

Développement d'un modèle microphysique de nuages pour un modèle de climat global vénusien

Sabrina Guilbon

► To cite this version:

Sabrina Guilbon. Développement d'un modèle microphysique de nuages pour un modèle de climat global vénusien. Astrophysique [astro-ph]. Université Paris Saclay (COmUE), 2018. Français. NNT : 2018SACLV006 . tel-01845959

HAL Id: tel-01845959 https://theses.hal.science/tel-01845959v1

Submitted on 20 Jul 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.





Développement d'un modèle microphysique de nuages pour un modèle de climat global vénusien

Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay Préparée à l'Université de Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines

École doctorale n°127 Astronomie et Astrophysique d'Île-de-France Spécialité de doctorat : **Astronomie et Astrophysique**

Thèse présentée et soutenue à Guyancourt, le 27 avril 2018, par

Sabrina Guilbon

Composition du Jury :

Pr. Nathalie Carrasco LATMOS, UVSQ Pr. Nathalie Huret LPC2E, Université d'Orléans Frank Daerden Dr. IASB, Belgique Valérie Wilquet Dr. IASB, Belgique Jean-Baptiste Madeleine Dr. LMD, UPMC Anni Määttänen Dr LATMOS, UVSQ Dr. Franck Montmessin LATMOS, UVSQ Dr. Jérémie Burgalat GSMA, Université de Reims

Présidente
Rapporteure
Rapporteur
Examinatrice
Examinateur
Directrice de thèse
Co-Directeur de thèse
Invité



Titre : Développement d'un modèle microphysique de nuages pour un modèle de climat global vénusien

Mots clefs : Modélisation, Nuages, Vénus, Microphysique, Méthode des moments

Résumé : les conditions à la surface de Vénus sont infernales : température de plus de 400 °C, pression atmosphérique 90 fois celle sur Terre dans une atmosphère composée à 96 % de dioxyde de carbone. Une particularité de cette planète est la couche opaque nuageuse de 20 km d'épaisseur qui couvre toute la planète.

Les nuages ont un rôle crucial pour le transfert de rayonnement, la dynamique atmosphérique, dans le cycle de certaines espèces chimiques comme le soufre et plus généralement pour le climat de Vénus. Malgré de nombreuses missions spatiales consacrées à cet astre depuis 1961, il y a peu de mesures in-situ. Les couches basses des nuages sont difficiles à étudier par satellite, par conséquent il existe encore de nombreuses questions au sujet des nuages : leurs propriétés et leurs impacts radiatifs, dynamiques et chimiques sont mal contraints.

Composées majoritairement d'acide sulfurique en solution, les particules sont supposées sphériques et liquides et composent des nuages étalés verticalement entre 50 et 70 km d'altitude environ, entourés par des brumes entre 30 et 50 km et au-dessus de 70 km. Les gouttelettes ont été classées, d'après des observations, en trois modes en fonction de leur taille et de leur composition : les modes 1 et 2 respectivement pour les petites (r = 0.2 μ m) et moyennes particules (r = 1.0 μ m), et un troisième mode qui contiendrait les plus grandes particules (r = 3.5 μ m). Ce dernier mode, qui a été détecté par la sonde *Pioneer Venus*, demeure de composition et d'existence incertaines, et il n'est pas pris en compte dans notre étude.

Afin de compléter et de mieux comprendre les données obtenues par l'observation spatiale, un modèle modal de microphysique, nommé MAD-Muphy (Modal Aerosol Dynamics with Microphysics), a été développé. L'objectif est d'intégrer MAD-Muphy dans le modèle de climat global vénusien (IPSL-VGCM), il faut donc limiter le nombre de variables que le VGCM doit suivre dans le temps et l'espace (également appelé traceurs). La méthode des moments est déjà utilisée dans les GCM de Titan et de Mars et constitue un bon compromis entre la précision des résultats et le temps de calcul. MAD-Muphy est donc basé sur cette représentation pour une pression et une température définies pour une couche de l'atmosphère (ou 0D). La thèse présentée ici détaille le développement des expressions mathématiques des équations de la microphysique avec les moments, présente le nouveau modèle MAD-Muphy ainsi que les hypothèses qui ont été nécessaires pour son développement. Tout d'abord, nous déterminerons le temps caractéristique de chaque processus microphysique et nous étudierons leur comportement en 0D. Ensuite, nos résultats seront comparés avec ceux du modèle sectionné SALSA en 0D.





Title : Development of a microphysical cloud model for the IPSL Venus Global Climate Model.

Keywords : Modeling, Clouds, Venus, Microphysics, Moment method

Abstract : The conditions on the surface of Venus are infernal: temperature of more than 400 $^{\circ}$ C, 90 times the Earth's atmospheric pressure in an atmosphere composed of 96 % of carbon dioxide. A distinctive characteristic of this planet is the 20 km thick opaque cloud layer, which enshrouds the planet.

Clouds have a crucial role in radiative transfer, atmospheric dynamics, in the cycle of some chemical species like sulphur and more generally in the climate of Venus. Despite the numerous space missions devoted to this object since 1961, there are few in-situ measurements. The lower cloud layers are difficult to study by satellite, so there are still many questions about clouds: their properties and their radiative, dynamic and chemical impacts are poorly constrained.

Predominantly composed of sulphuric acid solution, the particles are supposed to be spherical and liquid and compose the clouds that are vertically spread between approximately 50 and 70 km of altitude, surrounded by hazes between approximately 30 and 50 km and above 70 km. Based on observations the droplets have been classified into three modes according to their size and composition: modes 1 and 2 respectively for small ($r = 0.2 \ \mu m$) and medium particles ($r = 1.0 \ \mu m$), and a third mode that would contain the largest particles ($r = 3.5 \ \mu m$). The latter mode, which has been detected by the *Pioneer Venus* probe, remains uncertain in composition and existence, and is not taken into account in our study.

To complete and better understand the observational data, a modal microphysical model, called MAD-Muphy (Modal Aerosol Dynamics with Microphysics), has been developed. The goal is to integrate MAD-Muphy into the venusian global climate model (IPSL-VGCM), so we must limit the number of variables that the VGCM must follow in time and space (also called tracers). The moment method is already used in the Titan and Mars GCMs and is a good compromise between the accuracy of the results and the computation time. MAD-Muphy is therefore based on this representation for a pressure and a temperature of one atmospheric layer (or 0D). The thesis presented here details the derivation of the mathematical expressions of the microphysical equations with moments, presents the new MAD-Muphy model as well as the hypotheses that were necessary for its development. We will first determine the characteristic timescale of each microphysical process and we will study their behaviour in 0D.

Then, our results will be compared with those of the SALSA sectional model in 0D.



Connaissances et hypothèses sur la microphysique des nuages de Vénus. Les particules semblent se former dans la brume supérieure, où l'acide sulfurique est produite par photochimie. Les processus de croissance (coagulation et condensation) ont probablement lieu dans les trois couches nuageuses. Ensuite, les gouttes tombent par sédimentation et s'évaporent en-dessous de 40 km. Les vapeurs sont transportées par diffusion verticale Schéma réalisé par Flavie Roux dans le cadre d'une collaboration avec l'École Estienne. (Conseillère scientifique : S.Guilbon)

À mes rêves d'enfant...

Remerciements

Charles Lindbergh a écrit : "*l'aventure est dans chaque souffle de vent*". Pour moi, elle l'a été dans chaque équation, chaque ligne de code, chaque interaction, ou couplage, qu'ils aient été humain ou numérique. En somme dans chaque seconde de ma vie en tant que doctorante.

Cette aventure ne s'est pas écrite seule, c'est pourquoi je tiens à présent à faire mes remerciements. Je m'excuse d'ores-et-déjà auprès de ceux que j'ai sur le moment oublié mais qui ont été indispensables.

Tout d'abord je tenais à vous remercier, chers membres du jury, d'avoir hanté mes nuits. Plus sérieusement, merci de votre patience, d'être venu jusqu'à Guyancourt pour assister à ma soutenance et d'avoir volontiers consacré de votre temps à me lire et me soutenir.

Ensuite, je tiens à remercier mes directeurs de thèse Anni et Franck pour m'avoir fait confiance pour mener à bien un projet aussi ambitieux. Ce sujet de thèse était et est tout bonnement génial. Un grand merci à Jérémie Burgalat, parrain de cette thèse. Tu as été d'un soutien inébranlable et grâce à toi j'ai réussi à aller jusqu'au bout de cette expérience.

J'en profite pour remercier Pascal Rannou et mes collègues du GSMA de Reims (Benoît, Maélie, Anne-Laure, Clément, Zineb, Flo, Grégory, Bruno et Nicolas²). Merci pour votre accueil, votre soutien et les bons moments passés ensemble. Grâce à vous, j'ai appris que le champagne se prenait également à l'apéritif.

Merci également aux membres du département IMPEC du LATMOS pour leur accueil. Merci à mon tuteur Laurent pour son soutien et également aux membres de l'administration, acteurs indispensables au bon fonctionnement de la recherche. Merci Irina pour ta joie de vivre et ta bienveillance.

Merci également à mon amie Caroline, bibliothécaire de choc, qui a su trouver les documents et les mots.

Je remercie Nathalie Carrasco de m'avoir soutenu durant mes années licences et master. Merci d'avoir cru en moi. Cette aventure a commencé et se termine avec toi, et cela a été un honneur pour moi de t'avoir en tant que présidente de mon jury.

Merci à Aurélien, soutien et correcteur de l'ombre à qui j'ai donné quelques cheveux blancs supplémentaires.

Merci aux doctorants du LATMOS de Jussieu comme de Guyancourt, ceux qui sont déjà partis (notamment aux montmessiens), et ceux qui restent encore un peu après mon passage (même les martiens!). Un remerciement spécial pour le couloir 1300! Merci à Loïc, co-bureau de longue date qui m'a appris à dire du mal des grille-pains et que les canards pouvaient voler. Et merci à Christophe, inoubliable co-bureau en lego.

Merci à Jean-Yves, Tristan, Aymen, Yann... Des hommes de terrain prêts à tout pour leur travail. Comment la recherche pourrait-elle se passer d'hommes d'action, vaillants et forts comme vous? Oui, enfin...

Merci aux membres de l'ATC de m'avoir offert quotidiennement une bouffée d'oxygène. Vous avez été indispensable à mon équilibre mental dans les derniers mois de cette thèse.

Merci à Lilou, insupportable congénère habitant le bureau d'en face. En trois mots : terrible, asociale et indispensablement chocolatée (oui c'est un mot et oui ça existe).

Merci à Bibi, Yann, Olivier et Jean-Luc d'avoir veillé sur moi. J'ai toujours pu compter sur vous et je vous remercie infiniment pour votre aide, votre présence et votre amitié. Nos discussions culturelles vont me manquer.

Merci à tous ceux du LMD! Vous êtes géniaux, je ne cesserai de le clamer! Particulièrement à Maxence, Itziar, Sébastien auquels j'ajoute ma collègue du LATMOS Daria : que l'étude de Vénus ne meurt jamais!

Merci à mes amis d'enfance : Allys, Coco, Kev et Xav pour nos nombreuses retrouvailles. Merci aussi à Adé, Cécile, Arnaud, Lina, Matazar, Clad, Deneb, Nàdia, Meriem, Tio Patate, Kiwi, Bastien, Kira... qui m'ont aidé à me changer les idées.

Merci Yo, tu es le meilleur. Je crois en toi et je sais que quelle que soit ta route, elle te mènera loin.

Merci à ma famille d'avoir été présente à ma soutenance. Je tiens également à remercier tout particulièrement ma mère, pour avoir marché à mes côtés. Je ne serai pas arrivé là sans toi.

Merci à ceux qui ont fait un bout de chemin avec moi, même si nos routes ont fini par se séparer.

Et enfin, merci à toi. Ce manuscrit n'aurait pu être posé là sans ton soutien quotidien, ton humour douteux et ta grande gueule. Mehdi, tu es la force grâce à laquelle j'ai pu poser de la première lettre au dernier point.

Il y a un peu de vous dans chaque ligne de cette aventure. Et pour cela, je vous en remercie.

Table des matières

Ι Introduction 1 Vénus : la jumelle diabolique de la Terre Caractéristiques générales 1.1Histoire de Vénus et de son habitabilité 1.21.2.11.2.21.31.4 Dynamique accélérée 1.5Chimie atmosphérique complexe 1.6Domaine nuageux partagé en altitude 1.6.11.6.21.6.3Variations latitudinales des nuages Aérosols flottants et novaux de condensation 1.6.41.7 $\mathbf{2}$ État de l'art et objectifs de la thèse 2.1Modélisation des nuages vénusiens 2.1.1Notions sur des représentations numériques d'une distribution en taille 2.1.2Revue des modèles de nuages vénusiens Modélisation globale de l'atmosphère de Vénus 2.2Présentation générale du VGCM de l'IPSL 2.2.12.2.22.2.32.2.4État des lieux des nuages dans le VGCM 2.32.4Objectifs de mon travail de thèse

1

3

4

8

8

8

10

12

14

15

16

16

18

19

23

 $\mathbf{25}$

25

25

26

31

31

31

32

32

33

34

37

II Théorie de la microphysique

3	3 Physique appliquée aux particules 4			
	3.1	Représ	sentation des particules atmosphériques	41
		3.1.1	Distribution en taille des particules	42
		3.1.2	Définition de la loi log-normale	44

		3.1.3 Définition des moments	44
	3.2	Formation d'une gouttelette	45
		3.2.1 Saturation d'une vapeur	46
		3.2.2 Notion de tension de surface	46
		3.2.3 Énergie libre de formation ou énergie de nucléation	46
		3.2.4 Nucléation homogène	48
		3.2.5 Nucléation hétérogène	51
		3.2.6 Taux de nucléation et nuages vénusiens	52
	3.3	Condensation ou évaporation?	54
		3.3.1 Définition du flux de masse	54
		3.3.2 Flux de masse dans les conditions vénusiennes	56
	3.4	Coagulation des particules	56
		3.4.1 Coagulation brownienne	57
		3.4.2 Coalescence et sédimentation des particules	58
		3.4.3 Prise en compte simultanée de la coagulation brownienne et de la coalescence	59
		3.4.4 Kernels de coagulation dans les nuages de Vénus	60
	3.5	Paramètres sensibles pour la microphysique	62
II	IN	Nouveau modèle de microphysique pour les nuages de Vénus	63
4	MA	D-Muphy : le nouveau modèle de microphysique	67
	4.1	Présentation de MAD-Muphy	67
	4.2	Hypothèses nécessaires pour le nouveau modèle	68
		4.2.1 Représentation des distributions en taille et les moments utilisés	68
		4.2.2 Pourcentage massique d'acide sulfurique dans les gouttelettes	69
		4.2.3 Régimes d'écoulement	70
		4.2.4 Stationnarité de la température pendant un pas de temps	71
	4.3	Points à retenir	75
5	Dév	veloppement de la microphysique avec les moments	79
	5.1	Zone de production des aérosols	80
	5.2	Nucléation homogène	80
	5.3	Nucléation hétérogène	81
		5.3.1 Équations intégrées	81
		5.3.2 Calcul du taux de nucléation hétérogène	82
	5.4	Transfert de masse	84
	5.5	Coagulation	86
	5.5	Coagulation	86 87
	5.5	Coagulation	86 87 88
	5.5	Coagulation	86 87 88 92
	5.5	CoagulationCoagulation5.5.1Équations intégrées et distribution bi-modale5.5.2Coefficient d'efficacité ou kernel de coagulation5.5.3Tendances des moments d'ordre 0 et 3 : expression générale5.5.4Tendances des moments d'ordre 0 et 3 : en régime continu	 86 87 88 92 92
	5.5	CoagulationCoagulation5.5.1Équations intégrées et distribution bi-modale5.5.2Coefficient d'efficacité ou kernel de coagulation5.5.3Tendances des moments d'ordre 0 et 3 : expression générale5.5.4Tendances des moments d'ordre 0 et 3 : en régime continu5.5.5Tendances des moments d'ordre 0 et 3 : en régime moléculaire	 86 87 88 92 92 94

	5.5.7 Transition de régime et moyennes harmoniques	96
5.6	Mode-merging	97
5.7	Sédimentation des particules	98

IV Résultats

101

6	Test	ts de N	AD-Muphy dans des conditions vénusiennes	103
	6.1	Comp	araison avec un modèle spectral : SALSA	. 103
		6.1.1	Présentation de SALSA	. 104
		6.1.2	Nucléation homogène et conditions initiales	. 105
		6.1.3	Étude du transfert de masse	. 105
		6.1.4	Coagulation brownienne avec les modes 1 et 2	. 109
	6.2	Explo	ration des résultats de MAD-Muphy	. 114
		6.2.1	Nucléation homogène et hétérogène	. 114
		6.2.2	Étude du transfert de masse	. 116
		6.2.3	Impact de la coagulation brownienne et du mode-merging	. 118
	6.3	Conclu	usion sur les résultats	. 122
\mathbf{v}	C	onclus	ion	123
•		Jiicius		120
7	Con	nclusio	n générale et perspectives	125
V	гл	nnou	a at Piblicgraphic	190
V		imexe	es et bibliographie	129
\mathbf{A}	L'er	nfer su	r terre : une possible biosphère sur Vénus?	131
	A.1	Zone of	d'habitabilité dans les nuages	. 131
	A.2	Flux s	olaire	. 132
	A.3	Flux o	cosmique	. 132
	A.4	Extrêi	mophiles terrestres	. 132
	A.5	Nouve	elle forme de vie propre à Vénus?	. 133
в	Mas	sse vol	umique des poussières météoritiques	135
С	Dét	ermina	ation d'un régime d'écoulement	137
	C.1	Nomb	re de Reynolds	. 137
	C.2	Libre	parcours moven	. 138

 C.3
 Nombre de Knudsen
 139

 C.4
 Nombre de Reynolds ou nombre de Knudsen?
 139

Première partie

Introduction

Chapitre 1

Vénus : la jumelle diabolique de la Terre

Sommaire

1.1	Cara	actéristiques générales	4
1.2	Hist	oire de Vénus et de son habitabilité	8
	1.2.1	Une terre hostile à la vie?	8
	1.2.2	Vénus primitive ou paleo-Vénus	8
1.3	Obs	ervations spatiales contemporaines	10
1.4	Dyn	amique accélérée	12
1.5	Chi	nie atmosphérique complexe	14
1.6	Nua	ges corrosifs	15
	1.6.1	Domaine nuageux partagé en altitude	16
	1.6.2	Classification des particules nuageuses	16
	1.6.3	Variations latitudinales des nuages	18
	1.6.4	Aérosols flottants et noyaux de condensation	19
		Poussières météoritiques	19
		Absorbant inconnu dans l'ultraviolet	19
		Absorbant dans l'ultraviolet et polysoufres	20
		D'autres pistes pour les noyaux de condensation ?	20
1.7	Poir	ts à retenir	23

Observée depuis les babyloniens, presque deux milles ans avant notre ère, Vénus est le deuxième astre le plus brillant de notre ciel nocturne, après la Lune (figure 1.1). C'est certainement la raison pour laquelle elle est présente dans de nombreuses croyances et mythologies à travers les âges et les continents : de la Chine à l'Amérique du Sud en passant par la Grèce, de la mythologie romaine à la culture Maya. La deuxième planète de notre système solaire doit son nom définitif aux romains : Vénus, déesse de l'amour, de la séduction et de la beauté.

À travers ce chapitre, je vais vous présenter l'objet céleste qui a attisé ma curiosité.



FIG. 1.1 – Vénus vue au-dessus de la Terre depuis la Station Spatiale Internationnale (ISS). Crédits JAXA.

1.1 Caractéristiques générales

Cette planète tellurique ressemble pour beaucoup à notre planète, de part sa taille qui fait 95 % du diamètre de la Terre et de sa masse représentant 82 % de celle de la planète bleue. Elle est en revanche 30 % plus proche du Soleil que la Terre, le flux solaire reçu est donc plus important (tableau 1.1). En l'absence de lune, la masse et la densité de Vénus sont difficiles à déterminer. Afin d'obtenir les valeurs présentées dans le tableau 1.1, Vénus a été associée à une planète rocheuse avec une structure interne comparable à celle de la Terre.

Malgré ces similitudes, Vénus reste très différente de notre planète, en commençant par ses caractéristiques orbitographiques. Sa période de rotation, c'est à dire un tour complet sur ellemême, est de 243 jours terrestres et sa lente vitesse orbitale d'environ 35 km/s entraîne un tour complet autour du Soleil en 224,7 jours terrestres. Le jour solaire (du lever au coucher du Soleil) est de 116,75 jours terrestres (figure 1.2). Les repères temporels ne sont donc pas les mêmes que chez nous puisqu'une année sur Vénus vaut environ 1,93 jours solaires vénusiens (tableau 1.1).



FIG. 1.2 – Heures vénusiennes en fonction de la période orbitale de la planète. Crédits NASA.

Une autre particularité de Vénus est son obliquité de 177,36° qui est à l'origine de sa rotation rétrograde allant d'est en ouest (Goldstein et al., 1964). Vénus tourne donc dans le sens inverse de

la Terre. L'hypothèse d'un gros impacteur frappant Vénus tôt dans son histoire pourrait expliquer son basculement. Une autre hypothèse plus complexe présentée par Correia and Laskar (2003), propose une rotation qui s'est ralentie jusqu'à l'arrêt complet avant de tourner dans le sens inverse. Cette inversion serait due aux forces de marées gravitationnelles du Soleil combinées à des marées thermiques de l'atmosphère de Vénus et des frictions dans la structure interne de la planète entre le noyau, la croûte et le manteau. L'obliquité de cet astre couplée à la faible excentricité de son orbite la rendant quasi-circulaire, entrainent l'absence de saisons sur Vénus. En revanche, des variations diurnes sont observées. Notons enfin qu'il n'y a pas d'aplatissement de la planète aux pôles du fait de sa lente rotation à l'équateur qui est actuellement de 6,52 km/h.

Le surnom de jumelle diabolique de la Terre vient des conditions extrêmes de cette planète. L'atmosphère dense de Vénus est composée à 96,5 % de dioxyde de carbone et la pression atmosphérique au sol est cent fois supérieure à celle de notre planète. L'effet de serre sur Vénus est donc conséquent, le dioxyde de carbone est en effet transparent au flux solaire visible mais opaque au flux infra-rouge émis par le sol. L'atmosphère est ainsi réchauffée. De plus, Vénus est entièrement recouverte de nuages d'une vingtaine de kilomètres d'épaisseur qui sont majoritairement composés d'acide sulfurique. L'opacité des nuages entraine une diminution du flux solaire incident ce qui permet de refroidir l'atmosphère. L'effet de serre combiné à la présence des nuages engendrent une température au sol d'environ 462°C (ou 735 K). Il est à noter que le point de fusion du plomb avoisine les 330°C. Nous verrons par la suite que ces conditions constituent un défi dans l'exploration spatiale de la planète.

Caractéristiques	Vénus	Terre
Distance au Soleil (UA) Constante solaire (W/m ²) Excentricité (°)	0,72 3140 0,0068	1 1361 0,0167
Obliquité (°) Rayon (km) Masse (10 ²⁴ kg) Densité (kg/m ³) Gravité (m/s ²)	$ \begin{array}{r} 177,36 \\ 6051,80 \\ 4,87 \\ 5250 \\ 8,87 \\ \end{array} $	23,44 $6378,10$ $5,97$ 5520 $9,81$
Pression au sol (bar) Température au sol (K)	92 735	1 280
Jour sidéral (jours terrestres) Année (jours terrestres)	243j 224,69	$\begin{array}{c} 1 \ (23,93h) \\ 365,25 \end{array}$

TAB. 1.1 – Caractéristiques de Vénus comparées à celles de la Terre.

À sa surface (figure 1.3), de nombreuses structures géologiques traduisent une activité volca-

nique passée et peut-être récente (Shalygin et al., 2015). En revanche, très peu de cratères sont répertoriés. Cette faible cratérisation serait due à un resurfaçage global de la planète datant de plusieurs centaines de millions d'années. Des bassins et deux hauts plateaux dominent la planète (figure 1.4) : Ishtar Terra et Aphrodite Terra. Le point culminant de la planète est Maxwell Montes situé dans Ishtar Terra, il s'étend sur 797 km et atteint 10700 m de haut par rapport au géoïde de Vénus.

Un givre brillant est visible sur les reliefs montagneux et a été mis en évidence par les données radar des missions *Venera 15, Venera 16, Pioneer Venus* et *Magellan* (Campbell et al., 1976; McGill et al., 1983; Pettengill et al., 1988). Il s'agit probablement de neige de métaux condensée suite à leur vaporisation. L'hypothèse d'un givre de disulfure de fer (FeS₂) a été avancée par Klose et al. (1992) et est encore controversée. Les données de *Venus Express* ont permis de soutenir l'hypothèse d'un matériaux semi-conducteur condensé (Simpson et al., 2009).



FIG. $1.3 - \dot{A}$ gauche, image en radio de la surface de Vénus prise par Magellan. \dot{A} droite, image des nuages vénusiens dans le visible prise avec Mariner 10. Crédits NASA.

Vénus est une planète atypique et infernale renfermant de nombreuses questions scientifiques dont l'instrumentation spatiale tente de résoudre. Avant de vous présenter les missions dédiées à l'exploration et l'étude de la jumelle de la Terre, nous jetterons un regard vers son passé.





1.2 Histoire de Vénus et de son habitabilité

Vénus est située hors du bord inférieur de la zone d'habitabilité. Ce critère d'habitabilité, défini par la NASA (Hart, 1979), est la région autour d'une étoile dans laquelle l'eau est sous forme liquide. Il s'agit d'une des briques nécessaires pour permettre ainsi d'avoir les conditions favorables à l'émergence de la vie par l'assemblage de molécules organiques complexes.

Les études menées par Way et al. (2016) ainsi que Yang et al. (2014) suggèrent d'étendre la définition de la zone d'habitabilité car si les planètes rocheuses ayant retenu suffisamment d'eau après leur formation ont une période de rotation suffisamment lente, elles hébergent des conditions favorables à l'émergence de la vie. Barnes et al. (2015) proposent de définir une région de transition dans laquelle la probabilité d'habitabilité décroît progressivement plutôt que de définir une frontière stricte séparant deux zones complètement différentes.

1.2.1 Une terre hostile à la vie?

La planète Vénus, bien que souvent associée comme jumelle de la Terre, n'a clairement pas les mêmes conditions atmosphériques que notre planète habitable pour accueillir la vie.

Arrhenius (1918) avait déterminé que les nuages de Vénus étaient comparables à ceux de la Terre et imaginait volontiers une jungle recouvrant la planète. Les observations des sondes *Venera* nous ont permis d'affirmer que Vénus est une terre nue de toute végétation où des conditions extrêmes s'y imposent. Comme nous l'avons vu, la température à la surface est "infernale" (735 K) et la pression cent fois supérieure à celle de la Terre avec une atmosphère de dioxyde de carbone et un resurfaçage global. Ces conditions ne sont pas compatibles avec les pré-requis fondamentaux nécessaires à la vie comme nous la connaissons, c'est à dire la présence d'eau liquide et de chimie organique. Cependant, cela ne désespère pas la communauté scientifique quant à l'existence d'une probable vie vénusienne (Schulze-Makuch, 2004). En effet, de nombreuses études mettent à jour les hypothèses sur l'existence d'une biosphère dans les nuages (voir Annexe A).

1.2.2 Vénus primitive ou paleo-Vénus

À sa formation, Vénus a reçu le même inventaire d'espèces volatiles que la Terre, incluant l'eau (Kasting et al., 1988). Le rapport Deutérium/Hydrogène ¹ (ou D/H) nous permet d'affirmer que Vénus a perdu une grande quantité d'eau dans son histoire. Mais il reste encore difficile à déterminer quand et avec quelle quantité cette perte s'est effectuée (Kasting and Pollack, 1983; Donahue, 1999). Certaines hypothèses prônent un échappement de l'eau de l'atmosphère de Vénus durant la formation de la planète pendant un effet de serre précoce (Hamano et al., 2013; Luger and Barnes, 2015). Alors que d'autres prônent la formation d'un océan qui se serait entièrement évaporé.

La vapeur d'eau (H_2O), haute dans l'atmosphère, a été dissociée par photolyse dans l'ultraviolet. Les atomes d'hydrogène se sont alors perdus dans l'espace par échappement et les ions d'oxygène ont été emportés par le vent solaire (échappement ou phénomène de pick-up). Une autre possibilité est

¹Ce marqueur permet de retracer l'évolution de la molécule d'eau à travers ses enrichissement en deutérium qui est l'isotope lourd de l'hydrogène.

que les ions d'oxygène ont pu servir à l'oxydation des minéraux de la croûte vénusienne pendant la formation de la Vénus que l'on connait aujourd'hui. À l'heure actuelle, il reste néanmoins plusieurs ppm de vapeur d'eau dans l'atmosphère.

Outre la vapeur d'eau, il y a 130 ppm de SO₂ dans l'atmosphère de Vénus (Pollack et al., 1993). Pour expliquer cette quantité, Bullock and Grinspoon (2001) proposent une source de dégazage de 10^{12} g de SO₂ par an d'origine volcanique. Cela est cohérent avec les observations de *Magellan* qui traduisent un resurfaçage de 0,4 km³ de magma par an (Bullock et al., 1993) en assumant l'hypothèse d'un pourcentage massique de soufre de 0,2 %. Ce qui correspond à l'équivalent terrestre du basalte. Une autre possibilité est que le soufre aurait pu être produit par production microbienne via une réaction photosynthétique comme cela a été le cas dans l'histoire de la planète Terre. Cette réaction est la suivante :

$$2 H_2S + CO_2 + h\nu \longrightarrow CH_2O + H_2O + 2S$$

et le soufre peut être par la suite polymérisé en S_8 .

Sur Terre, beaucoup d'organismes utilisent cette réaction et ils prospèrent entre autres dans les sédiments marins des mers chaudes (Vethanayagam et al., 1991; Bryantseva et al., 2000). Ce type de micro-organismes constituent une population idéale pour un proto-océan d'une Vénus primitive.

Vénus a été totalement resurfacée par des activités volcaniques (Mc Kinnon et al., 1997; Kreslavsky and Ivanov, 2015). La topographie de la planète avant ce resurfaçage reste donc inconnu. Ce resurfaçage aurait eu lieu il y a 300 à 600 millions d'années (Strom et al., 1994; Nimmo and McKenzie, 1998). Cela a détruit ou profondément enterré les bassins océaniques anciens ou d'autres marques ou preuves d'un monde favorable à l'émergence de la vie. Malgré cela, la présence de roches felsiques dans les hauts plateaux de Vénus traduisent l'existence passée d'un océan. (Hashimoto et al., 2008; Basilevsky et al., 2012).



FIG. 1.5 – Modélisation de la paléo-Vénus et ses potentiels océans primitifs. Crédits NASA.

Donahue and Russell (1997) estiment que l'eau liquide uniformément répartie sur la planète primitive atteint une hauteur de 4 à 525 m. Il est toutefois à noter que l'idée d'une Vénus ancienne avec un océan reste récente (Kasting, 1984).

Un modèle en trois dimensions prenant en compte le relief de la planète permet l'étude d'une Vénus primitive. Ce modèle révèle qu'une température modérée est possible à la surface si Vénus a une

période de rotation plus lente que seize jours terrestres malgré un flux solaire de 46 à 70 % plus élevé que ce que reçoit la Terre moderne (Way, 2016). De plus, cette étude affirme que la paléo-Vénus aurait pu rester habitable jusqu'il y a au moins 700 millions d'années s'il y avait un océan primitif peu profond.

Puis, Vénus a connu dans son histoire un emballement de l'effet de serre (Walker, 1975; Kasting, 1988) provoquant la vaporisation de ses océans primitifs (Hasimoto et al., 2008). Malgré leur évaporation totale, les océans pourraient avoir persisté pendant plusieurs milliards d'années (Grinspoon and Bullock, 2003) laissant la possibilité d'un environnement suffisamment clément assez longtemps pour le développement d'une forme de vie.

1.3 Observations spatiales contemporaines

La conquète spatiale a commencé le 4 octobre 1957 avec la mise en orbite de Spoutnik 1 par l'URSS. Cinq années plus tard, les États-Unis d'Amérique réalisent, le 14 décembre 1962, le premier survol d'un autre astre par *Mariner 2* : Vénus. C'est ainsi que débute l'exploration et l'étude spatiale de cette planète jumelle de la Terre. Depuis 1961, date du premier échec (avec *Venera 1*) et jusqu'à ce jour, quarante-deux missions ont été lancées et seize d'entre elles ont échouées (tableau 1.2). Les conditions infernales de cette planète n'ont pas découragé les agences spatiales entre 1961 et 1990. En effet, les atterisseurs soviétiques ont tenu entre 20 et 127 minutes à la surface de Vénus malgré des températures capables de faire fondre le plomb. C'est en octobre 1975, que les missions soviétiques *Venera 9* et *Venera 10* nous ont envoyé les premières images en noir et blanc de la surface de Vénus (figure 1.6) puis en couleurs par les sondes *Venera 13* et *Venera 14* en mars 1982.

La sonde Pioneer Venus avec l'instrument LCPS (Cloud particle size spectrometer) fut envoyée en 1978 par les américains. Cet instrument permet de compter et de trier les particules en intervalle de taille par spectroscopie optique (OAS : Optical Array Spectrometer) et spectroscopie à imagerie infra-rouge. Cette mission a également permis de lancer des pénétrateurs atmosphériques (Ragent and Blamont, 1979; Blamont and Ragent, 1979). En 1979, l'URSS a envoyé Venera 9 munie d'un néphélomètre (Marov et al., 1980). Enfin, en 1985 les missions Vega 1 et Vega 2, lancées par les soviétiques, ont lâché des ballons dans l'atmosphère. Ces missions ont obtenu de nombreuses mesures in-situ dans la haute atmosphère et ont ainsi permis d'étudier les aérosols et la structure des nuages de Vénus. Malgré ces nombreuses données, très peu d'entre elles nous permettent de contraindre la distribution en taille des particules nuageuses, leur composition en fonction de l'altitude ou des informations utiles à la compréhension de la formation des nuages vénusiens.

En 2005, l'ESA (*European Space Agency*) a lancé *Venus Express*, la première mission européenne vers Vénus. Cette sonde avait pour objectif l'étude de l'atmosphère à l'aide de sept instruments embarqués. Parmi eux, quatre étaient dédiés à l'étude des nuages vénusiens. Le premier d'entre eux, le spectromètre *PFS* (Planetary Fourier Spectrometer) n'a malheureusement jamais fonctionné. Il était destiné à l'étude de la température, des aérosols et des composés chimiques de l'atmosphère. L'instrument *SPICAV* (*Spectroscopy for Investigation of Characteristics of the Atmosphere of Venus*) a permis d'étudier les nuages avec le spectromètre *VIRTIS* (*Visible and Infrared Thermal*

Années	Missions	Type	Pays
1962-1963	Mariner 2	survol	USA
1967	Venera 4	atterrisseur	URSS
1967	Mariner 5	survol	USA
1969	Venera 5	sonde atmosphérique	URSS
1969	Venera 6	sonde atmosphérique	URSS
1970	Venera 7	atterrisseur	URSS
1972	Venera 8	atterrisseur	URSS
1974 - 1975	Mariner 10	survol	USA
1975	Venera 9	orbiteur + atterrisseur	URSS
1975	Venera 10	orbiteur + atterrisseur	URSS
1978 - 1992	Pioneer Venus Orbiter	orbiteur	USA
1978	Pioneer Venus Multiprobe	4 sondes atmosphériques	USA
1978-1980	Venera 11	survol + atterrisseur	URSS
1978-1980	Venera 12	survol + atterrisseur	URSS
1982	Venera 13	survol + atterrisseur	URSS
1982	Venera 14	survol + atterrisseur	URSS
1983 - 1984	Venera 15	orbiteur	URSS
1983 - 1984	Venera 16	orbiteur	URSS
1985	Vega 1	survol, atterrisseur, ballon	URSS
1985	Vega 2	survol, atterrisseur, ballon	URSS
1990-1994	Magellan	orbiteur	USA
1990-2003	Galileo	survol	USA
1998-2016	Cassini	survol	USA et Europe
2007-2015	MESSENGER	survol	USA
2006-2014	Venus Express	orbiteur	Europe
2015-aujourd'hui	Akatsuki	orbiteur	Japon

TAB. 1.2 – Succès des missions vers Vénus, de 1962 à 2017.

Imaging Spectrometer) qui a sondé les couches nuageuses profondes. Enfin, l'instrument VMC (Venus Monitoring Camera) a permis l'analyse de l'absorbant ultra-violet observé dans l'atmophère et de caractériser les nuages. Durant ses huit années de service, Venus Express a accumulé une grande quantité de mesures et d'informations sur les nuages hauts, les vents, les brumes supérieures ou encore l'ionosphère. Malgré les objectifs et la longévité de la mission européenne, la structure nuageuse reste toujours sous-contrainte par les observations. Nous reviendrons sur la description des nuages obtenue par les mesures instrumentales dans la section 1.6.

La mission japonaise Akatsuki a été lancée en 2010 par la JAXA (Japan Aerospace Exploration Agency) et s'est mise en orbite au bout de la deuxième tentative en décembre 2015. Cette sonde contient quatre caméras infra-rouge, une caméra pour observer dans l'ultra-violet ainsi que du matériel pour mener l'expérience USO (Ultra-Stable Oscillation) en occultation radio permettant de déterminer la température et la pression en-dessous des 90 km d'altitude. Deux des caméras infra-rouge IR1 et IR2, opérant respectivement à 1 μ m et 2 μ m, sont destinées à l'étude des nuages bas (figure 1.7). Toujours en activité, Akatsuki a cependant perdu les deux caméras infra-rouge IR1 et IR2 en décembre 2016, impactant de façon non-négligeable les objectifs scientifiques de la mission.



FIG. 1.6 – Images du sol rocheux vénusien prises par les sondes Venera 9 (en haut) et Venera 10 (en bas) en octobre 1975.



FIG. 1.7 – Image prise dans l'infra-rouge par la sonde japonaise Akatsuki. Crédits JAXA.

Enfin, quelques missions destinées à l'étude d'autres objets du système solaire ont effectué un survol de la planète comme *Mariner 10* et *MESSENGER* en allant vers Mercure, *Galileo* en se dirigeant vers Jupiter et *Cassini* qui voyageait vers le système saturnien. Le prochain survol est prévu en 2020 par l'orbiteur *BepiColombo* de l'ESA et de la JAXA qui est destiné à l'étude de Mercure.

1.4 Dynamique accélérée

Il y a sur Vénus trois couches atmosphériques définies en fonction du gradient de température. Ainsi, la troposphère se situe entre 0 et 65 km. Dans cette zone, la température décroît de 9 K/km. Entre 65 et 110 km se trouve la mésosphère. Il n'y a pas de stratosphère sur Vénus en raison de l'absence d'un absorbant dans la moyenne atmosphère (comme l'ozone sur Terre). La mésosphère repose donc directement sur la troposphère. La zone entre 110 et 140 km correspond à la thermosphère avec une légère augmentation de la température due à l'absorption du rayonnement UV solaire (figure 1.8). Dans cette couche, la température peut atteindre 300 K côté jour mais peut descendre jusqu'à 100 K côté nuit. Au-delà se situe l'exosphère.



FIG. 1.8 – Comparaison du profil de température de la Terre et de Vénus avec la délimitation des couches atmosphériques. D'après G.Israël, "Vénus", Le Grand Atlas Universalis de l'astronomie, ibid.

Comme nous l'avons vu précédemment, Vénus a une rotation rétrograde et lente. La force de Coriolis est par conséquent négligeable. L'atmosphère n'est donc pas en équilibre géostrophique comme sur Terre mais en équilibre cyclostrophique. En d'autres termes, la force centrifuge est compensée par les gradients de pression. De cet équilibre résultent les vents rétrogrades et zonaux (allant d'est en ouest) pouvant atteindre 100 m/s vers 60 km d'altitude et qui diminuent avec la latitude. Ce sont ces vents zonaux couplés aux ondes planétaires qui sont à l'origine de la superrotation de l'atmosphère et des nuages. D'après les données de *Mariner 10*, les nuages hauts voyagent à 360 km/h ce qui est 60 fois plus rapide que la rotation de Vénus sur elle-même. La période de rotation des nuages au niveau du plancher nuageux est d'environ six jours. Et les nuages hauts vont, quant à eux, parcourir la planète en trois à quatre jours seulement. Les données de *Venus Express* dans l'ultraviolet montrent que le vent zonal a globalement augmenté de 15 m/s entre 2006 et 2012 (Hueso et al., 2015).

Toujours dans les nuages, nous pouvons noter la présence de convection entre 48 et 55 km d'altitude. Cette instabilité se répartit en plusieurs zones de quelques centaines de mètres d'épaisseur (Knollenberg et al., 1980; Seiff et al., 1985; Zasova et al., 2007; Tellmann et al., 2009; Hinson and Jenkins, 1995).

