles Reynolds ($\ll 1$), l'équation de Navier-Stokes peut être résolue analytiquement. Comme dans les travaux de Tinsley *et al.*, (2006), l'écoulement de l'air est modélisé selon l'expression de Proudman-Pearson (PP) proche de la goutte ($r < 2A$), selon l'expression de Oseen (OS) loin de la goutte ($r > 5A$) et un lissage linéaire des deux expressions est effectué pour des distances intermédiaires ($2A \leq r \leq 5A$) de telle sorte que PP et OS valent respectivement 0 et 1 pour $r=2A$, 1 et 0 pour $r=5A$. Pour des gouttes de rayons supérieurs à 37,5 μm ($Re = 0,57$), les expressions analytiques ne sont plus justifiées et, par conséquent, les équations de Navier-Stokes sont résolues numériquement.

1.4. Conditions limites

Les aérosols sont distribués aléatoirement suivant une distribution uniforme dans le disque d'injection avec une méthode Box-Muller. Le rayon du disque R_{disq} (équation 4) est optimisé pour contenir toutes les particules susceptibles d'être collectées par la goutte avec différents processus de collecte (diffusion Brownienne, forces électrostatiques, interception, impaction, poids).

$$R_{\text{disq}} = A + a + x(t) + x_{\text{max}}, \quad (4)$$

avec $A+a$ la section interceptée par la goutte, $x(t)$ le déplacement moyen quadratique de la particule relatif au libre parcours moyen défini par l'équation 5 d'Einstein. x_{max} est le déplacement maximal d'une particule sur l'axe z , pris à 8 rayons en dessous de la goutte et menant à sa collecte, où uniquement les forces électrostatiques et la force de traînée sont considérées. L'approche lagrangienne menant à x_{max} est 2D. De plus amples informations sont disponibles dans les travaux de Tinsley *et al.*, (2000) où les expressions de l'écoulement de l'air utilisées sont celles définies en 2.3.

$$x(t) = \sqrt{2 \dim D_b t_0}, \quad (5)$$

où \dim est la dimension du domaine considérée, D_b est le coefficient de diffusion d'Einstein et t_0 le temps que met une particule à arriver jusqu'à la goutte ($= 8A/U_{\infty}$, U_{∞} étant la vitesse terminale de la goutte).

1.5. Conditions de collecte des aérosols

Une particule est supposée collectée par la goutte quand il y a collision. Dès lors, le suivi de la particule est arrêté, de même si une particule sort du domaine au-dessus de la goutte. La particule est considérée comme collectée si la distance goutte-particule est inférieure à la somme des rayons de la goutte et de la particule. De plus, en présence de forces attractives radiales parfois très fortes, il arrive qu'une particule puisse traverser la goutte entre deux pas de temps du fait d'un pas de temps considéré trop grand. Au lieu de diminuer le pas de temps et, par conséquent, augmenter le temps de calcul, la particule est collectée quand cet évènement apparaît.

1.6. Validations et convergences statistiques

La modélisation du mouvement Brownien a été vérifiée pour tous les rayons de particule considérés. Pour ce faire, pour un rayon, 1000 particules sont initialement placées à l'origine d'un repère cartésien, lâchées dans l'air au repos. Les particules sont donc suivies avec l'équation 2 où $\mathbf{U}_{\text{res}@p}$ (équation 3) est mis à zéro. Le déplacement moyen des particules est comparé au déplacement quadratique moyen d'Einstein (équation 5). Finalement, la différence entre la théorie et la modélisation est inférieure à 1 % quel que soit le rayon des particules.

Le processus de Wiener étant un processus stochastique, l'efficacité de collecte E_c est calculée au fil de plusieurs itérations successives tel que (équation 6) :

$$E_c(a, A, q, Q) = \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n E_{c,j}(a, A, q, Q) = \frac{1}{n} \sum_{j=1}^n \frac{\text{nb}_{a,\text{capturées},j}}{\text{nb}_{a,\text{capturables},j}}, \quad (6)$$

où $E_{c,j}$ est l'efficacité de collecte déterminée lors de la j -ème itération, $\text{nb}_{a,\text{capturées},j}$ et $\text{nb}_{a,\text{capturables},j}$ sont respectivement le nombre de particules capturées par la goutte et le nombre de particules capturables durant la j -ème itération, c'est-à-dire comprises dans la section du disque d'injection intercepté par la goutte (défini par la somme des rayons de la goutte et de la particule).

Le nombre d'itérations n nécessaires pour obtenir une valeur représentative de la valeur réelle (pour un nombre infini d'itérations) tout en optimisant le temps de calcul est établi statistiquement par un processus Monte-Carlo. Un test t-Student permet d'estimer l'intervalle de confiance de la valeur E_c et un test Shapiro-Wilk permet de vérifier que la famille $E_{c,j}$ est normalement distribuée.

