

ETUDE EXPERIMENTALE DU LESSIVAGE DES AEROSOLS PAR LES NUAGES SUIVANT LES EFFETS ELECTROSTATIQUES

A. Dépée^{1,2}, P. Lemaître¹, T. Gélain¹, 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'auteur : alexis.depee@irsn.fr

EXPERIMENTAL STUDY OF THE AEROSOL PARTICLE ELECTROSCAVENGING BY CLOUDS

RESUME

Cet article présente un nouveau banc expérimental nommé In-CASE (*In-Cloud Aerosol Scavenging Experiment*) qui permet la mesure de l'efficacité avec laquelle les aérosols sont collectés par les gouttes de nuage. La charge électrique et la taille de l'aérosol et de la goutte y sont rigoureusement contrôlées, au même titre que la température et l'humidité relative pour être le plus représentatif des conditions rencontrées dans les nuages. Ainsi, In-CASE facilite l'étude de l'ensemble des effets microphysiques agissant dans la capture de l'aérosol par le nuage. Des mesures d'efficacité incluant les effets électriques sont ainsi présentées et confrontées au modèle théorique développé.

ABSTRACT

This article presents a new bench called In-CASE (*In-Cloud Aerosol Scavenging Experiment*) enabling to measure the efficiency with which aerosol particles are collected by water cloud droplets. Electrical charges and sizes of aerosol and droplet are carefully controlled, as well as temperature and relative humidity to be representative of cloud conditions. Thus, In-CASE is able to study the whole microphysic effects involved in the in-cloud scavenging. The measures of collection efficiency including electrostatic effects are then presented and compared to a theoretical model developed.

MOTS-CLÉS: Lessivage des aérosols, électrophorèse / **KEYWORDS:** Aerosol scavenging, electrophoresis

1. INTRODUCTION

Pour l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), il est essentiel d'améliorer la modélisation du lessivage des aérosols par les nuages, dès lors qu'il est une des principales causes de contamination des sols en cas de rejet radioactif. Les gouttes de nuage étant naturellement chargées (Takahashi, 1973) ainsi que l'aérosol atmosphérique, les effets électrostatiques dans les nuages – jusqu'à présent négligés dans les modèles de lessivage – constituent un axe d'étude important, d'autant plus lorsque l'aérosol est radioactif. En effet, le modèle de chargement de l'aérosol radioactif de Clément et Harrison (1992) appliqué aux mesures dans les premiers panaches de l'accident de Fukushima (2011) par Adachi *et al.* (2013) évalue la charge des radionucléides rejetés dans l'atmosphère à plusieurs centaines de charges élémentaires. Un modèle théorique (Dépée *et al.*, 2019) a été développé pour déterminer l'efficacité avec laquelle des aérosols submicroniques sont collectés par des gouttes de nuage micrométriques - tenant notamment compte de la diffusion brownienne des particules, de leur poids, de leur inertie, mais aussi des effets électrostatiques. A noter que les forces de thermophorèse et de diffusiophorèse ont ici été ajoutées au modèle de Dépée *et al.* (2019). A ce jour, il n'existe aucun banc expérimental qui contrôle l'ensemble des paramètres utiles pour obtenir des comparaisons avec un tel modèle théorique. Dans cet article, l'expérience In-CASE ainsi que les premières mesures d'efficacité de collecte avec les forces électrostatiques sont présentées et confrontées au modèle de Dépée *et al.* (2019), venant combler ce manque de la littérature.

2. PRESENTATION DU DISPOSITIF IN-CASE

2.1. Vue générale

La Figure 1 présente le schéma aéraulique de l'expérience In-CASE. Des gouttes micrométriques monodispersées, générées via un élément piézoélectrique, chutent dans un flux d'aérosol monodispersé à travers une chambre d'une hauteur de 1 mètre. La température y est contrôlée via un système frigorifique permettant le contrôle indirect de l'humidité relative. La charge électrique des gouttes est contrôlée via un système de charge par induction explicité en section 2.2. L'aérosol est composé de fluorescéine sodée, produit par atomisation. Une fois généré, l'aérosol est séché avant qu'une partie passe dans un DMA (*Differential Mobility Analyzer*) afin de sélectionner les particules suivant leur mobilité électrique tandis que l'excédent est évacué vers un événement. Une distribution de charges lui est alors assignée en passant à travers un chargeur électrostatique par champ – voir section 2.3. Ce chargeur est dimensionné pour un débit