De plus, Vénus est 30 % plus proche du Soleil que la Terre, multipliant par deux le flux solaire reçu. L'inclinaison étant quasi-nulle, le rayonnement solaire est absorbé principalement par la haute atmosphère à l'équateur. L'énergie accumulée va être répartie par la circulation subsolaire-antisolaire qui parcourt chaque hémisphère de la planète du point sub-solaire au point anti-solaire du côté nuit de la planète. Cette circulation globale commence vers 90 km d'altitude.

En dessous de 70 km d'altitude, la température augmente avec la latitude croissante alors que l'ensoleillement est plus important à l'équateur. Cela est dû à une circulation méridionale, c'est à dire à une branche de la cellule de Hadley descendante qui provoque une compression adiabatique et donc une augmentation de la température. Les cellules de Hadley qui atteignent pratiquement les pôles expliquent les observations de *Pioneer Venus* qui montrent que les pôles sont plus chauds de 20 K par rapport à l'équateur.

Nous pouvons également noter la présence permanente de vortex polaire au-delà de 70° nord et sud de la planète (Taylor et al., 1979) et des colliers froids ou colliers polaires, vers 65° de latitude qui correspondent à des zones où la température est plus basse (figure 1.9).



FIG. 1.9 – Schéma des cellules dynamiques qui régissent l'atmosphère de Vénus et sa superrotation (Taylor and Grinspoon, 2009).

Enfin, il a été récemment démontré que la topographie influence les vents zonaux. La vitesse des vents zonaux au sud de l'équateur (5 à 15°S) varie de 83 à 101 m/s du fait des reliefs de Aphrodite Terra (Bertaux et al., 2016). De plus, une onde de gravité atmosphérique stationnaire presque globale sur Vénus est observée au niveau du nuage supérieur dans l'infra-rouge et l'ultraviolet par *Akatsuki*. Cette onde est générée dans la basse atmosphère du fait du relief montagneux (Fukuhara et al., 2017).

1.5 Chimie atmosphérique complexe

L'atmosphère sèche de Vénus est composée à plus de 96,5 % de dioxyde de carbone (CO₂) et de 3,5 % de diazote (N₂) contre 0,04 % de CO₂ et 78 % de N₂ pour la Terre. L'atmosphère peut être divisée chimiquement en deux parties. La première partie est l'atmosphère profonde qui se situe entre la surface et la base des nuages (environ 50 km). Cette zone est dominée par la thermochimie. De la base des nuages jusqu'à 100 km d'altitude, les espèces chimiques sont influencées par le rayonnement UV. Du fait de ces réactions photochimiques dans les nuages, les rayons ultra-violets sont bloqués par cette couche et n'atteignent pas l'atmosphère. Quelques ppmv de HCl, CO, OCS ont été détectés dans l'atmosphère sous les nuages, mais également de l'acide sulfurique (H₂SO₄), de l'eau (H₂O) et du dioxyde de soufre (SO₂, tableau 1.3). Tout comme sur Terre, Vénus possède une couche d'ozone (O₃), détectée par l'instrument *SPICAV-UV* dans la haute atmosphère de Vénus (environ 100 km, Montmessin et al., 2011). Cette couche est en revanche plus ténue que celle de la Terre. A contrario,

aucune mesure n'a pu détecter de dioxygène (O_2) alors que cette espèce chimique est prédite par les modèles de photochimie actuels (Mills et al., 1999; Stolzenbach, 2016).

La couche nuageuse constitue un puits de condensation pour l'eau et l'acide sulfurique puisque ces éléments composent la solution binaire des gouttelettes. Plus précisément, le nuage haut est formé grâce à la formation de l'acide sulfurique résultant entre autre de la destruction du SO_2 par photochimie qui réagit ensuite avec de la vapeur d'eau (figure 1.10). Cependant, ce taux de production reste insuffisant pour expliquer le flux de masse observé par *LCPS* dans le nuage médian et bas (Knollenberg and Hunten, 1980) qui peut-être dû à la condensation dans la couche moyenne et basse des nuages à partir du réservoir de H_2SO_4 observé (Toon et al. 1979; James et al. 1997; Jenkins and Steffes, 1991).



FIG. 1.10 – Schématisation de la couche nuageuse sur Vénus et des principaux processus chimiques et dynamiques y prenant place. L'acidité des gouttelettes est représentée par les cercles colorés, avec la fraction massique en acide sulfurique w_{H2SO4} en rouge et la fraction massique de l'eau w_{H2O} en bleu (Stolzenbach, 2016).

Enfin, le dioxyde de soufre (SO_2) est le composé soufré le plus présent dans l'atmosphère de Vénus et varie au cours du temps (Encrenaz et al., 2013). Il est important de noter que la concentration de cet élément décroît avec l'altitude, passant d'environ 100 ppmv sous les nuages (Marcq et al., 2008) à 1 ppmv au-dessus de ces derniers (tableau 1.3). Ainsi, un puits encore inexpliqué se situe dans la couche nuageuse et joue un rôle important dans le cycle du soufre (Zhang et al., 2010).

Comme nous l'avons vu dans la section précédente (1.4), la topographie influe sur les vents zonaux. En plus, elle semble influer également sur l'abondance de l'absorbant UV (Bertaux et al., 2015, 2016) et celle de la vapeur d'eau dont le minima à l'équateur souligne le relief de Aphrodite Terra (Petrova et al., 2016).

1.6 Nuages corrosifs

Les nuages englobent entièrement la planète sur une vingtaine de kilomètres d'épaisseur entre 47 et 70 km d'altitude. Leur épaisseur optique est de 25 à 44 (Grinspoon et al., 1993) empêchant ainsi d'observer la surface dans le visible. Cette épaisseur nuageuse filtre le flux solaire incident puisque seulement 1 % du flux arrive à la surface (Avduevsky et al., 1973). Les nuages jouent donc un rôle

Espèce	Quantité	Altitude	Référence
H ₂ O	31 ppmv	$33 \mathrm{~km}$	Marcq et al. (2008)
	1 ppmv	$70\text{-}100~\mathrm{km}$	Bertaux et al. (2007)
SO_2	130 ppmv	$33 \mathrm{~km}$	Marcq et al. (2008)
	$75 \mathrm{~ppbv}$	$70 \mathrm{km}$	Encrenaz et al. (2012)
	1 ppmv	$90 \mathrm{km}$	Belyaev et al. (2012)
H_2SO_4	0-9 ppmv	$35-55 \mathrm{~km}$	Jenkins and Steffes (1991)

TAB. 1.3 – Principales espèces chimiques impliquées dans la formation des nuages.

non négligeable dans le bilan du transfert de rayonnement de la planète.

1.6.1 Domaine nuageux partagé en altitude

La description de la couche nuageuse de Vénus se base principalement sur les observations de *Pioneer Venus* (Knollenberg and Hunten, 1980) qui décrivent un profil fixe ne traduisant aucune variabilité des nuages. Ainsi, nous distinguons trois couches : le nuage bas de 47,5 à 50,5 km d'altitude, le nuage médian entre 50,5 et 56,5 km et le nuage haut situé entre 56,6 et 70 km d'altitude (tableau 1.4). Ces mêmes observations montrent que le bloc nuageux est entouré de part et d'autre de brumes pouvant aller jusqu'à 90 km d'altitude au-dessus des nuages et 30 km sous le plancher des nuages (figure 1.11). Les particules nuageuses sont des gouttelettes sphériques et liquides de composition binaire d'acide sulfurique et d'eau (Young, 1973; Knollenberg and Hunten, 1980; Ragent and Blamont, 1980).

Nuage	Altitude (km)	Pression (hPa)	Température (K)
Haut	56,6-70,0	500-30	290-230
Médian	50, 5-56, 5	1000-500	335-270
Bas	47,5-50,5	2000-1000	380-276

TAB. 1.4 – Pression, température et altitude de chaque couche nuageuse sur Vénus et variabilité temporelle et latitudinale de la température pour chaque couche. Ces valeurs sont basées sur les données VIRA, les mesures VIRTIS et les résultats du VGCM (Haus et al., 2014; Lebonnois et al., 2016)

Les nuages hauts sont formés par photochimie (Young, 1973; Prinn, 1975), tandis que les nuages bas et médians sont des nuages condensés comme les stratocumulus terrestres, et ils sont maintenus par la dynamique et les effets radiatifs.

En revanche, l'atmosphère est sous-saturée en-dessous de 50 km. Cette sous-saturation combinée à la forte température engendre l'évaporation des précipitations avant qu'elles atteignent le sol. Il ne peut donc y avoir de la pluie à la surface car les particules commencent à s'évaporer sous cette limite d'altitude (Lee et al., 2010). Ce phénomène est appelé virga. Les vapeurs issues de l'évaporation vont être ramenées à plus haute altitude par diffusion et réalimenteront ainsi les nuages.

1.6.2 Classification des particules nuageuses

Knollenberg and Hunten (1980) ont classé les particules nuageuses de Vénus en fonction de leur taille en trois modes à partir des observations de l'instrument *LCPS* embarqué sur *Pioneer Venus*. Le mode 1 correspond aux petites particules et le mode 3 au plus grosses. La figure 1.12 représente



FIG. 1.11 – Structure et température des nuages de Vénus en fonction de l'altitude : le nuage bas (lower cloud), le nuage médian (middle cloud) et le nuage haut (upper cloud). Crédits : Loïc Rossi, CC-BY-SA.

les distributions dimensionnelles en taille de rayon pour les trois modes pour chaque couche nuageuse déduites des données de LCPS.

Le mode 1 est constitué de particules sphériques et liquides et est présent entre 30 et 90 km. Le rayon médian des particules est d'environ 0,25 μ m. Il s'agit du mode le plus abondant dans les nuages et les brumes qui en sont majoritairement constituées.

Le mode 2 est quant à lui constitué de gouttelettes d'acide sulfurique liquides dont le rayon moyen est de 1,05 μ m. Nous le trouvons sur les observations de *LCPS* entre 45 et 70 km d'altitude, dans les trois couches nuageuses.

Le mode 3 est le mode le plus controversé. Il a été détecté dans la plus basse couche nuageuse par LCPS et est constitué de particules d'environ 3 à 4 μ m de rayon. Knollenberg and Hunten (1980) ont proposé une forme cristalline de ces particules du fait de leurs propriétés optiques inhabituelles. En revanche, Toon et al. (1984) ont suggéré un artefact instrumental dû à un problème de calibration des détecteurs de LCPS pour expliquer la détection de ces particules : le mode 3 serait simplement la queue de distribution du mode 2. Cette hypothèse était par la suite contredite par Knollenberg et al. (1984) qui maintient ses précédentes conclusions. Ils expliquent que les erreurs d'étalonnage de LCPS peuvent jouer sur l'apparence des particules du mode 3 mais pas sur leur existence ni sur leur taille.

Afin de pallier des lacunes dans les mesures d'opacité en infra-rouges et bien reproduire et comprendre les observations, deux autres modes ont été définis mais ne sont pas unanimement reconnus. Il s'agit du mode 0, qui serait plus petit que le mode 1, et le mode 2', légèrement plus grand que le mode 2.

Le mode 0, supposé présent dans le nuage haut, est constitué de petites particules de rayon médian de $0,06 \ \mu m$.

Le mode 2' est une extension du mode 2 défini précédemment. Supposé de même composition, son rayon médian est de 1,4 μ m.

L'article de Knollenberg and Hunten (1979a) qui définit les modes 1 à 3 précise que *LCPS* a obtenu un seul profil vertical lors de la descente de la sonde et que ce profil ne peut pas être généralisé à l'échelle de la planète. En effet, les gouttelettes ont une grande variabilité naturelle et de ce fait, avec un seul profil, nous ne pouvons pas statuer sur la distribution verticale globale des gouttelettes nuageuses vénusiennes. Il existe des observations plus récentes sur les propriétés nuageuses. Les dernières missions comme *Venus Express* ont principalement sondé le nuage haut et elles n'ont pas pu caractériser la distribution verticale des gouttelettes ni leur distribution dimensionnelle en taille de rayon. Encore aujourd'hui, la communauté vénusienne utilise les données *LCPS* comme mesures de référence car ce profil apporte des informations sur la distribution verticale des propriétés microphysiques notamment pour les nuages intermédiaires et bas. La modélisation est ici très utile pour combler les lacunes observationnelles en simulant en une dimension (1D) ou en trois dimensions (3D) les nuages vénusiens et ainsi nous permettre de comprendre les mesures.

Bien que les définitions des modes et des nuages semblent uniformisées, des variations temporelles et spatiales des nuages ont été observées.

1.6.3 Variations latitudinales des nuages

L'altitude du plafond nuageux varie avec la latitude étant plus basse aux pôles (60-65 km) qu'à l'équateur (74 km; Cottini et al., 2012; Kawabata et al., 1980). Le plancher nuageux suit la même tendance avec 43 km d'altitude à l'équateur, il monte en altitude jusqu'à 46 km à 50°S puis retombe à 41 km vers les pôles (Barstow et al., 2012; Cimino, 1982).

Naturellement, si la base et le nuage principal viennent à varier spatialement, l'épaisseur optique du nuage varie également avec la latitude : de 0,8 au niveau de l'équateur pour 0,06 aux pôles (à 365 nm, Kawabata et al., 1980). Les nuages sont donc optiquement plus épais à l'équateur.

La composition des gouttelettes varie également. Leur concentration en acide sulfurique passe de 80 % (de partition massique de H₂SO₄) à l'équateur à 90 % à 60°S puis diminue jusqu'à 75 % aux pôles. La concentration en acide sulfurique est donc fonction de l'épaisseur optique qui dépend de la latitude (Barstow et al., 2012; Petrova et al., 2015b). La dilution des particules nuageuses aux pôles peut être due à l'abondance en vapeur d'eau. Le rapport de mélange de H₂O détecté à 1,38 μ m est fonction de la latitude : avec une moyenne de 6,1 ppm aux basses latitudes (20°S et 20°N) vers 61,9 km d'altitude, l'abondance en vapeur d'eau diminue jusqu'à 5,4 ppm entre 30° et 50° nord et sud puis augmente jusqu'à atteindre 7,2 ppm au-delà de 60° (Petrova et al., 2016). Cette distribution respecte une symétrie presque parfaite autour de l'équateur.

Enfin, la taille des gouttelettes est plus grande aux pôles par rapport à l'équateur. Selon Wilson et al. (2008), du fait de la circulation, les masses descendent en profondeur (downwelling) au niveau du pôle et entraînent les plus petites particules nuageuses qui viennent ensuite à s'évaporer. En revanche, Barstow et al. (2012) proposent que la raison pour cette observation est une erreur de mesure due à une contamination des spectres déjà rencontrée avec l'instrument *VIRTIS* (Arnold et al., 2008).

Les variations de l'épaisseur optique, des limites supérieures et inférieures des nuages, de la composition des gouttelettes ainsi que l'abondance en vapeur d'eau sont corrélées entre elles et avec la dynamique, notamment avec les cellules de Hadley.

1.6.4 Aérosols flottants et noyaux de condensation

Les nuages peuvent être formés directement par la transition de phase vapeur-liquide ou bien à l'aide d'une surface pré-existante qui facilite la formation de gouttelettes nuageuses (chapitre 3, page 41). Les particules qui apportent cette surface sont appelées noyaux de condensation (CCN pour *Cloud Condensation Nuclei*). Il s'agit des aérosols solides en suspension dans l'atmosphère de Vénus qui sont activés par la nucléation hétérogène (ces notions sont détaillées dans le chapitre 3). L'idée d'un noyau de condensation est soutenue par les observations faites par Cimino (1982), qui à partir des mesures en occultation radio soutient l'idée que le mode 3 est composé d'un matériel absorbant recouvert d'acide sulfurique.

Dans le même état d'esprit, Grinspoon et al. (1993) montre par des simulations dans l'absorption IR dans les nuages vénusiens que le mode 3 des particules est composé d'un matériel inconnu qui représente 50 % du volume de la particule. Mais de quel type de matériel peut-il s'agir ?

Poussières météoritiques

Les météoroïdes sont ablatés et vaporisés dans l'atmosphère terrestre entre 70 et 120 km d'altitude; des particules météoritiques de la taille du nanomètre se forment par re-condensation de ces vapeurs. Pour Vénus, le même principe est appliqué pour les modèles de nuages.

Selon Turco et al. (1983), la poussière météoritique dans l'atmosphère de Vénus est similaire à la poussière météoritique présente dans l'atmosphère terrestre et peut servir de noyaux de condensation pour former la brume supérieure. Gao et al. (2014) considèrent également les poussières météoritiques comme noyaux de condensation pour la formation de gouttelettes aux altitudes du nuage haut. Les aérosols sont aussi transportés par la dynamique atmosphérique et permettent la formation des gouttelettes dans les nuages médians et bas.

Absorbant inconnu dans l'ultraviolet

Les premières photos de la planète effectuées par Wright (1927) et Ross (1928) mettent en évidence des zones sombres et claires dans les nuages de Vénus. Un absorbant UV est alors détecté et étudié par les missions spatiales comme *Mariner 10* (Anderson et al., 1978) ou *Venus Express* (figure 1.13). De quoi s'agit-il? Les gouttelettes liquides n'abritent-elles pas un noyau solide sur lequel elles se sont formées? Si tel est le cas, alors quelles particules solides, présentes dans l'atmosphère de Vénus peuvent absorber l'ultra-violet?

Gehrels et al. (1979) observent que l'absorbant UV polarise peu par rapport aux aérosols connus et excluent l'hypothèse d'un gaz. De nombreuses autres espèces sont alors considérées comme CH_2O , C_3O_2 , NOHSO₄, NO₂, Cl_2 , etc.

Les espèces chlorées sont écartées car la quantité nécessaire pour reproduire les zones sombres observées dans les nuages est supérieure par rapport à ce que les modèles photochimiques produisent (Krasnopolski et al., 2006).

À l'aide des observations de *VIRTIS*, Cottini et al. (2015) montrent qu'il n'y a pas de corrélation systématique entre les nuages, la vapeur d'eau et l'absorbant UV. Toutefois, les auteurs mettent en évidence une coïncidence entre les zones assombries par l'absorbant UV et les régions où le sommet des nuages est élevé. À l'inverse, les zones moins sombres coïncident avec un sommet des nuages bas. L'absorbant UV est également observé plus en profondeur dans la couche nuageuse dans les basses latitudes.

Absorbant dans l'ultraviolet et polysoufres

Le cyclo-octet de soufre, noté S_8 , est la chaîne de molécules de soufre la plus stable, ayant un haut indice de réfraction et absorbant dans l'ultraviolet (Spear and Adams, 1965).

Hapke et al. (1974) et Hapke and Nelson (1975) sont les premiers à proposer le soufre comme absorbeur ultraviolet dans les nuages. Pour atteindre cette déduction, ils ont fait une analyse spectrale de l'atmosphère et ont regardé les composants les plus abondants. Le soufre est le seul composant qui géochimiquement a une absorption spectrale cohérente avec les mesures d'albédo de Vénus. Cette hypothèse d'utiliser une chaine soufrée (S_x) est soutenue par Toon et al. (1982) et soulignée par Schulze-Makuch (2004) qui utilise des S_8 comme noyaux dans les gouttelettes.

Son utilisation en tant que noyau de condensation permet aux modélisateurs de comprendre le cycle du soufre, le lien entre l'absorbant UV observé dans les nuages et la formation des nuages. De plus, les cycles du soufre et le SO_2 sont corrélés avec les zones d'absorption dans l'UV (Lee et al., 2015). À première vue, il s'agit d'un bon candidat comme CCN. Cependant, le soufre ne réagit pas avec l'acide sulfurique. En effet, Young (1983) montre que la mouillabilité du soufre par l'acide sulfurique est très faible. Ce seraient les particules de soufre qui recouvrent la gouttelette de solution binaire (Ohtake, 1993) et non l'inverse.

Pour ces raisons, les polysoufres ne semblent pas être l'absorbant UV présent dans les nuages ni de bons candidats à la formation des gouttelettes.

D'autres pistes pour les noyaux de condensation?

Les données RADAR *Magellan* ont permis de détecter des dunes à la surface de Vénus. L'origine de ces monticules peut être l'accumulation de particules éjectées suite à un cratère d'impact (Garvin et al., 1990). Bien que les conditions menant au transport éolien de sable restent inconnues sur Vénus, cette hypothèse n'est pas écartée par Kreslavsly et al. (2016). Cependant, l'absence de convection et de vents forts à la surface de la planète (chapitre 1, section 1.4) nous permet de dire que les particules sableuses du sol ne peuvent pas être transportées 30 km plus haut, dans la couche nuageuse.

La moyenne et la haute atmosphère peuvent être ionisées par le rayonnement cosmique et ainsi permettre la formation de nuage par nucléation induite par les ions (Aplin et al., 2013). L'ionisation de la moyenne et de la haute atmosphères due à une intense activité solaire est également étudiée (Plainaki et al., 2016).

Enfin, la question des volcans actifs sur Vénus est encore débattue (Shalygin et al., 2015) mais l'hypothèse d'éruptions volcaniques explosives n'est pas écartée (Airey et al., 2015). La poussière volcanique peut-elle atteindre les hautes altitudes et servir de CCN pour la formation des goutte-lettes?

Nous avons évoqué les différentes théories publiées au sujet des noyaux de condensation qui concernent également cette thèse. Cependant, pouvons-nous exclure la possibilité d'une biosphère vénusienne dans les gouttelettes? Cette hypothèse peut-elle expliquer les zones sombres détectées dans l'ultraviolet? Le lecteur intéressé est invité à consulter l'annexe A page 131.



FIG. 1.12 - La concentration en nombre (cm^{-3}) des gouttelettes nuageuses en fonction des trois couches nuageuses et des modes des particules. Chaque log-normale a été tracée en fonction des mesures prises par LCPS à bord de Pioneer Venus (Knollenberg and Hunten, 1980).



FIG. 1.13 – Image UV de Vénus prise en 2008 par VMC (Venus Monitoring Camera) embarqué sur Venus Express. Le pôle Sud est dans le coin supérieur droit de l'image. Crédits : ESA/MPS/DLR/IDA.

1.7 Points à retenir

Les informations principales et nécessaires de chapitre sont :

- l'obliquité et la faible excentricité de la planète ont pour conséquence l'absence de saison sur Vénus. Le cycle diurne reste important ;
- Vénus est entièrement recouverte d'une couche nuageuse d'une vingtaine de kilomètres d'épaisseur ;
- les nuages sont en superrotation;
- le bloc nuageux est divisé en trois couches nuageuses dont les caractéristiques atmosphériques sont décrits dans le tableau suivant :

Nuage	Altitude (km)	Pression (hPa)	Température (K)
Haut	56,6-70	500-30	230-290
Médian	50, 5-56, 5	1000-500	335-270
Bas	47,5-50,5	2000-1000	380-276

- le nuage haut est formé par photochimie et coagulation tandis que les nuages bas et médians évoluent dans un régime dominé par la condensation;
- les particules nuageuses sont supposées liquides et sphériques de composition binaire d'acide sulfurique et d'eau. L'acide sulfurique est le constituant majoritaire des gouttelettes et son pourcentage varie avec la température et l'humidité relative et donc l'altitude. Les gouttelettes du nuage bas sont plus acides que les gouttelettes du nuage haut;
- une division des gouttelettes en trois modes a été proposée par Knollenberg and Hunten (1980). Le mode 1 correspond aux particules de plus petite taille et le mode 3 aux particules les plus grandes;
- deux autres modes ont été proposés pour interpréter certaines observations mais ils ne sont pas unanimement reconnus par la communauté scientifique. Ces modes sont appelés mode 0 et 2'. L'ensemble des modes présentés est regroupé dans le tableau suivant :

Mode	Rayon médian (μm)
0	0,06
1	$0,\!25$
2	1,05
2	$1,\!4$
3	3-4
Chapitre 2

État de l'art et objectifs de la thèse

Sommaire

2	2.1	Mod	élisation des nuages vénusiens	25
		2.1.1	Notions sur des représentations numériques d'une distribution en taille	25
		2.1.2	Revue des modèles de nuages vénusiens	26
2	2.2	Mod	élisation globale de l'atmosphère de Vénus	31
		2.2.1	Présentation générale du VGCM de l'IPSL	31
		2.2.2	Modélisation de la dynamique atmosphérique	31
		2.2.3	Description de la photochimie	32
		2.2.4	État des lieux des nuages dans le VGCM	32
2	2.3	Ques	stions ouvertes sur l'atmosphère vénusienne	33
2	2.4	Obje	ectifs de mon travail de thèse	34

Dans ce chapitre nous décrivons l'état de l'art de la modélisation des nuages vénusiens, le modèle de climat global vénusien de l'Institut Pierre et Simon Laplace (IPSL) et les objectifs de cette thèse.

2.1 Modélisation des nuages vénusiens

2.1.1 Notions sur des représentations numériques d'une distribution en taille

Pour pouvoir nous intéresser aux modèles de microphysique appliqués à Vénus présents dans la littérature, nous devons définir les deux représentations numériques généralement utilisées pour décrire une distribution en taille des particules.

Pour simuler la formation et l'évolution des nuages dans le temps et l'espace d'une atmosphère planétaire, nous devons modéliser les particules qui composent ces nuages. Dans le cas de Vénus, nous considérons des gouttelettes sphériques et liquides d'une solution binaire d'acide sulfurique et d'eau. De plus, nous distinguons des modes définis en fonction de la taille des particules qui est représentée ici par le rayon de la gouttelette. Afin de modéliser les gouttelettes nuageuses et d'appliquer les processus microphysiques (qui seront décrits dans le chapitre 3), nous devons choisir une représentation numérique de la distribution des gouttelettes. Dans le cadre de ce travail, nous nous sommes intéressés principalement à deux représentations numériques : la paramétrisation spectrale et la représentation en moments (ou modale). La représentation spectrale divise la distribution en taille de particules en intervalles de rayons. Un intervalle entre les rayons r_1 et r_2 (avec $r_1 < r_2$) est un intervalle dans lequel les propriétés des particules sont supposées moyennées (également appelé *bin* en anglais). Cette représentation explicite permet de suivre l'évolution de la forme de la distribution dimensionnelle en taille de rayon (figure 2.1). La variable prédictive qui caractérise cette représentation est n(r), la distribution en nombre de particules. Plus nous considérons d'intervalles pour découper la distribution, plus la taille de ces intervalles sera petite et donc la résolution des calculs élevée avec un temps de calcul plus long.



FIG. 2.1 – Schéma des deux représentations de la distribution dimensionnelle en taille de rayon. À gauche, représentation spectrale avec des intervalles (ou "bins"). À droite, représentation en moments avec les paramètres globaux de la distribution en taille. En rouge, les variables prédictives pour chaque représentation.

La représentation en moments, également appelée maximum de vraisemblance ou méthode des moments, ou modèle modal, est définie plus amplement dans le chapitre 5. Nous pouvons cependant préciser que cette méthode ne suit pas la totalité de la distribution, mais seulement quelques paramètres globaux comme par exemple le rayon moyen ou le nombre total de particules (figure 2.1). Cela nous oblige à fixer la forme de la distribution afin de pouvoir, à partir des paramètres moyennés, recalculer et retrouver une distribution dimensionnelle en taille de rayon des particules. Il est important de noter que le nombre de moments est proportionnel au nombre de paramètres libres considérés. Dans notre cas, les variables prédictives pour cette représentation sont le nombre total de particules (N_{tot}) et le volume total des particules (V_{tot}). Bien que ces caractéristiques font que la méthode des moments est moins explicite qu'une paramétrisation spectrale (du fait entre autre du nombre de variables prédictives), cette méthode nous permet d'avoir un gain non négligeable sur le temps de calcul.

2.1.2 Revue des modèles de nuages vénusiens

Ici, nous présentons les modèles microphysiques développés dans la littérature dans le but de suivre et de comprendre la formation et l'évolution des nuages de Vénus. Ces modèles sont regroupés en deux tableaux : le premier concerne les modèles utilisant des distributions spectrales (tableau 2.1) et le second les modèles utilisant une autre représentation numérique comme par exemple la méthode des moments (tableau 2.2).

Chaque modèle a pour origine la volonté de résoudre une problématique différente. Certains

tentent de comprendre des structures dynamiques visibles dans le proche infra-rouge (McGouldrick et al., 2007, tab. 2.1) pendant que d'autres cherchent à comprendre l'origine et l'impact de l'absorbant UV présent dans les nuages (Toon et al. 1982, tableau 2.1), mais ils tentent tous de comprendre et d'interpréter les mesures faites par les sondes spatiales. Ainsi, depuis les années 1980, une multitude de modèles microphysiques voit le jour.

Les modèles présentés ici considèrent pour la plupart des particules sphériques liquides, composées principalement d'une solution binaire d'acide sulfurique avec un faible pourcentage d'eau. Cette hypothèse de particules sphériques simplifie, entre autres, les calculs pour le transfert de rayonnement. Les particules peuvent ou non contenir un noyau de condensation préalablement introduit dans les modèles sous forme de source et pouvant servir à la formation des gouttelettes. Si certains injectent des noyaux de condensation dans leur modèle sans spéculer sur la nature de ces derniers (Mc Gouldrick et al., 2007; tableau 2.1), d'autres avancent l'hypothèse de noyaux soufrés et/ou de poussières météoritiques (Gao et al., 2014; tableau 2.1).

Le modèle 1D de Toon et al. (1982; tableau 2.1) est un modèle microphysique en case de rayons couplé à un modèle de chimie. Il permet la formation des allotropes de soufre (S_x) jusqu'au S_8 et permet également la coagulation entre les gouttelettes liquides sphériques d'acide sulfurique et les S_x . Ils obtiennent ainsi deux populations de composition mixte avec un suivi des fractions composant les gouttelettes liquides, comme c'est le cas pour les modèles terrestres développés à la même époque (Turco et al., 1979 ou encore Toon et al., 1979). Cependant, malgré cette complexité, les résultats du modèle s'écartent des propriétés nuageuses observées. Par exemple, à 62 km d'altitude, Toon et al. (1982) obtiennent une distribution bimodale qui ne reproduit pas la queue de distribution des petites particules du mode 1 et qui sous-estime la densité en nombre des particules nuageuses par rapport aux observations de Knollenberg and Hunten (1980).

Comme le soulignent Imamura and Hashimoto (2001; tableau 2.1), les processus météorologiques sont indispensables à la compréhension du système nuageux de Vénus et de son évolution, comme c'est également le cas pour la Terre. La prise en compte de la dynamique et de son impact dans la reproduction numérique des nuages est également soulignée par McGouldrick and Toon (2007). En effet, ils mettent en évidence une meilleure corrélation entre leurs résultats et les observations (Knollenberg et al., 1980) lorsque la dynamique atteint un niveau de complexité suffisant. En d'autres termes, il ne faut pas uniquement prendre en compte la diffusion verticale (ou eddy diffusion) car la dynamique complexe de la planète Vénus (chapitre 1, section 1.4, page 12) reste nécessaire pour la bonne modélisation des structures nuageuses observées comme la forme de "Y" sombre formé dans les nuages et mise en évidence par des mesures dans l'ultra-violet (Yamamoto and Tanaka, 1998).

Outre les modèles utilisant la paramétrisation spectrale, il nous reste les modèles utilisant une autre représentation numérique (tableau 2.2) moins gourmands en temps de calcul. C'est le cas des trois modèles suivants.

L'originalité du modèle de Hashimoto and Abe (2001; tableau 2.2) est due à la détermination pour un équilibre thermodynamique du rayon moyen et de la densité en nombre d'une distribution unimodale des nuages de Vénus à partir des flux de masse de l'eau et de l'acide sulfurique. De plus, la coagulation est appliquée grâce à une constante qui varie avec l'altitude et il n'y a pas de processus microphysiques. Seuls les flux massiques de matière sont calculés d'une couche à l'autre de l'atmosphère. À partir de ces flux, le nombre de gouttelettes est calculé en fonction d'une taille de particule donnée (mode 2 et/ou 3). Ces méthodes de calcul sont basées sur Krasnopolski and Pollack (1994) qui tentent, par un modèle chimique, de comprendre le système $H_2SO_4-H_2O$ et les profils de OC et OCS dans les nuages de Vénus. Cette méthode paramétrisée est également utilisée dans le modèle de climat global (GCM pour *Global Climate Model* en anglais) présenté dans Lee et al. (2010).

Deux modèles ont été développés avec la méthode des moments pour les nuages de Vénus (Yamamoto and Tanaka, 1998; Yamamoto and Takahashi, 2006; tableau 2.2). Ces deux modèles décrivent seulement le mode 1 des gouttelettes liquides. La forme de la distribution est définie par une lognormale et les moments sont définis en fonction du volume des particules. Les deux modèles ont un nombre de paramètres libres différent, ce qui conduit à un nombre différent de moments à calculer. Yamamoto and Tanaka (1998) ne fixent pas l'écart-type de leur distribution en taille, et le calcul de sa variation nécessite la prise en compte de trois moments, tandis que Yamamoto and Takahashi (2006) fixent l'écart-type diminuant ainsi le nombre de moments nécessaire pour les calculs à deux. La simplification du modèle de Yamamoto and Takahashi (2006; tableau 2.2) entraîne des biais entre la représentation numérique et les observations. En effet, ce modèle ne parvient pas à reproduire les mesures faites par *Pioneer Venus*. Les auteurs imputent cette mauvaise reproduction à la représentation simplifiée qu'ils font de la nucléation, ne créant ainsi pas assez de particules.

Malgré un tendance commune à ne pas réussir à reproduire correctement les observations obtenues par *Pioneer Venus* (Knollenberg and Hunten, 1980), ces modèles microphysiques ont toutefois permis d'élaborer de nombreuses théories sur l'origine de l'absorbant UV (par exemple des polysoufres selon Toon et al., 1982), l'impact des nuages sur le bilan radiatif (l'opacité des nuages influent sur la température, McGouldrick et al., 2007) ou encore la compréhension de cycles chimiques impliqués dans les nuages (étude du cycle $H_2O-H_2SO_4$ par Krasnopolsky and Pollack, 1994).

Modèle	Dimension	Microphysique	Modes	Etat initial	Modules complémentaires
Toon et al. (1982)	1D 0-90 km	nucléation hét. sur S ₈ coagulation cond./évap. sédimentation	2 distributions de gouttelettes de $H_2SO_4 + noyaux$ particules solides (S_x)	(T, P) fixés	transfert de rayonnement diffusion turbulente modèle de chimie
James et al. (1997)	1D 40-60 km	nucléation hétérogène coagulation cond./évap. sédimentation	gouttelettes liquides mode 1 mode 2 mode 3 (grand mode 2) CCN solubles et insolubles	(T, P) fixés sources vapeurs 40 km source CCN 40 km vapeur d'eau fixée	transfert de rayonnement diffusion turbulente équilibrage thermodyn.
Imamura and Hashimoto (2001)	1D 40-70 km	nucléation homogène nucléation hét. coagulation cond./évap. sédimentation	mode 1 (liquide) mode 2 (liquide) CCN (solide, dirac, soufre)	(T, P) VIRA production photochimique et CCN	photochimie diffusion turbulente équilibrage thermodyn.
McGouldrick and Toon (2007)	1D 40-60 km	nucléation hét. coagulation cond./évap. sédimentation	gouttelettes liquides mode 1 (log-N) mode 2 (gaussienne) CCN (log-N, non-volatiles)	(T, P) VIRA sources vapeurs à 40 km source CCN à 40 km	vents, ondes diffusion turbulente transfert de rayonnement
McGouldrick and Toon (2008)	2D 40-60 km	nucléation hét. coagulations cond./évap. sédimentation	gouttelettes liquides mode 1 (log-N) mode 2 (gaussienne) CCN (log-N, non-volatiles)	(T, P) VIRA sources vapeurs à 40 km source CCN à 40 km	transport cinétique dynamique mésoéchelle simple transfert de rayonnement
Gao et al. (2014)	1D 40-100 km	nucléation hét. coagulation cond./évap. sédimentation	gouttelettes liquides mode 1 mode 2 mode 3 (grand mode 2) CCN (soufre S_x , silicate)	T, P fixés sources $H_2SO_{4(v)}$ source CCN vapeur d'eau fixée	advection diffusion turbulente équilibrage thermodyn.

Modèle	Dimension	Microphysique	Représentation	Modes	Etat initial	Modules complémentaires
Yamamoto and Tanaka (1998)	2D - 3D 45-94 km	nucléation hét. coagulation cond./évap. sédimentation	moments (M_0, M_1, M_2)	2 distributions (log-N) mode 1 (liquide) CCN de soufre	(T, P) VIRA gouttelettes de brume $(0, 2 \ \mu m)$	transport zonal, vertical et méridional chimie paramétrisée photodissociation
Hashimoto and Abe (2001)	1D 45-70 km	coagulation constante sédimentation	calculs de flux massiques (gaz + liquide)	unimodale, log-normale mode 2 ou 3 H ₂ SO ₄ liquide	(T, P) VIRA équilibre thermod.	transfert de rayonnement vent zonal diffusion turbulente modèle chimique
Yamamoto and Takahashi (2006)	1D - 2D 24-94 km	nucl. homo. simple coagulation cond./évap. sédimentation	moments (M_0, M_1)	3 distributions en log-N mode 1 (liquide) CCN de soufre et de poussières météoritiques	(T, P) VIRA	photochimie diffusion turbulente circulation méridionale advection
Lee et al. (2010)	2D - 3D 0-90 km	cond./évap. sédimentation	calculs de flux massiques (gaz + liquide)	monomodal (log-N) mode 2 (liquide)	rayon mode 2 de 1,0 μ m et densité de 1800 kg/m ³	ondes, advection cellule de Hadley diffusion turbulente modèle chimique

TAB. 2.2 – Modèles de microphysique pour Vénus avec une représentation autre que la paramétrisation spectrale trouvés dans la littérature. La température T et la pression P sont définies à partir d'un profil VIRA (Venus International Reference Atmosphere, Kliore et al., 1986).

2.2 Modélisation globale de l'atmosphère de Vénus

Le modèle microphysique développé dans le cadre de cette thèse a été couplé avec le modèle de climat global de Vénus développé à l'IPSL. Afin de mieux comprendre le contexte dans lequel mon travail s'inscrit, je vais présenter les différents aspects de ce modèle.

2.2.1 Présentation générale du VGCM de l'IPSL

Le modèle de climat global de Vénus ou VGCM, pour *Venus Global Climate Model*, a été développé par le Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMD) en collaboration avec le LATMOS. Ce modèle repose sur le coeur dynamique du modèle terrestre LMDZ (Hourdin et al., 2006). Il permet de modéliser la dynamique de l'atmosphère de Vénus depuis la surface jusqu'à 100 km d'altitude (Lebonnois et al., 2010; Lebonnois et al., 2016). Une extension en altitude a été développée par Gilli et al. (2017), permettant d'étendre le VGCM jusqu'à 150 km d'altitude.

Le VGCM est un modèle en boîtes (chacune définie pour une altitude, une longitude et une latitude) permettant d'effectuer des simulations en une ou trois dimensions. Il détermine pour chaque boîte la dynamique, la photochimie, les nuages, l'influence du cycle diurne et le transfert de rayonnement. La topographie est prise en compte comme entrée du modèle et est basée sur les données *Magellan* (Ford and Pettengill, 1992). Enfin, la conduction thermique dans le sol repose sur un modèle de sous-sol à onze couches (Hourdin et al., 1993) pour lesquelles l'hypothèse d'un basalte non-poreux a été faite. Les caractéristiques de Vénus comme le flux solaire reçu, la gravité, la durée d'ensoleillement, définies dans le chapitre 1 (tableau 1.1, page 5), sont prises en compte par le VGCM. En revanche, la faible excentricité de l'orbite de Vénus est considérée nulle (orbite circulaire) et l'inclinaison de la planète sur son axe de rotation est négligée.

La grille verticale est divisée en cinquante niveaux avec des coordonnées hybrides de pression. Les calculs en fonction de la pression permettent de simplifier les équations de la dynamique. La grille horizontale du modèle est définie sur 48 longitudes \times 32 latitudes soit une résolution de 7,5°×5,625° (Lebonnois et al., 2010). Depuis peu, le modèle peut s'exécuter sur une grille de 96 longitudes \times 96 latitudes donnant ainsi une résolution de 3,75°×1,875°. Cependant, l'augmentation de la résolution entraîne des problèmes de conservation du moment angulaire. Malgré cela, le calcul du champ de température sans application d'un forçage radiatif *a priori* est robuste, contrairement aux autres GCM de Vénus (Lebonnois et al., 2016).

2.2.2 Modélisation de la dynamique atmosphérique

Le VGCM résout les équations de la dynamique atmosphérique, et reproduit des caractéristiques clés comme les cellules de Hadley et la superrotation (figure 2.2). La convection dans la zone nuageuse est traitée par un modèle de diffusion verticale. Les ondes orographiques et non-orographiques, les vents zonaux et méridionaux sont également modélisés. En parallèle du VGCM de l'IPSL, un modèle méso-échelle basé sur le coeur dynamique terrestre WRF (*Weather Reserach and Forecast*) est en cours de développement à l'IPSL (Lefèvre et al., 2017). Grâce à une plus haute résolution spatiale, la turbulence et les ondes à petite échelle sont résolues, alors que ces grandeurs, dans le VGCM, sont paramétrisées. En modélisant les mouvements convectifs de la couche nuageuse associés aux



FIG. 2.2 – Carte de la moyenne zonale des vents zonaux issue du modèle VGCM de l'IPSL. Les lignes blanches indiquent les isolignes de fonction de courant, en 10^9 kg/s. Le modèle reproduit un fort vent zonal à partir de 40 km d'altitude (environ 10^5 Pa) pouvant atteindre jusqu'à 120 m/s ce qui traduit la super-rotation de l'atmosphère de Vénus (Lebonnois et al., 2016).

ondes de gravité induites par la topographie, le modèle méso-échelle permet d'étudier en 3D les turbulences observées dans les nuages (Lefèvre et al., 2017).