2. RESULTAT DE SIMULATION

La **Figure 2** représente un résultat de simulation pour une goutte de $15\ \mu\text{m}$ dans des conditions atmosphériques de moyenne troposphère (-17°C , 540hPa) et des particules de masse volumique égale à $500\ \text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$. Pour des aérosols nanométriques, les forces électrostatiques se comportent de la même façon que la force coulombienne. En effet, à grande distance particule-goutte, le deuxième terme F_{elec} domine. Ainsi, les petites particules de grande mobilité électrique sont attirées pour des charges électriques Q et q de signes opposés, augmentant d'un ordre de grandeur l'efficacité de collecte dans le cas de particules de rayon $4\ \text{nm}$ (avec $Q = -200\ e$ et $q = 50\ e$ où e est la charge élémentaire). Pour des charges de même signe, les particules sont repoussées à grande distance de la goutte et ne peuvent pas ressentir l'influence du premier terme attractif de F_{elec} . L'efficacité tend donc à s'annuler pour des charges de mêmes signes et de faibles rayons de particules. Au contraire, pour les grosses particules, la mobilité est si faible que la répulsion à grande distance (et de faible amplitude) ne suffit plus à éloigner la particule pour des charges de mêmes signes. Ainsi, les particules sont attirées par les forces attractives de faible distance (et grande amplitude) ce qui, à terme, augmente l'efficacité de collecte quel que soit le signe des particules et de la goutte. C'est pourquoi, les forces électrostatiques ont une influence importante sur l'efficacité de collecte, notamment en comblant le Greenfield gap qui est le minimum d'efficacité de collecte observable autour de $a = 1\ \mu\text{m}$.

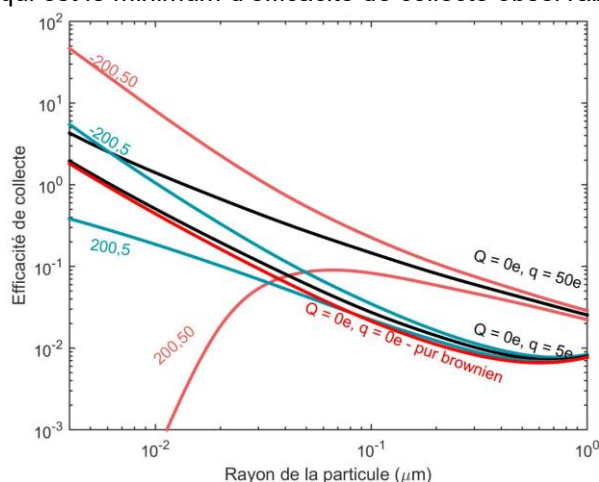


Figure 2. Résultat de simulation pour une goutte de rayon $15\ \mu\text{m}$. Sur chaque courbe, par exemple « -200,5 » représente $Q = -200\ e$ et $q = 5\ e$ (e la charge élémentaire).

CONCLUSION

Le modèle lagrangien présenté dans cette publication permet de déterminer des efficacités de collecte sous une multitude de paramètres comme les charges électriques des gouttes et des particules, le rayon des particules ($a \in [4\ \text{nm}; 1,3\ \mu\text{m}]$), le rayon des gouttes ($A \in [15\ \mu\text{m}; 100\ \mu\text{m}]$). L'humidité relative peut aussi être étudiée par l'ajout des forces de thermophorèse et de diffusiophorèse qui possèdent une forte influence sur l'efficacité de collecte dans cette gamme de taille de gouttelettes. Les résultats présentés sont sensiblement identiques à ceux de Tinsley et Zhou (2015) obtenus avec une approche eulérienne, totalement différente de celle présentée ici.

La suite de ce travail est de tester expérimentalement la validité de ces calculs, aucune validation n'étant décrite dans la littérature. Dès lors, ces nouveaux résultats peuvent faire l'objet d'une étude sur toute la dynamique d'un nuage par l'intermédiaire d'un modèle à microphysique détaillée de nuage. *A fortiori*, il est possible d'obtenir la paramétrisation du rabattement humide des aérosols radioactifs, ce qui est un enjeu de premier ordre dans les calculs de crise de l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire.

Cherrier, G., Belut, E., Gerardin, F., Tanière, A., & Rimbert, N. (2017). Aerosol particles scavenging by a droplet: microphysical modeling in the Greenfield gap. *Atmospheric Environment*, 166, 519-530.

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.

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.

Tinsley, B. A., & Zhou, L. (2015). Parameterization of aerosol scavenging due to atmospheric ionization. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 120(16), 8389-8410.