d'aérosol de 1,5 l/min. Suivant le diamètre des particules sélectionné, le débit en sortie de DMA est compris entre 0,4 et 1,2 l/min. Dès lors, un débit d'air propre est ajouté au débit d'aérosol en entrée du chargeur. En sortie de chargeur, le flux d'aérosol est humidifié afin d'atteindre une humidité relative dans la chambre de l'ordre de 95 %. En partie basse de la chambre, un séparateur aérodynamique a été construit pour collecter les aérosols sur un filtre très haute efficacité tandis que les gouttes viennent s'impacter dans un volume de contrôle. En amont du filtre, l'aérosol passe dans un neutraliseur électrostatique afin d'éviter toute accumulation de charges électriques sur le porte-filtre pouvant, à terme, amener à une perte d'aérosol.

Au cours d'une expérience, la température et l'humidité relative sont mesurées via deux capteurs disposés en haut et en bas de la chambre tandis que la taille des gouttes est déterminée par analyse d'images prises en ombroscopie au niveau de la tête de la 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 afin d'en déduire respectivement la concentration massique moyenne en aérosol durant l'expérience ($C_{m,p}$) et la masse d'aérosol captée par les gouttes ($m_{fluo,G}$). L'efficacité de collecte (E_c) – fonction des rayons de la goutte (A) et de l'aérosol (a), des charges respectives (Q) et (q) et de l'humidité relative (HR) – est finalement évaluée par l'équation :

$$E_c(a, A, q, Q, HR) = \frac{m_{fluo,G}}{\pi(A + a)^2 H_{In-CASE} C_{m,p} F_g \Delta t} \quad \text{Équation 1}$$

où $H_{In-CASE}$ (=1 m) est la hauteur de chambre, F_g (= 25 Hz) la fréquence de génération des gouttelletes et Δt la durée de l'expérience entre 2 et 6 heures.

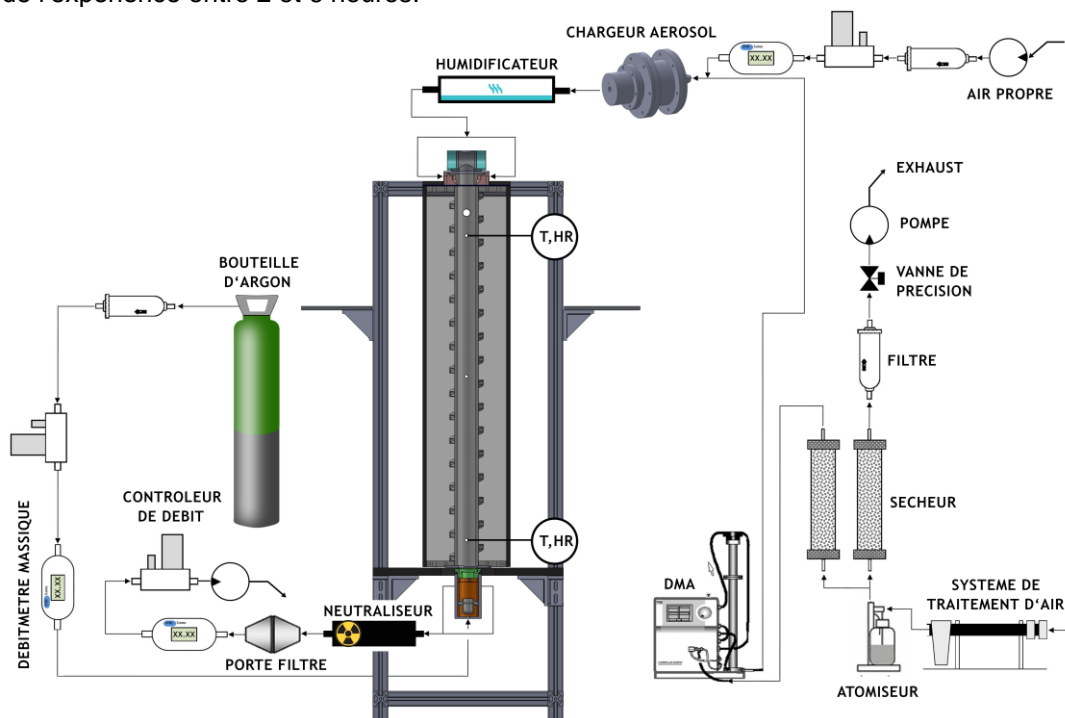
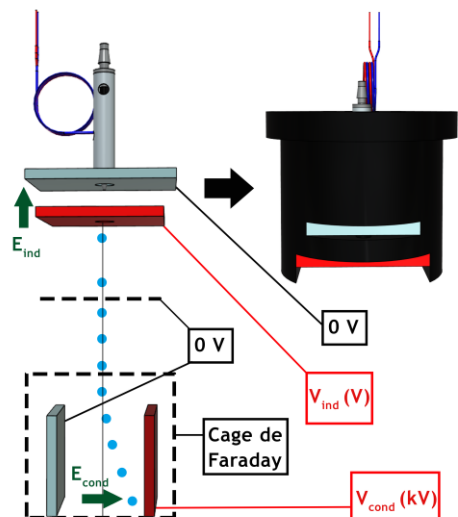