2.2.3 Description de la photochimie

La modélisation de la photochimie dans le VGCM a été implémentée par A.Stolzenbach au cours de sa thèse (Stolzenbach, 2016). Le module chimique décrit la chimie complète des espèces hydrogénées, chlorées, soufrées, oxygènées et carbonées en résolvant un système de 102 réactions chimiques et 19 réactions photochimiques, pour 31 espèces gazeuses et 2 espèces condensées (acide sulfurique et eau via le modèle de nuage utilisé). Il utilise les données de sections efficaces et de cinétique chimique les plus récentes. Cette représentation de la photochimie couplée au VGCM permet de modéliser en 3D l'évolution des espèces chimiques notables de l'atmosphère vénusienne.

2.2.4 État des lieux des nuages dans le VGCM

Avant cette thèse, les nuages étaient décrits de deux façons distinctes pour deux applications différentes dans le VGCM.

La première est une description optique et spectrale des nuages, fixés entre 47 et 70 km d'altitude et définie suivant Haus et al. (2014). Cette structure nuageuse est utilisée pour calculer le transfert de rayonnement.

La seconde description des nuages est nécessaire pour gérer les masses condensées de l'eau et de l'acide sulfurique et décrire leur sédimentation pour le module de photochimie (Stolzenbach, 2016).

Ce modèle de nuage à l'équilibre couplé au modèle de photochimie calcule le pourcentage massique d'acide sulfurique dans la gouttelette ainsi que les masses condensées de l'eau et de l'acide sulfurique selon la température, la pression et l'humidité relative. Les paramètres de la distribution en taille des gouttelettes (rayon médian et écart-type géométrique) sont fixés selon les observations (Knollenberg et al., 1980) et permettent de calculer la sédimentation des masses condensées de manière réaliste. Le nombre total de gouttelettes n'est alors lié qu'au changement de la masse condensable via le transport et la photochimie.

La dernière représentation des nuages implémentée dans le VGCM est issue de ce travail de thèse.

2.3 Questions ouvertes sur l'atmosphère vénusienne

Vénus est la planète la plus proche de la Terre. Malgré cela, elle regorge de mystères. En reprenant certains points mentionnés précédemment, nous faisons ici une liste non-exhaustive des questions scientifiques actuelles liées à ce travail de thèse et des moyens nécessaires pour y répondre. Tout d'abord, d'un point de vue géologique :

 des mesures radar haute résolution et une cartographie globale de la surface de Vénus en proche infrarouge peut aider la communauté de géologues à différencier les structures géologiques récentes et anciennes et résoudre la question du volcanisme actif (Shalygin et al., 2015). Des poussières volcaniques peuvent-elles servir de noyaux de condensation pour la formation des gouttelettes nuageuses?

En ce qui concerne la chimie atmosphérique :

- le rapport D/H très élevé comparé à celui de l'atmosphère terrestre (Grinspoon, 1993) devrait être expliqué pour mieux comprendre l'évolution de l'atmosphère de Vénus et son histoire (Schulze-Makuch et al., 2004);
- l'absence de détection du dioxygène au niveau des couches nuageuses reste un mystère puisque cette espèce est largement produite dans son état fondamental par les modèles chimiques actuels (Mills et al., 2007; Zhang et al., 2012; Krasnopolsky, 2012; Stolzenbach, 2016). L'espèce O₂ joue un rôle important dans le cycle du CO₂ mais est également impliqué dans la production d'acide sulfurique (Winick and Stewart, 1980);
- le cycle du soufre dans les nuages reste mal compris. La formation du S_8 n'est pas encore établie et le puits total de SO_2 reste à déterminer;

Et les nuages et les brumes nécessitent une grande attention, en effet :

- la composition des gouttelettes nuageuses est encore débattue ainsi que la nature des noyaux de condensation (Krasnopolski, 2016; Markiewicz et al., 2014; Cimino, 1982);
- l'existence du mode 3 reste à confirmer ainsi que sa composition (Knollenberg and Hunten, 1980; Toon et al., 1982; Grinspoon et al., 1993);
- la nature de l'absorbant UV observé est très étudiée (Pollack et al., 1980; Markiewicz et al., 2014), et son couplage avec les nuages reste à définir;
- la formation de cellules convectives dans les nuages permet-elle d'engendrer des éclairs ?

Cette liste non-exhaustive traduit l'importance d'un nouveau projet spatial consacré à Vénus. Par exemple, une mission in-situ dans les nuages vénusiens munie d'un néphélomètre, d'un spectromètre de masse, etc., comme la mission *DAVINCI* (*Deep Atmosphere Venus Investigation of Noble* gases, Chemistry, and Imaging) permettrait d'apporter des éléments de réponse.

Malheureusement, aucune nouvelle mission n'est prévue à ce jour. Il devient donc nécessaire d'exploiter toutes les données obtenues au cours des dernières missions comme celles accumulées par la mission européenne *Venus Express*. L'amélioration et le développement des modèles est indispensable pour mieux comprendre les mécanismes physiques et chimiques de Vénus tels qu'ils sont observés.

2.4 Objectifs de mon travail de thèse

Comme nous avons pu le voir, il existe plusieurs modèles microphysiques appliqués à Vénus, donc pourquoi développer un nouveau modèle?

Presque tous les modèles microphysiques existants sont des modèles 1D ou 2D, et seulement des paramétrisations relativement simples ont été implémentées pour décrire les nuages dans des modèles 3D. L'objectif premier de cette thèse est de développer une description de la microphysique des nuages vénusiens adaptée pour un modèle de climat global.

Pour définir quel modèle microphysique serait bien adapté pour un GCM, il faut réfléchir sur les caractéristiques des modèles. Tout d'abord, dans un GCM, chaque *bin* représente un traceur, c'est à dire une quantité physique que l'on calcule et que l'on suit dans le temps et l'espace. Ainsi, plus il y a de traceurs dans un GCM, plus les calculs sont lourds et longs. Cela n'avantage pas l'utilisation des modèles utilisant la paramétrisation spectrale (tableau 2.1) à cause du grand nombre de traceurs à ajouter (égale au nombre de *bins*). De plus, la majorité des modèles présentés ont été développés pour des représentations en 1D (voire en 2D) dans un système nuage/chimie ou nuage/dynamique. Le soucis du temps de calcul n'est donc pas le même que pour nous qui sommes intéressés à faire du 3D pour un système complexe et complet nuage/chimie/dynamique. La représentation spectrale nécessite généralement des pas de temps courts, de l'ordre de la seconde ou de la dizaine de secondes ce qui n'est pas envisageable pour un GCM car les calculs deviendraient trop longs.

Ensuite, dans le modèle global de Vénus de Lebonnois et al. (2010), le calcul de la physique (transfert de rayonnement, thermodynamique, etc.) de chaque cellule nécessite un pas de temps de calcul qui lui est propre et qui peut évoluer en fonction de la résolution du modèle. En revanche, la photochimie a besoin d'un pas de temps plus court que celui de la physique et qui doit être adaptatif du fait d'évolution rapide voire brusque des espèces chimiques comme les variations diurnes (Stolzenbach, 2016). Le projet de cette thèse est de développer puis de coupler au modèle de photochimie un modèle de microphysique qui fonctionnerait sur le pas de temps photochimique, car la formation des nuages vénusiens ne peut pas être dissociée de l'évolution de la chimie dans l'atmosphère.

Le but de cette thèse est de trouver une méthode capable de faire le bon compromis entre le nombre de variables prédictives nécessaire à la description de la distribution, la définition des processus microphysiques et le temps de calcul. C'est pourquoi nous nous tournons vers la méthode des moments (tableau 2.3).

Par contre, les modèles en moments existants pour les nuages vénusiens ne sont pas adaptés, parce que contrairement à Yamamoto and Tanaka (1998) et Yamamoto and Takahashi (2006, tableau 2.2), nous voulons un modèle multimodal. De plus, pour traiter le processus complexe de la coagulation multimodale en moment, il est plus simple de définir les moments en fonction du rayon (comme en témoignent les équations du chapitre 5, page 79). Dans le cadre de l'étude de l'atmosphère de Titan, Burgalat (2012) a développé un modèle microphysique basé sur une distribution bimodale dont l'un des modes est composé de particules sphériques et le second de particules à dimension fractale. Le GCM martien développé par le LMD utilise quant à lui une représentation numérique hybride où représentation spectrale sur cinq à dix *bins* et méthode des moments pour la sédimentation se mêlent (Madeleine et al., 2011; Navarro et al., 2014). Ces modèles ne sont donc pas transposables pour le cas de Vénus puisque les particules nuageuses ne sont pas fractales comme sur Titan et que les nuages sont plus nombreux et plus denses que sur Mars nécessitant un plus grand nombre de *bins* pour décrire la distribution dimensionnelle en taille de rayon des gouttelettes. Cela reviendrait à utiliser un nombre de traceurs trop important dans le cadre du VGCM, comme nous l'avons discuté précédemment.

Enfin, les modèles en moments utilisés pour les modèles de climat global terrestre sont très complexes et contiennent de nombreux paramètres libres et de nombreuses variables contraintes par les observations. Par exemple, le M7 (Vignati et al., 2004) est un modèle d'aérosols contenant deux types de particules (solubles et insolubles) répartis en 7 modes et prend en compte 25 traceurs. Ce modèle est basé sur la chimie du soufre et prend en considération 5 composés possibles pour les particules nuageuses (sel de mer, poussière, carbone organique...). Basé sur une loi log-normale, chaque mode est représenté par le nombre total d'aérosols et la masse de chaque composé. Les particules nuageuses sont produites, non pas par condensation sur des particules insolubles mais par coagulation entre particules solubles et insolubles. Les modèles terrestres sont donc trop complexes pour être adaptés à Vénus à cause des paramètres libres non-contraints par les observations vénusiennes.

L'objectif de ma thèse est de développer un modèle numérique reproduisant les processus microphysiques prenant place dans l'atmosphère de Vénus (chapitre 3) et de l'implémenter dans le VGCM. Mon modèle permet de s'affranchir en partie de la paramétrisation des distributions de l'ancien modèle présent dans le VGCM (Solzenbach, 2016) en ajoutant les processus microphysiques. Il sera directement couplé au modèle de photochimie et permettra de suivre l'évolution des paramètres de la distribution en taille des gouttelettes sur tout le globe vénusien et à toutes les heures locales. Enfin, à l'aide du VGCM, mon modèle permettra de déterminer les influences relatives des processus microphysiques décrits dans l'atmopshère de Vénus.

Mon objectif est de permettre l'obtention d'un modèle de climat global le plus complet possible. La microphysique, couplée à la photochimie et la dynamique, et plus tard au transfert de rayonnement, nous permettrait de comprendre non seulement la formation et l'évolution des nuages de Vénus mais aussi de contraindre le cycle de l'eau et du soufre et également la formation des structures dynamiques propres à Vénus.

Pour cela, nous allons considérer une distribution bi-modale. Chaque mode sera représenté par une fonction log-normale et caractérisée par deux variables prédictives. L'ensemble des hypothèses formulées pour le développement de mon modèle sont rassemblées dans le chapitre 4.

Dans la suite de ce manuscrit, nous allons dans un premier temps poser les bases théoriques de la microphysique. Le modèle développé au cours de cette thèse sera ensuite présenté. Les résultats des tests de sensibilité et des simulations de référence seront comparés à un autre modèle en case de rayons. Puis nous conclurons et présenterons les perspectives ouvertes par ce travail de thèse.

Caractéristiques de la distribution	Discrétisée	Paramétrisée	
Représentation	spectrale	moments	
Forme	évolutive	"fixée" à une log-normale	
Nombre de modes	évolutif	fixe	
Traceurs	intervalles de taille (bins)	paramètres globaux (moments)	
Écart-type	variable	variable ou fixe	
Distribution	unique et continue pour des particules de même composition	multiple si plusieurs modes de même composition observés	
Résolution	peut varier d'une simulation à l'autre	fixée lors du développement du code par le nombre de moments calculés	
Mode-merging	pas nécessaire	nécessaire pour faire passer des particules d'un mode à l'autre si elles ont la même composition	
Temps de calcul	dépend du nombre de <i>bins</i>	dépend du nombre de moments et de modes	

TAB. 2.3 – Confrontation entre la représentation discrétisée et la représentation paramétrisée en moment. Le mode-merging sera définie dans le chapitre 5.

Deuxième partie Théorie de la microphysique

Variables utilisées dans le chapitre 3

a_i	Surface d'un embryon de taille $i (m^2)$
A	Aire de la surface libre (m^2)
$\mathcal{A}_{\mathcal{KN}}$	Correction similaire à celle de Cunningham-Milikan
$\alpha(k)$	Fonction pour exprimer le moment d'ordre k en fonction du moment d'ordre 0
β	Coefficient de collision
dA	Variation de la surface libre $A \ (m^2)$
D	Coefficient de diffusion (m^2/s)
D_{AB}	Diamètre de collision entre une particule A et une particule B (m)
δ_i	Distance entre deux particules ayant une distance l'une de l'autre égale au libre parcours moyen (m)
$d\mathcal{W}$	Travail fourni pour augmenter l'air de la surface libre de dA (J)
ΔG	Énergie libre de Gibbs
\mathcal{D}	Diffusivité moléculaire (m^2/s)
ΔG^*_{hom}	Énergie libre de Gibbs de la nucléation homogène
ΔG_{het}^*	Énergie libre de Gibbs de la nucléation hétérogène
ΔG_{des}	Énergie d'activation liée à la désorption des molécules
ΔG_{sd}	Énergie d'activation liée à la diffusion des molécules à la surface d'un support
Δr	Taille de l'intervalle de rayon considéré (m)
e_{LV}	Tension de surface entre le liquide et la phase gazeuse (J/s)
e_S	Tension de surface (J/s)
e_{SL}	Tension de surface entre la surface solide et la gouttelette liquide (J/s)
e_{SV}	Tension de surface entre la surface solide et la phase gazeuse (J/s)
$E(\mathbf{r}_i,\mathbf{r}_j)$	Efficacité de collision entre une particule de rayon i et une de rayon j
η	Mouillabilité
g(r)	Taux d'accroissement d'une particule de rayon $r (m^2/s)$
g_0	Gravité (m/s^2)
γ	Coefficient d'échappement
i^*	Nombre critique de monomères
$I_{n+\frac{1}{2}}$	Fonction de Bessel
J	Taux de nucléation $(1/m^3/s)$ ou $(1/m^2/s)$
k_B	Constante de Boltzmann $(m^2 kg/s^2/K)$
$K_{n+\frac{1}{2}}$	Fonction de Bessel
K_n	Nombre de Knudsen
$K_{i,j}$	Coefficients d'efficacité de coagulation du j -mère et de l' i -mère considérés
$K^B_{i,j}$	Coefficient d'efficacité (ou kernel) de coagulation Brownienne
$K_{i,j}^G$	Coefficient d'efficacité (ou kernel) de coalescence
λ_g	Libre parcours moyen du gaz (m)
λ_i	Libre parcours moyen d'une particule i (m)
$m_{\rm AB}$	Masse réduite de A et B (kg)
m_p	Masse totale de la particule (kg)
m_1	Masse d'un monomère (kg)
M_0	Moment d'ordre 0 égale au nombre total de gouttelette (particules/ m_{air}^3)
M_3	Moment d'ordre 3 proportionnel au volume total des gouttelettes (m^3/m_{air}^3)

M_{χ}	Masse molaire d'une espèce chimique χ (kg/mol)
M_k	Moment d'ordre $k \ (m^k/m^3)$
μ	Potentiel chimique
μ_{air}	Viscosité de l'air $(kg/(m s) = Pa s)$
μ_S	Fréquence de vibration des molécules
n_e	Nombre de molécules de l'embryon
n_g	Nombre de molécules dans le milieu gazeux
n_i	Distribution en nombre de particules dans l'intervalle i (particules/m/m ³ _{air})
n(r)dr	Nombre de particules par m_{air}^3 ayant un rayon contenu dans l'intervalle $[r - \frac{dr}{2}; r + \frac{dr}{2}]$
N_i	Concentration en nombre de particules $(\text{particules}/\text{m}_{air}^3)$
$N_i(t)$	Concentration en nombre d'embryons contenant i molécules à un temps t (particules/ m_{air}^3)
N_i^e	Distribution des agrégats à l'équilibre
N_{j}	Concentration en particule d'un j -mère
N_t	Nombre total de particules par volume d'air (particules/ m_{air}^3)
ω	Facteur de correction pour la prise en compte simultanée de la coagulation brownienne et gravitationnelle
$P_{\rm A}$	Pression partielle de l'espèce chimique A (Pa)
$P^S_{\mathcal{A}}$	Pression de vapeur saturante de l'espèce chimique A (Pa)
ϕ_c	Angle de contact (°)
Φ	Facteur de forme
ψ	Rapport traduisant l'importance de la diffusion face à la coalescence
r^*	Rayon critique des agglomérats (m)
\bar{r}_g	Rayon médian de la distribution (m)
R	Constante des gaz parfaits
R_c	Résistance due à la diffusion moléculaire (s/m^2)
R_d	Résistance due au dégagement de chaleur latente (s/m^2)
Re	Nombre de Reynolds
$ ho_p$	Masse volumique de la particule (kg/m^3)
S	Taux de saturation
S_{E}	Entropie du système
S_{χ}	Rapport de saturation de l'espèce chimique condensé é χ
S^*_{χ}	Rapport de saturation à la surface de la goutte sphérique
σ_g	Écart type géométrique
T	Température (K)
θ	Tension de surface sans dimension
au	Temps de relaxation de la particule (s)
u	Vitesse du fluide (m/s)
U	Énergie interne du système physique étudié
v	Vitesse de la particule (m/s)
v_1	Volume d'un monomère (m^3)
v_t	Vitesse terminale de sédimentation (m/s)
\bar{v}_{tm}	Vitesse thermique des molécules
V_t	Volume total des particules par volume d'air (m^3/m_{air}^3)
$Z_{\rm AB}$	Nombre de collisions entre deux entités chimiques A et B

Chapitre 3

Physique appliquée aux particules

Sommaire

3.1	Rep	résentation des particules atmosphériques	41
	3.1.1	Distribution en taille des particules	42
	3.1.2	Définition de la loi log-normale	44
	3.1.3	Définition des moments	44
3.2	Forn	nation d'une gouttelette	45
	3.2.1	Saturation d'une vapeur	46
	3.2.2	Notion de tension de surface	46
	3.2.3	Énergie libre de formation ou énergie de nucléation	46
	3.2.4	Nucléation homogène	48
		Coefficient de collision	49
		Coefficient d'échappement	49
		Taux de nucléation homogène	50
	3.2.5	Nucléation hétérogène	51
	3.2.6	Taux de nucléation et nuages vénusiens	52
3.3	Con	densation ou évaporation?	54
	3.3.1	Définition du flux de masse	54
	3.3.2	Flux de masse dans les conditions vénusiennes	56
3.4	Coag	gulation des particules	56
	3.4.1	Coagulation brownienne	57
	3.4.2	Coalescence et sédimentation des particules	58
	3.4.3	Prise en compte simultanée de la coagulation brownienne et de la coalescence	59
	3.4.4	Kernels de coagulation dans les nuages de Vénus	60
3.5	Para	mètres sensibles pour la microphysique	62

3.1 Représentation des particules atmosphériques

Une particule est un agrégat de molécules d'une substance chimique en suspension dans un milieu gazeux. Elle peut être liquide ou solide et de forme sphérique ou irrégulière. Une particule peut-être un aérosol, c'est à dire ce qui préexiste avant l'activation par la nucléation ou un noyaux de condensation (ou CCN) qui est un aérosol activé par la nucléation hétérogène et permet la formation des gouttelettes. Une particule peut également être une gouttelette nuageuse, également appelée hydrométéore. Présentes dans l'atmosphère de Vénus, les particules sont de taille et de composition variées (section 1.6, page 15). Ces deux propriétés jouent un rôle important dans le transfert de rayonnement et la décroissance brutale de la vapeur d'eau et du dioxyde de soufre dans les nuages vénusiens.

Les différents mécanismes microphysiques présentés dans la figure 3.1 et que nous allons décrire par la suite, ont un impact sur le nombre et le volume des gouttelettes (tableau 3.1). Afin de suivre cette évolution, il est nécessaire de définir une granulométrie, c'est à dire une loi qui décrit la distribution en taille des particules. Nous faisons ici l'approximation de gouttelettes et d'aérosols sphériques.

Processus	Concentration en nombre	Concentration volumique	
Nucléation	Augmentation	Augmentation	
Condensation	Pas de changement	Augmentation	
Évaporation	Peut changer	Diminution	
Coagulation	Diminution	Pas de changement	

TAB. 3.1 - Effect des processus microphysiques sur les concentrations en nombre et en volume d'une distribution de gouttelettes.

3.1.1 Distribution en taille des particules

Nous avons déjà évoqué très brièvement les représentations numériques des distributions en taille des particules dans la partie 2.1.1, mais ici nous approfondissons la description et les propriétés de ces distributions.

La concentration de particules dans un intervalle i, notée N_i en particules/m³, est donnée par la formule suivante :

$$N_{i} = n_{i}\Delta r$$
(3.1)
$$\begin{array}{c} -n_{i} \text{ la distribution en nombre de particules dans} \\ \text{l'intervalle } i \ (\text{m/m}^{3}); \\ -\Delta r \text{ la taille de l'intervalle considéré (m)}; \\ -r \text{ le rayon de la particule (m).} \end{array}$$

Cette représentation discrétisée de la distribution induit des pertes d'informations sur celle-ci dans chaque intervalle. Afin de limiter cette perte, nous pouvons considérer des tailles d'intervalle de plus en plus petites. Cela nous permet d'approcher de la distribution naturelle des particules qui est continue en fonction des rayons. Si nous posons $\Delta r \to 0$ alors Δr est considéré infinitésimal et est noté dr. La fonction de distribution prend ainsi la forme continue :

$$n(r) = \frac{\mathrm{d}N}{\mathrm{d}r} \tag{3.2}$$



La grandeur n(r)dr représente le nombre de particules par m³ d'air ayant un rayon contenu dans l'intervalle $[r - \frac{dr}{2}; r + \frac{dr}{2}]$. Le nombre total de particules par volume d'air, noté N_t , s'exprime alors :

$$N_{\rm t} = \int_0^\infty n(r) \,\mathrm{d}r \tag{3.3}$$

Dans le cas de Vénus, nous utilisons une loi log-normale pour représenter la distribution en taille des gouttelettes. Ce choix repose sur les observations (chapitre 1) et est de plus couramment utilisé dans la microphysique des nuages. Cette fonction mathématique est facile à intégrer, ce qui simplifie son utilisation dans la suite. Nous utilisons également une loi log-normale pour représenter la distribution dimensionnelle en taille des aérosols.

3.1.2 Définition de la loi log-normale

La loi statistique log-normale possède des attributs mathématiques permettant d'exprimer analytiquement des grandeurs utiles, telles que le nombre total ou le volume total de particules. De ce fait, cette loi est très souvent utilisée dans les études atmosphériques (Knollenberg and Hunten, 1980; James et al, 1997; Vignati et al, 2004).

Pour une variable, ici le rayon r, tel que $r \in [0; +\infty[$, la distribution log-normale en taille des particules n(r) s'écrit :

$$n(r) = N_t \frac{1}{r\sigma_g \sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{1}{2} \left(\frac{\ln(r/\overline{r}_g)}{\sigma_g}\right)^2\right]$$
(3.4)

Où \bar{r}_g est le rayon médian de la distribution, σ_g l'écart-type géométrique et N_t la concentration totale. Le rayon médian est le rayon où une moitié de la population possède un rayon plus petit et l'autre plus grand. L'écart-type géométrique σ_g représente la largeur de la distribution log-normale. 68 % des particules sont comprises dans l'intervalle $[\bar{r}_g - \sigma_g; \bar{r}_g + \sigma_g]$.

Les grandeurs intégrées sont reliées à des grandeurs physiques d'intérêt pour la microphysique. Ainsi, nous pouvons exprimer le volume total, V_t , des particules par volume d'air par l'expression suivante :

$$V_{\rm t} = \frac{4\pi}{3} \int_0^\infty r^3 \, n(r) \, \mathrm{d}r \tag{3.5}$$

Ces valeurs intégrées peuvent être exprimées de manière générale à l'aide des moments de la distribution log-normale.

3.1.3 Définition des moments

Dans notre étude, nous prenons en compte trois distributions log-normales (deux pour les gouttelettes du mode 1 et 2 et une pour les aérosols). Chacune de ces distributions sera représentée par un couple de moment que nous allons définir ici.

Un moment M d'ordre k, noté M_k , est une quantité intégrée dont l'expression générale est l'intégration d'une fonction f définie sur un intervalle $I \subset \Re^{+1}$. Soient x et k des nombres réels, tels que :

$$M_k(f) = \int_I x^k f(x) \, dx \tag{3.6}$$

Dans notre cas, nous considérons comme fonction f(x) la densité en nombre n(r) en fonction du rayon r de la distribution en taille des particules. Un moment M d'ordre k de cette distribution peut alors s'écrire :

$$M_k = \int_0^\infty r^k n(r) dr \tag{3.7}$$

¹Mathématiquement, un moment est défini sur \Re . Dans notre cas, nous considérons l'intervalle qui a une signification physique, soit \Re^+ .

Appliquée à une fonction log-normale pour nos distributions en taille des particules, l'équation (3.7) est représentée par la fonction analytique suivante :

$$M_k = N_t \bar{r}_g^k \exp\left(\frac{k^2 \ln^2\left(\sigma_g\right)}{2}\right)$$
(3.8)

avec \bar{r}_g , σ_g et N_t les paramètres de la distribution en taille des particules, qui représentent respectivement le rayon médian, l'écart-type géométrique et le nombre total de particules de la distribution.

Les processus microphysiques qui ont lieu dans l'atmosphère de Vénus font varier dans le temps la distribution dimensionnelle en taille des gouttelettes. Les paramètres \bar{r}_g et σ_g , ainsi que le couple de moments que nous considérons pour représenter chacune de nos trois distributions, évoluent avec la distribution. Ce couple de moment se compose de M_0 qui est égal au nombre total de gouttelettes (N_t) et de M_3 qui est proportionnel au volume total des gouttelettes (V_t) . Si nous résolvons l'évolution temporelle des moments, cela nous permet alors de reconstruire à chaque pas de temps la distribution en taille de particules dont ils sont issus. C'est cette approche que j'ai retenue pour construire mon modèle microphysique des nuages de Vénus. C'est à dire, exprimer toutes les équations microphysiques en fonction des moments. En remplaçant N_t par M_0 , nous pouvons réécrire la relation (3.8) :

$$M_k = M_0 \bar{r}_g^k \exp\left(\frac{k^2 \ln^2\left(\sigma_g\right)}{2}\right)$$
(3.9)

Ainsi, en utilisant la relation (3.9), je modélise la microphysique vénusienne par la résolution d'un système d'équations différentielles exprimé à l'aide d'un couple de moment. Comme nous allons le voir dans le chapitre 4, nous avons décidé de fixer l'écart-type de nos distributions dimensionnelles en taille de rayon. Grâce à cette hypothèse, à partir de l'équation (3.9) nous posons la fonction $\alpha(k)$ qui nous permet de faciliter les calculs. Cette fonction est définie par :

$$\alpha(k) = \exp\left(\frac{k^2 \ln^2\left(\sigma_g\right)}{2}\right) \tag{3.10}$$

de telle sorte que :

$$M_k = M_0 \bar{r}_a^k \alpha(k) \tag{3.11}$$

Cette dernière expression va nous permettre par la suite d'exprimer n'importe quel moment d'ordre k en fonction du moment d'ordre 0.

3.2 Formation d'une gouttelette

Pour une espèce chimique considérée, la nucléation opère pendant une transition de phase, comme le passage de la phase gazeuse à une phase liquide ou solide $(cristaux)^2$. Pour que des gouttelettes se forment, la vapeur doit être sursaturée. Les conditions nécessaires à la nucléation dépendent des espèces chimiques mises en jeu, du type de nucléation, des conditions thermodynamiques et de la saturation.

Il existe plusieurs types de nucléation. Seulement deux types seront présentés dans le cadre de ce travail de la modélisation des nuages vénusiens. Il y a dans un premier temps la nucléation homogène qui forme une goutte sans surface préexistante. La description de ce processus va nous permettre de comprendre les mécanismes physiques à l'origine de la formation des gouttelettes. Puis, nous présenterons la nucléation hétérogène où la goutte se forme sur une particule préexistante, également appelée noyau de condensation.

Avant de détailler les différents processus de nucléation, nous allons introduire quelques notions nécessaires pour comprendre la formation d'une gouttelette, en commençant par le rapport de saturation.

 $^{^{2}}$ Cela concerne également la formation de bulle dans un liquide ou encore des cristaux dans un liquide.

3.2.1 Saturation d'une vapeur

La nucléation a lieu lorsqu'il y a sursaturation. En d'autres termes, la quantité de vapeur présente dans l'air est supérieure à la quantité nécessaire pour saturer cet air et ainsi un changement de phase peut débuter. Cette logique est représentée par la relation suivante :

$$S = \frac{P_{\rm A}}{P_{\rm A}^S(T)} \tag{3.12}$$

où S est le taux de saturation d'une espèce chimique A de pression P_A et de pression de vapeur saturante P_A^S à une température T. Ce rapport nous permet de caractériser l'état du milieu, avec :

- S < 1: le milieu est sous-saturé;
- S = 1 : le milieu est saturé ou à saturation d'équilibre ;
- S>1: le milieu est sursaturé.

Lorsque le taux de saturation est égal à 1, il n'y a pas de sursaturation et la moyenne de la concentration de tous les embryons³ est constante. En revanche, lorsque ce taux de saturation est supérieur à 1, il y a un excès de monomères⁴ par rapport au cas où nous sommes à la saturation d'équilibre (S = 1). Cet excès se traduit par un bombardement des monomères sur les embryons du fait de l'agitation thermique⁵. La taille des agrégats existants augmente et de nouveaux agrégats sont produits.

Lorsque le taux de saturation devient important, les grands embryons peuvent atteindre une taille critique à partir de laquelle ils deviennent suffisamment stables pour grossir jusqu'à atteindre une taille macroscopique (gouttelettes).

3.2.2 Notion de tension de surface

La tension de surface est la capacité d'une surface libre délimitant deux milieux à résister à une augmentation de sa surface. La tension de surface, notée e_s en J/s, est décrite par la formule suivante :

$$e_s = \frac{d\mathcal{W}}{dA} \tag{3.13}$$

où $d\mathcal{W}$ représente le travail fourni pour augmenter l'aire de la surface libre A de dA.

Les gouttelettes prennent généralement une forme sphérique, conformément au principe d'énergie minimale. La sphère est en effet la forme géométrique dont le rapport surface/volume est le plus faible.

La nucléation implique une transition de phase. Sur Vénus, le passage se fait d'une phase vapeur à une phase liquide. Ce processus ne se produit pas lorsque l'énergie libre de la phase liquide est inférieure à celle de la phase vapeur. Nous allons maintenant voir pourquoi.

3.2.3 Énergie libre de formation ou énergie de nucléation

L'énergie libre de Gibbs est une fonction d'état extensible, notée G, dont la variation indique le travail utile susceptible d'être fourni dans le cas d'une réaction thermodynamique réversible. Par définition, l'énergie libre de Gibbs s'écrit : $G = U - TS_E$ avec U l'énergie interne du système, T la température de ce système et enfin S_E l'entropie du système. Dans notre cas, la réaction thermodynamique réversible considérée est le changement de phase qu'entraîne la formation d'une gouttelette liquide.

Du fait de l'agitation thermique, les i molécules de la phase gazeuse se collisionnent et forment un embryon que l'on appelle *i*-mère et que l'on suppose sphérique de rayon r. D'un point de vue énergétique, il y a alors

³Agglomérat de molécules gazeuses dont la pression de vapeur est inférieure à la valeur critique requise pour nucléer.

⁴Molécule indépendante de l'espèce chimique gazeuse considérée.

⁵Les collisions entre molécules de vapeur sont inélastiques et permettent l'agrégation de molécules. Nous pouvons ajouter un monomère à un embryon et un embryon peut perdre un monomère.

une compétition entre le changement de la phase gazeuse à la phase liquide et la création d'une nouvelle interface entre ses deux phases. Cette dualité se traduit dans l'expression de l'énergie libre de formation qui est alors égale à :

$$\Delta G_i = 4\pi e_s r^2 - \frac{4}{3}\pi r^3 \, \frac{k_B T \, \ln(S)}{v_1} \tag{3.14}$$

notons que v_1 représente le volume d'une molécule. Après l'égalité, le terme de gauche $(4\pi e_s r^2)$ est l'énergie surfacique et représente l'augmentation de l'énergie libre résultant de la formation de la surface de l'*i*-mère. Le terme de droite $(\frac{4}{3}\pi r^3 \frac{k_B T \ln(S)}{v_1})$ est l'énergie volumique et entraîne la diminution de l'énergie libre du fait du changement de potentiel chimique⁶ lorsque l'on passe d'une phase gazeuse à une phase liquide. Cette relation met en évidence une barrière énergétique et est notée ΔG_i^* . Cette barrière est la valeur maximale de l'énergie libre et est obtenue en calculant $\frac{\delta(\Delta G)}{\delta r} = 0$ dans l'équation (3.14), ce qui nous conduit à la relation suivante :

$$\Delta G_i^* = \frac{4}{3} \pi r^{*2} e_s = \frac{16\pi}{3} \frac{v_1^2 e_s^3}{(k_B T \ln(S))^2}$$
(3.15)

La grandeur ΔG_i^* est également appelée barrière de l'énergie libre ou encore énergie d'activation et correspond à la valeur de l'énergie libre qu'il faut dépasser pour nucléer.

De la même manière que pour obtenir ΔG_i^* , nous déterminons le rayon critique des agglomérats, noté r^* . Ce rayon correspond à un nombre critique de monomères i^* et s'écrit :

$$r^* = \frac{2e_s v_1}{k_B T ln(S)} \tag{3.16}$$

Nous pouvons ainsi obtenir le rapport de la saturation critique, lorsque $r = r^*$, à partir de l'équation (3.16) :

$$S^* = \exp\left(\frac{2e_s v_1}{k_B T r^*}\right) \tag{3.17}$$

La figure 3.2 montre l'évolution de ΔG_i (équation 3.14) en fonction du rayon des agglomérats et du taux de saturation S (équation 3.12). Si la pression partielle de la phase gazeuse (P_A) est inférieure à la pression de vapeur saturante (P_A^S) alors S < 1 et ΔG_i augmente si le rayon r augmente. Dans ce cas de figure, la phase gazeuse est stable et il n'y a pas de nucléation. Dans le cas contraire, si $P_A > P_A^S$ alors S > 1 et l'énergie libre ΔG_i augmente initialement jusqu'à atteindre son maximum au rayon critique r^* puis diminue quand le rayon de l'embryon dépasse le rayon critique $(r > r^*)$, l'aggrégat (ou *i*-mère) va pouvoir grandir.



FIG. 3.2 – Évolution de l'énergie libre en fonction du rayon R_p de la particule. σ est la tension de surface que nous notons e_S dans nos équations. Ce graphe est tiré du livre de Seinfield and Pandis.

⁶Lorsque l'on a une phase gazeuse au contact d'une phase liquide, il y a alors une différence de potentiel chimique, μ , entre une molécule de la phase gazeuse (g) et de la phase liquide (l), avec k_B la constante de Boltzmann et S la saturation tel que $\mu_l - \mu_g = k_B T \ln(S)$.

Jusqu'à présent, nous avons considéré un seul embryon. Nous devons décrire une population entière. La distribution des agrégats à l'équilibre, notée N_i^e obéit à la distribution de Boltzmann. À partir de l'énergie de Gibbs (équation 3.14), nous définissons N_i^e :

$$N_i^e = N_1 \times \exp\left(-\frac{\Delta G_i}{k_B T}\right) \tag{3.18}$$

avec N_1 le nombre total des monomères du système. Cette relation nous permet de déterminer le nombre d'agrégats pour lesquels le nombre de monomères dépassera la valeur critique i^* . Dans ce cas de figure, la taille de l'embryon atteint le rayon critique et cet embryon grandira de façon spontanée. Les agrégats ne pouvant atteindre les i^* monomères se désagrègeront.

3.2.4 Nucléation homogène



FIG. 3.3 – Schématisation de la nucléation homogène par Flavie Roux (École Estienne).

La nucléation homogène doit être comprise comme la formation d'agrégats de molécules pouvant grandir grâce à l'ajout de molécules supplémentaires (figure 3.3). Nous considérons ici l'approche cinétique, c'est à dire que la distribution en taille des agrégats est dépendante du temps.

Soit $N_i(t)$, la concentration en nombre d'embryons contenant *i* molécules à un temps *t*. Cette quantité est gouvernée par l'équation suivante :

$$\frac{dN_i(t)}{dt} = \beta_{i-1}N_{i-1}(t) - \gamma_i N_i(t) - \beta_i N_i(t) + \gamma_{i+1}N_{i+1}(t)$$
(3.19)

avec β et γ les coefficients de collision et d'échappement d'un monomère avec un *i*-mère que nous définirons par la suite. Nous définissons un taux net de nucléation $J_{i+1/2}$ pour lequel chaque embryon de taille *i* devient un embryon de taille *i* + 1, tel que :

$$J_{i+1/2} = \beta_i N_i - \gamma_{i+1} N_{i+1} \tag{3.20}$$

Dans le cas stationnaire, l'expression de gauche de l'équation (3.19) devient nulle et nous avons $J_{i+1/2} = J$ pour tout *i*. C'est à dire que tous les flux doivent être égaux à un flux constant noté *J*. Si nous définissons la concentration en nombre d'embryons de taille *i* dépendante du temps par la grandeur f_i , nous obtenons alors :

$$\beta_i f_i = \gamma_{i+1} f_{i+1} \tag{3.21}$$

Puis, en prenant en compte les équations (3.19) et (3.21), nous aboutissons à l'expression suivante :

$$J = N_1 \left(\sum_{i=1}^{\infty} \frac{1}{\beta_i f_i}\right)^{-1} \tag{3.22}$$

Nous obtenons ainsi le flux net J qui est le taux de nucléation.

Coefficient de collision

D'après la théorie cinétique des gaz, le nombre de collisions entre deux entités chimiques A et B est gouverné par la relation suivante :

$$Z_{\rm AB} = \sqrt{\frac{8\pi k_B T}{m_{\rm AB}}} D_{\rm AB}^2 N_{\rm A} N_{\rm B}$$

$$(3.23)$$

avec :

- la masse réduite
$$m_{AB} = \frac{m_A m_B}{m_A + m_B}$$
;

- D_{AB} le diamètre de collision égal à $(r_A + r_B)$.

La masse d'un *i*-mère est égale à la masse d'un monomère m_1 multipliée par le nombre de monomères *i* qu'il contient, donc $m_i = im_1$. De plus, nous faisons l'hypothèse que les monomères et les *i*-mères ont des densités égales ce qui nous permet d'écrire $v_i = iv_1$. Nous pouvons alors déterminer le coefficient β_i qui correspond au nombre de collisions entre un monomère et un *i*-mère par unité de temps :

$$\beta_i = \frac{P_1}{\sqrt{2\pi m_1 k_B T}} \times \sqrt{1 + \frac{1}{i}} \times (1 + i^{1/3})^2 \times a_1 \tag{3.24}$$

où P_1 est la pression partielle d'un monomère, tel que : $P_1 = N_1 k_B T$. Et a_1 est la surface d'un monomère, tel que :

$$a_1 = 4\pi \left(\frac{3v_1}{4\pi}\right)^{2/3} \tag{3.25}$$

Coefficient d'échappement

Le coefficient d'échappement, noté γ_i , correspond à un taux à partir duquel les molécules quittent l'agrégat. Il est plus difficile à déterminer que le coefficient de collision (β_i) décrit précédemment. Nous faisons l'hypothèse que tant que la concentration en nombre des monomères reste inférieure à la concentration en nombre des molécules du gaz environnant, alors la valeur à laquelle un monomère s'échappe va dépendre uniquement de la taille de l'agrégat auquel il appartient et de la température du système.

À l'équilibre, le coefficient d'échappement (γ_i) est égal au coefficient de collision (β_i) pour $i = i^*$. Où i^* représente le nombre critique de monomères que doit contenir un embryon pour atteindre le rayon critique. Par définition, nous avons :

$$i^* = \frac{32\pi}{3} \frac{v_1^2 e_s^3}{(k_B T)^3 \ln^3 S}$$
(3.26)

avec e_s la tension de surface et v_1 le volume d'un monomère. À partir de l'équation (3.24), nous pouvons écrire :

$$\gamma_i = \frac{P_1^S}{\sqrt{2\pi m_1 k_B T}} \times \sqrt{1 + \frac{1}{i}} \times (1 + i^{1/3})^2 \times a_1 \exp(\frac{2e_s v_1}{k_B T r})$$
(3.27)

car ici, la pression partielle des monomères prend la forme suivante :

$$P_1 = P_1^S \exp(\frac{2e_s v_1}{k_B T r})$$
(3.28)

combinée à l'équation (3.26), nous obtenons :

$$\gamma_i = \frac{P_1}{\sqrt{2\pi m_1 k_B T}} \times \sqrt{1 + \frac{1}{i}} \times (1 + i^{1/3})^2 \times a_1 S^{(i^*/i)^{1/3}}$$
(3.29)

En remplaçant P_1 (3.28) dans l'expression de β_i (3.24), nous obtenons le rapport de γ_i et β_i :

$$\frac{\gamma_i}{\beta_i} = S^{(i^*/i)^{1/3} - 1} \tag{3.30}$$

Les monomères s'échappent de l'agrégat lorsque le coefficient d'échappement est supérieur au coefficient de collision ($\gamma_i > \beta_i$). Enfin, lorsque l'embryon est supercritique, c'est à dire $i >>> i^*$, l'embryon grandit tant que les monomères se condensent plus rapidement qu'ils ne s'échappent.

Taux de nucléation homogène

L'agglomération de deux *i*-mères d'une même espèce pour donner un autre *i*-mère est représentée par les relations suivantes :

$$\begin{cases}
A_1 + A_1 \rightleftharpoons A_2 \\
A_1 + A_2 \rightleftharpoons A_3 \\
3A_1 \rightleftharpoons A_3
\end{cases} \equiv iA_1 \rightleftharpoons A_i$$
(3.31)

Les *i* molécules sont converties en agrégats. Les molécules sont transférées, à saturation critique, de la phase gazeuse à la phase liquide à la même pression. Ainsi, la variation de l'énergie libre ΔG_i pour cette étape est nulle. Si une gouttelette de *i* molécules se forme, il y a création d'une interface entre la gouttelette liquide formée et le gaz. Cela entraîne un changement d'énergie libre. Pour une réaction réversible, l'énergie libre ΔG_i associée à la formation du nouvel *i*-mère est donnée par :

$$\Delta G_i = e_s a_i \tag{3.32}$$

 avec :

- e_s la tension de surface de l'espèce chimique A;
- a_i la surface de l'embryon de taille i.

Si l'agrégat est sphérique et qu'il y a le même volume par molécule v_1 qu'un volume macroscopique (approximation capillaire), alors :

$$a_i = (36\pi)^{1/3} (v_1 i)^{2/3}. aga{3.33}$$

Notons qu'ici, la tension de surface e_s est définie comme étant la même que celle des monomères constituant un volume macroscopique de même composition chimique. Nous assumons ainsi que l'agrégat d'un petit nombre de molécules a la même tension de surface que le liquide de volume macroscopique. Il s'agit de l'approximation majeure de la théorie classique de la nucléation. Elle porte le nom d'approximation capillaire. Cette approximation va nous permettre de déterminer le taux de nucléation homogène de la théorie classique de la microphysique. Pour cela, nous définissons une tension de surface sans dimension, notée θ et donnée par :

$$\theta = (36\pi)^{1/3} v_1^{2/3} e_s / (k_B T) \tag{3.34}$$

À saturation, l'énergie de Gibbs peut s'écrire :

$$\Delta G_i = \theta k_B T i^{2/3} \tag{3.35}$$

et l'équation (3.22) devient :

$$J = N_1 \left(\sum_{i=1}^{\infty} \frac{1}{\beta_i^S S^i \exp(-\theta i^{-2/3})} \right)^{-1}$$
(3.36)

Si nous cherchons à simplifier cette équation, nous devons nous intéresser au dénominateur. La dérivée de celui-ci par rapport à i est nulle pour une valeur i^* . Cette solution est donnée par la relation (3.26). Les équations (3.24), (3.26), (3.34) et (3.36) nous permettent de définir le taux de nucléation homogène (en m⁻³ s⁻¹) comme suit :

$$J = \left(\frac{2e_s}{\pi m_1}\right)^{1/2} \times \frac{v_1 N_1^2}{S} \times \exp\left(-\frac{16\pi}{3} \frac{v_1^2 e_s^3}{(k_B T)^3 (\ln S)^2}\right)$$
(3.37)

L'équation (3.37) nous permet de déterminer le taux de nucléation de différentes substances pures en fonction du taux de saturation (nucléation homomoléculaire).

Nous avons vu que pour que la nucléation homogène ait lieu, il faut que l'embryon dépasse la barrière de l'énergie libre à $i = i^*$. Nous pouvons également noter que plus le taux de saturation est grand, plus la taille critique des embryons i^* est petite.

Rappelons que le taux de nucléation est le résultat d'un bombardement en chaîne de molécules gazeuses sur l'embryon suite à l'agitation thermique. Pour garder ce taux constant, il faut maintenir une saturation constante. Donc, sans un renforcement extérieur de la concentration en vapeur, le taux de saturation tombe à la suite de l'épuisement des molécules gazeuses pour former des agrégats stables.

3.2.5 Nucléation hétérogène

La nucléation hétérogène permet la formation d'une gouttelette sur une surface préexistante. Cette surface permet d'abaisser la barrière énergétique ΔG_i^* . Ce processus se met en place à une sursaturation plus faible que la nucléation homogène ce qui privilégie la nucléation hétérogène par rapport à la nucléation homogène dans la formation des gouttelettes nuageuses.

Dans le cas des aérosols de Vénus, nous allons supposer que la nucléation hétérogène s'effectue sur un CCN solide et insoluble, tel que :



FIG. 3.4 – Schéma de la formation d'une gouttelette sur un CCN solide insoluble avec V_{ap} la phase gazeuse, S_{ins} le CCN solide et insoluble, L l'embryon liquide (gouttelette), ϕ_c l'angle de contact et r^{*} le rayon critique de l'embryon.

Les noyaux de condensation (ou CCN) ont une surface incurvée qui peut être irrégulière. Ici, nous faisons l'hypothèse que les CCN sont sphériques dont la courbure convexe complique l'expression de l'énergie libre qui doit s'adapter à cette nouvelle géométrie comparée à la nucléation homogène. L'énergie libre de Gibbs, que l'on note ΔG^*_{het} , est alors donnée par :

$$\Delta G_{het}^* = \Delta G_{\text{homo}}^* f(\Phi, x) \tag{3.38}$$

avec ΔG^*_{homo} l'énergie de nucléation homogène définie pour un embryon sphérique de rayon critique r^* dans les mêmes conditions thermodynamiques. Nous notons :

$$x = \frac{r_{CCN}}{r^*} \tag{3.39}$$

où r_{CCN} est le rayon du CCN et r^* est le rayon critique de la nucléation homogène. Si l'on se réfère à l'équation (3.16), nous avons $r^* = r^*_{homo}$. La grandeur Φ de l'équation (3.38) est appelée la mouillabilité et est définie par :

$$\Phi = \cos\phi_c = \frac{e_{SV} - e_{SL}}{e_{LV}} \tag{3.40}$$

où e_{SL} est la tension de surface entre la surface solide (S_{ins}) et la gouttelette liquide (L) et e_{LV} la tension de surface entre le liquide et la phase gazeuse (V_{ap}) . L'angle de contact, noté ϕ_c , est l'angle entre la surface solide (S_{ins}) et la surface de la gouttelette formée (L), toutes deux au contact d'une phase vapeur (V_{ap}) . La mouillabilité quantifie l'affinité entre la phase condensée et le noyau de condensation. Plus la mouillabilité a une valeur proche de 1 et plus il y a d'affinité entre la phase liquide et le CCN.

On définit ensuite le facteur de forme $f(\Phi, x)$, de l'équation (3.38), dont les valeurs sont comprises entre 0 et 1 et qui est donné par l'équation suivante (pour une surface convexe) :

$$f(\Phi, x) = 1 + \left(\frac{1 - \Phi x}{\eta}\right)^3 + x^3 \left[2 - 3\frac{x - \Phi}{\eta} + \left(\frac{x - \Phi}{\eta}\right)^3\right] + 3\Phi x^2 \left(\frac{x - \Phi}{\eta} - 1\right)$$
(3.41)

avec $\eta = (1+x^2-2\Phi x)^{1/2}$. La formation d'un embryon est un processus hors-équilibre. Le nombre de molécules qui arrivent sur l'embryon diffère du nombre de molécules qui s'en échappent. Le flux net de molécules est ainsi

non nul. Pour représenter cette réalité hors-équilibre dans l'expression du taux de nucléation, nous prenons en compte Z, le facteur de Zeldovich (pour le développement de la forme exacte dans le cas hétérogène, voir Vehkamäki et al., 2007) :

$$Z = \sqrt{\frac{\Delta G_{het}^*}{3\pi k_B T n_e^2}} \tag{3.42}$$

ce qui nous permet d'écrire le taux de nucléation hétérogène, noté J_{het} (Keesee, 1989) :

$$J_{het} = \frac{\pi Z}{8\mu_S f(\Phi, x)} (n_g \bar{v}_{tm} r^*)^2 \exp(\frac{2\Delta G_{des} - \Delta G_{sd} - \Delta G_{het}^* f(\Phi, x)}{k_B T})$$
(3.43)

en m²/s avec \bar{v}_{tm} la vitesse thermique des molécules, ΔG_{des} et ΔG_{sd} sont des énergies d'activation respectivement liées à la désorption des molécules et leur diffusion à la surface d'un support. La grandeur μ_S représente la fréquence de vibration des molécules, n_g le nombre de molécules dans le milieu gazeux et n_e le nombre de molécules de l'embryon.

L'équation (3.43) nous permet de déterminer le taux de nucléation hétérogène sur des noyaux de condensation sphériques, solides, insolubles et dépourvus d'imperfection. Ces hypothèses nous conduisent à considérer un seul paramètre pour décrire l'intéraction entre la gouttelette et la surface, il s'agit de l'angle de contact (ϕ_C) . Malgré ces approximations, l'équation (3.43) nous permet d'obtenir une bonne représentation physique et mathématique de la nucléation hétérogène.

3.2.6 Taux de nucléation et nuages vénusiens

Les équations (3.37) et (3.43) nous ont permis de définir respectivement le taux de nucléation pour la nucléation homogène et hétérogène. Dans les conditions de l'atmosphère de Vénus, et plus précisément dans les trois couches nuageuses, peut-on déterminer lequel de ces deux processus de formation est privilégié?

nuage	bas	médian	haut
altitude (km)	48	54	60
température (K)	366	312	262
pression (hPa)	1375	616	236
H_2SO_4 vapeur (ppmv)	$6,\!93$	0,08	$9,94 \cdot 10^{-5}$
H_2O vapeur (ppmv)	$18,\!4$	9,7	$1,\!0$
humidité relative $(\%)$	$3,\!19{\cdot}10^{-3}$	$8,\!61{\cdot}10^{-3}$	$9,02 \cdot 10^{-3}$
concentration en H_2SO_4 (cm ⁻³)	$1,\!88{\cdot}10^{14}$	$1,\!16{\cdot}10^{12}$	$6,48 \cdot 10^8$
W_m (%)	98	95	83

TAB. 3.2 - Définition des couches nuageuses utilisée pour nos tests. Les valeurs sont basées sur les données VIRA et Krasnopolski (2012). La grandeur W_m est le pourcentage massique d'acide sulfurique contenu dans les gouttelettes. Cette notion est introduite dans le chapitre 4.

Le taux de nucléation homogène homomoléculaire, c'est à dire mettant en jeu seulement une espèce chimique, à savoir ici l'acide sulfurique, a été déterminé pour trois pressions et températures différentes en fonction des trois couches nuageuses sur Vénus (tableau 3.2). L'évolution du taux de nucléation homogène pour les trois couches en fonction du rapport de saturation (équation 3.12) est présentée dans la figure 3.5. Quelle que soit la couche nuageuse considérée, nous remarquons que le taux de nucléation est faible voire très faible, de l'ordre de 10^{-36} à 10^{-14} cm⁻³s⁻¹ pour des rapports de saturation allant jusqu'à 100. Notamment pour le cas du nuage haut (pression et température à 60 km d'altitude) dont le taux de nucléation homogène ne dépasse pas les 10^{-18} cm⁻³s⁻¹. Ces ordres de grandeurs restent cohérents avec le fait que nous considérons une nucléation homogène homomoléculaire (Määttänen et al., 2005).



FIG. $3.5 - \acute{E}$ volution du taux de nucléation homogène en fonction du rapport de saturation pour trois cas représentatifs des trois couches nuageuses définies dans le tableau 3.2.

Dans les nuages de Vénus, du fait de la présence de vapeur d'eau, la nucléation homogène est hétéromoléculaire. Les gouttelettes se forment à partir d'une solution binaire d'acide sulfurique et d'acu. La théorie de la nucléation homogène hétéromoléculaire est présentée dans l'article de Merikanto et al. (2016) qui sert de base à la paramétrisation de Määttänen et al. (2018) que nous utilisons pour comparaison ici. Le taux de nucléation hétéromoléculaire calculé avec cette paramétrisation dépend de l'humidité relative, de la température et de la concentration en vapeur d'acide sulfurique (figure 3.6). Le tableau 3.2 regroupe les concentrations en acide sulfurique et l'humidité relative associées à chacun des cas choisis pour représenter les couches nuageuses sur Vénus. La figure 3.6 montre les résultats de la paramétrisation avec différentes valeurs de concentration en acide sulfurique et d'humidité relatives similaires aux valeurs présentées dans le tableau 3.2. Pour les trois couches, les résultats de la paramétrisation (figure 3.6) nous montrent que les températures sont trop élevées pour obtenir une valeur de taux de nucléation supérieure à $10-7 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$ (considérée comme valeur seuil pour la paramétrisation, Määttänen et al, 2018). Dans le cas du nuage haut, la température doit être inférieure à 210 K, alors que pour le nuage médian, elle devrait se situer en-dessous des 240 K. Pour obtenir un taux de nucléation non nul (donc supérieur à $10-7 \text{ cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$) dans les conditions représentatives du nuage bas, la température ne doit pas dépasser 310 K. Nous remarquons toutefois que plus la concentration en acide sulfurique est importante, plus le taux de nucléation est grand à hautes températures.

Pour la nucléation hétérogène, nous avons considéré une mouillabilité de 0,95. Les valeurs des taux de nucléation obtenues sont élevées et leur évolution est rapide. La variation va de $2,27 \cdot 10^{-47}$ à S=1,10 à $7,37 \cdot 10^{9}$ à S=4,0 pour le nuage bas. Respectivement pour les mêmes taux de saturation, la variation va de $7,08 \cdot 10^{-52}$ à $9,61 \cdot 10^{6}$ pour le nuage médian et de $1,12 \cdot 10^{-60}$ à 1,69 pour le nuage haut (figure 3.7).

Nous caractérisons l'efficacité de nucléation à la capacité de produire un embryon d'acide sulfurique par cm⁻³ d'air et par seconde et de 1 CCN⁻¹ s⁻¹ pour la nucléation hétérogène. Cela suppose qu'un embryon suffit pour activer un noyau de condensation. Le taux de saturation nécessaire pour atteindre ces valeurs est appelé saturation critique. la figure 3.7 nous permet de comparer les deux taux de nucléation sur une même gamme de valeurs. Pour une saturation inférieure à 100, nous pouvons voir que le taux de nucléation homogène n'atteint pas le seuil de saturation critique (J = 1 cm⁻³s⁻¹). En revanche, dans le cas de la nucléation hétérogène, cette valeur est atteinte dans les trois cas représentant les couches nuageuses. Tout d'abord, dans le cas du nuage bas, la saturation critique est de 1,35, puis de 1,45 pour le cas du nuage



FIG. 3.6 – Taux de nucléation homogène en fonction de la température (axe des abscisses) et pour des humidités relatives basses représentatives de l'atmosphère vénusienne et illustrées par les courbes en couleur. Trois cas de concentration en vapeur d'acide sulfurique sont présentés ici dont les valeurs sont indiquées dans le titre de chaque graphe, en cm⁻³. Les lignes en pointillés représentent l'ancienne paramétrisation de Vehkamäki et al. (2002) et les traits pleins avec les triangles représentent la nouvelle paramétrisation de Määttänen et al. (2018).

médian et enfin de 3,70 pour le cas du nuage haut. La nucléation hétérogène, en plus d'être plus efficace que la nucléation homogène dans ces conditions, semble plus efficace dans la couche nuageuse inférieure et intermédiare.

3.3 Condensation ou évaporation?

Comme nous l'avons vu précédemment, des monomères s'agglutinent entre eux et forment un agrégat. Une fois que le rayon critique de l'agrégat est atteint, le processus spontané de la nucléation se produit. Ensuite, la gouttelette formée peut encore grandir par ajout de molécules ou rétrécir par perte de molécules. C'est ce que l'on appelle respectivement la condensation et l'évaporation.

Notre objectif est de déterminer ce qui est acquis ou perdu par la particule. Ici, nous faisons l'hypothèse que les particules ne contiennent qu'une seule espèce chimique.

3.3.1 Définition du flux de masse

Durant son évolution dans l'atmosphère, une gouttelette va croître ou décroître en fonction du transfert de masse entre la gouttelette et la vapeur environnante. En effet, lorsque des molécules viennent se coller à la particule et contribuent à l'augmentation de son volume, la gouttelette grandit et donc le flux de masse est positif puisqu'il s'agit d'un apport. En revanche, lorsque les molécules se détachent de la gouttelette,



FIG. 3.7 – Évolution du taux de nucléation hétérogène (à gauche) et homogène (à droite) en fonction du rapport de saturation pour trois cas représentatifs des trois couches nuageuses définies dans le tableau 3.2. La figure de droite résulte d'un agrandissement de la figure 3.5 afin de pouvoir faire une comparaison avec le processus de nucléation hétérogène.

l'évaporation se traduit par un flux de masse négatif et la particule rétrécit. Le flux de masse fait varier la masse totale et les rayons des particules, changeant ainsi la forme de la distribution dimensionnelle en taille de particule. Nous pouvons représenter mathématiquement le changement de masse pour une gouttelette de rayon r au cours du temps par la relation :

$$\frac{dm_{\rm g}}{dt} = \rho_{\rm g} \, 4\pi r^2 \, \frac{dr}{dt} \tag{3.44}$$

avec $m_{\rm g}$ la masse totale de la particule de rayon r et $\rho_{\rm g}$ la masse volumique de la particule. Par définition, le taux d'accroissement g(r) s'écrit :

$$g(r) = r\frac{dr}{dt} = \frac{S_{\chi} - S_{\chi}^*}{R_c + R_d}$$
(3.45)

avec S_{χ} la saturation de l'espèce condensée χ formant la particule, tel que $S_{\chi} = P_{\chi}/P_{\chi}^{sat}$. La résistance \mathbf{R}_c est due à la diffusion moléculaire et \mathbf{R}_d est la résistance due au dégagement de chaleur latente à la surface de la goutte. Ces deux résistances freinent le processus de condensation. Elles sont définies comme suit :

$$R_d = \frac{\rho_{\rm g} RT}{\mathcal{D} M_{\chi} P_{\chi}^{sat}(T)} \tag{3.46}$$

 et

$$R_c = \frac{L_v \rho_\chi}{\gamma T} \left(\frac{L_v M_\chi}{RT} - 1 \right) \tag{3.47}$$

avec M_{χ} la masse molaire, $P_{\chi}^{sat}(T)$ la pression de vapeur saturante, R la constante des gaz parfaits, T la température du système. La grandeur notée \mathcal{D} est la diffusivité moléculaire et est définie par l'équation suivante :

$$\mathcal{D} = \frac{D}{1 + \mathcal{A}_{\mathcal{K}}} \tag{3.48}$$

où $\mathcal{A}_{\mathcal{K}} = (1, 333K_n + 0, 71)/(K_n + 1)$ est une correction similaire à celle de Cunningham-Milikan. Elle est introduite par Fuchs and Sutugin (1971) et permet d'assurer la transition entre le régime moléculaire et le régime continu. Et D est le coefficient de diffusion de la particule, tel que :

$$D = \frac{k_B T}{6\pi\mu_{air} r} \tag{3.49}$$

avec μ_{air} la viscosité de l'air, λ_g le libre parcours moyen du gaz, k_B la constante de Boltzmann et T la température de l'air. Le nombre de Knudsen (K_n) est donné par le libre parcours moyen des particules de rayon r (voir page 70).

L'équation (3.44) nous permet de déterminer si les gouttelettes grandissent, lorsque $\frac{dm_g}{dt} > 0$, ou décroissent lorsque $\frac{dm_g}{dt} < 0$. Naturellement, ce processus peut entraîner la disparition des gouttelettes par évaporation complète de la solution liquide qui les composent.

Le flux de masse joue principalement sur la taille des particules et peut entraîner une décroissance en nombre des gouttelettes.

3.3.2 Flux de masse dans les conditions vénusiennes

Dans les conditions vénusiennes, nous pouvons regarder quel processus est privilégié dans les trois couches de l'atmosphère. Comme précédemment, nous considérons trois altitudes pour définir une pression et une température propres à chaque couche nuageuse de Vénus. Ces conditions sont regroupées dans le tableau 3.2. Comme le montre la figure 3.8, le coefficient de diffusion décroît en fonction du rayon des particules considéré, ce qui est en accord avec l'équation (3.49) qui souligne une dépendance en 1/r. Le coefficient est de l'ordre de 10^{-8} m²/s pour des rayons d'environ 1 nm et 10^{-12} m²/s pour des rayons plus grand d'environ 10 μ m. Nous pouvons également noter que la diffusion est deux fois moins importante pour les conditions du nuage haut par rapport au cas du nuage bas. Cela s'explique également par la dépendance en T de l'équation (3.49), plus la température est grande et plus le coefficient de diffusion est grand.

L'évolution du coefficient de diffusion influe sur le flux de masse (équation 3.44) dont les résultats pour les trois couches nuageuses sont présentés dans la figure 3.8. Nous pouvons noter que le rapport de saturation est d'environ 0,83 pour le nuage bas, 0,78 pour le nuage médian et 8,86 pour le nuage haut. Pour le nuage bas et médian, le flux de masse est négatif et est plus important pour les petites gouttelettes avec des valeurs environnants les 10^{-12} g/s que pour les grandes gouttelettes dont les valeurs sont de l'ordre de 10^{-18} g/s pour le nuage médian. Les petites gouttelettes s'évaporent donc plus rapidement que les grandes. A contrario, pour le troisième cas, celui du nuage haut, l'évolution du flux est le même que les deux cas précédent pour un rayon dont la taille est comprise entre [1,02; 1,63] nm. En effet, à partir d'un rayon égal à 1,63 nm, le flux de masse est positif et augmente car la différence de saturation ($S_{\chi} - S_{\chi}^*$ de l'équation 3.45) devient positif à partir de cette taille de rayon. Nous passons donc d'un flux de masse de l'ordre de -6,92·10⁻²³ g/s pour un rayon de 1,0 nm à environ -2,30·10⁻²⁵ g/s à 1,60 nm puis 6,51·10⁻²⁵ g/s à 1,63 nm pour enfin atteindre un flux de masse de 2,25·10⁻²³ pour une gouttelette de rayon 10,0 μ m. Dans ce cas d'étude, les gouttelettes s'évaporent dans le nuage bas et intermédiare. Dans le cas du nuage haut, les plus petites gouttelettes s'évaporent alors que les grandes gouttelettes grandissent.

Si nous prenons en compte la dynamique atmosphérique et des profils de température et de pression complets entre 40 et 70 km d'altitude, nous pouvons obtenir des variations latitudinales et diurnes en ce qui concerne le flux de masse. Naturellement, avec la consommation des vapeurs par nucléation et la condensation, le taux de saturation varie et par conséquent le flux de masse également. Malgré cela, cette petite étude nous donne une idée de l'ordre de grandeur que nous pouvons trouver pour le flux de masse dans des conditions vénusiennes.

3.4 Coagulation des particules

Les particules sont en mouvement aléatoire dans l'atmosphère du fait des forces hydrodynamiques, électriques, gravitationnelles, etc. Lorsque deux particules entrent en collision, elles peuvent rester collées l'une à l'autre. Si elles sont liquides, elles forment une goutte de plus grande taille et si elles sont solides, elles forment un agrégat de plus grande taille. Dans un cas comme dans l'autre nous parlons de coagulation. Il y a plusieurs types de coagulation mais nous nous intéresserons ici à la coagulation brownienne et à la coagulation gravitationnelle appelée coalescence (qui sera décrite dans la section 3.4.2) appliquées à des gouttelettes sphériques (figure 3.9).

Pour une distribution discrétisée en taille de particules, si une particule de l'intervalle i coagule avec une particule de l'intervalle i+1, nous obtiendrons une particule plus grosse et donc un gain dans un intervalle de



FIG. 3.8 - Évolution du coefficient de diffusion (A) et du flux de masse en fonction du rayon des gouttelettespour trois cas représentatifs des trois couches nuageuses définies dans le tableau 3.2. La couche représentativedu nuage bas est en**B**et le nuage médian et haut sont respectivement représentés par les figures**C**et**D**.

taille plus grande que i et i+1. En revanche, nous perdons une gouttelette dans l'intervalle i et un autre dans l'intervalle i+1. La coagulation entraîne une diminution du nombre de gouttelettes présentes dans le système. Si nous considérons les gains et les pertes que représentent le phénomène de coagulation, nous pouvons écrire l'équation discrète de la coagulation :

$$\frac{dN_j}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{j-1} K_{i,j-i} N_i N_{j-i} - N_j \sum_{i=1}^{\infty} K_{j,i} N_i \qquad j \ge 2$$
(3.50)

avec :

- N_j la concentration en particule d'un *j*-mère (intervalle *j*);
- $K_{i,j}$ les coefficients de coagulation du *j*-mère et de l'*i*-mère considérés;
- les indices j et i représentent des intervalles de taille.

Cette équation traduit à la fois les pertes engendrées par la coagulation (terme de droite) ainsi que les produits qu'elle génère (terme de gauche) : formation d'une nouvelle particule (gain) par la collision de deux particules (pertes). De plus, nous faisons également l'hypothèse que la plus petite particule est un *j*-mère ne contenant que deux molécules. C'est pourquoi nous appliquons la condition $j \ge 2$.

3.4.1 Coagulation brownienne

Les coefficients de coagulation traduisent l'efficacité de la collision et de coagulation entre deux particules. Dans le cas de la coagulation brownienne, si une particule de l'intervalle i coagule avec une particule de



FIG. 3.9 – Schématisation des processus de coagulation brownienne et de coalescence par Flavie Roux (École Estienne).

l'intervalle j, le coefficient (ou "kernel") de coagulation brownien, noté $K_{ij}^{\rm B}$ et défini empiriquement par Pruppacher and Klett (1978), s'écrit avec l'interpolation de Fuchs (1964) :

$$K_{ij}^{\rm B} = 4\pi \left(D_i + D_j \right) (r_i + r_j) \left(\frac{r_i + r_j}{r_i + r_j + (\delta_i^2 + \delta_j^2)^{1/2}} + \frac{4\left(D_i + D_j \right)}{(\bar{v}_{tm,i}^2 + \bar{v}_{tm,j}^2)^{1/2} (r_i + r_j)} \right)^{-1}$$
(3.51)

avec D_i et D_j les coefficients de diffusion respectivement associés à la particule *i* et *j*. Les autres grandeurs associées à K_{ij}^{B} sont définies dans le tableau (3.3).

$\lambda_i = \frac{8D_i}{\pi \bar{v}_{tm,i}}$	λ_i le libre parcours moyen
$\delta_i = \frac{1}{3D_i\lambda_i} [(2r_i + \lambda_i)^3 - (4r_i^2 + l_i^2)^{3/2}] - 2r_i$	δ_i , la distance moyenne du centre d'une sphère dont les deux particules quittent la surface en ayant une distance l'une de l'autre égale au libre parcours moyen
$\bar{v}_{tm,i} = \left(\frac{8k_BT}{\pi m_i}\right)^{1/2}$	$\bar{v}_{tm,i}$ la vites se thermique des molécules i

TAB. 3.3 – Grandeurs qui permettent de calculer le coefficient de coagulation brownien K_{ij}^B .

3.4.2 Coalescence et sédimentation des particules

La coalescence ou coagulation gravitationnelle est due à la sédimentation. Lorsqu'une particule tombe dans un fluide, deux forces s'appliquent alors sur elle : la force de traînée et la gravité. Nous notons u la vitesse du fluide, v la vitesse de la particule et g_0 la gravité. Pour un nombre de Reynolds Re < 0, 1, l'équation du mouvement prend alors la forme suivante :

$$m_{\rm p}\frac{d\boldsymbol{v}}{dt} = m_{\rm p}\boldsymbol{g}_0 + \frac{6\,\mu_{air}\pi r}{1+AK_n}(\boldsymbol{u}-\boldsymbol{v}) \tag{3.52}$$

Nous posons à présent τ , le temps de relaxation de la particule, c'est à dire le temps nécessaire à la particule pour atteindre la vitesse terminale de sédimentation v_t , tel que :

$$\tau = \frac{m_{\rm p}(1 + AK_n)}{6\pi\mu_{air}r} \tag{3.53}$$

L'équation (3.52) devient :

$$\tau \frac{d\boldsymbol{v}}{dt} = \tau \boldsymbol{g}_0 + \boldsymbol{u} - \boldsymbol{v} \tag{3.54}$$

Si la vitesse du fluide environnant est nulle et que $t >> \tau$, alors la particule atteint la vitesse terminale de sédimentation v_t . Pour une particule sphérique de masse $m_p = (4\pi/3)r^3\rho_p$, nous pouvons écrire :

$$v_{\rm t}(r) = \frac{2}{9} \frac{r^2 \rho_{\rm p} g_0(1 + AK_n)}{\mu_{air}}$$
(3.55)

ainsi τ , défini dans l'équation (3.53) est le temps

En chutant, les gouttelettes de grande taille entrent en collision et coagulent avec les plus petites puisqu'elles ont une vitesse terminale v_t plus élevée. C'est ce que l'on appelle la coalescence. Le coefficient d'efficacité de coalescence s'écrit (Seinfield et Pandis, 2006) :

$$K_{ij}^{\rm G} = \pi (r_i + r_j)^2 (v_{\rm ti} - v_{\rm tj}) E(r_i, r_j)$$
(3.56)

avec $E(r_i, r_j)$ l'efficacité de collision entre une particule de case *i* et une particule de case *j* si bien que (Seinfield et Pandis, 2006) :

$$E(r_i, r_j) = \frac{r_{i^2}}{4(r_i + r_j)^2}$$
(3.57)

Dans certains modèles atmosphériques, la vitesse v_t est corrigée pour prendre en compte l'effet du transport vertical des particules (Toon et al., 1988 et Fiadeiro and Veronis, 1977).

3.4.3 Prise en compte simultanée de la coagulation brownienne et de la coalescence

Le coefficient d'efficacité de coagulation $K_{i,j}$ dans la relation (3.50) est obtenu par la somme de la coalescence $K_{i,j}^{G}$ et de la coagulation brownienne $K_{i,j}^{B}$. Nous obtenons ainsi la relation :

$$K_{i,j} = K_{i,j}^{\rm B} + K_{i,j}^{\rm G} \tag{3.58}$$

nous remplaçons ensuite ce nouveau coefficient dans l'équation (3.56). Cependant, la somme de l'équation (3.58) ne s'applique pas dans la pratique. Cela a été vérifié expérimentalement par Simons et al. (1986). En effet, la somme des deux coefficients serait bien inférieure, parfois d'un facteur allant jusqu'à 1,5, au facteur observé expérimentalement. Afin de palier à cette différence, nous devons ajouter un facteur de correction ω défini par Simons et al. (1980) puis amélioré par Sajo (2008, 2010) et la relation (3.58) devient :

$$K_{i,j} = \omega \left(K_{i,j}^{\rm B} + K_{i,j}^{\rm G} \right) \tag{3.59}$$

avec

$$\omega = \frac{4\pi}{\psi(4+\psi)} \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n (2n+1) \frac{I_{n+\frac{1}{2}}(\psi/2)}{K_{n+\frac{1}{2}}(\psi/2)}$$
(3.60)

 \mathbf{et}

$$\psi = \frac{(r_i + r_j)v_{\rm R}}{D_i + D_j} = 4\pi \frac{\rho g_0}{3k_B T} r_i r_j |r_i^2 - r_j^2|$$
(3.61)

où $v_{\rm R}$ est la vitesse relative moyenne définie dans l'article de Batchelor (1982). La grandeur ψ est le rapport traduisant l'importance de la diffusion face à la coalescence. Les grandeurs $I_{n+\frac{1}{2}}$ et $K_{n+\frac{1}{2}}$ sont les fonctions de Bessel. Du fait de sa somme infinie, la détermination des valeurs de ω impose des difficultés de résolution numérique. C'est pourquoi nous utilisons des simplifications à solutions analytiques qui sont définies en
fonction des valeurs de ψ (Sajo 2008 et 2010) :

$$\omega = \begin{cases} \sum_{i} a_{i}e^{-i\psi} + \sum_{i} b_{i}\psi^{i} + E(0 < \psi \le 5, 5) & 0 < \psi \le 5, 5 \\ \sum_{i} a_{i}\ln^{i}(\psi) + \sum_{i} b_{i}\psi^{-i/3} + \sum_{i} c_{i}\psi^{i/3} + E(5, 5 < \psi \le 2000) & 5, 5 < \psi \le 2000 \\ 1 + C\psi^{-2/3} & 2000 \le \psi < 20000 \end{cases}$$
(3.62)

Avec C = 2,843 et les coefficients a_i, b_i, c_i et E définis selon les cas dans le tableau 3.4.

Coefficients	Indice, i	Fit $0 < \psi \leq 5, 5$ (Sajo, 2008)	Fit $5, 5 < \psi \leq 2000$ (Sajo, 2010)
a_i	1	$-1,7812145 \cdot 10^{-1}$	$2,04316 \cdot 10^{-1}$
	2	$-2,0380564 \cdot 10^{-2}$	$-1,79707 \cdot 10^{-2}$
b_i	1	$+2,7554519\cdot 10^{-2}$	0
	2	$-2,6500765 \cdot 10^{-3}$	8,84424
	3		$-1,83794 \cdot 10^{1}$
	4		$1,39340 \cdot 10^{1}$
	5		-3,25641
c_i	1		$2,07133 \cdot 10^{-2}$
E		$1,\!1986361$	$+1,95231 \cdot 10^{-1}$

TAB. 3.4 – Définition des paramètres de l'équation (3.62) suivant la valeur de ψ pour calculer $\omega(\psi)$.

3.4.4 Kernels de coagulation dans les nuages de Vénus

Les kernels nous permettent de déterminer l'efficacité de la coagulation. L'évolution de ces coefficients d'efficacité en fonction des conditions vénusiennes, définies dans le tableau 3.2, est présentée dans la figure 3.10. Nous considérons une première population de gouttelettes de solution binaire d'acide sulfurique et d'eau dont les tailles de rayon sont représentées sur l'axe des abscisses. Une seconde population de gouttelettes, de même composition que la première, est représentée par seulement quatre tailles : 10 nm, 100 nm, 1 et 10 μ m. De plus, trois cas de figure sont tracés : la prise en compte de la coagulation brownienne seule (**A**), la coalescence seule (**B**) et de la somme de ces deux processus (**C**). Dans ces trois cas, nous remarquons que la coagulation est plus efficace dans la couche du nuage supérieur.

Le kernel de coagulation brownienne est plus grand pour les petites particules par rapport aux grandes particules du fait du mouvement brownien. Le minimum du kernel est atteint lorsque les particules sont de taille égale (à 10 nm, 100 nm, 1 et 10 μ m).

Dans le cas de la coalescence, l'efficacité est plus importante pour les gouttelettes de grande taille car ce processus dépend de la vitesse de sédimentation des gouttelettes (figure 3.11) qui est plus grande pour les grandes particules. Nous notons également dans le cas **B** qu'il y a une diminution du kernel lorsque les gouttelettes sont de taille proche et devient nul lorsque les gouttelettes sont de même taille $(r_1 = r_2)$.

Enfin, lorsque les deux processus sont pris en compte avec la correction de Sajo et al. (2008, 2010), c'est le kernel de coagulation brownienne qui domine pour les petites particules jusqu'à 1 μ m environ. Puis, la coalescence prend la relève, notamment pour les gouttelettes de la seconde population de 1 et 10 μ m de rayon pour lesquelles nous observons une chute liée à la coalescence qui devient nulle lorsque les particules des deux populations sont de même taille. Cette chute brutale du kernel n'est visible que pour les grandes particules de 1 et 10 μ m car la coalescence domine aux grandes tailles alors que pour les rayons de 10 et 100 nm, c'est la coagulation brownienne qui domine.



FIG. 3.10 - Évolution des coefficients d'efficacité (kernels) pour la coagulation brownienne (**A**), la coalescence (**B**) et la somme des deux processus (**C**) pour des gouttelettes de rayon r_1 et r_2 . Les trois cas représentatifs des trois couches nuageuses définies dans le tableau 3.2 sont présentés. L'axe des abscisses présente un les valeurs du rayon r_1 et le rayon r_2 est représenté par quatre valeurs : 10 nm, 100 nm, 1 μ m et 10 μ m.



FIG. 3.11 - Évolution de la vitesse de sédimentation en fonction du rayon des gouttelettes pour trois cas représentatifs des trois couches nuageuses définies dans le tableau 3.2.

3.5 Paramètres sensibles pour la microphysique

Nous venons de définir les principaux processus microphysiques qui ont lieu dans l'atmosphère de Vénus. La nucléation homogène, hétérogène, le transfert de masse (évaporation et condensation), la coagulation brownienne ou gravitationnelle font évoluer des grandeurs physiques de la distribution dimensionnelle en taille de rayon des gouttelettes. C'est ce que nous appelons ici les paramètres sensibles pour la microphysique. Afin d'être attentif dans la suite de ce manuscrit, nous résumons ici, la liste des paramètres sensibles pour la microphysique. Pour une distribution en taille de rayon de gouttelettes, les grandeurs évolutives sont les suivantes :

- le rayon moyen;
- l'écart-type;
- le nombre total de gouttelettes;
- le volume total de gouttelettes;
- la masse condensée d'acide sulfurique;
- la forme de la distribution dans le cas d'une distribution discrétisée.

Ces paramètres ont été étudiés et pris en compte pour le développement du modèle que nous vous présentons à travers ce manuscrit. Les hypothèses prises pour chacun de ces paramètres sont présentées dans le chapitre suivant. Troisième partie

Nouveau modèle de microphysique pour les nuages de Vénus

Variables utilisées dans le chapitre 4

dT	Différence de température entre un temps $i + 1$ et le temps initial noté $T(0)$ (K)
Δm_w	Quantité massique d'eau nécessaire pour que la gouttelette soit à l'équilibre thermodynamique (kg)
ΔT	Différence de température entre un temps $i + 1$ et un temps i (K)
K_n	Nombre de Knudsen
$\lambda_{ m g}$	Libre parcours moyen de la gouttelette (m)
m_a	Masse de l'acide sulfurique dans la gouttelette (kg)
m_w	Masse d'eau dans la gouttelette (kg)
M_0	Moment d'ordre 0 de la gouttelette $(1/m_{air}^3)$
M_0^{aer}	Moment d'ordre 0 des aérosols $(1/m_{air}^3)$
$M_0^{\rm CCN}$	Nombre total de CCN $(1/m_{air}^3)$
$M_0^{ m drop}$	Nombre total des gouttelettes $(1/m_{air}^3)$
M_3	Moment d'ordre 3 de la gouttelette (m^3/m_{air}^3)
M_3^{aer}	Proportionnel au volume total des aérosols (m^3/m_{air}^3)
$M_3^{\rm CCN}$	Proportionnel au volume total des CCN (m^3/m_{air}^3)
$M_3^{\mathrm{g(H_2O)}}$	Proportionnel au volume total d'eau dans les gouttelettes (m^3/m_{air}^3)
$M_3^{\mathrm{g}(\mathrm{H}_2\mathrm{SO}_4)}$	Proportionnel au volume total d'acide sulfurique dans les gouttelettes (m^3/m_{air}^3)
M_a	Masse molaire d'acide sulfurique (kg/mol)
M_k	Moment d'ordre k (m^k/m_{air}^3)
M_w	Masse molaire d'eau (kg/mol)
r_g	Rayon de la gouttelette (m)
W_m	Pour centage massique d'acide sulfurique dans la gouttelette (%)
W_m^{eq}	Fraction massique de l'acide sulfurique à l'équilibre thermodynamique $(\%)$

Chapitre 4

MAD-Muphy : le nouveau modèle de microphysique

Sommaire

4.1	4.1 Présentation de MAD-Muphy				
4.2	4.2 Hypothèses nécessaires pour le nouveau modèle				
	4.2.1	Représentation des distributions en taille et les moments utilisés	68		
	4.2.2	Pourcentage massique d'acide sulfurique dans les gouttelettes	69		
	4.2.3	Régimes d'écoulement	70		
	4.2.4	Stationnarité de la température pendant un pas de temps	71		
4.3 Points à retenir					

4.1 Présentation de MAD-Muphy

Le nouveau modèle MAD-Muphy (figure 4.1), pour *Modal Aerosol Dynamics with Microphysics* prend compte, tout comme les études antérieures (James et al. 1997, Toon et al. 1982...), de la nucléation homogène et hétérogène, de la condensation et l'évaporation, ainsi que de la coagulation brownienne inter-modale et intra-modale. La théorie des processus microphysiques a été définie dans le chapitre 3 (page 41), et le développement des équations de la microphysique avec les moments effectué durant cette thèse sera décrit dans le chapitre 5.