Figure 1 Schéma aéraulique de l'expérience In-CASE

2.2. Caractérisation de la charge des gouttes

Pour contrôler la charge de la goutte, du sel (NaCl) est dissout dans l'eau ultra pure (à une concentration de 3,33 g/l) alimentant le piézoélectrique. Deux plaques horizontales sont alors disposées à l'orifice du piézoélectrique où la goutte se forme (Figure 2). Un champ électrique est induit en appliquant une différence de potentiel entre ces plaques. Suivant la polarité et l'amplitude du champ, des ions positifs (Na^+) ou négatifs (Cl^-) sont attirés sélectivement, en plus ou moins grande quantité.

Figure 2 Dispositif de charge et de mesure de la charge des gouttes.



Pour évaluer la charge de la goutte engendrée par ce système de plaques à induction, une expérience *ex situ* a été faite, consistant à placer un condensateur en dessous du piézoélectrique (Figure 2). En appliquant une différence de potentiel au condensateur, la goutte est déviée du fait de sa charge électrique. Des images prises en ombroscopie sont alors enregistrées afin d'obtenir la trajectoire expérimentale de la goutte entre les plaques du condensateur. Une multitude de trajectoires théoriques de la goutte entre le condensateur sont calculées par bilan des forces (en prenant en compte son poids, son inertie, la traînée et la force électrostatique due au champ électrique du condensateur) où chaque trajectoire correspond à une charge possible sur la goutte.

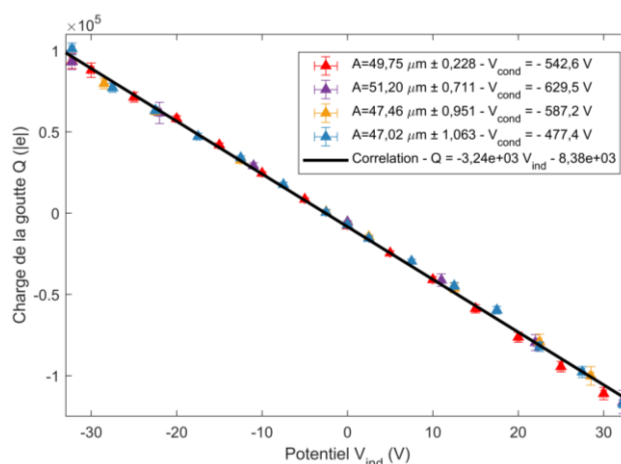


Figure 3 Charge sur la goutte en fonction de la différence de potentiel entre les plaques à induction

Finalement, la charge électrique est déduite en considérant la trajectoire théorique qui minimise les écarts avec les positions réelles des gouttes. Faisant cette évaluation pour plusieurs potentiels à la plaque d'induction (V_{ind}), on obtient la paramétrisation utilisée lors des expériences – présentée en Figure 3.