MAD-Muphy est un modèle en zéro dimension (0D). En d'autres termes, il calcule les processus microphysiques pour une valeur donnée de la température, de la pression et des concentrations en vapeur en un point de l'atmosphère. L'interêt d'un modèle en 0D est sa flexibilité et son adaptation : il peut facilement être couplé à d'autres modèles et effectuer des calculs en une, deux ou trois dimensions pour chaque point de la grille du modèle considéré. Avec le VGCM, nous pouvons modéliser les nuages de Vénus avec MAD-Muphy en 1D ou 3D.

Outre une boîte en 0D, j'ai mis en place un algorithme permettant la production d'aérosols solides et la sédimentation des particules (gouttelettes et aérosols). Bien que ces deux processus fonctionnent sur une colonne de l'atmosphère (1D), ils peuvent être utilisés dans une simulation en 3D. La production des aérosols, absente à l'origine dans le VGCM, peut être décrite par une source ponctuelle ou par une fonction dépendante de l'altitude. Pour la sédimentation, la densité des noyaux de condensation est égale à celle des poussières météoritiques et est définie suivant la littérature (soit 2000 kg/m³, voir le tableau B.1 en annexe B).

Chaque processus microphysique calculé par MAD-Muphy donne une tendance comme résultat. Cette quantité représente la variation engendrée par un processus sur la distribution des particules intégrée en moments pendant un pas de temps donné. Dans l'atmosphère, tous les processus microphysiques agissent simultanément. Dans le modèle cela est simulé en calculant les tendances séparément et en comparant leur somme à la quantité de matière liquide et vapeur disponible. Cette méthode me permet de ne pas privilégier un processus microphysique par rapport à un autre.



FIG. 4.1 – Schéma du fonctionnement du modèle MAD-Muphy, développé lors de ce travail de thèse. Les dessins sont issus du travail de Flavie Roux présenté dans les premières pages de ce manuscrit.

En résumé, ce nouveau modèle nous permet de créer des gouttelettes liquides et sphériques de solution binaire H_2SO_4 - H_2O et de les faire évoluer en prenant en compte tous les processus microphysiques nécessaires. Aussi, MAD-Muphy est un modèle qui permet de calculer le nombre de gouttelettes formées, de suivre leur taille, la partie solide (CCN) et liquide composant les gouttelettes. Il permet enfin de calculer et de suivre la masse totale de matière condensée ainsi que la quantité de vapeur consommée ou relâchée par les processus microphysiques. Le développement de MAD-Muphy s'est fait avec le souci de conserver les quantités mises en jeu (comme la masse ou encore le nombre de CCN).

4.2 Hypothèses nécessaires pour le nouveau modèle

Afin de développer le nouveau modèle de microphysique pour les nuages vénusiens, il a été nécessaire de faire plusieurs hypothèses, notamment pour l'utilisation de la méthode des moments dans les équations de microphysique, qui seront développées ensuite.

4.2.1 Représentation des distributions en taille et les moments utilisés

Tout d'abord, nous considérons des distributions log-normales. Pour ce choix de forme, nous nous sommes basés sur les observations du néphélomètre LCPS ainsi que les études et les modèles de microphysiques appliqués à Vénus (tableaux 2.1, 2.2, chapitre 2).

Dans ce modèle, nous considérons trois distributions de particules ou modes. Les deux premières correspondent aux modes 1 et 2 observés par Knollenberg and Hunten (1980). La troisième et dernière distribution est assignée aux aérosols solides. Nous supposons que leur masse volumique est la même que celle des poussières météoritiques. Une fois activés par nucléation hétérogène, ces aérosols solides deviennent des CCN et serviront à la formation de gouttelettes liquides. Dans notre modèle, la densité des noyaux de condensation est égale à celle des poussières météoritiques, soit 2000 kg/m³ (tableau B.1, annexe B).

Comme nous l'avons décrit précédemment, le mode 3 observé par Pioneer Venus est ici écarté. Il a été jugé préférable de ne pas l'inclure dans le modèle puisque de trop grandes incertitudes subsistent sur sa composition et son existence.

Dans le développement du modèle, nous prenons en compte un couple de moments (M₀, M₃) avec le moment d'ordre 0 égal au nombre total de particules et le moment d'ordre 3 qui est proportionnel au volume total des particules de la distribution. Avec l'équation (3.9) page 45, nous pouvons calculer n'importe que moment à partir de M_0 . Nous avons choisi de nous intéresser aux moments d'ordre 0 et 3 car ils sont directement liés à une grandeur physique de la distribution en taille de particule, qui varie avec le temps. L'écart-type pour chaque distribution est fixe et est défini en fonction des observations (Grinspoon et al., 1993; James et al., 1997). Fixer ce paramètre nous permet de limiter le nombre de moments à deux et donc de simplifier l'expression et la résolution des équations microphysiques en moments (Burgalat et al., 2014; Yamamoto and Takahashi, 2006). En effet, l'équation (3.9) nous montre la dépendance de chaque moment M_k au rayon médian et à l'écart-type. Naturellement, l'écart-type d'une distribution dimensionnelle en taille de rayon peut varier. Dans notre cas, si nous faisions varier l'écart-type de chaque mode cela alourdirait les équations, augmenterait le nombre total de moments et ainsi le nombre de traceurs dans le VGCM. Nous avons donc choisi de faire varier le rayon médian de chaque distribution et de fixer leur écart-type. Ainsi, nous affectors le couple (M_0, M_3) pour chaque distribution, nous avons alors six moments.

Pour chaque gouttelette, nous désirons suivre la masse condensée d'acide sulfurique indépendamment de celle de l'eau. Nous souhaitons également savoir si les particules liquides que notre modèle a générées contiennent ou non un novau de condensation, c'est à dire un aérosol solide activé (CCN). Le moment d'ordre 3 sera donc séparé en trois moments :

$$\begin{split} \mathbf{M}_3 &= \mathbf{M}_3^{(\mathrm{H}_2\mathrm{SO}_4)} + \mathbf{M}_3^{(\mathrm{H}_2\mathrm{O})} + \mathbf{M}_3^{\mathrm{CCN}}.\\ \mathrm{Où} \text{ la somme } \mathbf{M}_3^{(\mathrm{H}_2\mathrm{SO}_4)} + \mathbf{M}_3^{(\mathrm{H}_2\mathrm{O})} \text{ correspond à la partition liquide de la gouttelette. Le volume d'acide} \end{split}$$
sulfurique et d'eau dans les gouttelettes respecte la composition donné par W_m qui est définie dans la section suivante. De la même façon, le moment d'ordre $0 (M_0)$ est alors séparé en deux autres moments : M_0^{drop} le nombre total de particules liquides et M_0^{CCN} le nombre total de CCN mis en jeux dans les gouttelettes (tel que $M_0 = M_0^{drop} + M_0^{CCN}$).

Pour la distribution dimensionnelle en taille de rayon des aérosols solides, nous appliquons plus simplement le couple (M_0^{aer}, M_3^{aer}) .

Ce qui nous fait un total de douze moments à implanter comme traceurs dans le VGCM. C'est moitié moins que si nous devions coupler les 23 intervalles de rayon du modèle de Imamura and Hashimoto (2001) ou environ trois quarts de moins que les 45 intervalles de Gao et al. (2014).

En utilisant la méthode des moments, nous avons été amenés à faire plusieurs hypothèses sur nos distributions dimensionnelles en taille de rayon. L'une d'entre elles est de fixer à deux le nombre de modes pour les gouttelettes et de les associer à des fonctions log-normales. Nous appliquons à nos gouttes plusieurs processus microphysiques. Dans certains cas, ces processus vont amener nos gouttelettes à grossir. Comme le nombre de modes et leur forme sont fixes, nous devons appliquer une astuce mathématique, appelée mode-merging, pour transférer les particules d'un mode à l'autre. Par exemple, si les gouttes du mode 1 (correspondant aux plus petites tailles) grandissent suffisamment, elles peuvent migrer vers le mode 2 (de même composition mais pour des particules de taille plus grande) grâce au mode-merging. Ce processus sera présenté dans le chapitre 5.6.

Pourcentage massique d'acide sulfurique dans les gouttelettes 4.2.2

Sur Vénus les particules du mode 1 et 2 sont supposées liquides et principalement composées d'acide sulfurique. Cette composition est donnée par le pourcentage massique d'acide sulfurique dans la gouttelette :

$$W_m = \frac{m_a}{m_a + m_w}.\tag{4.1}$$

avec m_a et m_w les masses condensées respectives d'acide sulfurique et d'eau dans la gouttelette.

La composition des gouttelettes est principalement contrôlée par la température et l'humidité relative (Steele and Hamill, 1981; James et al., 1997). Donc, pour chaque mode nous calculons une composition unique associée. Cette composition binaire de H_2SO_4 - H_2O évoluera spatialement et temporellement. Pour calculer le pourcentage massique d'acide sulfurique dans les gouttelettes, nous utilisons la méthode de Ridders qui résout par double itérations l'équation de Kelvin tout en assurant la conservation de la masse totale d'eau présent dans le système (Stolzenbach, 2016).

D'après Hashimoto and Abe (2001) et Stolzenbach (2016), nous considérons que ce pourcentage massique est indépendant de la taille des particules. J'ai calculé le pourcentage massique pour trois cas vénusiens différents définis dans le tableau 3.2. Le pourcentage massique d'acide sulfurique dans les gouttelettes reste pratiquement constant pour tous les rayons de gouttelettes et tous les cas comme nous pouvons le voir dans la figure 4.2. En revanche, pour le troisième cas à 60 km, le pourcentage massique à 1 nm a augmenté d'environ 1,6 % par rapport aux particules de plus grand rayon (à partir de 10 nm). Comme il s'agit de la taille des plus petites particules (juste après leur formation par nucléation homogène) et que les gouttelettes observées dans l'atmosphère sont de l'ordre de 100 nm à 1 μ m (partie 1.6.2, page 16), nous négligeons cette erreur. Dans MAD-Muphy, le pourcentage massique ne varie donc pas avec le rayon des particules mais avec la concentration en vapeur d'eau disponible dans l'atmosphère de Vénus. Je me permets, dans la suite du développement du modèle, de calculer le pourcentage massique uniquement pour le rayon médian de la distribution en taille des gouttelettes.

Nous rappelons ici, le tableau 3.2 (page 52) utilisé pour tracer la figure 4.2

nuage	bas	médian	haut
altitude (km)	48	54	60
température (K)	366	312	262
pression (hPa)	1375	616	236
H_2SO_4 vapeur (ppmv)	$6,\!93$	0,08	1,00
H_2O vapeur (ppmv)	20	15	1

Enfin, nous notons W_m^{eq} la fraction massique de l'acide sulfurique nécessaire pour que la gouttelette soit à l'équilibre thermodynamique avec le milieu ambiant. Cette grandeur est définie par :

$$W_m^{eq} = \frac{m_a}{m_a + m_w + \Delta m_w} \tag{4.2}$$

où Δm_w est la quantité massique d'eau nécessaire à ajouter à la gouttelette afin d'obtenir une fraction massique d'acide sulfurique à l'équilibre.

La figure 4.3 montre que ce sont les particules de grandes tailles qui contiennent majoritairement la masse d'acide sulfurique dans les nuages. Si nous faisons l'hypothèse que le mode 3 est de même composition que le mode 1 et 2, alors le mode 3 est le mode qui contient le plus de masse. Nous rappelons qu'à partir des observations, nous ne connaissons pas la composition de ces grandes particules, c'est pourquoi nous ne les prendrons pas en comtpe dans la suite de notre étude.

4.2.3 Régimes d'écoulement

Afin de déterminer dans quel régime d'écoulement nous nous trouvons dans l'atmosphère de Vénus, nous avons tracé l'évolution du nombre de Knudsen, noté K_n , en fonction du mode considéré (figure 4.4). Le nombre de Knudsen nous permet d'établir le régime d'écoulement en terme de continuité du fluide étudié (Annexe C, page 137). Ce nombre prend en compte le libre parcours moyen λ_g de la gouttelette que l'on suit



FIG. 4.2 – Invariance de la fraction massique d'acide sulfurique (W_m) dans l'atmosphère de Vénus en fonction du rayon de gouttelette pour les cas du tableau 3.2.

dans un gaz pur :

$$K_n = \frac{\lambda_{\rm g}}{r_{\rm g}} \tag{4.3}$$

avec $r_{\rm g}$ le rayon de la gouttelette. La valeur obtenue avec l'équation (4.3) nous permet de déterminer le régime d'étude :

- $K_n \ll 1$: régime visqueux ou régime continu;
- $K_n \sim 1$: régime intermédiaire ;
- $K_n >> 1$: régime moléculaire ou régime cinétique.

Dans notre cas, nous considérons le dioxyde de carbone comme gaz pur puisque l'atmosphère de Vénus en est composée à 96 %. Comme nous le montrent les figures (4.4), le régime d'écoulement dans la couche nuageuse est continu entre 40 et 60 km, puis intermédiaire entre 60 et 70 km et enfin moléculaire au-delà de 70 km pour le mode 1. Le changement de régime pour les particules du mode 2 est plus étalé en altitude car la taille de ces particules est plus grande par rapport au mode 1 et donc le nombre de Knudsen est plus petit pour le même libre parcours moyen. La température, la pression et le rayon des particules varient très peu en fonction de la latitude, c'est pourquoi le nombre de Knudsen ne varie presque pas en fonction de la latitude mais de l'altitude et du cycle diurne.

Nous devrons donc prendre en considération ces changements de régime dans le traitement des équations de la microphysique en moments, notamment pour la coagulation et la condensation.

4.2.4 Stationnarité de la température pendant un pas de temps

Le VGCM utilise plusieurs pas de temps pour différent processus (physique, photochimique...). Le choix du pas de temps microphysique est important car l'échelle des processus microphysiques peut être très courte. Comme cette échelle est plus courte que le pas de temps de la température, nous considérons que la température et la pression de la couche dans laquelle les processus microphysiques seront calculés, ne varient pas entre deux pas de temps photochimique. Afin de s'assurer que dans l'atmosphère de Vénus, il n'y a pas de variation importante de température entre deux pas de temps photochimique, nous avons effectué deux tests avec le modèle mésoéchelle du LMD. En effet, dans ce modèle, contrairement au VGCM, la convection à fine échelle est résolue (chapitre 2.2, page 31). Ainsi, nous pouvons voir que pour un pas de temps de 3 minutes, la variation maximale de la température entre 40 et 70 km d'altitude sur un intervalle de temps de 19 minutes est de l'ordre de 0,4 K, ce qui reste négligeable (figure 4.5).



FIG. 4.3 – La masse d'acide sulfurique contenue dans les gouttelettes en fonction du rayon pour les trois couches nuageuses et les modes des particules. Chaque log-normale est basée sur les mesures prises par LCPS à bord de Pioneer Venus (Knollenberg and Hunten, 1980) présentées dans la figure 1.12, page 21. Ici, nous avons fait l'hypothèse d'un mode 3 de même composition binaire d'acide sulfurique et d'eau que le mode 1 et 2.



FIG. 4.4 – Nombre de Knudsen dans l'atmosphère de Vénus, calculé avec le VGCM à partir des rayons moyens du mode 1 (figure du haut) et du mode 2 des gouttelettes (figure du bas). Les rayons moyens choisis pour le calcul de K_n sont définis en fonction des données de Pioneer Venus (Knollenberg and Hunten, 1980). Quel que soit le mode, les particules nuageuses passent d'un régime à l'autre dans la couche nuageuse entre 40 et 80 km.



FIG. 4.5 – Variations de la température dans un intervalle de 19 minutes dans les nuages de Vénus (la gamme de pression en ordonnée correspond à l'altitude comprise entre 40 et 70 km). Les valeurs obtenues ont été calculées pour ΔT , la différence entre la température au pas de temps i+1 et le pas de temps précédent i (figure du haut) puis pour dT, la différence entre la température au pas de temps i + 1 et la température au pas de temps initial (notée T(0), figure du bas). Cette simulation prend en compte la zone de convection entre 48 et 55 km. Ces résultats ont été obtenus avec le modèle mésoéchelle du LMD (Lefèvre et al., 2017) par Maxence Lefèvre.

4.3 Points à retenir

MAD-Muphy est un modèle microphysique en 0D permettant de générer des particules et de les faire évoluer grâce aux processus suivants :

- nucléation homogène;
- nucléation hétérogène;
- condensation et évaporation;
- coagulation inter-modale et intra-modale.

D'autres algorithmes ont été mis en place pour compléter ces processus :

- la production d'aérosols (0D ou 1D);
- la sédimentation (1D);
- le mode-merging (0D).

MAD-Muphy génère et suit trois distributions dimensionnelles en taille de rayon des particules :

- le mode 1 de gouttelettes liquides de solution binaire H₂SO₄ et H₂O;
- le mode 2 de gouttelettes liquides de solution binaire H_2SO_4 et H_2O ;
- des aérosols solides insolubles.

La composition des gouttelettes liquides est définie par le pourcentage massique d'acide sulfurique W_m qui ne varie pas avec la taille des gouttelettes.

Les différents régimes d'écoulement dans l'atmosphère de Vénus sont distingués. La détermination des régimes est importante pour le calcul de la coagulation et de la condensation.

La méthode des moments est le compromis entre le nombre de variables qui définissent la distribution dimensionnelle en taille de rayon et le temps de calcul. Avec MAD-Muphy, nous prenons en compte deux moments :

- le moment d'ordre 0 pour le nombre total des particules de la distribution ;
- le moment d'ordre 3 proportionnel au volume total des particules de la distribution ;

Les hypothèses choisies pour le développement de MAD-Muphy sont :

- chaque distribution est représentée par une fonction log-normale;
- le rayon médian, le nombre total et le volume total des particules varient;
- l'écart-type des distributions est fixé;
- grâce à W_m , nous distinguons la partition d'eau et d'acide sulfurique dans les gouttelettes;
- nous pouvons suivre le nombre de CCN activés par la nucléation hétérogène.

Nous avons ainsi 12 moments à définir comme traceurs dans le VGCM.

Le développement des équations microphysiques prenant en compte ces hypothèses, et effectué pendant cette thèse, sera présenté dans le chapitre suivant.

Variables utilisées dans le chapitre 5

AK_n	Correction similaire à celle de Cunningham-Milikan avec A = $1,591$
lpha(k)	Fonction pour exprimer le moment d'ordre k en fonction du moment d'ordre 0
b_k	Coefficient lié aux intéractions des gouttelettes avec la coagulation en fonction de l'ordre k
β	Coefficient d'efficacité de collision pour la coagulation
dz	Distance entre deux niveaux verticaux définis dans le VGCM (m)
D	Coefficient de diffusion (m^2/s)
$\delta_{r^*}(r)$	Dirac centré sur r
Δ	Erreur relative de la correction Cunningham-Milikan
Δm_w	Quantité massique d'eau nécessaire pour que la gouttelette soit à l'équilibre thermodynamique (kg)
Δt	Pas de temps (s)
e_S	Tension de surface (J/s)
η	Mouillabilité
erf(x)	Fonction d'erreur appliquée dans le cas de l'utilisation du mode-merging
$F_{s\acute{e}dim}$	Flux de sédimentation (m/s)
γ_{aer}	Taux de production des aérosols $(kg/m^2/s)$
J_{hom}	Taux de nucléation homogène $(1/m^3/s)$
J_{het}	Taux de nucléation hétérogène $(1/m^2/s)$
K_n	Nombre de Knudsen
k_B	Constante de Boltzmann $(m^2 kg/s^2/K)$
λ_g	Libre parcours moyen du gaz (m)
m_a	Masse acide sulfurique (kg)
m_g	Masse de la gouttelette (kg)
m_w	Masse d'eau (kg)
M_0	Moment d'ordre 0 égal au nombre total de gouttelette $(1/m_{air}^3)$
M_3	Moment d'ordre 3 proportionnel au volume total des gouttelettes (m^3/m_{air}^3)
M_a	Masse molaire d'acide sulfurique (kg/mol)
M_w	Masse molaire d'eau (kg/mol)
M_k	Moment d'ordre $k \ (m^k/m^3)$
$M_{k,t}$	Moment d'ordre k au pas de temps $t (m^k/m_{air}^3)$
$M_{k,t+1}$	Moment d'ordre k au pas de temps suivant $(t + 1, m^k/m_{air}^3)$
μ_{air}	Viscosité de l'air $(kg/(m s) = Pa s)$
n_{aer}	Distribution dimensionnelle en taille de rayon des aérosols
n_{CCN}	Distribution dimensionnelle en taille de rayon des CCN (les aérosols activés)
N_g	Concentration en nombre des gouttelettes
N_1	Concentration en nombre des gouttelettes du mode 1
N_2	Concentration en nombre des gouttelettes du mode 2
r	Rayon de la gouttelette (m)
r^*	Rayon critique (m)
r_0	Rayon utilisé pour le développement de Taylor-Young (m)
$\bar{r_{aer}}$	Rayon médian de la distribution dimensionnelle des aérosols (m)
$\bar{r_g}$	Rayon médian de la distribution dimensionnelle des gouttelettes (m)
$\bar{r_1}$	Rayon médian de la distribution dimensionnelle des gouttelettes du mode 1 (m)

- $\bar{r_2}$ Rayon médian de la distribution dimensionnelle des gouttelettes du mode 2 (m)
- R_d Résistance due au dégagement de chaleur latente (s/m²)
- R_c Résistance due à la diffusion moléculaire (s/m²)
- ρ_{aer} Densité des aérosols (= 2000 kg/m³)
- ρ_a Densité de l'acide sulfurique dans la gouttelette (kg/m³)
- ρ_g Densité de la gouttelette (kg/m³)
- S_a Saturation de l'acide sulfurique
- S^{\ast}_{a} Saturation de l'acide sulfurique à la surface de la goutte sphérique
- σ_g Écart type géométrique
- T Température atmosphérique (K)
- v_t Vitesse de chute des particules (m/s)
- W_m Pourcentage massique d'acide sulfurique dans la gouttelette (%)
- W_m^{eq} Pour centage massique de l'acide sulfurique à l'équilibre thermodynamique (%)

Chapitre 5

Développement de la microphysique avec les moments

Sommaire

5.1	Zone de production des aérosols 80			
5.2	Nucléation homogène			
5.3	Nucléation hétérogène			
	5.3.1	Équations intégrées	81	
	5.3.2	Calcul du taux de nucléation hétérogène	82	
		Nucléation hétérogène détaillée	82	
		Nucléation hétérogène simplifiée	82	
		Tests des deux hypothèses : détaillée vs. simplifiée	83	
5.4	Trai	nsfert de masse	84	
5.5	Coa	gulation	86	
	5.5.1	Équations intégrées et distribution bi-modale	87	
	5.5.2	Coefficient d'efficacité ou kernel de coagulation	88	
	5.5.3	Tendances des moments d'ordre 0 et 3 : expression générale	92	
	5.5.4	Tendances des moments d'ordre 0 et 3 : en régime continu	92	
	5.5.5	Tendances des moments d'ordre 0 et 3 : en régime moléculaire	94	
	5.5.6	Représentation explicite des tendances pour la coagulation	96	
	5.5.7	Transition de régime et moyennes harmoniques	96	
5.6	Mod	le-merging	97	
5.7	Sédimentation des particules			

Dans le cadre de ce travail de thèse, j'ai mis en place un modèle de microphysique basé sur la méthode des moments. Pour cela, j'ai repris les équations de la théorie microphysique présentées dans le chapitre 3 et je les ai exprimées en moment pour chaque processus considéré. Le développement des équations vous est présenté dans ce chapitre.

Comme nous l'avons précisé précédemment (chapitre 3.1.3), un moment est une quantité intégrée sur le rayon r. Afin d'exprimer les équations de la microphysique classique avec la représentation en moments, nous devons dans un premier temps décomposer les équations en puissance de r, puis chaque puissance intégrée sera remplacée par le moment d'ordre équivalent à la puissance de r (par exemple $\int r^{1/2} n(r_p) dr_p = M_{1/2}$). Les moments intermédiaires, c'est à dire d'un ordre différent de 0 et 3, seront ensuite exprimés en fonction de M_0 et M_3 grâce à l'équation (3.11). Pendant la résolution des équations microphysiques en moments, nous découplons tous les processus en considérant qu'ils ne s'influencent pas les uns par rapport aux autres. C'est pourquoi nous traitons les processus microphysiques séparément puis, nous faisons la somme de leurs effets sur les variables pronostiques.

Nous allons dans un premier temps introduire la production d'aérosols mise en place dans MAD-Muphy et nécessaire à la formation des gouttelettes par nucléation hétérogène. Puis, nous définirons les différents processus microphysiques pour finir par la définition du mode-merging et la sédimentation appliquée aux gouttelettes et aux aérosols.

5.1 Zone de production des aérosols

Pour pouvoir activer la formation des nuages via la nucléation hétérogène, nous avons besoin de décrire une distribution des aérosols prééxistants qui peuvent être activés comme noyaux de condensation (voir les sections 4.2.1 et 4.2.4 aux pages 68 et 71) même si nous ignorons encore leur composition (1.6.4, page 19). Nous pouvons définir leur distribution en fonction de l'altitude, par exemple, avec la distribution suivante :

$$\frac{dM_3}{dt} = \frac{\gamma_{aer}}{\frac{4}{3}\pi\rho_{aer}dz} \tag{5.1}$$

avec γ_{aer} le taux de production des aérosols en kg/m²/s, ρ_{aer} la densité des aérosols introduits. La grandeur dz est l'écart-type (ou largeur) de la fonction gaussienne de la distribution. Pour appliquer le schéma explicite, nous utilisons l'expression suivante :

$$M_{3,t+1} = \frac{\gamma_{aer}}{\frac{4}{3}\pi\rho_{aer}dz}\Delta t + M_{3,t}$$
(5.2)

Le moment d'ordre zéro s'obtient par l'équation :

$$M_{0,t+1} = \frac{1}{r_{aer}^3 \alpha_{aer}(3)} M_{3,t+1}$$
(5.3)

La distribution verticale des aérosols peut aussi être définie avec un pic de Dirac à une altitude donnée. Les aérosols sont produits, puis activés par la nucléation pour permettre la formation des gouttelettes. Les nuages constituent donc un puits pour ces aérosols mais également une source après évaporation des gouttelettes nuageuses.

5.2 Nucléation homogène

Le taux de nucléation homogène, noté J_{hom} , donne une information sur la densité en nombre de gouttelettes liquides formées à partir des vapeurs disponibles. Nous calculons ce taux de nucléation homogène avec une nouvelle paramétrisation (Määttänen et al., 2018, basée sur celle de Vehkamäki et al., 2002). Le taux de formation des gouttelettes de taille r^* (rayon critique) est donné par $J_{hom}(r^*)$, qui se traduit en variation temporelle de la densité en nombre des gouttelettes n(r):

$$\frac{dn(r)}{dt} = J_{hom}(r^*)\delta_{r^*}(r) \tag{5.4}$$

avec $\delta_{r^*}(r)$ le Dirac centré sur r^* . Dans un premier temps, nous intégrons en rayon l'équation (5.4) sur l'ensemble des rayons de la distribution. Puis, nous multiplions de part et d'autre de l'équation par r à la puissance k:

$$\frac{d}{dt} \int_0^\infty n(r) r^k dr = \int_0^\infty J_{hom}(r^*) r^k \delta_{r^*}(r) dr$$
(5.5)

Soit M_k le moment d'ordre k que nous introduisons dans la relation (5.5) tel que :

$$\frac{dM_k}{dt} = J_{hom}(r^*) r^{*k} \tag{5.6}$$

Où r^* est le rayon critique des gouttelettes de la distribution en taille après formation. Nous prenons un $r^* = 1 \cdot 10^{-9}$ m. En discrétisant l'équation, nous obtenons la relation qui suit :

$$\frac{M_{k,t+1} - M_{k,t}}{\Delta t} = J_{hom}(r^*) r^{*k}$$
(5.7)

Je cherche ici à exprimer le moment au pas de temps t + 1 en fonction du pas de temps t. C'est pourquoi, l'équation (5.7) peut également prendre la forme suivante :

$$M_{k,t+1} = J_{hom}(r^*) r^{*k} \Delta t + M_{k,t}$$
(5.8)

Pour rappel, nous nous intéressons aux moments d'ordre 0 et 3 qui renvoient respectivement au nombre total et au volume total des gouttelettes de la distribution dimensionnelle.

Je peux ainsi exprimer la nucléation homogène avec la méthode des moments. Cette logique de développement a été appliquée à tous les processus microphysiques.

5.3 Nucléation hétérogène

De la même manière, je cherche maintenant à exprimer l'équation de la nucléation hétérogène avec les moments. Dans un premier temps, le développement de l'équation de la nucléation hétérogène avec les moments est présentée. Puis, je vais étudier les deux possibilités qui se sont offertes à moi pour calculer le taux de nucléation hétérogène.

5.3.1 Équations intégrées

Soient n_{aer} la distribution en nombre des aérosols en suspension dans l'atmosphère, n_{CCN} celles des CCN (pour *Cloud Condensation Nuclei*), c'est à dire le nombre d'aérosols activés sur lesquels une gouttelette liquide va se former et enfin J_{het} le taux de nucléation hétérogène. La variation du nombre de gouttelettes créées par nucléation hétérogène s'écrit :

$$\frac{dn_{CCN}(r)}{dt} = J_{het}(r) \, 4\pi \, r^2 \, n_{aer}(r) \tag{5.9}$$

Dans le cadre de mon étude, l'expression de $J_{het}(r)$ définie par l'équation (3.43) est trop complexe pour être exprimée avec des moments. C'est pourquoi j'utilise une valeur effective de $J_{het}(r)$ calculée grâce à une paramétrisation spectrale. La méthode de calcul de $J_{het}(r)$ est définie dans la partie 5.3.2. Nous intégrons ensuite l'équation (5.9) sur l'ensemble des rayons afin d'exprimer l'équation avec les moments :

$$\frac{d}{dt}M_k^{CCN} = J_{het} \,4\pi \,M_{k+2}^{aer} \tag{5.10}$$

La définition d'un moment d'ordre k et la relation 3.10 (page 45) appliquée à la distribution des aérosols, nous permettent d'écrire :

$$M_{k+2}^{aer} = M_k^{aer} \,\bar{r}_{aer}^2 \,\frac{\alpha(k+2)}{\alpha(k)} \tag{5.11}$$

Le nombre de CCN produits est égal au nombre d'aérosols perdus, soit :

$$\frac{dM_k^{CCN}}{dt} = 4\pi J_{het} \bar{r}_{aer}^2 \frac{\alpha(k+2)}{\alpha(k)} M_k^{aer} = -\frac{dM_k^{aer}}{dt}$$
(5.12)

avec \bar{r}_{aer} le rayon médian de la distribution dimensionnelle en taille des aérosols. Dans le souci de faciliter les calculs, je considère la variation temporelle du côté des aérosols avant leur activation. Pour cela, je pars de l'équation (5.12) pour mettre en place le schéma numérique :

$$\frac{M_{k,t+1}^{aer} - M_{k,t}^{aer}}{\Delta t} = -4\pi J_{het} \,\bar{r}_{aer}^2 \,\frac{\alpha(k+2)}{\alpha(k)} \,M_{k,t+1}^{aer} \tag{5.13}$$

81

La tendance du moment M_k à un temps t + 1 issue de la nucléation hétérogène est ainsi donnée par :

$$M_{k,t+1}^{aer} = \frac{1}{1 + (4\pi J_{het} \,\bar{r}_{aer}^2 \,\frac{\alpha(k+2)}{\alpha(k)}) \,\Delta t} \,M_{k,t}^{aer} \tag{5.14}$$

5.3.2 Calcul du taux de nucléation hétérogène

Comme nous l'avons expliqué précédemment, nous avons utilisé une valeur effective pour le taux de nucléation hétérogène. Le taux de nucléation est calculé grâce à une paramétrisation spectrale. Nous avons eu le choix entre deux paramétrisations. La première est une application de l'équation (3.43) sur une distribution dimensionnelle en taille de rayon des aérosols prenant en compte de l'acide sulfurique pur comme composition des gouttelettes vénusiennes. Nous appelerons ce processus la nucléation hétérogène détaillée. D'autre part, nous avons utilisé un calcul du taux de nucléation avec paramétrisation spectrale et une activation simplifiée des aérosols. Cette méthode sera appelé la nucléation hétérogène simplifiée.

Nucléation hétérogène détaillée

Afin de calculer le taux de nucléation hétérogène, j'ai dans un premier temps utilisé une routine du GCM martien (Madeleine et al., 2012; Navarro et al., 2014) qui résout l'équation (3.43) pour la nucléation d'un composé. J'ai adapté cette routine martienne à la nucléation hétérogène de l'acide sulfurique qui est le principal composant des gouttelettes liquides sur Vénus. Bien que cette routine soit basée sur la théorie classique de la nucléation, elle nécessite de nombreuses hypothèses afin de calculer le taux de nucléation pour H_2SO_4 pur. Or, dans le cas de Vénus il s'agit de la nucléation d'une solution binaire de $H_2O-H_2SO_4$.

Nous ne pouvions pas utiliser la routine en l'état pour calculer le taux de nucléation. En effet, si nous prenons en compte que le rayon médian de la distribution (fonction Dirac), nous sur-estimerions le taux de nucléation car tous les aérosols seraient activés instantanément. La prise en compte de la distribution en taille entière des aérosols nous permet d'activer seulement une partie de la distribution selon le rapport de saturation. Cela nous permet d'activer les aérosols jusqu'à une certaine taille. Nous avons donc divisé la distribution en classe de rayons pour calculer plus précisément le taux de nucléation J_{het} . Nous avons dû fixer certaines grandeurs physiques inconnues pour l'acide sulfurique : l'énergie de désorption, l'énergie de diffusion en surface et la fréquence de vibration moléculaire. Pour ces paramètres, nous avons utilisé les valeurs associées à l'eau (Montmessin et al., 2004) pour ces grandeurs. Les deux premières valeurs sont de l'ordre du 10^{-20} , l'erreur sur ces valeurs reste négligeable car petite devant les valeurs du taux de nucléation. En revanche, l'erreur possible sur la fréquence de vibration moléculaire est notable puisque cette grandeur est de l'ordre du 10^{-13} . Enfin, l'utilisation de cette hypothèse nous oblige à spéculer sur la valeur de la mouillabilité. Nous utilisons la valeur de 0,946 (valeur arbitrairement choisie : compromis entre l'erreur numérique et le nombre d'aérosols activés) qui est légèrement inférieure à la valeur de la mouillabilité de l'eau sur une poussière minérale (0.952), utilisée dans le GCM Martien (Navarro et al., 2014), et celle utilisée dans le GCM de Titan (0.97 : Burgalat et al., 2014). Cette valeur proche de 1 signifie que nous faisons l'hypothèse d'une forte affinité entre la solution binaire $(H_2SO_4-H_2O)$ et son support (CCN).

Nucléation hétérogène simplifiée

Une alternative, qui prendrait en compte la composition des gouttelettes, serait d'utiliser l'approche de James et al. (1997). Une grille de rayons des CCN non activés (ou aérosols) est prédéfinie. Pour chaque rayon des aérosols de la grille, la routine calcule le rapport de saturation avec l'hypothèse que l'aérosol est une gouttelette de la même taille. Le calcul prend en compte l'effet de courbure du CCN non activé et les vapeurs d'acide sulfurique et d'eau. Lorsque la saturation pour un intervalle de taille de rayon est supérieure à 1, les aérosols de cet intervalle sont tous activés et deviennent directement des gouttelettes. Dans le cas contraire (saturation inférieure à 1), aucun des aérosols de l'intervalle considéré est activé. Cette routine ne peut pas

être exprimée en fonction des moments. Comme pour la nucléation détaillée, l'application de cette routine uniquement sur le rayon médian sur-estimerait le taux de nucléation hétérogène.

Tests des deux hypothèses : détaillée vs. simplifiée

Nous effectuons une comparaison entre les deux routines définies précédemment pour une grille de rayons dont le nombre d'intervalles varie. Les conditions initiales des tests effectués sont définies dans le tableau (5.1). La somme du nombre d'aérosols activés donne le nombre total de CCN.

Le calcul du taux de nucléation hétérogène, quelle que soit la méthode choisie, prend en compte le rayon moyen de chaque intervalle. Donc plus l'intervalle est large, plus le nombre d'aérosols activés par l'intervalle est grand. Et plus on a d'intervalles, plus la résolution de la grille est fine et la fraction de CCN activés par nucléation hétérogène est précise. C'est pourquoi l'erreur diminue avec le nombre de classes de rayons (figure 5.1).

L'erreur relative montrée dans la figure 5.1 est définie à partir des résultats du taux de nucléation hétérogène obtenu pour une grille fine de 10^6 classes. Faute de temps de calcul nécessaire, nous ne pouvons pas effectuer l'estimation du taux de nucléation hétérogène sur 10^6 classes dans le VGCM. L'objectif est de trouver ici un bon compromis entre la fiabilité de la routine, le temps de calcul et la précision de calcul. Nous remarquons que pour les mêmes conditions initiales de pression, de température et de vapeurs, le résultat donné par les deux routines est très proche à la valeur de référence à partir de 100 à 200 classes, qui nous donne l'ordre de grandeur de nombre de classes à utiliser dans notre modèle.

Grandeurs physiques	Valeurs
Température (K)	262,8
Pression (hPa)	235,7
H_2SO_4 vapeur (ppmv)	$6,94 \cdot 10^{-5}$
H_2O vapeur (ppmv)	1,0
Nombre d'aérosols (m_{air}^{-3})	$4,0.10^{7}$
W_m	$0,\!87$

TAB. 5.1 - Les conditions initiales des tests des deux routines pour calculer la nucléation hétérogène. Ces valeurs sont basées sur un profil VIRA pour une latitude de 30°N et correspondent à une altitude de 60 km environ.

Malheureusement, les deux routines utilisées ici utilisent des approximations dont la validité est limitée. La figure 5.1 nous montre que les deux routines donnent le même résultat pour une grille découpée en 100 intervalles, mais au delà, la nucléation détaillée active moins de CCN que la nucléation simplifiée. En dessous de 100 classes, plus le nombre de classes diminue, plus l'erreur de la nucléation détaillée augmente. De plus, la nucléation simplifiée est beaucoup plus rapide en temps de calcul que la nucléation détaillée, qui dépend également de la mouillabilité de l'acide sulfurique sur des CCN inconnus dont nous ignorons la valeur.

Au regard des figures 5.1, nous avons décidé d'utiliser la routine de nucléation simplifiée pour une grille définie par 100 intervalles. Nous déduisons à partir de ces 100 intervalles les tendances des moments M_0 et M_3 issues de la nucleation hétérogène.

MAD-Muphy utilise donc une version simplifiée de la nucléation hétérogène qui tente de faire le bon compromis entre les connaissances disponibles et la fiabilité numérique des routines utilisées. Dans MAD-Muphy, ce processus microphysique est le seul à utiliser une paramétrisation spectrale nécessaire au calcul du taux de nucléation. Une meilleure connaissance sur la nature des CCN ainsi que sur la mouillabilité de l'acide sulfurique (ou de la solution binaire $H_2SO_4-H_2O$) avec la composition des CCN nous permettra d'améliorer le calcul de J_{het} et par extension le calcul de la nucléation hétérogène avec les moments.



FIG. 5.1 – À droite, fraction de CCN activés en fonction du nombre de classes utilisé pour définir la grille en rayon de la distribution dimensionnelle en taille des aérosols. Les résultats de la routine de nucléation détaillée adaptée du GCM martien sont représentés par la courbe bleue. Et les résultats de la routine de nucléation simplifiée sont représentés par la courbe orange. À gauche, écarts relatifs des routines de nucléation détaillée et simplifiée en prenant pour référence le résultats obtenus avec 10^6 classes pour représenter la grille en taille de rayon de la distribution des aérosols.

5.4 Transfert de masse

Sur Vénus, la taille des gouttelettes nuageuses peut évoluer avec le transfert de masse d'acide sulfurique ou d'eau par condensation ou évaporation. Dans notre modèle, nous prenons également en compte l'équilibrage thermodynamique.

Tout d'abord, nous cherchons à ce que la composition de la gouttelette soit en équilibre thermodynamique avec le gaz environnant. Le processus d'équilibrage est conduit par la vapeur d'eau car la concentration de cette espèce chimique dans l'atmosphère de Vénus est supérieure à celle de l'acide sulfurique. Les collisions des molécules d'eau sur la gouttelette sont bien plus fréquentes que celles des molécules d'acide sulfurique. Aussi, dans ce cas nous pouvons faire l'hypothèse que la masse d'acide sulfurique dans la goutte reste inchangée lors de l'équilibrage.

Après avoir trouvé sa composition d'équilibre (défini par la température et par l'humidité relative), la gouttelette peut encore être sur- ou sous-saturée par rapport à l'acide sulfurique, et donc grandir/rétrécir par la condensation/évaporation, en conservant la composition à l'équilibre. Ce processus sera donc piloté par l'acide sulfurique.

Ainsi, d'après James et al. (1997) et Steele and Hamill (1981), la variation temporelle de masse d'une gouttelette de rayon r de solution binaire eau-acide sulfurique peut s'écrire de la façon suivante :

$$\frac{dm_g(r)}{dt} = \underbrace{\frac{dm_a(r)}{dt}}_{\frac{W_m^{eq}}{dt}} + \frac{dm_w(r)}{dt}\Big|_{W_m^{eq}}}_{W_m^{eq}} + \frac{\Delta m_w(r)}{\tau}$$

$$\underbrace{\frac{dm_g(r)}{dt}}_{W_m^{eq}}\Big|_{W_m^{eq}}$$
(5.15)

avec m_a et m_w qui sont respectivement la masse condensée d'acide sulfurique et la masse condensée d'eau dans la goutte, et m_g la masse totale de condensat dans cette goutte, tel que $m_g = m_a + m_w$.

Le premier terme de droite de l'équation (5.15) représente la variation massique de l'acide sulfurique due à la condensation ou à l'évaporation, le second la variation de l'eau due à la condensation ou à l'évaporation, et le dernier terme représente la variation de masse de l'eau due à l'équilibrage de la gouttelette.

Comme Stolzenbach (2016), nous faisons l'hypothèse que la fraction d'eau et la fraction d'acide sulfurique pour les mêmes conditions ne dépendent pas de la taille de la gouttelette considérée (chapitre 4.2.2, figure 4.2). Cette fraction peut être représentée par W_m (équation 4.1), la fraction massique d'acide sulfurique présent dans la gouttelette $W_m = m_a/(m_a + m_w)$ et $m_a = W_m m_g$ car $m_g = m_a + m_w$. Grâce à l'équation (4.2), nous pouvons exprimer : $\Delta m_w = (m_a + m_w)(W_m/W_m^{eq} - 1)$. Ces relations nous permettent de réécrire l'équation (5.15) :

$$\frac{dm_g}{dt} = \frac{1}{W_m^{eq}} \frac{dm_a}{dt} \bigg|_{W_m^{eq}} + \frac{m_g}{\tau} \left(\frac{W_m}{W_m^{eq}} - 1\right)$$
(5.16)

La variation temporelle de m_g (5.16) est gourvernée par l'acide sulfurique. On accomode ensuite cette variation en ajoutant la quantité d'eau nécessaire afin de respecter l'équilibre thermodynamique de la gouttelette avec son milieu.

La condensation et l'évaporation modifient la masse totale et le volume total de la distribution en taille des gouttelettes. C'est pourquoi, le flux de masse engendré par la condensation ou l'évaporation entraîne une variation du moment d'ordre 3 proportionnel au volume. Afin de pouvoir exprimer cette variation, nous devons partir de l'équation classique du transfert de masse d'une espèce chimique χ donnée par l'équation (3.44) que nous appliquons ici à l'acide sulfurique :

$$\frac{dm_a}{dt}\Big|_{W_m^{eq}} = 4\pi\rho_a r \,\frac{S_a - S_a^*}{R_c + R_d} = 4\pi\rho_a r^2 \frac{dr}{dt} \tag{5.17}$$

avec S_a^* la saturation de l'acide sulfurique à la surface de la gouttelette (équation 3.17). Pour trouver une solution analytique en moment à cette équation, nous appliquons un développement de Taylor-Young en r_0 à l'ordre deux de S_a^* afin d'obtenir une expression en puissance de r que nous pouvons intégrer :

$$S_a^* = B - \frac{A}{r_0^2} B \left(r - r_0 \right) + \frac{(r - r_0)^2}{2} B \left(\frac{2A}{r_0^3} + \frac{A^2}{r_0^4} \right)$$
(5.18)

où :

$$A = \frac{2e_s M_a}{\rho_a RT} \tag{5.19}$$

$$B = \exp\left(\frac{A}{r_0}\right) \tag{5.20}$$

avec e_s la tension de surface de la gouttelette, M_a la masse molaire de l'acide sulfurique et ρ_a la masse volumique du condensat. Nous pouvons réécrire la relation (5.16) en fonction des moments :

$$\left. \frac{dM_3}{dt} = \frac{dM_3}{dt} \right|_{W_m^{eq}} + \frac{M_3}{\tau} \left(\frac{W_m}{W_m^{eq}} - 1 \right) \tag{5.21}$$

 et

$$\left. \frac{dM_3}{dt} \right|_{W_m^{eq}} = \int_0^\infty 3r \frac{S_a - S_a^*}{R_c + R_d} n(r) dr \tag{5.22}$$

Car à W_m^{eq} , la variation de M_3 est également gouvernée par le taux d'accroissement g(r) lié à l'acide sulfurique. En reprenant le développement limité de S_a^* (équation 5.18), nous obtenons une équation de la forme :

$$\left. \frac{dM_3}{dt} \right|_{W_m^{eq}} = a_1 M_1 + a_2 M_2 + a_3 M_3 \tag{5.23}$$

85

Avec les coefficients a_1 , a_2 et a_3 , tels que :

$$a_1 = \left[S - B - \frac{AB}{r_0} - \frac{r_0^2 AB}{2} \frac{2r_0 + A}{r_0^4}\right] \frac{3}{R_c + R_d}$$
(5.24)

$$a_2 = \left[\frac{AB}{r_0^3}(A+3r_0)\right]\frac{3}{R_c+R_d}$$
(5.25)

$$a_3 = \left[-\frac{AB(2r_0 + A)}{2r_0^4} \right] \frac{3}{R_c + R_d}$$
(5.26)

avec r_0 le rayon médian de la distribution déterminé au pas de temps précédent, que l'on considère fixe entre deux pas de temps et qui sera recalculé à la fin du modèle microphysique. Grâce à l'équation (3.10, page 45), nous pouvons définir les coefficients $\alpha(1)$, $\alpha(2)$ et $\alpha(3)$ et écrire

$$M_1 = \bar{r}_{\rm g}^{-2} \frac{\alpha(1)}{\alpha(3)} M_3 \tag{5.27}$$

$$M_2 = \bar{r}_{\rm g}^{-1} \frac{\alpha(2)}{\alpha(3)} M_3 \tag{5.28}$$

Donc, l'équation (5.22) devient :

$$\frac{dM_3}{dt}\Big|_{W_m^{eq}} = \left(a_1 \bar{r}_g^{-2} \frac{\alpha(1)}{\alpha(3)} + a_2 \bar{r}_g^{-1} \frac{\alpha(2)}{\alpha(3)} + a_3\right) M_3$$
(5.29)

En posant la variable a_4 facteur de M_3 dans l'équation (5.29), nous pouvons exprimer la tendance du moment d'ordre 3 dans l'équation à un temps t + 1 grâce au schéma explicite :

$$M_{3,t+1}^g = \frac{1}{1 - a_4 \Delta t} M_{3,t}^g \tag{5.30}$$

avec :

$$a_4 = \left(a_1 r^{-2} \frac{\alpha(1)}{\alpha(3)} + a_2 r^{-1} \frac{\alpha(2)}{\alpha(3)} + a_3\right) + \frac{1}{\tau} \left(\frac{W_m}{W_m^{eq}} - 1\right)$$
(5.31)

Nous pouvons à présent calculer les tendances du moment d'ordre 3 de la distribution dimensionnelle en taille des gouttelettes. Cela nous permet de savoir si le volume total de la distribution augmente par condensation (tendance positive) ou diminue par évaporation (tendance négative).

Le moment d'ordre 3 a été séparé en deux autres moments nous permettant de suivre l'évolution du volume d'eau et d'acide sulfurique des gouttelettes (voir la partie 4.2.1). Afin de répartir la perte ou le gain de matière engendrée par le transfert de masse dans les moments d'ordre 3 correspondant à l'acide sulfurique et l'eau $(M_3^{(H_2O_4)})$ et $M_3^{(H_2O)}$, nous calculons une fraction notée X_m . Cette quantité nous permet de distribuer la tendance $(dM_3^g = M_{3,t+1}^g - M_{3,t}^g)$ en respectant la fraction massique d'acide sulfurique W_m^{eq} . La grandeur X_m est définie par :

$$X_m = \frac{W_m^{eq}(dM_3^g + M_{3,t}^{H_2SO_4} + M_{3,t}^{H_2O})}{W_m(M_{3,t}^{H_2SO_4} + M_{3,t}^{H_2O})dM_3^g}$$
(5.32)

Il y a donc, par ce processus, une quantité d'acide sulfurique et d'eau qui s'ajoute ou s'échappe des gouttelettes en respectant la fraction massique d'acide sulfurique définie par W_m^{eq} .

5.5 Coagulation

Contrairement à la présentation du chapitre 3.4.3, nous ne prenons pas en compte la coalescence ni dans le développement des équations en moments, ni dans MAD-Muphy. La prise en compte de la coalescence dans notre développement alourdirait les calculs des kernels de coagulation et des b_k définis dans ce chapitre. L'expression de ce processus en moments fait cependant partis de nos perspectives.

La coagulation Brownienne a été prioritisée. Nous allons donc présenter ici le développement des équations de la coagulation Brownienne en moments. Les relations qui permettent le calcul de la coagulation dépendent du mode considéré et du régime d'écoulement dans lequel les gouttelettes évoluent.

5.5.1 Équations intégrées et distribution bi-modale

Nous pouvons réécrire l'équation de la coagulation (3.50) en fonction des moments (Whitby and McMurry, 1997) :

$$\frac{dM_k}{dt} = \underbrace{\frac{1}{2} \int_0^\infty \int_0^\infty \beta(r_i, r_j) (r_i^3 + r_j^3)^{k/3} n(r_i) n(r_j) dr_i dr_j}_{gains}}_{-\underbrace{\frac{1}{2} \int_0^\infty \int_0^\infty \beta(r_i, r_j) (r_i^k + r_j^k) n(r_i) n(r_j) dr_i dr_j}_{pertes}}$$
(5.33)

Avec M_k le moment d'ordre k, β le coefficient d'efficacité (également appelé kernel et présenté dans la section 3.4.1) de coagulation qui dépend des interactions intra-modales et inter-modales, r_i et r_j les rayons des gouttelettes qui coagulent et n la distribution en nombre des gouttelettes de rayon r_i ou r_j . Dans notre cas, nous considérons une distribution bi-modale, nous pouvons donc écrire $n(r_i) = n_1(r_i) + n_2(r_i)$. Les indices 1 et 2 correspondent aux modes. La relation (5.33) devient :

$$\frac{dM_k}{dt} = \underbrace{\frac{1}{2} \int_0^\infty \int_0^\infty \beta(r_i, r_j) (r_i^3 + r_j^3)^{k/3} [n_1(r_i) + n_2(r_i)] [n_1(r_j) + n_2(r_j)] dr_i dr_j}_{gains}}_{-\underbrace{\frac{1}{2} \int_0^\infty \int_0^\infty \beta(r_i, r_j) (r_i^k + r_j^k) [n_1(r_i) + n_2(r_i)] [n_1(r_j) + n_2(r_j)] dr_i dr_j}_{pertes}}_{(5.34)}$$

L'équation (5.34) va être développée et exprimée en fonction du mode de gouttelettes considéré, des interactions entre les gouttelettes (inter-modales ou intra-modales). Pour cela, nous avons décidé d'appliquer les conventions décrites ci-dessous. Pour les interactions intra-modales, c'est à dire deux gouttelettes du même mode qui coagulent, les gouttelettes forment une plus grande gouttelette du même mode que le leur, soient :

 $- (mode \ 1 \leftrightarrow mode \ 1) \Rightarrow mode \ 1;$

 $- \pmod{2} \Leftrightarrow \text{mode } 2) \Rightarrow \text{mode } 2.$

Pour les interactions inter-modales, une gouttelette du mode 1 entre en collision avec une gouttelette du mode 2. Une plus grosse gouttelette que la gouttelette du mode 2 initialement mise en jeu dans la collision est alors formée et appartient au mode 2 :

 $- \pmod{2} \Rightarrow \text{mode } 1 \leftrightarrow \text{mode } 2) \Rightarrow \text{mode } 2.$

Ces conventions ont plusieurs implications. Tout d'abord, dans le cas de la coagulation inter-modale le mode 1 perd des gouttelettes au profit du mode 2. Ensuite, dans le cas des interactions intra-modales, le rayon moyen du mode 1 va augmenter puisque nous considérons que deux gouttelettes du mode 1 engendrent une plus grande gouttelette de ce même mode. Cela peut entraîner un chevauchement entre le mode 1 et le mode 2. C'est une des raisons pour laquelle nous avons mis en place le mode-merging que nous définissons plus tard dans la section 5.6.

Nous tenons à préciser que dans cette partie, nous notons β pour la forme générale du coefficient d'efficacité, indépendamment du régime considéré. Les termes $\beta_{1\leftrightarrow 1}$, $\beta_{1\leftrightarrow 2}$ et $\beta_{2\leftrightarrow 2}$ représentent le coefficient d'efficacité de façon générale mais appliqué respectivement à la coagulation intra-modale du mode 1, inter-modale et intra-modale du mode 2.

Nous obtenons ainsi la variation temporelle du moment d'ordre k pour les interactions intra-modales :

$$\frac{dM_k}{dt}\Big|_{1\leftrightarrow 1} = \frac{1}{2} \int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{1\leftrightarrow 1}(r_i, r_j) [(r_i^3 + r_j^3)^{k/3} - r_i^k - r_j^k] n_1(r_i) n_1(r_j) dr_i dr_j$$
(5.35)

$$\left. \frac{dM_k}{dt} \right|_{2 \leftrightarrow 2} = \frac{1}{2} \int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{2 \leftrightarrow 2}(r_i, r_j) [(r_i^3 + r_j^3)^{k/3} - r_i^k - r_j^k] n_2(r_i) n_2(r_j) dr_i dr_j$$
(5.36)

et la variation temporelle du moment d'ordre k pour la coagulation inter-modale :

$$\frac{dM_k}{dt}\Big|_{1\leftrightarrow 2} = \int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{1\leftrightarrow 2}(r_i, r_j) [(r_i^3 + r_j^3)^{k/3} - r_i^k - r_j^k] n_1(r_i) n_2(r_j) dr_i dr_j$$
(5.37)

Nous remarquons que lorsque l'ordre k = 0, la relation (5.37) donne la variation du moment d'ordre zéro qui est non nul. Lorsque k = 3, nous obtenons la variation sur M_3 qui est égale à zéro. Cela signifie que le nombre total de gouttelettes varie et que le volume total est quant à lui conservé (tableau 3.1, page 42). Cette dernière équation peut se décomposer en trois autres relations : les pertes dans le mode 1 (5.38), les pertes dans le mode 2 (5.39) et les gains pour le mode 2 (5.40). Nous rappelons en effet que lorsque nous avons une coagulation inter-modale, la gouttelette formée par ce processus appartient au mode 2.

$$\frac{dM_k^{m1}}{dt}\Big|_{1\leftrightarrow 2}^P = \int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{1\leftrightarrow 2}(r_i, r_j) \left(-r_i^k\right) n_1(r_i) n_2(r_j) \, dr_i dr_j \tag{5.38}$$

$$\frac{dM_k^{m_2}}{dt}\Big|_{1\leftrightarrow 2}^P = \int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{1\leftrightarrow 2}(r_i, r_j) \left(-r_j^k\right) n_1(r_i) n_2(r_j) \, dr_i dr_j \tag{5.39}$$

$$\frac{dM_k^{m2}}{dt}\Big|_{1\leftrightarrow 2}^G = \int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{1\leftrightarrow 2}(r_i, r_j) \left(r_i^3 + r_j^3\right)^{k/3} n_1(r_i) n_2(r_j) \, dr_i dr_j \tag{5.40}$$

En considérant les interactions inter-modales et intra-modales, nous pouvons écrire les variations temporelles en moment du mode 1 et du mode 2, tels que :

$$\frac{dM_k^{m1}}{dt} = \frac{1}{2} \int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{1\leftrightarrow 1}(r_i, r_j) \left[(r_i^3 + r_j^3)^{k/3} - r_i^k - r_j^k \right] n_1(r_i) n_1(r_j) \, dr_i dr_j
+ \int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{1\leftrightarrow 2}(r_i, r_j) \left(-r_i^k \right) n_1(r_i) n_2(r_j) \, dr_i dr_j$$
(5.41)

et pour le second mode :

$$\frac{dM_k^{m2}}{dt} = \frac{1}{2} \int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{2\leftrightarrow 2}(r_i, r_j) \left[(r_i^3 + r_j^3)^{k/3} - r_i^k - r_j^k \right] n_2(r_i) n_2(r_j) dr_i dr_j
+ \int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{1\leftrightarrow 2}(r_i, r_j) \left[(r_i^3 + r_j^3)^{k/3} - r_j^k \right] n_1(r_i) n_2(r_j) dr_i dr_j$$
(5.42)

5.5.2 Coefficient d'efficacité ou kernel de coagulation

Le coefficient d'efficacité de coagulation β dû au mouvement Brownien de l'atmosphère définit l'efficacité de collision et d'agglomération entre deux gouttelettes de rayon r_i et r_j (avec $i \neq j$). Ce coefficient dépendra donc de la taille de ces deux gouttelettes ainsi que du régime d'écoulement dans lequel elles évoluent (régime continu, noté CO, ou moléculaire, noté FM).

Nous notons β_{CO} et β_{FM} les coefficients d'efficacité pour chaque régime associé, indépendamment du mode de gouttelettes considéré.

Le régime continu En régime continu $(K_n \leq 1)$ le coefficient d'efficacité β_{CO} s'exprime en fonction des rayons r_i et r_j de gouttelettes de même nature ainsi que des coefficients de diffusion D_i et D_j définis par l'équation (3.49). Afin de définir les équations en puissance de r, nous utilisons $(1 + AK_n)$. Ce terme est une approximation de la correction de Cunningham-Milikan permettant de faire la transition entre les deux régimes d'écoulement. La valeur de A est de 1.591 selon Park et al. (1999). Les coefficients de diffusion s'écrivent alors :

$$D = \frac{k_B T}{6\pi\mu_{air} r} (1 + AK_n) \tag{5.43}$$

Burgalat (2012) estime que l'erreur engendrée par l'approximation $(1 + AK_n)$ est comprise entre -4 et +9 % pour un K_n comprise entre 0,1 et 20 (figure 5.2). Cette approximation nous permet d'exprimer la diffusion

en puissance de r en s'affranchissant du terme en exponentielle présent dans l'équation (3.49). Nous pouvons ainsi exprimer la coagulation en fonction des moments (3.1.3).



FIG. 5.2 – Évolution de l'erreur relative $\Delta = \frac{C_c - (1 + AK_n)}{C_c}$ du facteur de correction de Cunningham-Milikan au premier ordre (pour A = 1.591), en fonction du nombre de Knudsen (Burgalat, 2012).

En utilisant l'équation empirique de la coagulation, le coefficient d'efficacité de coagulation s'écrit :

$$\beta_{CO}(r_i, r_j) = 4\pi (r_i + r_j)(D_i + D_j)$$
(5.44)

avec D_i et D_j les coefficients de diffusion respectivement associés à la gouttelette *i* et *j* et définis par l'équation (3.49). Dans l'équation (5.44), nous ne prenons pas en compte l'interpolation de Fuchs qui rend l'équation valable quel que soit le régime considéré. Sans cette amélioration, l'équation (5.44) reste vrai en régime continu.

On pose ensuite $C = A \lambda_g$ et $K_{CO} = \frac{2k_B T}{3\eta}$, puis nous exprimons le coefficient d'efficacité en fonction du rayon r. L'équation (5.44) devient alors :

$$\beta_{CO}(r_i, r_j) = K_{CO} \left[2 + \frac{r_i}{r_j} + \frac{r_j}{r_i} + C \left(\frac{1}{r_i} + \frac{1}{r_j} + \frac{r_i}{r_j^2} + \frac{r_j}{r_i^2} \right) \right]$$
(5.45)

Cette équation va nous permettre par la suite de remplacer les rayons par les moments associés car elle est composée d'une somme de puissances de r que nous pouvons donc intégrer.

Le régime moléculaire Pour le régime moléculaire $(K_n \gg 1)$, le coefficient d'efficacité β_{FM} s'écrit en fonction de la densité de la gouttelette ρ_q (Friedlander et al., 2000) :

$$\beta_{FM}(r_i, r_j) = \sqrt{\frac{6k_BT}{\rho_g}} (r_i + r_j)^2 \sqrt{r_i^{-3} + r_j^{-3}}$$
(5.46)

Le terme $\sqrt{r_i^{-3} + r_j^{-3}}$ ne peut être développé en puissance de r. Pour y remédier, nous sommes amenés à faire l'approximation $\sqrt{r_i^{-3} + r_j^{-3}} = b_k (r_i^{-3/2} + r_j^{-3/2})$ introduite par Lee et al. (1984) qui effectuent une étude sur une distribution monomodale. Les auteurs en déduisent que la valeur de b_k dépend de la loi de la distribution en taille des gouttelettes utilisée, de son écart-type géométrique σ_g et de l'ordre k du moment (tableau 5.2). Nous avons introduit une grandeur b_k dans notre équation qui nous reste à définir pour notre distribution bimodale. Ensuite, nous développons l'expression (5.46) et nous posons $K_{FM} = \sqrt{\frac{6k_BT}{\rho_g}}$, ce qui nous permet d'écrire l'équation (5.46) sous la forme :

$$\beta_{FM}(r_i, r_j) = K_{FM} b_k \left(r_i^{1/2} + r_j^{1/2} + r_i^2 r_j^{-3/2} + r_i^{-3/2} r_j^2 + 2 r_i^{-1/2} r_j + 2 r_i r_j^{-1/2} \right)$$
(5.47)

89

Afin de calculer le coefficient b_k , nous exprimons les intégrales des équations de la coagulation (équations 5.38 à 5.40) par la fonction $G(r_i, r_j, k)$ qui représente le gain ou la perte du mode considéré, tel que :

$$I = \int_0^\infty \int_0^\infty \beta(r_i, r_j) \, G(r_i, r_j, k) \, n(r_i) n'(r_j) \, dr_i dr_j$$
(5.48)

Ici, dans le cadre du régime moléculaire, nous formulons (5.48):

$$I = \int_0^\infty \int_0^\infty \sqrt{\frac{6kT}{\rho_g}} \, (r_i + r_j)^2 \, b_k \, (r_i^{-3/2} + r_j^{-3/2}) \, G(r_i, r_j, k) \, n(r_i) n'(r_j) \, dr_i dr_j \tag{5.49}$$

Les relations (5.48) et (5.49) nous permettent d'obtenir l'expression de b_k :

$$b_{k} = \frac{\int_{0}^{\infty} \int_{0}^{\infty} \beta(r_{i}, r_{j}) G(r_{i}, r_{j}, k) n(r_{i}) n'(r_{j}) dr_{i} dr_{j}}{\int_{0}^{\infty} \int_{0}^{\infty} \beta(r_{i}, r_{j}) \frac{r_{i}^{-3/2} + r_{j}^{-3/2}}{\sqrt{r_{i}^{-3} + r_{j}^{-3}}} G(r_{i}, r_{j}, k) n(r_{i}) n'(r_{j}) dr_{i} dr_{j}}$$
(5.50)

Les différentes expressions de cette variable pour les interactions inter-modales et intra-modales ainsi que les modes sont présentées dans le tableau (5.2). En exprimant $G(r_i, r_j, k)$ et b_k en fonction des moments d'ordre

Modes	Coeff. b	$G(r_i, r_j, k)$	$G(r_i, r_j, k = 0)$	$G(r_i, r_j, k=3)$	Intéractions
1	b_k^{T1}	$(r_i^3 + r_j^3)^{k/3} - r_i^k - r_j^k$	-1	0	Intra-modale (1-1)
	b_k^{T2}	$-r_i^k$	-1	$-r_{i}^{3}$	Inter-modale $(1-2)$
2	b_k^{T3}	$(r_i^3 + r_j^3)^{k/3} - r_i^k - r_j^k$	-1	0	Intra-modale (2-2)
	b_k^{T4}	$(r_i^3 + r_j^3)^{k/3} - r_j^k$	0	r_i^3	Inter-modale (1-2)

TAB. 5.2 – Coefficients b_k et valeurs de $G(r_i, r_j, k)$ en fonction de l'ordre k pour le mode 1 et le mode 2.

k=0 et k=3, nous remarquons qu'une similarité apparaît :

$$- b_3^{T2} \sim -b_3^{T4}$$

ce qui signifie qu'avec la coagulation inter-modale la perte de volume du mode 1 corespond au gain de volume du mode 2. Pendant que d'autres coefficients deviennent nuls :

 $- b_3^{T1} \sim b_3^{T3} \sim b_0^{T4} \sim 0.$

il n'y a donc ni perte ni gain de volume pour le mode étudié. Ces particularités nous permettent de réduire le nombre de coefficients b_k à déterminer. Ils sont donc au nombre de quatre et sont définis par :

$$b_0^{T1} = \frac{\int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{11}(r_i, r_j) n_1(r_i) n_1(r_j) dr_i dr_j}{\int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{11}(r_i, r_j) \frac{r_i^{-3/2} + r_j^{-3/2}}{\sqrt{r_i^{-3} + r_j^{-3}}} n_1(r_i) n_1(r_j) dr_i dr_j}$$
(5.51)

$$b_0^{T2} = \frac{\int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{12}(r_i, r_j) \, n_1(r_i) n_2(r_j) \, dr_i dr_j}{\int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{12}(r_i, r_j) \, \frac{r_i^{-3/2} + r_j^{-3/2}}{i \sqrt{r^{-3} + r^{-3}}} \, n_1(r_i) n_2(r_j) \, dr_i dr_j}$$
(5.52)

$$b_{3}^{T2} = \frac{\int_{0}^{\infty} \int_{0}^{\infty} \beta_{12}(r_{i}, r_{j}) r_{i}^{3} n_{1}(r_{i}) n_{2}(r_{j}) dr_{i} dr_{j}}{\int_{0}^{\infty} \int_{0}^{\infty} \beta_{12}(r_{i}, r_{j}) \frac{r_{i}^{3/2} + r_{i}^{3} r_{j}^{-3/2}}{\sqrt{r_{i}^{-3} + r_{j}^{-3}}} n_{1}(r_{i}) n_{2}(r_{j}) dr_{i} dr_{j}}$$
(5.53)

$$b_0^{T3} = \frac{\int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{22}(r_i, r_j) \, n_2(r_i) n_2(r_j) \, dr_i dr_j}{\int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{22}(r_i, r_j) \, \frac{r_i^{-3/2} + r_j^{-3/2}}{\sqrt{r_i^{-3} + r_j^{-3}}} \, n_2(r_i) n_2(r_j) \, dr_i dr_j}$$
(5.54)

Afin de déterminer la valeur des b_k pour chaque intéraction, nous avons calculé les équations 5.51 à 5.54 en fonction du rayon des gouttelettes des deux modes sur un intervalle de $[1,0\cdot10^{-9}; 5,48\cdot10^{-7}]$ m pour le mode 1 et $[5,48\cdot10^{-7}; 2,0\cdot10^{-5}]$ m pour le mode 2.



FIG. 5.3 – Valeurs de b^{T2} pour l'ordre 0 (à gauche) et l'ordre 3 (à droite). Ces grandeurs sont utilisées dans le cas d'une intéraction inter-modale, c'est pourquoi nous prenons en compte le rayon du mode 1 et celui du mode 2 sur un intervalle de rayon de $[1,0\cdot10^{-9}; 5,48\cdot10^{-7}]$ m pour le mode 1 et $[5,48\cdot10^{-7}; 2,0\cdot10^{-5}]$ m pour le mode 2. Les lignes noires représentent les rayons médians du mode 1 et du mode 2.

Pour l'interaction intra-modale la valeur de b_0^{T1} est constante car elle est uniquement calculée à partir de la gamme de rayon du mode 1 et est égale à 0,73. De même manière, pour l'interaction intra-modale du mode 2, la valeur de b_0^{T3} est égale à 0,77.

Les résultats obtenus pour $b_0^{T^2}$ et $b_3^{T^2}$ sont présentés dans les figures (5.3) qui montrent que ces fonctions dépendent du rayon considéré. Le calcul des valeurs de $b_0^{T^2}$ et $b_3^{T^2}$ prend beaucoup de temps et peut alourdir de façon conséquente le VGCM. Pour cette raison, nous avons choisi d'utiliser une valeur constante pour $b_0^{T^2}$ et $b_3^{T^2}$. Dans notre cas, la méthode des moments prend en compte le rayon médian de chaque distribution comme paramètres globaux. Nous avons sélectionné les valeurs de b_k correspondantes aux rayons médians observés par *Pioneer Venus* soient 300 nm pour le mode 1 et 1 μ m pour le mode 2. Les valeurs obtenues sont $b_0^{T^2} = 0.88$ et $b_3^{T^2} = 0.80$.

Nous pouvons noter que les figures (5.3) montrent que sur la gamme de rayon définie, la valeur dominante de b_0^{T2} et b_3^{T2} est de 1,0. Le choix des valeurs précédentes pourraient engendrer une erreur maximale de 15 % dans le cas de b_0^{T2} et 20 % pour b_3^{T2} par rapport à la valeur 1,0 pour des intéractions inter-modales dans le régime moléculaire pur. D'après la figure 4.4 (page 73), ces erreurs auront un impact en haut de la couche nuageuse. Cependant, les gouttelettes de rayon 1 nm sont celles créées par nucléation homogène. Dans le modèle, les gouttelettes créés par nucléation hétérogène se forment sur des CCN dont le rayon moyen est de 125 nm (ordre de grandeur des poussières météoritiques) ce qui nous rapproche considérablement des valeurs de b_k choisies.

Les valeurs des b_k obtenues et sélectionnées sont regroupées dans le tableau 5.5.2 : La détermination des b_k

Intéractions	Valeurs de b_k
b_0^{T1}	0,73
b_0^{T2}	0,88
b_{3}^{T2}	0,80
b_0^{T3}	0,77

pourrait par la suite être améliorée par la mise en place de tables de valeurs préalablement calculées. Pour plus de lisibilité, nous garderons le terme b_k dans la suite des équations.

5.5.3 Tendances des moments d'ordre 0 et 3 : expression générale

À partir des équations (5.41) et (5.42), nous déterminons les tendances des moments d'ordre 0 et 3 pour le mode 1 (m1) puis pour le mode 2 (m2) dans les différents régimes d'écoulement. Tout d'abord, les tendances des moments d'ordre 0 sont définies par :

$$\frac{dM_0^{m1}}{dt} = -\frac{1}{2} \int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{1\leftrightarrow 1}(r_i, r_j) n_1(r_i) n_1(r_j) dr_i dr_j -\int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{1\leftrightarrow 2}(r_i, r_j) n_1(r_i) n_2(r_j) dr_i dr_j$$
(5.55)

$$\frac{dM_0^{m2}}{dt} = -\frac{1}{2} \int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{2\leftrightarrow 2}(r_i, r_j) \, n_2(r_i) n_2(r_j) \, dr_i dr_j \tag{5.56}$$

Dans un soucis pratique, nous séparons l'équation (5.55) pour le mode 1 en deux termes :

$$\frac{dM_0^{m1}}{dt} = A_{01} + B_{01}.$$

De la même façon, nous écrivons la variation des moments d'ordre 3 pour les deux modes de gouttelettes :

$$\frac{dM_3^{m1}}{dt} = \int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{1\leftrightarrow 2}(r_i, r_j) \left(-r_i^3\right) n_1(r_i) n_2(r_j) \, dr_i dr_j \tag{5.57}$$

$$\frac{dM_3^{m2}}{dt} = \int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{1\leftrightarrow 2}(r_i, r_j) \, r_i^3 \, n_1(r_i) n_2(r_j) \, dr_i dr_j \tag{5.58}$$

En terme de volume, la coagulation inter-modale engendre une perte dans le mode 1 et un gain dans le mode 2. En effet on ajoute par collision à une gouttelette du mode 2 le volume de la goutelette du mode 1. C'est pourquoi nous pouvons nous permettre d'écrire :

$$\frac{dM_3^{m2}}{dt} = -\frac{dM_3^{m1}}{dt} \tag{5.59}$$

Nous exprimons dans le tableau (5.3) les relations pour les modes 1 et 2 en fonction du régime d'écoulement du moment d'ordre k qui seront développées par la suite.

5.5.4 Tendances des moments d'ordre 0 et 3 : en régime continu

Moment d'ordre 0 Nous cherchons à présent à remplacer les intégrales par une somme de moments. Nous exprimons la partie intra-modale A_{01} (5.55) avec l'expression de β en régime continu (équation 5.45) pour faire apparaître les puissances de r:

$$A_{01} = -\frac{1}{2} \int_0^\infty \int_0^\infty K_{CO} \left[2 + \frac{r_i}{r_j} + \frac{r_j}{r_i} + C \left(\frac{1}{r_i} + \frac{1}{r_j} + \frac{r_i}{r_j^2} + \frac{r_j}{r_i^2} \right) \right] n_1(r_i) n_1(r_j) \, dr_i dr_j \tag{5.60}$$

Grâce à l'équation (3.7) nous remplaçons les intégrales des puissances de rayon par les moments correspondants :

$$A_{01} = -\frac{1}{2} K_{CO} \left[2M_0^{m1} M_0^{m1} + M_1^{m1} M_{-1}^{m1} + M_{-1}^{m1} M_1^{m1} + C \left(M_{-1}^{m1} M_0^{m1} + M_0^{m1} M_{-1}^{m1} + M_1^{m1} M_{-2}^{m1} + M_{-2}^{m1} M_1^{m1} \right) \right]$$
(5.61)

L'expression (3.11) nous permet de remplacer les moments d'ordre $k \neq 0$ par les moments d'ordre 0. En effet, nous ne voulons considérer que deux moments : celui d'ordre 0 et celui d'ordre 3. Soit :

$$A_{01} = -K_{CO} \left[1 + \alpha_1(1)\alpha_1(-1) + \bar{r}_1^{-1}C\left(\alpha_1(-1) + \alpha_1(-2)\alpha_1(1)\right) \right] (M_0^{m1})^2$$
(5.62)

Régime	Moment	Mode	Relation
	M_0	m1	$\frac{dM_0^{m1}}{dt} = \gamma_{0,CO}^{1A_{01}} (M_0^{m1})^2 + \gamma_{0,CO}^{1B_{01}} M_0^{m1} M_0^{m2}$
Continu		m2	$\frac{dM_0^{m^2}}{dt} = \gamma_{0,CO}^2 (M_0^{m^2})^2$
	<i>M</i> ₃	m1	$\frac{dM_3^{m1}}{dt} = -\gamma_{3,CO}^1 M_3^{m1} M_3^{m2}$
		m2	$\frac{dM_3^{m2}}{dt} = -\frac{dM_3^{m1}}{dt} = \gamma_{3,CO}^1 M_3^{m1} M_3^{m2}$
	M_0	m1	$\frac{dM_0^{m1}}{dt} = \gamma_{0,FM}^{1A_{01}} (M_0^{m1})^2 + \gamma_{0,FM}^{1B_{01}} M_0^{m1} M_0^{m2}$
Moléculaire		m2	$\frac{dM_0^{m2}}{dt} = \gamma_{0,FM}^2 (M_0^{m2})^2$
	M_3	m1	$\frac{dM_3^{m1}}{dt} = -\gamma_{3,FM} M_3^{m1} M_3^{m2}$
		m2	$\frac{dM_3^{m2}}{dt} = -\frac{dM_3^{m1}}{dt} = \gamma_{3,FM} M_3^{m1} M_3^{m2}$

TAB. 5.3 – Equations des modes 1 et 2 pour les deux régimes d'écoulement et pour les moments d'ordre 0 et 3. Les $\gamma_{ordre,régime}^{mode}$ représente un coefficient qui est fonction de M_k^{mode} . Les $\gamma_{3,FM}$ s'applique au mode 1 comme au mode 2. Ces coefficients sont définis dans le développement des équations de la coagulation en moments.

$$A_{01} = \gamma_{0,CO}^{1A_{01}} (M_0^{m1})^2 \tag{5.63}$$

Ce terme traduit les interactions intra-modales du mode 1. La coagulation engendre une perte du nombre des gouttelettes du mode 1, donc $A_{01} < 0$. Nous procédons ensuite de la même manière avec le terme inter-modale du mode 1 (équation 5.55) que l'on note B_{01} :

$$B_{01} = -\int_{0}^{\infty} \int_{0}^{\infty} K_{CO} \left[2 + \frac{r_{i}}{r_{j}} + \frac{r_{j}}{r_{i}} + C \left(\frac{1}{r_{i}} + \frac{1}{r_{j}} + \frac{r_{i}}{r_{j}^{2}} + \frac{r_{j}}{r_{i}^{2}} \right) \right] n_{1}(r_{i})n_{2}(r_{j}) dr_{i}dr_{j}$$

$$= -K_{CO} \left[2M_{0}^{m1}M_{0}^{m2} + M_{1}^{m1}M_{-1}^{m2} + M_{-1}^{m1}M_{1}^{m2} + C \left(M_{-1}^{m1}M_{0}^{m2} + M_{1}^{m1}M_{-2}^{m2} + M_{-2}^{m1}M_{1}^{m2} + M_{0}^{m1}M_{-1}^{m2} \right) \right]$$

$$= -K_{CO} \left[2 + \bar{r}_{1}\bar{r}_{2}^{-1}\alpha_{1}(1)\alpha_{2}(-1) + \bar{r}_{1}^{-1}\bar{r}_{2}\alpha_{1}(-1)\alpha_{2}(1) + C \left(\bar{r}_{1}^{-1}\alpha_{1}(-1) + \bar{r}_{2}^{-1}\alpha_{2}(-1) + \bar{r}_{1}\bar{r}_{2}^{-2}\alpha_{1}(1)\alpha_{2}(-2) + \bar{r}_{1}^{-2}\bar{r}_{2}\alpha_{1}(-2)\alpha_{2}(1) \right) \right] M_{0}^{m1}M_{0}^{m2}$$

$$= \gamma_{0,CO}^{1B_{01}}M_{0}^{m1}M_{0}^{m2}$$
(5.64)

Le terme B_{01} exprime la perte des gouttelettes du mode 1 au profit du mode 2 suite à la coagulation intermodale. C'est pourquoi, B_{01} dépend à la fois de M_0^{m1} et de M_0^{m2} . À présent, nous posons respectivement dans A_{01} (5.62) et B_{01} (5.64) les constantes $\gamma_{0,CO}^{1A_{01}}$ et $\gamma_{0,CO}^{1B_{01}}$ ce qui nous permet de mieux visualiser les interactions à travers la relation suivante :

$$\frac{dM_0^{m1}}{dt} = \gamma_{0,CO}^{1A_{01}} \left(M_0^{m1}\right)^2 + \gamma_{0,CO}^{1B_{01}} M_0^{m1} M_0^{m2}$$
(5.65)

et pour le mode 2, nous avons :

$$\frac{dM_0^{m^2}}{dt} = -K_{CO} \left[1 + \alpha_2(1)\alpha_2(-1) + \bar{r}_2^{-1}C\left(\alpha_2(-1) + \alpha_2(-2)\alpha_2(1)\right) \right] (M_0^{m^2})^2$$
(5.66)

qui peut également s'écrire :

$$\frac{dM_0^{m2}}{dt} = \gamma_{0,CO}^2 \, (M_0^{m2})^2 \tag{5.67}$$

Moment d'ordre 3 Nous utilisons ensuite la même méthodologie pour définir la variation sur le moment d'ordre 3 pour le mode 1 et nous en déduisons par la suite la variation pour le mode 2 à partir des équations (5.45) et (5.56) :

$$\begin{split} \frac{dM_3^{m1}}{dt} &= \int_0^\infty \int_0^\infty K_{CO} \left[2 + \frac{r_i}{r_j} + \frac{r_j}{r_i} + C \left(\frac{1}{r_i} + \frac{1}{r_j} + \frac{r_i}{r_j^2} + \frac{r_j}{r_i^2} \right) \right] (-r_i^3) n_1(r_i) n_1(r_j) dr_i dr_j \\ &= -K_{CO} \left[2M_3^{m1} M_0^{m2} + M_4^{m1} M_{-1}^{m2} + M_2^{m1} M_1^{m2} + C \left(M_2^{m1} M_0^{m2} + M_4^{m1} M_{-2}^{m2} + M_1^{m1} M_1^{m2} + M_3^{m1} M_{-1}^{m2} \right) \right] \\ &= -K_{CO} \left[2\bar{r}_2^{-3} \frac{1}{\alpha_2(3)} + \bar{r}_1 \bar{r}_2^{-4} \frac{\alpha_1(4)\alpha_2(-1)}{\alpha_1(3)\alpha_2(3)} + \bar{r}_1^{-1} \bar{r}_2^{-2} \frac{\alpha_1(2)\alpha_2(1)}{\alpha_1(3)\alpha_2(3)} + C \left(\bar{r}_1^{-1} \bar{r}_2^{-3} \frac{\alpha_1(2)}{\alpha_1(3)\alpha_2(3)} + \frac{\sigma_1(2)}{\alpha_1(3)\alpha_2(3)} + \bar{r}_1^{-2} \bar{r}_2^{-2} \frac{\alpha_1(1)\alpha_2(1)}{\alpha_1(3)\alpha_2(3)} + \bar{r}_2^{-4} \frac{\alpha_2(-1)}{\alpha_2(3)} \right) \right] M_3^{m1} M_3^{m2} \\ &= \gamma_{3,CO}^1 M_3^{m1} M_3^{m2} \end{split}$$

ainsi:

$$\frac{dM_3^{m2}}{dt} = -\frac{dM_3^{m1}}{dt} = -\gamma_{3,CO}^1 M_3^{m1} M_3^{m2}$$
(5.69)

Le moment d'ordre 3 est proportionnel au volume total d'un mode, ici au volume total du mode 1 ou du mode 2. Nous avons établi l'hypothèse que les gouttelettes du mode 1 qui vont coaguler avec celles du mode 2 engendrent une perte (en nombre et en volume) pour le mode 1 et un gain (en volume) pour le mode 2. C'est ce que l'équation (5.69) représente. Le volume perdu dans le mode 1 par coagulation inter-modale est le volume gagné par le mode 2 par cette intéraction.