2.3. Caractérisation de la charge de l'aérosol

Pour charger l'aérosol, un chargeur par champ a été entièrement dimensionné, construit et caractérisé au laboratoire en s'inspirant des travaux d'Unger *et al.* (2004). Ce chargeur d'aérosol est basé sur un système de décharges électriques produites par une forte différence de potentiel entre un fil de tungstène de 300 μm de diamètre et un cylindre de masse, tous deux espacés de 2 cm. Le flux d'aérosol est gainé et accéléré par l'intermédiaire d'un convergent de diamètre 3 mm jusqu'à la zone de dérive où l'aérosol se charge. Une fois chargé, l'aérosol sort du chargeur tandis que les ions – de grande mobilité électrique – restent piégés grâce à un convergent métallique de sortie relié à la masse. Une bille de téflon est fixée au bout du fil de tungstène pour éviter les effets de pointe.

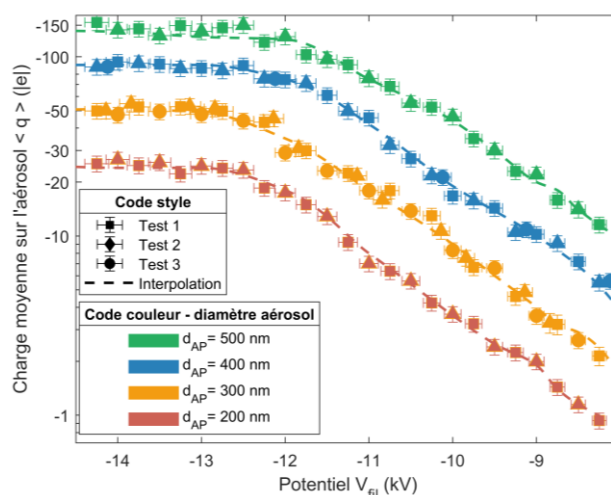


Figure 4 Courbe de charge pour les 4 tailles d'aérosols considérées lors des expériences

Ce chargeur par champ est utilisé en régime linéaire dit de « Trichel », de potentiel (V_{fil}) négatif permettant notamment une très bonne homogénéité de la densité d'ions autour du fil et, *a fortiori*, une charge spatialement homogène des particules autour du fil. En Figure 4 sont présentées les courbes de charge des aérosols utilisées lors des mesures d'efficacité de collecte pour les 4 tailles d'aérosol étudiées. Le débit est fixé à 1,5 l/min car, pour ce débit, il a été établi que le dépôt était minimisé et que la concentration en aérosol en sortie de chargeur était optimisée.

3. RESULTATS ET DISCUSSION

En Figure 5 sont présentées les mesures d'efficacité de collecte obtenues à l'aide de l'expérience In-CASE en fonction du produit des charges sur la goutte et l'aérosol. Le rayon des gouttes est de 50 μm, pour des aérosols secs entre 100 et 250 nm. Différents couples de charge sur les gouttes et aérosols sont considérés (renseignés en Figure 5). Lors des expériences, la température est proche de 1°C, pour une pression de 1 atm et une humidité relative de l'ordre de 95 %. Dès lors, l'hygroscopicité de l'aérosol de fluorescéine sodée est prise en compte pour déterminer le facteur de grossissement de l'aérosol dans la chambre (égal à 1,75) à l'humidité relative mesurée. Sur la figure, les points de simulation du modèle de Dépée *et al.* (2009) sont présentés pour les mêmes conditions d'expériences (tailles, charges, humidité relative, etc.) et en considérant aussi les erreurs maximales et minimales sur le produit des charges (1 point de mesure est finalement comparé à 3 points de simulation).

Plusieurs remarques peuvent être formulées concernant les mesures présentées en Figure 5 :

- l'efficacité de collecte varie sur 4 ordres de grandeur du fait des forces électrostatiques ;
- l'efficacité de collecte est augmentée par rapport au cas sans forces électrostatiques lorsque le produit des charges est négatif et ce, même pour de faibles produits positifs de charge (charges de même signe sur l'aérosol et la goutte) ;
- lorsque la charge sur la goutte est importante et de même polarité que l'aérosol, l'efficacité de collecte est fortement diminuée comparée au cas sans effets électrostatiques ;
- l'influence du produit des charges sur l'efficacité de collecte est plus importante quand l'aérosol est plus petit (du fait d'une mobilité électrique plus grande), comme le montre la décroissance plus rapide de l'efficacité quand on passe d'un aérosol de rayon 432 nm à 175 nm.

Une explication plus exhaustive sur les variations de l'efficacité de collecte due aux forces électriques est présentée par Dépée *et al.* (2019).

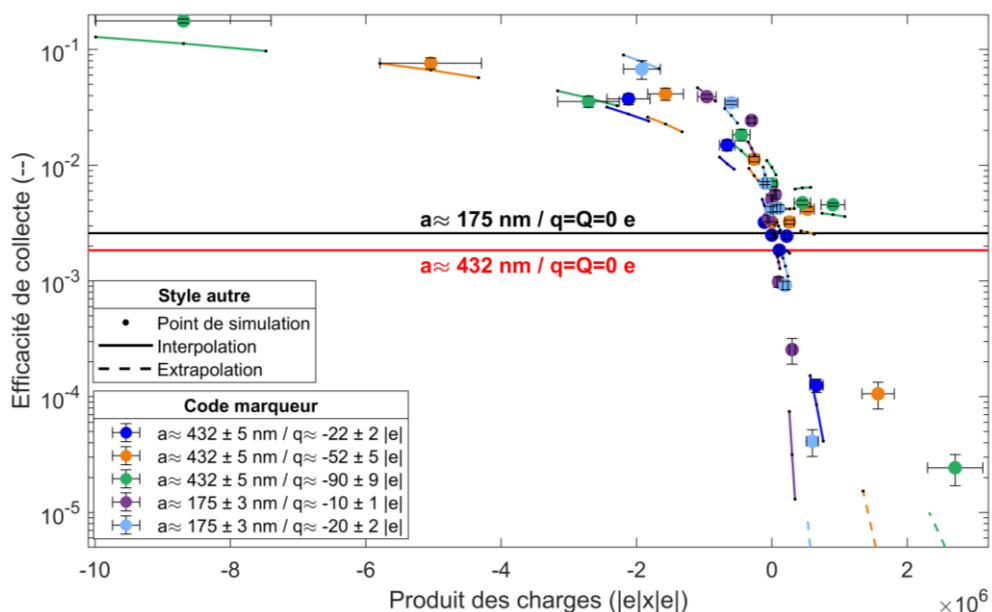


Figure 5 Mesures d'efficacité de collecte en fonction du produit des charges goutte/aérosol pour un aérosol humide de 175 et 432 nm de diamètre considérant le facteur de grossissement de l'aérosol sous une humidité relative mesurée de 95,1 %. Comparaison avec le modèle de Dépée *et al.* (2019). Les traits horizontaux noir et rouge représentent respectivement la valeur théorique d'efficacité de collecte sans les forces électrostatiques pour un aérosol de 175 nm et 432 nm.

4. CONCLUSION ET OUVERTURE

Les résultats des comparaisons montrent des écarts satisfaisants (pour un paramètre s'échelonnant sur plusieurs ordres de grandeur) entre le modèle et les mesures avec des différences moyennes de 14 % et 46 % pour des produits de charge respectivement négatifs et positifs pour un aérosol de 175 nm, de 23 % et 38 % pour un aérosol de 432 nm. Une explication possible concernant les différences plus notables dans le cas de produits de charge positifs, peut venir de la limite de détection du fluorimètre utilisé. En effet, pour des forts produits positifs de charges, les effets électriques sont répulsifs. La masse mesurée dans les gouttes est alors faible, parfois proche de la limite de détection de l'appareil où l'incertitude est grande et où la mesure est très sensible à de possibles pollutions de l'opérateur.

Bien que tester la répétabilité soit nécessaire, le modèle est en accord avec l'expérimentation. *A fortiori*, la matrice de plusieurs centaines d'efficacité de collecte établie par Dépée *et al.* (2019) doit être incorporée dans un modèle de nuage afin d'en déduire une paramétrisation du rabattement des aérosols (radioactifs) par les nuages suivant les effets électrostatiques dont peut disposer l'IRSN pour les codes utilisés en crise.

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.

Clement, C. F., & Harrison, R. G. (1992). The charging of radioactive aerosols. *Journal of Aerosol Science*, 23(5), 481-504.

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.

Takahashi, T. (1973). Measurement of electric charge of cloud droplets, drizzle, and raindrops. *Reviews of Geophysics*, 11(4), 903-924.

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), 965-97.