5.5.5 Tendances des moments d'ordre 0 et 3 : en régime moléculaire

Comme pour le régime continu, les équations en moment des modes 1 et 2 dépendent de l'expression (5.47) du coefficient d'efficacité pour le régime moléculaire. Par conséquent, nous allons reprendre les équations (5.56), (5.58) et (5.60) pour exprimer la variation des moments d'ordre 0 et 3 dans ce régime d'écoulement.

Moment d'ordre 0 pour le régime moléculaire Nous commençons par les moments d'ordre zéro. Pour le mode 1, nous reprenons les termes A_{01} (5.60) et A_{01} (5.64) que nous développons séparément.

$$A_{01} = -\int_{0}^{\infty} \int_{0}^{\infty} \beta_{FM}(r_{i}, r_{j}) n_{1}(r_{i}) n_{1}(r_{j}) dr_{i} dr_{j}$$

$$= -\int_{0}^{\infty} \int_{0}^{\infty} b_{0}^{T1} \beta_{1 \leftrightarrow 2}(r_{i}, r_{j}) n_{1}(r_{i}) n_{1}(r_{j}) dr_{i} dr_{j}$$

$$= -b_{0}^{T1} K_{FM} r_{1}^{1/2} \left(\alpha_{1}(1/2) + \alpha_{1}(2)\alpha_{1}(-3/2) + \alpha_{1}(1)\alpha_{1}(-1/2) \right) (M_{0}^{m1})^{2}$$

$$= \gamma_{0, FM}^{1A_{01}} (M_{0}^{m1})^{2}$$
(5.70)

 et

$$B_{01} = -\int_{0}^{\infty} \int_{0}^{\infty} \beta_{FM}(r_{i}, r_{j}) n_{1}(r_{i}) n_{2}(r_{j}) dr_{i} dr_{j}$$

$$= -\int_{0}^{\infty} \int_{0}^{\infty} b_{0}^{T^{2}} \beta_{1 \leftrightarrow 2}(r_{i}, r_{j}) n_{1}(r_{i}) n_{2}(r_{j}) dr_{i} dr_{j}$$

$$= -b_{0}^{T^{2}} K_{FM} \left(M_{1/2}^{m1} M_{0}^{m2} + M_{0}^{m1} M_{1/2}^{m2} + 2M_{-1/2}^{m1} M_{1}^{m2} + 2M_{1}^{m1} M_{-1/2}^{m2} + M_{2}^{m1} M_{-3/2}^{m2} + M_{-3/2}^{m1} M_{2}^{m2} \right)$$

$$= -b_{0}^{T^{2}} K_{FM} \left(\bar{r}_{1}^{1/2} \alpha_{1}(1/2) + \bar{r}_{2}^{1/2} \alpha_{2}(1/2) + 2 \bar{r}_{1}^{-1/2} \bar{r}_{2} \alpha_{1}(-1/2) \alpha_{2}(1) + 2 \bar{r}_{1} \bar{r}_{2}^{-1/2} \alpha_{1}(1) \alpha_{2}(-1/2) \right)$$

$$+ \bar{r}_{1}^{2} \bar{r}_{2}^{-3/2} \alpha_{1}(2) \alpha_{2}(-3/2) + \bar{r}_{1}^{-3/2} \bar{r}_{2}^{2} \alpha_{1}(-3/2) \alpha_{2}(2) \right) M_{0}^{m1} M_{0}^{m2}$$

$$= \gamma_{0,FM}^{1B_{01}} M_{0}^{m1} M_{0}^{m2}$$
(5.71)

Nous posons respectivement dans A_{01} (5.70) et B_{01} (5.71) les constantes $\gamma_{0,FM}^{1A_{01}}$ et $\gamma_{0,FM}^{1A_{01}}$, nous avons alors :

$$\frac{dM_0^{m1}}{dt} = \gamma_{0,FM}^{1A_{01}} \left(M_0^1\right)^2 + \gamma_{0,FM}^{1B_{01}} M_0^{m1} M_0^{m2}$$
(5.72)

de la même façon, nous obtenons :

$$\frac{dM_0^{m2}}{dt} = -2 b_0^{T1} K_{FM} r_2^{1/2} \left(\alpha_2(1/2) + \alpha_2(2)\alpha_2(-3/2) + \alpha_2(1)\alpha_2(-1/2) \right) (M_0^{m2})^2$$
(5.73)

so
it :

$$\frac{dM_0^{m2}}{dt} = \gamma_{0,FM}^2 \left(M_0^{m2}\right)^2 \tag{5.74}$$

Moment d'ordre 3 pour le régime moléculaire Enfin, nous faisons de même pour les moments d'ordre 3 :

$$\frac{dM_3^{m1}}{dt} = \int_0^\infty \int_0^\infty \beta_{FM}(r_i, r_j) n_1(r_i) n_2(r_j) dr_i dr_j
= \int_0^\infty \int_0^\infty b_3^{T2} \beta_{1\leftrightarrow 2}(r_i, r_j) n_1(r_i) n_2(r_j) dr_i dr_j
= b_3^{T2} K_{FM} \left(M_{1/2}^{m1} M_0^{m2} + M_2^{m1} M_{-3/2}^{m2} + M_{-3/2}^{m1} M_2^{m2} + M_0^{m1} M_{1/2}^{m2} + 2 M_{-1/2}^{m1} M_1^{m2} + 2 M_1^{m1} M_{-1/2}^{m2} \right)
(5.75)$$
et:

$$\frac{dM_3^{m1}}{dt} = b_3^{T2} K_{FM} \left(\frac{r_1^{-5/2}}{r_2^3} \frac{\alpha_1(0.5)}{\alpha_1(3)\alpha_2(3)} + \frac{r_1^{-1}}{r_2^{9/2}} \frac{\alpha_1(2)\alpha_2(-1.5)}{\alpha_1(3)\alpha_2(3)} + \frac{r_1^{-9/2}}{r_2^{9/2}} \frac{\alpha_1(-1.5)\alpha_2(2)}{\alpha_1(3)\alpha_2(3)} + \frac{r_1^{-3}}{r_2^{5/2}} \frac{\alpha_2(0.5)}{\alpha_1(3)\alpha_2(3)} + 2 \frac{r_1^{-7/2}}{r_2^{7/2}} \frac{\alpha_1(-0.5)\alpha_2(1)}{\alpha_1(3)\alpha_2(3)} + 2 \frac{r_1^{-2}}{r_2^{7/2}} \frac{\alpha_1(1)\alpha_2(0.5)}{\alpha_1(3)\alpha_2(3)} \right) M_3^{m1} M_3^{m2}$$
(5.76)

 donc

$$\frac{dM_3^{m1}}{dt} = \gamma_{3,FM} \, M_3^{m1} M_3^{m2} = -\frac{dM_3^{m2}}{dt} \tag{5.77}$$

La physique derrière les équations des tendances de la coagulation inter-modale et intra-modale dans le cas d'un régime moléculaire est la même que pour les équations exprimées dans le cas d'un régime continu. Dans le cadre d'une coagulation intra-modale, le volume total est conservé, contrairement au nombre total de gouttelettes. Le volume du mode 1 perdu par coagulation inter-modale est transféré au mode 2.

5.5.6 Représentation explicite des tendances pour la coagulation

Précédemment, nous avons exprimé les variations avec les moments d'ordre 0 et 3 pour le mode 1 et 2 (équations 5.67, 5.69, 5.74 et 5.77). Nous appliquons une représentation explicite à chaque variation définie précédemment. Les facteurs $\gamma_0^{1A}\Delta t$, γ_0^{1B} , γ_0^{2C} ont été définis précédemment en fonction du régime d'écoulement et du mode considéré, tels que :

$$M_{0,t+1}^{m1} = \frac{1 - \gamma_0^{1B} \Delta t M_{0,t+1}^{m2}}{2\gamma_0^{1A} \Delta t} + \sqrt{\frac{M_{0,t}^{m1}}{\gamma_0^{1A} \Delta t} - \left[\frac{1 - \gamma_0^{1B} \Delta t M_{0,t+1}^{m2}}{2\gamma_0^{1A} \Delta t}\right]^2}$$
(5.78)

$$M_{0,t+1}^{m2} = \frac{1}{2\gamma_0^2 \Delta t} + \sqrt{\frac{M_{0,t}^{m2}}{\gamma_0^2 \Delta t}} - \frac{1}{4\gamma_0^2 \Delta t^2}$$
(5.79)

Nous pouvons remplacer (5.79) dans (5.78). Puis, pour l'ordre 3 nous avons :

$$M_{3,t+1}^{m1} = \frac{-1}{2\gamma_3\Delta t} - \frac{1}{2}(M_{3,t}^{m1} - M_{3,t}^{m2}) + \sqrt{\frac{M_{3,t}^{m1}}{\gamma_3\Delta t} + \frac{1}{4}\left[\frac{1}{\gamma_3\Delta t} + (M_{3,t}^{m1} + M_{3,t}^{m2})\right]^2}$$
(5.80)

$$M_{3,t+1}^{m2} = \frac{1}{2\gamma_3\Delta t} + \frac{1}{2}(M_{3,t}^{m2} - M_{3,t}^{m1}) + \sqrt{-\frac{M_{3,t}^{m2}}{\gamma_3\Delta t} + \frac{1}{4}\left[\frac{1}{\gamma_3\Delta t} + (M_{3,t}^{m2} + M_{3,t}^{m1})\right]^2}$$
(5.81)

Notons que, avec les coefficients γ adéquats, ces équations sont valables pour le régime continu et le régime moléculaire.

5.5.7 Transition de régime et moyennes harmoniques

Nous avons ainsi exprimé la variation des moments d'ordre 0 et 3 lorsque le milieu est dans un régime d'écoulement moléculaire et lorsque que ce régime est continu. Cette transition est théoriquement encore mal définie, mais peut-être estimée empiriquement ou semi-empiriquement (Fuchs, 1967). Les différentes issues possibles pour résoudre ce problème de transition sont évoquées dans Otto et al. (1999).

Pour notre cas d'étude, nous nous basons sur Park et al. (1999) dont l'approche consiste à définir des moyennes harmoniques définies comme suit pour un moment d'ordre k:

$$\frac{dM_k}{dt} = \frac{dM_k/dt \mid_{CO} \times dM_k/dt \mid_{FM}}{dM_k/dt \mid_{CO} + dM_k/dt \mid_{FM}}$$
(5.82)

Ensuite, nous poussons cette méthode des moyennes harmoniques jusque dans l'expression des taux de la coagulation dans les deux régimes décrits précédemment :

$$K = \frac{K \mid_{CO} \times K \mid_{FM}}{K \mid_{CO} + K \mid_{FM}}$$
(5.83)

Afin de déterminer les moyennes harmoniques pour chaque mode et chaque moment, nous devons dans un premier temps partir des équations présentées dans le tableau 5.3. Après avoir isolé chaque interaction (intermodales et intra-modales), nous appliquons l'équation (5.83). Puis, nous obtenons la variation des moments d'ordre 0 et 3 en fonction de ces interactions. Pour la variation des moments d'ordre 0, nous avons

$$\frac{dM_0^{m1}}{dt} = \frac{\gamma_{0,CO}^{m1,A01} \times \gamma_{0,FM}^{m1,A01}}{\gamma_{0,CO}^{m1,A01} + \gamma_{0,FM}^{m1,A01}} (M_0^{m1})^2 - \frac{\gamma_{0,CO}^{m1,B01} \times \gamma_{0,FM}^{m1,B01}}{\gamma_{0,CO}^{m1,B01} + \gamma_{0,FM}^{m1,B01}} M_0^{m1} M_0^{m2}$$
(5.84)

pour le mode 1 et pour le mode 2 :

$$\frac{dM_0^{m2}}{dt} = \frac{\gamma_{0,CO}^{m2} \times \gamma_{0,FM}^{m2}}{\gamma_{0,CO}^{m2} + \gamma_{0,FM}^{m2}} (M_0^{m2})^2$$
(5.85)

Pour le moment d'ordre 3, nous obtenons :

$$\frac{dM_3^{m1}}{dt} = -\frac{\gamma_{3,CO}^{m1} \times \gamma_{3,FM}^{m1}}{\gamma_{3,CO}^{m1} + \gamma_{3,FM}^{m1}} M_3^{m1} M_3^{m2}$$
(5.86)

 et

$$\frac{dM_3^{m2}}{dt} = \frac{\gamma_{3,CO}^{m1} \times \gamma_{3,FM}^{m1}}{\gamma_{3,CO}^{m1} + \gamma_{3,FM}^{m1}} M_3^{m1} M_3^{m2} = -\frac{dM_3^{m1}}{dt}$$
(5.87)

Les facteurs obtenus grâce aux moyennes harmoniques des équations (5.84) à (5.87) sont multipliés par le pas de temps Δt et implémentés dans les variables A_{imp} , B_{imp} ... des équations (5.79) à (5.81).

5.6 Mode-merging

Comme nous l'avons décrit, afin d'appliquer les moments aux équations microphysiques, nous fixons la fonction de forme de la distribution à une log-normale. La plupart des processus microphysique évoqués dans ce chapitre contribuent à augmenter le rayon médian de la distribution en taille des gouttelettes. Le mode 1 va donc grandir et se déplacer vers des rayons de plus en plus grand pouvant même atteindre ou dépasser le rayon médian du mode 2. Le mode-merging est un outil mathématique qui nous permet de limiter au maximum le chevauchement entre les deux modes.

De plus, comme nous utilisons plusieurs distributions pour définir distinctement les différents modes, nous ne pouvons pas voir la distribution évoluer naturellement du mode 1 au mode 2. En effet, même si MAD-Muphy prend en compte les deux modes dès le début des calculs, le mode 1 est généré grâce à la nucléation. En utilisant le mode-merging, le mode 1 devient une source pour le mode 2 (et qui fait du mode 2 un puits pour le mode 1) grâce aux interactions inter-modales (condensation et coagulation). Ainsi, lorsque le rayon médian du mode 1 devient suffisamment grand, une partie des gouttelettes va migrer dans le mode 2.

Dans le cas où les gouttelettes du mode 1 deviennent suffisamment grandes pour migrer dans le mode 2, les nouvelles concentrations en nombre de gouttelettes $N_{\rm g}$ pour chaque mode et les rayons médians de chaque mode $\bar{r}_{\rm g}$, sont définis par (Whitby, 2002) :

$$M_{k,t+1}^{m1} = M_{0,t}^{m1} \bar{r}_1^k \exp(\frac{k^2}{2} \ln^2 \sigma_1) \frac{1}{2} \left[1 + erf(u_X(k)) \right]$$
(5.88)

$$M_{q,t+1}^{m1} = M_{0,t}^{m1} \bar{r}_1^q \exp(\frac{q^2}{2} \ln^2 \sigma_1) \frac{1}{2} \left[1 + erf(u_X(q)) \right]$$
(5.89)

97

avec k et q les ordres des moments avec $k \neq q$ et la fonction d'erreur $erf(x) = 2/\sqrt{\pi} \int_0^x e^{-t^2} dt$. La fonction $u_X(k)$ est définie par la relation :

$$u_X(k) = \frac{\ln(r_{edge}) - \ln(r_i) - k \ln^2(\sigma_i)}{\sqrt{2\ln(\sigma_i)}}$$
(5.90)

avec *i* le mode étudié et r_{edge} le rayon seuil définie par $r_{edge} = \sqrt{r_{f1}r_{f2}}$. Les rayons médians r_{f1} et r_{f2} sont respectivement fixés à 330 nm et 1 μ m d'après la définition de Knollenberg and Hunten (1980). Cette combinaison d'équation nous permet d'avoir :

$$\bar{r}_{1,t+1} = \bar{r}_{1,t} \left(\frac{1 + erf(u_X(q))}{1 + erf(u_X(k))} \right)^{-1/(k-q)}$$
(5.91)

 et

$$N_{1,t+1} = \frac{N_{1,t}}{2} \frac{(1 + erf(u_X(q)))^{k/(k-q)}}{(1 + erf(u_X(k)))^{q/(k-q)}}$$
(5.92)

Le même processus est appliqué pour le mode 2, tel que :

$$M_{k,t+1}^{m2} = M_{0,t}^{m1} \bar{r}_1^k \exp(\frac{k^2}{2} \ln^2 \sigma_1) \frac{1}{2} \left[1 - erf(u_X(k)) \right]$$
(5.93)

$$M_{q,t+1}^{m2} = M_{0,t}^{m1} \bar{r}_1^q \exp(\frac{q^2}{2} \ln^2 \sigma_1) \frac{1}{2} \left[1 - erf(u_X(q)) \right]$$
(5.94)

avec k et q les ordres des moments. Cette combinaison d'équation nous permet d'avoir :

$$\bar{r}_{2,t+1} = \bar{r}_{1,t} \exp(\frac{k+q}{2} (\ln^2 \sigma_1 - \ln^2 \sigma_2)) \left(\frac{1 - erf(u_X(q))}{1 - erf(u_X(k))}\right)^{-1/(k-q)}$$
(5.95)

 et

$$N_{2,t+1} = \frac{N_{1,t}}{2} \exp(\frac{-kq}{2} (\ln^2 \sigma_1 - \ln^2 \sigma_2)) \frac{(1 - erf(u_X(q)))^{k/(k-q)}}{(1 - erf(u_X(k)))^{q/(k-q)}}$$
(5.96)

Dans le cas décrit ci-dessus, le mode 1 perd des gouttelettes au profit du mode 2 car les gouttelettes, devenues trop grosses pour leur mode initial (ici le mode 1) migrent vers le mode des tailles de gouttelettes plus grosses (ici le mode 2, figure 5.4). Ces équations sont également utilisables pour le cas inverse lorsque la taille des gouttelettes du mode 2 diminuent suffisament par éaporation, elles migrent vers le mode 1.

5.7 Sédimentation des particules

Nous avons mis en place la sédimentation des particules suivant le modèle de J. Burgalat (2012). La relation (3.55) s'écrit :

$$v_{\rm t}(r,z) = \frac{2}{9} \frac{r^2 \rho_{\rm g} g_0(1 + AK_n)}{\mu_{air}}$$
(5.97)

ce qui nous permet de décrire le flux de sédimentation, noté F_{sed} , en puissance de r, soit :

$$F_{sed}(\Delta r, z) = \int_{r}^{r+dr} n(r, z)v_t(r, z)dr$$
(5.98)

En remplaçant v_t par la relation (5.97) dans (5.98), nous obtenons :

$$F_{sed}(\Delta r, z) = \int_{r}^{r+dr} n(r, z) \frac{2}{9} \frac{r^2 \rho_{\rm g} g_0(1 + AK_n)}{\mu_{air}} dr$$
(5.99)

En exprimant l'équation (5.99) avec les moments, nous obtenons alors :

$$F_{sed,M_k}(z) = \frac{2\rho_{\rm g}g_0}{9\mu_{air}} (M_k^{k+2} + A\lambda_g M_k)$$
(5.100)

La relation (5.100) nous permet de déterminer le flux de sédimentation sur une colonne atmosphérique (1D). Comme pour la coagulation, nous utilisons l'approximation de la correction de Cunningham-Millikan de A = 1,591 (Park et al., 1999). L'erreur obtenue avec cette valeur du coefficient pour la sédimentation est presque identique à celle de la coagulation, allant de -4 à +9 % (Burgalat, 2012).



FIG. 5.4 – Résultats obtenus avec notre modèle MAD en 0D. Le mode initial a le même écart-type que le mode 1 ($\sigma_i = \sigma_1$). Son rayon médian a atteint le rayon seuil (r_{edge}) et s'est donc divisé en mode 1 et 2.

Quatrième partie

Résultats

Chapitre 6

Tests de MAD-Muphy dans des conditions vénusiennes

Sommaire

6.1	Comparaison avec un modèle spectral : SALSA 103				
	6.1.1	Présentation de SALSA 104			
	6.1.2	Nucléation homogène et conditions initiales			
	6.1.3	Étude du transfert de masse			
		Taux de saturation et composition des gouttelettes			
		Condensation et évaporation avec le mode 1			
	6.1.4	Coagulation brownienne avec les modes 1 et 2			
		Comparaison entre SALSA et MAD-Muphy sans mode-merging 109			
		Effet du $mode{-merging}$ sur la coagulation brownienne avec MAD-Muphy 110			
6.2	6.2 Exploration des résultats de MAD-Muphy 114				
	6.2.1	Nucléation homogène et hétérogène			
	6.2.2	Étude du transfert de masse			
	6.2.3	Impact de la coagulation brownienne et du mode-merging			
6.3	6.3 Conclusion sur les résultats 122				

Le travail de cette thèse est de développer un modèle de microphysique en 0D qui peut, par la suite, être couplé au VGCM afin de modéliser temporellement et spatialement les nuages vénusiens. Avant d'inclure MAD-Muphy dans le VGCM, il est nécessaire de le tester en 0D afin de s'assurer de sa fiabilité physique et de le valider en comparant, dans des conditions similaires, ses résultats à ceux d'un autre modèle déjà utilisé pour des publications dans la littérature scientifique.

Nous allons donc vous présenter dans ce chapitre des résultats, une comparaison entre MAD-Muphy et un modèle spectral puis les résultats de simulation de MAD-Muphy dans les conditions proches de l'atmosphère vénusienne.

6.1 Comparaison avec un modèle spectral : SALSA

Nous allons comparer les résultats de MAD-Muphy et d'un modèle nommé SALSA (présenté dans la suite de ce chapitre) dans le cas de simulations ayant les mêmes conditions initiales représentatives de Vénus. Afin de comparer ces deux modèles, j'ai travaillé avec A.Laakso (Finish Meteorological Institute, Finland) qui m'a fourni les résultats des simulations de SALSA.

Notre modèle MAD-Muphy résout les équations différentielles de la microphysique avec un couple de moments alors que le modèle SALSA utilise une grille spectrale en rayon. Cette comparaison va dans un premier temps nous permettre de valider MAD-Muphy et dans un second temps d'analyser la différence de comportement entre les deux représentations de distribution en taille.

6.1.1 Présentation de SALSA

SALSA (pour Sectional Aerosol module for Large Scale Applications, Kokkola et al., 2008) est un modèle spectral de microphysique utilisé dans le cadre de la simulation des nuages terrestres et notamment pour les nuages troposphériques. La largeur des intervalles de rayon n'est pas fixée et évolue en fonction des processus microphysiques utilisés et de la concentration en nombre des particules pour chaque intervalle. De plus, la grille de rayon est divisée en trois sous-régions qui sont définies selon les espèces et la taille des particules considérées. Les distributions des gouttelettes ont définies ici dans la première sous-région de la grille de rayon allant de 3 nm à 3 mm sur 300 intervalles. Les autres sous-régions de la grille de rayons restent vides. C'est la première fois que SALSA est utilisé pour des conditions vénusiennes.

Les processus microphysiques résolus par SALSA sont la nucléation homogène d'eau et d'acide sulfurique, la condensation, l'évaporation et la coagulation brownienne. Contrairement à MAD-Muphy, SALSA ne contient pas de nucléation hétérogène.

Pour les deux modèles, la nucléation homogène est calculée avec la paramétrisation de Vehkamäki et al. (2002), mise à jour et définie par Määttänen et al. (2018). Cette paramétrisation permet de calculer le taux de nucléation homogène pour une humidité relative comprise entre 0,001 et 100 %, pour une température comprise entre 165 et 400 K et pour une concentration en acide sulfurique de $1 \cdot 10^{10}$ à $1 \cdot 10^{19}$ m⁻³. Le seuil du taux de nucléation homogène est défini à 0,1 cm⁻³s⁻¹ en-dessous duquel le taux de nucléation est considéré nul.

Afin de comparer les résultats de SALSA avec ceux de MAD-Muphy, Anton Laakso a mis en place, dans SALSA, l'évaporation de l'acide sulfurique et la migration des gouttelettes vers les intervalles de rayon inférieur lorsqu'elles rétrécissent au processus d'évaporation. La condensation, quant à elle, est basée sur l'équation (16.75) du livre de Jacobson (2005).

Enfin, les deux modèles ne déterminent pas le pourcentage massique d'acide sulfurique dans les gouttelettes de la même manière (noté W_m , voir partie 4.2.2 page 69). MAD-Muphy utilise la méthode développée par Stolzenbach (2016) qui détermine le pourcentage massique d'acide sulfurique de la gouttelette pour que celle-ci soit en équilibre thermodynamique avec son environnement. Les résultats de cette méthode concordent avec les observations de Cottini et al. (2012). SALSA utilise une méthode d'hydratation (Kokkola et al., 2008). Cette méthode détermine le contenu en eau dans la gouttelette qui est égale à la somme des rapports de la concentration molaire sur la molalité de chaque espèce condensée.

Les conditions initiales de la couche nuageuse intermédiaire (située à 54 km d'altitude) sont utilisées pour la comparaison des deux modèles en 0D et sont définies dans le tableau 6.1. Chaque simulation a une durée de 1 h. Ce temps suffit à voir l'effet des processus microphysiques sur les gouttelettes avant d'atteindre un état proche de l'équilibre. La température et la pression restent constantes pendant chaque simulation. Les processus microphysiques sont résolus avec un pas de temps de 0,5 s et les sorties sont effectuées toutes les 1 s. Notons enfin que les résultats de SALSA présentés dans ce chapitre ont été produit par A.Laakso.

Pour visualiser les résultats de SALSA, nous avons reporté dans les graphes la grille de rayon telle qu'elle est définie dans le modèle. Le volume total de la distribution a été déterminé en fonction du rayon des gouttelettes et de leur nombre. Pour MAD-Muphy, nous prenons en compte le nombre total de particules (M_0) et le moment d'ordre 3 (M_3) que nous multiplions par $4/3\pi$ afin d'obtenir un volume total équivalent de la distribution des gouttelettes. Le rayon médian est calculé à partir des moments d'ordre 0 et d'ordre

Altitude	Température	Pression	Vapeur de H_2O	Vapeur de H_2SO_4	RH	Concentration
(km)	(K)	(hPa)	(ppmv)	(ppmv)		en $H_2SO_4 (m^{-3})$
54	312	616	9,7	$8,08 \cdot 10^{-2}$	$8,61 \cdot 10^{-3}$	$1,16 \cdot 10^{18}$

TAB. 6.1 – Conditions initiales des simulations pour une température, une pression et des vapeurs pour un point de l'atmosphère situé à 54 km d'altitude. La température et la pression sont issues d'un profil VIRA. Les concentrations des vapeurs d'acide sulfurique et d'eau sont basées sur des profils de vapeurs à l'équilibre dans l'atmosphère de Vénus et ont été modifiées afin d'obtenir des taux de saturation différents. L'humidité relative (RH) et la concentration en acide sulfurique ont été déterminé à partir des paramètres précédemment cités. Les valeurs sont les mêmes que celles présentées dans le tableau 3.2 page 52.

3 (à partir de l'équation 3.11). Les résultats des deux modèles ne prennent pas en compte la dynamique atmosphérique, la diffusion et le cycle diurne.

6.1.2 Nucléation homogène et conditions initiales

Tout d'abord, nous avons testé la nucléation homogène seule dans le cas présenté dans le tableau 6.1. Pour les deux modèles, la nucléation homogène ne s'enclenche pas dans ces conditions. Ce résultat est cohérent avec les tests effectués dans des conditions vénusiennes dans la partie 3.2.6 et les résultats de la paramétrisation présentés dans la figure 3.6. Les grandeurs thermodynamiques utilisées comme conditions initiales sont incluses dans les limites de validité de la paramétrisation. Cependant, la température est trop élevée et l'humidité relative trop faible car le taux de nucléation homogène obtenu est de l'ordre de 10^{-12} cm⁻³s⁻¹, ce qui est bien en-dessus du seuil des 0,1 cm⁻³s⁻¹ défini comme un taux non-négligeable.

Malgré des taux de nucléation homogène nuls dans ces conditions, nous tenons à garder ce processus pour effectuer dans le futur des tests en 1D et en 3D. Ceci, afin de voir si la prise en compte de la dynamique atmosphérique, du cycle diurne et du cycle photochimique présents dans le VGCM peuvent rendre ces conditions plus favorables pour ce processus.

Pour les autres tests, au lieu de produire nos gouttelettes avec la nucléation homogène, et comme SALSA ne contient pas le processus hétérogène, nous définissons deux distributions initiales de gouttelettes. Composées d'une solution binaire d'acide sulfurique et d'eau, ces distributions représentent les modes 1 et 2 et sont définies suivant les observations de *Pioneer Venus* (décrites dans le tableau 6.2). Dans un premier temps, nous présentons les résultats des simulations dans lesquelles nous considérons seulement le processus de transfert de masse appliqué au mode 1. Puis, nous présenterons l'effet de la coagulation brownienne sur les modes 1 et 2.

Mode	Écart-type	Rayon (m)	Nombre total de gouttelettes (cm^{-3})
1	$1,\!56$	$3,0 \cdot 10^{-7}$	600
2	$1,\!29$	$1,0 \cdot 10^{-6}$	71

TAB. 6.2 – Caractéristiques des modes 1 et 2 des gouttelettes des nuages de Vénus utilisées pour initialiser les simulations de MAD-Muphy et de SALSA. Ces valeurs sont basées sur les observations (Knollenberg and Hunten, 1980).

6.1.3 Étude du transfert de masse

Nous allons dans un premier temps étudier les effets de la condensation ou de l'évaporation sur les distributions avec SALSA et MAD-Muphy. Afin de mieux comprendre ce processus, nous allons tout d'abord nous intéresser au taux de saturation.

Taux de saturation et composition des gouttelettes

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 3, le rapport de saturation va piloter le transfert de masse. Sa valeur est influencée par l'acidité de la gouttelette (W_m) qui n'est pas déterminée de la même façon dans les deux modèles. Le taux de saturation est le rapport entre la pression partielle de l'acide sulfurique et de la pression de vapeur saturante de l'acide sulfurique à la surface de la gouttelette (équation 3.12, page 46). Celle-ci est déterminée à partir de la température du milieu environnant (ici 312 K) et de la composition des gouttelettes.

Au début de la simulation, MAD-Muphy détermine un taux de saturation de l'acide sulfurique égale à environ 0,71 qui augmente jusqu'à atteindre une valeur de 1,01 à 44 s. Au démarrage, nous sommes dans un cas d'évaporation puis dans un cas de condensation à partir de 44 s. Pour le modèle SALSA, le rapport de saturation est d'environ 1,19 en début de simulation et diminue jusqu'à atteindre la valeur de 0,999 à 138 s et 0,997 de 2516 jusqu'à la fin du test (figure 6.1).Nous sommes globalement dans un cas de condensation.

SALSA est un modèle spectral pour lequel un rapport de pression de vapeur saturante a été calculé pour chaque taille de rayon des gouttelettes de la distribution. Il s'agit du rapport de la pression de vapeur saturante pour une surface curviligne sur la pression de vapeur saturante pour une surface plane (équation 16.47, p.539 du livre *Fundamental of Atmospheric Modeling* de Jacobson). Ce rapport de pressions de vapeur saturante est noté S'_i et son évolution en fonction de la grille de rayons est présentée dans la figure (figure 6.2). Comparé au rapport de saturation ambiant (équation 3.12), nous pouvons déterminer à partir de quel rayon les gouttelettes grossissent par condensation et en-dessous duquel elles rétrécissent par évaporation. En effet, lorsque $S > S'_i$, l'air ambiant est sursaturé par rapport aux gouttelettes de rayon égal ou supérieur au rayon de taille *i* et les vapeurs peuvent condensées sur ces gouttelettes. Dans le cas contraire ($S < S'_i$), les gouttelettes de rayon égal ou inférieur à la tailles *i* s'évaporent. Lorsque $S = S'_i$, le rayon de taille *i* est le rayon seuil et les gouttelettes de cette taille n'évoluent pas.



FIG. 6.1 – Évolution du rapport de saturation moyen en fonction du temps. Les résultats pour le modèle SALSA sont présentés en bleu. En marron, il s'agit de l'évolution du rapport de saturation calculé avec MAD-Muphy. L'évolution des courbes au-delà de 200 s est la même.

La différence de taux de saturation entre les deux modèles est liée à la différence de composition des gouttelettes. Le W_m calculé dans MAD-Muphy est constant et vaut 95 % ce qui en accord avec les observations de Cottini et al. (2012) pour cette altitude. SALSA détermine un W_m constant égale à 91,6 %. Il y a donc plus d'acide sulfurique dans les gouttelettes générées par MAD-Muphy. La pression de vapeur saturante d'acide sulfurique à la surface de la gouttelette est plus importante et donc le taux de saturation plus faible que celui déterminé par SALSA (figure 6.3). Ceci explique pourquoi nous sommes dans deux régimes différents dans les deux modèles malgré des états initiaux identiques.



FIG. 6.2 – Évolution du rapport de pressions de vapeur saturante pour une surface curviligne sur une pression de vapeur saturante pour une surface plane (équation 16.47, p.539 du livre Fundamental of Atmospheric Modeling de Jacobson). Ce rapport de pressions saturantes est calculé par SALSA en fonction du rayon des gouttelettes.

Condensation et évaporation avec le mode 1

Le moment d'ordre 3 est proportionnel au volume total de la distribution, à un facteur $\frac{4}{3}\pi$ près (équation 3.9, page 45). Afin de comparer les deux modèles, pour chaque intervalle de rayon dans SALSA, nous avons calculé le volume d'une particule de l'intervalle de rayon multiplié par le nombre de gouttelettes contenu dans cet intervalle. Puis, nous faisons la somme de ces volumes sur la grille entière afin d'obtenir le volume total de la distribution. Ensuite, nous multiplions par $\frac{4}{3}\pi$ le moment d'ordre 3 calculé par MAD-Muphy. Nous obtenons alors un volume total équivalent de la distribution en taille des gouttelettes.

Au cours de ce test, ce moment d'ordre 3 du mode 1 calculé par MAD-Muphy diminue et atteint, après 75 s de simulation, une valeur de $2,86 \cdot 10^{-11} \text{ m}^3/\text{m}_{air}^3$ (figure 6.4). Cette diminution traduit une évaporation partielle du volume total de la distribution en début de simulation. Le volume proportionnel déterminé par SALSA augmente jusqu'à une valeur de $4,35 \cdot 10^{-11} \text{ m}^3 \text{m}_{air}^{-3}$ à 127 s. Le volume augmente, il y a ajout de matière et donc condensation (figure 6.4). L'évolution du M_3 équivalent est cohérent avec le calcul du taux de saturation calculé par chaque modèle. Le volume total équivalent déterminé à partir des résultats de MAD-Muphy et le volume total calculé pour SALSA ne sont pas égaux mais ont le même ordre de grandeur. La différence entre ces deux grandeurs est de l'ordre de $\alpha(3)$ (voir la relation intermoment définie par l'équation 3.10, page 45).

Le nombre de gouttelettes dans la simulation réalisée avec MAD-Muphy est conservé avec le temps (figure 6.5) car il n'y a pas de perte. La forme de la distribution en taille de rayon est fixe et définie par une log-normale. Avec les équations exprimées avec les moments, nous appliquons les processus microphysiques uniquement sur les paramètres globaux (M_0 , M_3). Le transfert de masse est calculé à partir du rayon médian de la distribution. La perte de volume constatée dans la figure 6.4 s'effectue donc sur l'ensemble de la distribution. Les petites particules ne peuvent évaporer au profit des plus grandes qui grandissent. Donc, le rayon médian calculé par MAD-Muphy diminue (figure 6.6) car il y a sous-saturation.

En revanche, pour SALSA le nombre total des particules diminue avec le temps (figure 6.5) parce que les plus petites gouttelettes s'évaporent et disparaissent. Les gouttelettes plus grandes, mais dont le rayon est inférieure à 270 nm, s'évaporent et viennent remplir les intervalles correspondants aux petits rayons dont le nombre augmente avec le temps (figure 6.5). Les particules de grandes tailles (supérieure à 270 nm) grandissent du fait de la condensation. Cette différence de régime au sein de la distribution est liée au rapport



FIG. 6.3 – Évolution du taux de saturation et de la pression de vapeur saturante de l'acide sulfurique en fonction du pourcentage massique de H_2SO_4 dans les gouttelettes. Les traits pointillés représentent les valeurs de W_m déterminée par SALSA (91,56 %) et MAD-Muphy (95 %). Ces valeurs ont été calculées avec le rayon médian du mode 1.

 S'_i décrit plus tôt et sa comparaison avec le taux de saturation. Pour des gouttelettes inférieures à 270 nm, nous avons $S < S'_i$ et pour les grandes particules $S > S'_i$. Ce comportement est cohérent avec le calcul du flux de masse pour le nuage médian où l'évaporation est plus importante pour les petites particules que pour les grandes particules (figure 3.8).

Avec la figure 6.5, nous pouvons voir qu'à partir de 1200 s, la concentration des grandes particules est de l'ordre de 10^7 particules m⁻³ contrairement aux petites particules dont la concentration est de l'ordre 10^4 à 10^5 particules m⁻³. Le rayon modal augmente vers les rayons de grandes tailles. La figure 6.7 illustre parfaitement le processus de condensation pour SALSA et l'évaporation pour MAD-Muphy. Les quantités initiales d'acide sulfurique condensées et gazeuses diffèrent dans les deux modèles du fait du calcul de W_m expliqué précedemment. Pour MAD-Muphy, la matière condensée est relâchée par évaporation ce qui entraîne une augmentation temporelle de la quantité en vapeur d'acide sulfurique. Le mécanisme inverse est observé pour SALSA. La vapeur diminue car elle se condense sur les gouttelettes.

Nous pouvons donc conclure que la méthode de calcul de l'acidité des gouttelettes a un impact non négligeable sur le taux de saturation et par extension le transfert de masse. Nous avons vu avec que dans le cas de MAD-Muphy, l'évaporation des gouttelettes impacte le moment d'ordre 3 (relatif au volume) mais pas le moment d'ordre 0 (égale au nombre total) sauf si nous évaporons la totalité des espèces condensées. Avec la méthode des moments le flux de masse est calculé à partir du rayon médian de la distribution. Il ne peut donc y avoir qu'un seul processus à la fois, soit l'évaporation, soit la condensation. A contrario, avec le modèle SALSA, les intervalles de rayons contenant les gouttelettes de petites tailles peuvent être entièrement vidées par évaporation pendant que les gouttelettes de taille plus importante grandissent par condensation.



FIG. 6.4 – Volume total équivalent déterminé à partir du moment d'ordre 3 (M_3) calculé par MAD-Muphy et multiplié par 4/3 π (ligne marron) et volume total des gouttelettes calculé à partir des données de SALSA (en bleu). Seul le transfert de masse appliqué au mode 1 est mis en jeu dans cette simulation.



FIG. 6.5 – Nombre total de gouttelettes de la distribution en fonction du temps obtenu avec SALSA et MAD-Muphy (à gauche). Évolution du nombre de gouttelettes en fonction de leur rayon déterminé avec le modèle spectral SALSA (à droite). Seul le transfert de masse concernant le mode 1 est calculé dans cette simulation.

6.1.4 Coagulation brownienne avec les modes 1 et 2

Nous allons par la suite étudier avec SALSA et MAD-Muphy la coagulation du mode 1 et 2 définis dans le tableau 6.2. Dans un premier temps, seul ce processus est activé dans les deux modèles. Nous activerons ensuite le *mode-merging* en plus de la coagulation pour la simulation effectuée avec MAD-Muphy.

Comparaison entre SALSA et MAD-Muphy sans mode-merging

À présent, nous allons étudier la coagulation avec SALSA et MAD-Muphy sans *mode-merging*. Avec la coagulation intra-modale, le rayon médian du mode 1 va augmenter mais les gouttelettes ne pourront pas migrer vers le mode 2 autrement qu'avec la coagulation inter-modale. Si la coagulation intra-modale est plus efficace que la coagulation inter-modale, les gouttelettes du mode 1 peuvent grandir jusqu'à obtenir un chevauchement entre les distributions des deux modes.

Avec la coagulation, les gouttelettes entrent en contact et fusionnent pour former une nouvelle gouttelette de taille plus grande que les deux initialement mise en jeu. Nous nous attendons donc à ce que, dans ce processus,



FIG. 6.6 - Évolution temporelle du rayon moyen déterminé à partir des moments d'ordre 0 et 3 calculés par MAD-Muphy (équation 3.10).



FIG. 6.7 – Variations temporelles de l'acide sulfurique condensé à gauche et vapeur à droite déterminées par MAD-Muphy (en marron) et par SALSA (en bleu).

le nombre total diminue et que le volume total de la distribution (proportionnel à M_3) soit conservé au cours du temps. C'est ce qui se produit avec MAD-Muphy et SALSA (figure 6.8). Toutefois, en fin de simulation le M_3 équivalent au volume total change légèrement de sa valeur initiale, la variation est de l'ordre de $1 \cdot 10^{-14}$ pour SALSA contre $1 \cdot 10^{-18}$ pour le M_3 calculé avec MAD-Muphy. Nous associons ces écarts à la précision numérique. Si le volume vient à rester constant au cours du temps, le nombre total de particules de la distribution diminue dans les deux modèles, comme attendu (figure 6.9). Cette diminution est due à la collision de deux particules pour former une plus grande particule. Comme les particules coagulent, elles forment de plus grandes particules ce qui entraîne l'augmentation du rayon moyen de la distribution en taille des gouttelettes. L'évolution du nombre de gouttelettes et des rayons moyens traduisent, avec les deux modèles, une coagulation lente. Nous pouvons également noter que les quantités d'acide sulfurique condensées et gazeuses restent constantes.

Effet du mode-merging sur la coagulation brownienne avec MAD-Muphy

Comme précédemment, nous allons étudier les résultats de MAD-Muphy sur la coagulation brownienne couplée au *mode-merging* dans les conditions du tableau 6.1.



FIG. 6.8 – Moment d'ordre 3 (M₃) calculé par MAD-Muphy (ligne marron) et M₃ équivalent calculé à partir des données de SALSA (points bleus). Le volume proportionnel est le volume total de la distribution divisé par $\frac{4}{3}\pi$. Il s'agit d'un cas de coagulation brownienne sans utilisation de mode-merging dans la simulation de MAD-Muphy.

Tout d'abord, le volume total est conservé pour chaque couche.

Le nombre de gouttelettes diminue avec le temps (figure 6.9). Le nombre de particules perdues dans le cas avec *mode-merging* est trois à six fois supérieur par rapport aux résultats de MAD-Muphy sans *mode-merging* (figure 6.9). Le nombre de particules perdues suite à la coagulation avec les deux modèles sont présentés dans le tableau 6.3. Le *mode-merging* fait migrer les particules du mode 1 vers le mode 2. C'est pourquoi le nombre du mode 1 diminuent plus rapidement que dans les résultats sans *mode-merging* (figure 6.10). Ces petites particules passent dans un mode où la taille des particules est plus grande. Nous obtenons ainsi une gamme de rayon des gouttelettes plus variée et un plus grand nombre de particules du mode 2. Plus la différence en taille de rayon entre deux gouttelettes est grande, plus la coagulation est efficace (figure 3.10 de la partie 3.4.4). Et plus la coagulation est efficace, plus le nombre total de particules diminue.

Même avec le mode-merging, la coagulation reste lente. En effet, après une heure de simulation nous ne perdons que $8,92 \cdot 10^5$ gouttelettes/m³ avec SALSA, $1,3 \cdot 10^6$ gouttelettes/m³ avec MAD-Muphy sans mode-merging et $4,27 \cdot 10^6$ gouttelettes/m³ avec le mode-merging (tableau 6.3). Ces valeurs ont été obtenues en faisant la différence entre le nombre total de gouttelettes à la fin de la simulation (3600 s) et le nombre total de gouttelettes initial. Cette faible diminution peut s'expliquer par le fait que la coagulation est un processus lent dans ces conditions thermodynamiques et que le mode-merging force la coagulation des petites particules.

Gouttelettes SALSA		MAD-Muphy	MAD-Muphy
perdues		sans mode-merging	avec mode-merging
	(m^{-3})	(m^{-3})	(m^{-3})
Nombre	$8,92 \cdot 10^{5}$	$1,30.10^{6}$	$4,27 \cdot 10^{6}$
en $\%$	$0,\!13$	$0,\!19$	$0,\!63$

TAB. 6.3 – Nombre de gouttelettes perdues au bout de 3600 s avec le processus de coagulation. Le nombre de gouttelettes perdues est déterminé par la différence entre la fin de la simulation (à 3600 s) et au nombre total de gouttelettes initial. On représente ensuite cette perte en pourcentage par rapport au nombre total initial de gouttelettes.

Nous avons donc une bonne corrélation entre les résultats de SALSA et de MAD-Murphy dans l'étude de la coagulation. Toutefois, la coagulation calculée par MAD-Muphy est plus efficace que celle de SALSA, surtout avec le *mode-merging*.



FIG. 6.9 – Nombre total de gouttelettes (mode 1 + mode 2) dans un cas de coagulation brownienne. Résultats de SALSA (en bleu) et de MAD-Muphy sans mode-merging (en marron, à gauche) puis avec mode-merging (à droite). Le nombre total de particules est égal à M_0 .

Après une heure de simulation, la coagulation ralentit et tend vers une valeur constante mais continue à augmenter avec le temps, de façon infime, même pour une durée de simulation de plusieurs jours. La coagulation brownienne dépend de l'agitation thermique, l'effet de la coagulation sur les particules est continue tant qu'il y a des particules. Néanmoins, l'efficacité de la coagulation dépend également des rayons des gouttelettes et de leur concentration en nombre. Plus les rayons sont de taille similaire et qu'il y a de moins en moins de particules, alors la coagulation est moins efficace. Le nombre total de gouttelettes diminue avec le temps, par conséquent l'efficacité de coagulation diminue également.



FIG. 6.10 - Résultats de MAD-Muphy. Évolution du rayon médian des gouttelettes des mode 1 et 2 dans la distribution à 54 km d'altitude dans un cas de coagulation brownienne sans mode-merging (à gauche) et avec mode-merging (à droite).

6.2 Exploration des résultats de MAD-Muphy

Dans cette partie, nous testons MAD-Muphy dans des conditions vénusiennes. Nous allons vous présenter les résultats pour chaque processus microphysique étudié indépendamment.

6.2.1 Nucléation homogène et hétérogène

Le taux de nucléation homogène dépend de l'humidité relative, du rapport de saturation de l'acide sulfurique et de la température de la couche considérée.

La paramétrisation utilisée pour calculer le taux de nucléation homogène est présentée dans Määttänen et al. (2018). La figure 6.11 présente les résultats d'un test sur la nucléation homogène effectué aux conditions décrits dans le tableau 5.1. La concentration finale de particules obtenue après 3600 s de simulation est la même pour les simulations avec un pas de temps de 1 s (pas de temps usuel pour la microphysique) ou de 15 min (pas de temps du VGCM). La nucléation modifie d'une façon négligeable les concentrations des vapeurs, donc les conditions thermodynamiques restent quasiment constantes et le taux de nucléation varie très peu d'un pas de temps à l'autre lorsqu'il est égal à une seconde.



FIG. 6.11 - La concentration des particules pour une simulation d'une durée de 3600 s pour la nucléation homogène seule avec deux pas de temps différents : 15 min en bleu et 1 s en rouge. Les résultats après le premier pas de temps sont représentés par les pointillés et les résultats finaux de chaque simulation sont représentés par les traits pleins. Quel que soit le pas de temps, la concentration finale de particules est la même. Les conditions initiales sont celles décrites dans le tableau 5.1.

D'un point de vue théorique, la présence d'un support de nucléation (des CCN) nous permet de produire plus facilement des gouttelettes par nucléation hétérogène (voir chapitre 3). Nous avons effectué un test dans les conditions de l'atmosphère de Vénus, en trois points de l'atmosphère définis dans le tableau 6.4 (figure 6.12). Il est à noter que pour chaque condition (P, T), les taux de nucléation hétérogène et homogène ont été calculés. Seul la nucléation hétérogène produit des gouttelettes (figure 6.12), le taux de nucléation homogène est resté à zéro. Ceci s'explique dans un premier temps par les conditions de validité de la routine de nucléation homogène. Une des conditions de la paramétrisation est que si le taux de nucléation homogène est inférieur à 0,1 particules cm⁻³ alors il est considéré comme nul.

Dans les cas de 60 et 70 km, la nucléation hétérogène est activée à partir d'une saturation supérieure à 1 (1,05 pour les trois cas du tableau 6.4) et le taux de nucléation est proche du nombre total d'aérosols disponible $(1,86 \cdot 10^8 \text{ m}^{-3} \text{ pour le cas à 50 km})$. Le taux de saturation minimal pour activer les aérosols change en fonction de l'altitude (voire la figure 3.7 de la partie 3.2.6). Ainsi, le taux de saturation minimal nécessaire pour activer la totalité des aérosols est de 1,14 pour les trois couches (figure 6.12). Ainsi, à 50 km, on active plus facilement et plus rapidemment qu'à 60 puis 70 km ce qui s'explique par les conditions de pression, de température, la concentration en vapeur d'eau (4,5 ppmv à 70 km contre 20 ppmv à 50 km) et de la valeur minimale nécessaire du rapport de saturation pour activer tous les aérosols.

Altitude	Température (K)	Pression (Pa)	$H_2SO4 (ppmv)$	H_2O (ppmv)	Humidité relative
50 km	350,5	$10,66 \cdot 10^4$	0,26	20	$5,01 \cdot 10^{-5}$
$60 \mathrm{km}$	262,8	$23,\!57{\cdot}10^3$	0,75	10	$8,45 \cdot 10^{-4}$
$70 \mathrm{km}$	229,8	$36,90{\cdot}10^2$	0,09	4,5	$1,25 \cdot 10^{-3}$

TAB. 6.4 – Valeurs de température, de pression et de vapeur d'eau pour trois points de l'atmosphère à 50, 60 et 70 km d'altitude. Les valeurs sont issues de Stolzenbach (2016) et d'un profil VIRA pour des valeurs entre 0 et 30° de latitude. L'humidité relative est obtenue avec MAD-Muphy.

Les tests effectués concernent une atmosphère sursaturée, vierge de tout nuage à l'état initial. Dans des conditions vénusiennes, le taux de nucléation hétérogène dépend de la quantité initiale d'aérosols introduit dans la colonne atmosphérique, de l'altitude, de la nature de leur source (voir la partie 1.6.4 sur la question des CCN) et de leur implémentation dans le modèle (source ponctuelle à une altitude donnée ou distribution répartie verticalement suivant une fonction normale, voir la partie 5.1). Nous réservons les tests sur le nombre initial de CCN et leur distribution en altitude pour des simulations en 1D ou en 3D au sein du VGCM (ces tests ne sont pas inclus dans cette thèse).



FIG. 6.12 – Variation du taux de nucléation hétérogène (J_{het}) en fonction du rapport de saturation de l'acide sulfurique pour trois points dans l'atmosphère de Vénus (tableau 6.4). Le nombre d'aérosols initial est de 2,0·10⁸ particules/m³. La saturation varie de 0,5 à 1,5. Le taux de nucléation hétérogène est calculé pour chaque taille d'aérosols sur une grille de rayons qui comporte 1000 cases sur l'intervalle $[1,0\cdot10^{-9}; 1,0\cdot10^{-5}]$ m. Le taux de nucléation est la somme des aérosols activés sur toute la distribution.

6.2.2 Étude du transfert de masse

Toujours dans le cadre de l'atmosphère de Vénus, j'ai testé la condensation en plusieurs points de l'atmosphère définis suivant les profils de température et de pression présentés dans la figure 6.13. Seul le mode 1 est initialisé en début de simulation et l'unique processus microphysique appliqué est le transfert de masse (évaporation/condensation). Les profils de vapeurs utilisés sont définis dans le tableau 6.5. Le choix de ces profils de vapeur entraîne une sursaturation (S>1) entre 57,5 et 79,5 km et une sous-saturation (S<1) endessous de 57,5 km. Les conditions thermodynamiques (P, T) pour la pression et la température pilotent le processus de transfert de masse. La pression de vapeur saturante permet le calcul du taux de saturation de l'acide sulfurique, grandeur nécessaire au calcul du transfert de masse (équation 5.17, 85). Dans les résultats présentés ici, il n'y a pas de transport vertical et les sorties ont été effectuées toutes les secondes. Ce pas de temps a été choisi en accord avec les modèles microphysiques de Vénus existants. Le nombre total de gouttelettes ne change pas car le transfert de masse ne s'applique que sur le volume des particules (le moment d'ordre 3). Sauf, lorsque toutes les gouttelettes s'évaporent, le nombre total de particules (M₀) devient nul.

Altitude (km)	H_2O (ppmv)	$H_2SO_4 (ppmv)$
40 - 60	15,0	0,01
60 - 80	3,0	$0,\!01$

TAB. 6.5 – Profils initiaux des vapeurs d'eau et d'acide sulfurique. Les valeurs sont basées sur la figure 7.14 de Stolzenbach (2016) où sont représentées les quantités condensées et gazeuses pour les deux espèces en fonction de l'altitude.

Nous remarquons qu'à 55,5 km et 57,5 km, le rayon médian de la distribution en taille des gouttelettes ainsi que le volume total diminuent jusqu'à l'évaporation complète des gouttelettes (figures 6.14 et 6.15). Le taux d'accroissement défini dans le chapitre 3 dépend de la température et du rapport de saturation. À 55,5 et 57,5 km, la température est telle que les conditions sont sous-saturées ce qui entraîne l'évaporation des gouttelettes. Avec cette évaporation, le rayon médian de la distribution en taille diminue ce qui participe à l'augmentation du taux de saturation (équation 5.18) et donc l'évaporation s'emballe. Ceci explique la chute de plus en plus accélérée du volume et du rayon pour ces deux altitudes.



FIG. 6.13 – Profils VIRA de pression et de température pour des valeurs de latitudes comprises entre 0 et 30°.

Ensuite, pour les altitudes situées de 59,5 à 70,5 km, le rayon médian augmente avec le temps ainsi que le

volume total. Il y a condensation et les gouttelettes grossissent plus efficacement à 59,5 km qu'aux altitudes supérieures (figure 6.14). Ainsi, plus on monte en altitude, moins la condensation est efficace. Avec l'altitude, la température diminue donc la saturation critique de l'acide sulfurique augmente (équation 3.17) ce qui affecte la différence de taux de saturation dans le taux de croissance qui diminue à son tour (équation 3.45). Nous atteignons même des conditions, à 77,5 km, où le processus de transfert de masse s'applique en début de simulation (légère sur-saturation), le rayon augmente puis stagne car la vapeur disponible a été utilisée, entrainant une baisse du rapport de saturation, et la distribution des gouttelettes se trouve dans un état d'équilibre. À chaque altitude, le modèle atteint cet état d'équilibre à des temps différents. Ainsi, sans transport, les conditions thermodynamiques les plus favorables à l'accroissement des gouttelettes se situent vers 60 km d'altitude avec ce profil sursaturé (voir figure 6.14).



FIG. 6.14 – Variation du moment d'ordre 3 (proportionnel au volume total) pour différents points de l'atmosphère de Vénus. Les températures et pressions de chaque point sont définies à partir du profil VIRA pour des valeurs de 0 à 30° de latitude (figure 6.13).



FIG. 6.15 – Variation du rayon médian pour différents points de l'atmosphère de Vénus. Les températures et pressions de chaque point sont définies à partir du profil VIRA pour des valeurs à 30° de latitude (figure 6.13).

Si l'on ajoute le mode-merging au transfert de masse, nous obtenons un mode 1 qui grossit jusqu'à former un mode 2 grâce à la migration des particules du mode 1 vers le mode 2. Le nombre total de particules du mode 1 diminue. Du fait de leur grand nombre, cette diminution est très peu visible à 65,5 km (figure 6.16). Le nombre total de gouttelettes du mode 2 augmente, alimenté par le mode 1 et le nombre total de particules de la distribution augmente très rapidement pendant 200 s (nous passons de 0 à $3 \cdot 10^7$ particules m⁻³) puis plus lentement jusqu'à atteindre $4,5 \cdot 10^7$ particules m⁻³ après 1000 s de simulation.

Naturellement, ce sont les plus grosses particules du mode 1 qui migrent vers le mode 2, c'est pourquoi le



FIG. 6.16 – Application de la condensation et du mode-merging à 65,5 km d'altitude dans l'atmosphère de Vénus. Variation du moment d'ordre 0 (égal au nombre total de particules de la distribution en taille) du mode 1 et 2. Initialement, seul le mode 1 contient des gouttelettes. Le mode 2 est rempli grâce au mode-merging.

moment d'ordre 3 (proportionnel au volume total de la distribution) diminue plus rapidement que le moment d'ordre 0 pour le mode 1 (figures 6.16 et 6.17). En effet, $M_3 \propto \bar{r}_{pg}^3 M_0$, et dans le cas de la diminution du M_3 du mode 1, celle-ci est gouvernée par la décroissance du rayon médian du mode 1 (figure 6.18). Le rayon du mode 2 vient à se stabiliser comme les moments d'ordre 0 et 3 de ce mode.



FIG. 6.17 – Application de la condensation et du mode-merging à 65,5 km d'altitude dans l'atmosphère de Vénus. Variation du moment d'ordre 3 (proportionnel au volume total de particules de la distribution en taille) des modes 1 et 2. Initialement, seul le mode 1 contient des gouttelettes.

6.2.3 Impact de la coagulation brownienne et du mode-merging

Nous présentons ici uniquement les résultats à 65,5 km pour la coagulation et le *mode-merge*. La coagulation et le mode-merging ont été appliqués à d'autres points de l'atmosphère (40, 50, 60...79 km) et les



FIG. 6.18 – Application de la condensation et du mode-merging à 65,5 km d'altitude dans l'atmosphère de Vénus. Variation du rayon des modes 1 et 2. Initialement, seul le mode 1 contient des gouttelettes.

valeurs ainsi que l'évolution des modes ne changent pratiquement pas pour des valeurs initiales identiques à celles présentées dans le tableau 6.6.

Comme nous l'avons précisé dans les chapitres précédents, le mode 2 est initialement formé à partir de la migration des gouttelettes du mode 1 grâce au mode-merging. Nous avons vu la croissance des particules du mode 1 avec la condensation, et nous étudions à présent l'effet de la coagulation sur les modes 1 et 2. Seul le mode 1 est initialisé (tableau 6.6) avec des gouttelettes présentes en début de simulation.

La coagulation intermodale entraîne une augmentation du rayon du mode 1 dont une partie va rejoindre le mode 2. Une fois formé, le mode 2 va entrer en coagulation intermodale et intramodale. Ces intéractions vont entraîner une diminution du nombre de particules dans le mode 1 et une augmentation du nombre de gouttelettes dans le mode 2 (figure 6.19). Contrairement aux simulations du transfert de masse du paragraphe précédent, la figure 6.20 montre que le rayon médian du mode 2 ne varie quasiment pas et que l'augmentation de M₃ est gouvernée, à cette altitude, uniquement par l'augmentation de sa population (M₀). Comme le nombre de particules du mode 1 est beaucoup plus important que le nombre de particules du mode 2, la décroissance sur la figure 6.19 est moins visible. Les comportements observés dans les figures 6.19 et 6.21 sont similaires à ceux obtenus avec les figures 6.17 et 6.16 pour la condensation/évaporation présentées dans la section précédente.

Altitude	$55 \mathrm{~km}$
Température	$302,3 \mathrm{K}$
Pression	53,14·10 ³ Pa
σ_1	1.56
r_{p1}	$3 \cdot 10^{-7} \mathrm{m}$
N_{tot1}	$2 \cdot 10^8$ particules m ⁻³

TAB. 6.6 – Valeurs de température et de pression pour un point de l'atmosphère situé à 55 km d'altitude. Les valeurs sont issues d'un profil VIRA défini entre 0 et 30° de latitude. Les valeurs nécessaires à l'initialisation du mode 1 sont données par σ_1 , r_{p1} et N_{tot1} qui représentent respectivement l'écart-type, le rayon médian et le nombre total de gouttelettes de la distribution en taille de particule du mode 1.



FIG. 6.19 – Variation du moment d'ordre 0 des modes 1 et 2 en fonction du temps. M_0 représente le nombre total de particules de la distribution. À l'état initial, le mode 1 est initialisé suivant les valeurs données dans le tableau 6.6 pour un point de l'atmosphère vénusienne situé à 55 km d'altitude. Le mode 2, vide à t = 0 s, est formé par mode-merging en 2 s. La coagulation intra-modale et inter-modale ont également lieu.



FIG. 6.20 – Variation du rayon des modes 1 et 2 en fonction du temps. À l'état initial, le mode 1 est initialisé suivant les valeurs données dans le tableau 6.6 pour un point de l'atmosphère vénusienne situé à 55 km d'altitude. Le mode 2 est formé par mode-merging. La coagulation intra-modale et inter-modale ont également lieu.



FIG. 6.21 – Variation du moment d'ordre 3 des modes 1 et 2 en fonction du temps. M_3 est proportionnel au volume total des particules de la distribution. À l'état initial, le mode 1 est initialisé suivant les valeurs données dans le tableau 6.6 pour un point de l'atmosphère vénusienne situé à 65,5 km d'altitude. Le mode 2, vide au départ, est ensuite initié par le mode-merging. La coagulation intra-modale et inter-modale ont également lieu.

6.3 Conclusion sur les résultats

La comparaison entre SALSA et MAD-Muphy n'est pas complète mais nous montre que MAD-Muphy a des comportements physiquement viables. Les résultats obtenus sont cohérents avec les tests effectués dans le chapitre 3.

Les principales différences rencontrées entre les deux modèles sont liées aux hypothèses prises pour développer MAD-Muphy, à savoir une forme fixe de la distribution et la prise en compte des paramètres globaux. Malgré cette simplification, les résultats de MAD-Muphy ne sont pas incohérents sur le plan numérique et physique. De nouvelles comparaisons, avec un forçage du calcul du pourcentage massique d'acide sulfurique dans les gouttelettes dans le modèle SALSA nous permettrait de comparer seulement la partie microphysique des deux modèles.

Une comparaison entre les résultats de MAD-Muphy et des observations nous permettrait de valider définitivement mon modèle. Pour cela, il serait intéressant d'obtenir des résultats avec le VGCM 1D puis 3D ce qui nous permettrait de prendre en compte le cycle diurne de la température, le cycle photochimique et la dynamique atmosphérique. Chacun de ces éléments joue un rôle dans la microphysique et nous permet d'obtenir des résultats sur la capacité du modèle de reproduire d'une façon réaliste les nuages de Vénus, en les confrontant aux observations.

Malgré cela, nous avons réussi à mettre en place un modèle microphysique 0D comprenant deux types de nucléation, le transfert de masse et la coagulation. MAD-Muphy, actuellement couplé au VGCM, promet d'apporter de nouveaux résultats sur la formation des nuages de Vénus.

Cinquième partie

Conclusion

Chapitre 7

Conclusion générale et perspectives

Le modèle de climat global de Vénus fait partie de la famille des GCM planétaires (Mars, Pluton, Titan) développés au sein de l'IPSL. Le développement principal est assuré par le Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMD). Le LATMOS contribue majoritairement à l'implémentation des modules de chimie et de microphysique. Le VGCM est toujours en développement au sein de ces deux laboratoires. L'extention de l'atmosphère en altitude au domaine non-LTE a été développé par Gilli et al. (2017). La photochimie et un modèle de nuage paramétré ont été inclus dans le VGCM par Stolzenbach (2016). En parallèle de mon travail de thèse, le développement du modèle méso-échelle (Lefèvre et al., 2017) est en cours.

Avant ce travail de thèse, le VGCM s'appuyait sur différentes représentations paramétrées de la structure nuageuse pour calculer le transfert de rayonnement et la condensation à l'équilibre des espèces condensables dans le cadre de la photochimie. Le VGCM ne possédait pas de modèle microphysique. La structure nuageuse en altitude et latitude était un paramètre libre, faiblement contraint par les observations, dont il fallait étudier l'impact sur le phénomène physique calculé (profil de température, photochimie, etc). Un modèle de microphysique permet de s'affranchir de cette paramétrisation. Les résultats du modèle microphysique permettent la comparaison aux observations disponibles et la prédiction de la structure nuageuse là où les observations manquent.

En amont de cette thèse existent des modèles microhysiques de Vénus, la plupart en une dimension, quelques-un en 2D. Les représentations 3D des nuages sont celles de Lee et al (2010), de Yamamoto and Tanaka (1998) et celle issue du module photochimique du VGCM de l'IPSL. Les modèles à une dimension ne peuvent pas être inclus dans le VGCM du fait de leur coût élevé en temps de calcul. C'est pourquoi, afin de mener à bien ce projet de thèse, je me suis intéressé à la méthode utilisée pour la microphysique dans le GCM Titan (Burgalat, 2012) qui utilise des valeurs intégrées de distribution des aérosols, les moments.

Durant un an, j'ai travaillé exclusivement sur un modèle microphysique spectral de Vénus en taille de rayons développé par Määttänen et al. (2016) et appelé VenLA. Cette première prise en main d'un modèle de microphysique m'a permis d'appréhender la manipulation des équations de la microphysique et leur résolution numérique. L'objectif de cette tâche était de finaliser ce modèle et de le publier dans la littérature scientifique afin d'obtenir un modèle de référence auquel nous aurions comparé les résultats du modèle microphysique en moments. Puis, lors de ma seconde année, en parallèle de mon travail sur VenLA, j'ai développé MAD-Muphy qui possède une microphysique équivalente à VenLA mais en résolvant les équations de la microphysique à l'aide d'un couple de moments. Au cours de ma deuxième année de thèse, le travail sur VenLA a été mis à l'écart afin que je me consacre entièrement au développement de mon modèle microphysique à base de moments, appelé MAD-Muphy.

Dans un premier temps, nous avons déterminé les hypothèses physiques de départ pour notre modèle, en

s'appuyant sur la littérature. Nous avons ainsi décidé de prendre en considération quatre processus microphysiques (nucléation homogène, nucléation hétérogène, transfert de masse, coagulation) auxquels sont venus s'ajouter la sédimentation et l'outil numérique de mode-merging. Afin de limiter la complexité des équations, nous avons décidé de fixer l'écart-type géométrique de les distributions en taille des particules et de garder une variabilité sur leur rayon médian. Cela a pour conséquence l'utilisation de seulement deux moments par distribution en taille des gouttelettes. Il existe des observations instrumentales permettant d'étudier le rayon médian pour les nuages de Vénus contrairement à l'écart-type géométrique. Il est important de noter que compte tenu des nombreuses incertitudes concernant la nature et l'existence même du mode 3, celui-ci n'a pas été pris en compte dans le développement de MAD-Muphy. Ces hypothèses m'ont permises de réécrire les équations de la microphysique avec le couple de moment choisi (M_0 , M_3) auquel j'applique par la suite un schéma implicite de premier ordre comme méthode de résolution numérique.

J'ai développé un modèle à zéro dimension qui permet d'étudier séparément les processus microphysiques et de nous assurer de la conservation de la masse des espèces chimiques condensables mises en jeu. Comme nous n'avons pas pu effectuer une comparaison avec VenLA, nous nous sommes tourné vers un autre modèle, appliqué à la Terre et nommé SALSA, dans le but d'effectuer une comparaison avec les résultats de MAD-Muphy. Malheureusement, les mises à jour nécessaires apportées à SALSA par Anton Laakso, afin de comparer les résultats de SALSA avec ceux de MAD-Muphy, ont entraîné de nombreux dysfonctionnements sur lesquels nous travaillons encore. Cette comparaison nous permettrait une validation de notre modèle et une meilleure compréhension de la différence de comportement entre les modèles utilisant une grille de rayons et les modèles utilisant des moments. Bien que les comparaisons restent inachevées, celles entre MAD-Muphy et SALSA nous ont montré que mon modèle reproduit de façon correcte la coagulation et qu'il se comporte de façon attendue concernant les autres processus.

Les résultats obtenus en 0D avec MAD-Muphy montrent que le modèle ne diverge pas et que les résultats sont physiquement cohérents. Bien que les tests ont été réalisés en 0D, nous avons constaté qu'à différentes altitudes dans des conditions similaires à l'atmosphère de Vénus, la nucléation hétérogène semble bien plus efficace que la nucléation homogène. Bien entendu, la nucléation hétérogène est dépendante de la distribution en nombre de CCN initiaux ainsi que de leur altitude d'insertion. Les résultats obtenus sont encourageants et nous incitent à poursuivre notre étude des nuages de Vénus avec MAD-Muphy en trois dimensions, via le VGCM. Ces simulations incluraient alors la dynamique globale, la variation diurne de la température et l'évolution des espèces chimiques au cours du temps.

D'un point de vue microphysique, la prochaine étape pour MAD-Muphy est l'ajout de la coalescence. Il est intéressant de considérer l'importance de la nucléation ionique dans la formation de la brume haute et de la couche nuageuse supérieure, ou encore d'étudier l'importance du relâchement de la chaleur latente après condensation des gouttelettes.

À l'heure actuelle, MAD-Muphy est déjà incorporé au VGCM de l'IPSL. Cependant, aucune simulation n'a pas pu être lancée à temps pour le manuscrit de thèse. D'une part, nous réaliserons des simulations en une dimension afin de comparer les résultats à ceux en 1D du modèle CARMA de McGouldrick et al. (2007, 2008). Cette étape nous permettra de valider l'utilisation de notre modèle avec le VGCM 1D. D'autre part, les simulations en trois dimensions seraient scientifiquement riches.

Des simulations 3D grâce au GCM nous permettraient d'étudier les variations en latitude, heure locale et altitude des nuages. Il serait intéressant de voir si le VGCM avec la microphysique réussit à reproduire la structure nuageuse en trois couches ainsi que les brumes qui les entourent (Knollenberg and Hunten, 1980; Wilquet et al., 2009). Cela inclut l'étude de la densité en nombre, les variations du rayon médian, l'étude de la bi/unimodalité, de la répartition de la masse condensée entre les modes 1 et 2, l'efficacité de la nucléation homogène et enfin de la nécessité des CCN dans la formation des gouttelettes. Nous étudierons également l'impact des processus microphysiques sur les espèces condensables et nous pourrions comparer les résultats du VGCM avec et sans microphysique (Stolzenbach, 2016). Des simulations avec différents scénarios d'initialisation de CCN peuvent nous renseigner sur leur répartition dans l'atmosphère de Vénus. Malgré l'abscence du mode 3 dans notre modèle microphysique, le mode 1 et 2 peuvent-ils à eux seuls reproduire les observations? Si oui, quelles sont les implications sur la composition du mode 3 ou même sur son existence? Doit-on intégrer une nouvelle distribution à MAD-Muphy? Enfin, quels sont les temps caractéristiques de chaque processus microphysiques mis en jeu?

Les simulations en trois dimensions, comparées avec les observations instrumentales comme celles de *Pioneer Venus*, de *Venus Express* ou de *Akatsuki* seront la dernière étape de validation de MAD-Muphy et pourront nous apporter une meilleure compréhension de l'atmosphère de Vénus. Notre modèle, associé aux données d'une mission in-situ dans les nuages de Vénus (comme la mission *VAMP*, *DAVINCI* ou encore *Venus Entry Probe* proposée en 2009) est l'objectif scientifique idéal et l'utilisation optimale d'un modèle comme MAD-Muphy couplé au VGCM.

Sixième partie

Annexes et Bibliographie

Annexe A

L'enfer sur terre : une possible biosphère sur Vénus?

A.1 Zone d'habitabilité dans les nuages

Les conditions atmosphériques ont stérilisé la surface de cette planète. Toute biosphère qui se serait développée a donc été détruite. Cependant, l'idée d'une migration des micro-organismes vers une zone plus habitable n'est pas à écarter. La vie sur Vénus persiste peut-être aujourd'hui dans la haute atmosphère où la température et le pH sont tolérables pour des organismes extremophiles terrestres connus à ce jour (voir l'annexe A.4). Il s'agit donc d'une zone habitable aérienne. La haute atmosphère combinée à la haute acidité ont permis à Dartnell et al. (2015) de définir une zone d'habitabilité dans les nuages située entre 51 km (65°C) et 62 km (-20°C) d'altitude. En revanche, si cette bande étroite est stérilisée, il n'y a pas de réservoir de vie en profondeur pour recoloniser cette zone aérienne habitable.

À l'aide d'échantillons prélevés à 3106 m d'altitude, Sattler et al. (2001) montrent que des bactéries sur Terre grandissent, se reproduisent et produisent des protéines dans l'atmosphère à haute altitude. Selon eux, le seul facteur limitant de la vie dans les nuages terrestres est le temps de résidence. Contrairement aux nuages terrestres, les nuages vénusiens sont stables et représentent un milieu global et continu où les aérosols sont en suspension pendant plusieurs mois et non seulement quelques jours comme sur Terre. Cette stabilité permet un temps de résidence des microbes beaucoup plus élevé que sur notre planète. Cet environnement représente donc une niche stable si les micro-organismes souhaitent s'y loger (Grinspoon 1997, Schulze-Makuch et al. 2013).

Comme le souligne Schulze-Makuch dans son article de 2004, dans les nuages de Vénus, les conditions sont donc plus favorables à la vie que dans les nuages terrestres.

Nous pouvons également ajouter que la super-rotation des nuages permet d'améliorer le potentiel des réactions photosynthétiques en réduisant le temps d'obscurité. En effet, dans les nuages, le jour solaire est de 4 à 6 jours terrestres contrairement au 117 jours terrestres à la surface. En revanche, même si la zone d'habitabilité se situe dans les nuages, le flux solaire ne semble pas constituer un obstacle à la vie (voir aussi la section A.2 page 132 de l'annexe).

L'existence de vie sur Vénus ne peut être établie que grâce à une mission avec retour d'échantillons prélevés dans la couche nuageuse de Vénus. Cette prouesse reste technologiquement faisable (Schulze-Makuch et al. 2002).
A.2 Flux solaire

Les ultra-violets sont dommageables pour les macro-molécules biologiques. Il s'agit d'un frein à la vie. Le maximum d'absorption dans les nuages se situe à 285 nm (proche UV) ce qui endommage fortement les micro-organismes. Les flux reçus dans les nuages de Vénus, qui est plus proche de notre étoile que notre planète, sont non-négligeables, surtout dans les nuages. Il existe cependant des alternatives. En effet, certains microbes comme les *cyanobactéries* et les *Deinococcus radiodurans* utilisent des mécanismes pour réparer leur ADN et les protéïnes UV-sensibles (Battista, 1997; Ehling-Schulze and Scherer 1999). Un autre exemple d'adaptation aux grands rayons UV connu sur Terre est le champignon *Fusarium alkanophylum*.

L'hypothèse de Schulze-Makuch (2004) est qu'une couche d'acide sulfurique liquide qui engloutit un noyau de S_8 va absorber une portion significative de rayonnement UV rencontrée par les micro-organismes leur permettant ainsi de survivre. L'utilisation de S_8 contre les radiations UV comme couche protectrice par des micro-organismes expliquerait pourquoi nous n'observons pas d'absorption par les hydrocarbones (Plummer, 1969).

Enfin, Dartnell et al. (2015) montrent que le flux UV reçu dans les nuages de Vénus ne constitue pas un obstacle insurmontable à la vie.

A.3 Flux cosmique

Comme les rayons UV, les radiations ioniques sont mauvaises pour la vie. En effet, le rayonnement cosmique crée un champ de radiation ionique ce qui est nuisible pour les molécules organiques. À 62 km, Vénus reçoit $0,200 \text{ kg/cm}^2$ ce qui est beaucoup moins que ce que reçoit la Terre à sa surface (1,033 kg/cm²; Schulze-Makuch, 2004; Frankland et al., 2016).

En revanche, comparée à la Terre, la biosphère vénusienne pourrait être exposée à plus de radiations cosmiques ionisées car cette planète n'a pas de champ magnétique et son orbite est plus proche du Soleil.

Les conséquences du flux ioniques dans les nuages sont encore à l'étude (Dartnell et al., 2015). Nous avons fait mention de micro-organismes. Mais existe t-il des candidats potentiels connus sur Terre?

A.4 Extrêmophiles terrestres

Les nuages constituent une véritable niche pour les micro-organismes et non une simple phase de transport entre surfaces (Womack et al., 2010). Dans la stratosphère terrestre, des échantillons prélevés par ballons stratosphériques ont mis en évidence la présence de bactéries à ces altitudes (Harris et al., 2001; Wainwright et al., 2003). La découverte de cette biosphère a été confirmée par des vols d'avions à haute altitude (Smith et al., 2010).

Pour que des micro-organismes puissent vivre, il est nécessaire d'avoir à disposition des sources d'énergie disponibles. Dartnell et al. (2015) liste les sources suivantes : la photosynthèse, l'absorption possible dans l'UV employant l'oxydation du sulfure d'hydrogène (Schulze-Makuch et al., 2014) ou la réduction chimiotrophique du sulfate (Cockell, 1999). En effet, Schulze-Makuch et al. (2014) définissent un éco-système vénusien qui couple les organismes photoautotrophes oxydant le soufre et les chimiotrophes réduisant le soufre.

De façon générale, les micro-organismes extremophiles terrestres ¹ vivent entre 120° C et -20° C (Cavicchioli, 2002). Mais peuvent-ils résister à l'acidité de l'atmosphère de Vénus?

¹Afin de faciliter les comparaisons et les extremopiles présent sur d'autres astres, Majhi et al. 2013 a mis en place une base de données des extremophiles *ExtremeDB*.

Des organismes hyperthermophiliques acidophiles ont été trouvés dans des eaux d'acide chaudes, comme les *Acidianus infernus* (Segerer et al., 1986). Ces microrganismes ont une température optimale de croissance de 88°C et peuvent vivre dans un milieu dont le pH est proche de 0,5.

Même si les sites analogues terrestres n'offrent pas une température et une acidité comparable à celle de Vénus (Preston and Dartnell, 2014) il existe des extremophiles thermoacidophiles terrestres connus pour tolérer à la fois les hautes températures et les pH bas. Il s'agit des *archaea*. Dans cette famille de micro-organismes, les organismes les plus extrêmes connus à ce jour sont les *Picrophilus genus*. Ces archaea grandissent à ph nul ou inférieur à zéro pour des températures ne dépassant pas 65°C (Schleper et al., 1995, 1996; Fütterer et al., 2004; Thürner et al., 2011.).

Malgré tous ces analogies terrestres, aujourd'hui il n'y a toujours pas de preuve de vie terrestre extremophile pour un pH ~ 2 autour des 45°C. Existerait-il donc une forme de vie propre à Vénus pouvant résister aux conditions infernales de cette planète ?

A.5 Nouvelle forme de vie propre à Vénus?

L'acidité de l'atmosphère a augmenté durant les premiers 600 millions d'années et après la formation de Vénus (Kumar et al., 1983). Les formes de vie peuvent avoir évoluées différemment pour s'adapter progressivement aux conditions acides de cette planète.

Cette idée d'une nouvelle forme de vie est également soutenue par Ksanfomality (2013) qui souligne les conditions infernales sur Vénus et que cette planète requiert un métabolisme inconnu pour survivre là-bas. Il pousse sa théorie jusqu'à la présence possiblement observée de forme de vie à la surface de Vénus par les prises panoramiques des missions VENERA. Il observe ainsi une flore ("anémone" et "buisson", Ksanfomaliti, 2013) une faune ("scorpion", Ksanfomaliti, 2012), même s'il n'écarte pas l'observation d'une hypothétique formation de type volcanique.

Annexe B

Masse volumique des poussières météoritiques

Type de particules	Masse volumique	Référence
IDP ¹	$2500 \mathrm{~kg/m^3}$	Jessberger et al. (2001)
	2000 kg/m^3	Staubach and Grun (2001) Poppe et al. (2011) Listowski et al. (2014) Weigel et al. (2014) Nesvorný et al. (2010) Sterken et al. (2014)
Soufre	1800 kg/m^3	Imamura and Hashimoto (2001)
Grains cométaires	1000 kg/m^3	Nesvorný et al. (2010) Wiegert et al. (2009)
Poussières météoritiques	2000 kg/m^3	Hunten et al. (1980)
Particules météoritiques secondaires (issues de la recondensation du mat. ablaté).	2000 kg/m^3 2500 kg/m^3	Hunten et al. (1980) Kalashnikova et al. (2000) Bardeen et al. (2008)
Poussières volcaniques	2160 kg/m^3	Rocha-Lima et al. (2014)
Moyenne entre soufre et poussières météoritiques	1900 kg/m ³	Gao et al. (2014)

 $TAB. \ B.1 - Tableau \ regroupant \ les \ masses \ volumiques \ des \ différents \ noyaux \ de \ condensation \ trouvées \ dans \ la \ littérature.$

Annexe C

Détermination d'un régime d'écoulement

C.1 Nombre de Reynolds

Un régime d'écoulement caractérise l'état de l'écoulement du fluide. Il existe trois régimes dynamiques différents : laminaire, transitoire et turbulent.

Un régime est dit **laminaire** lorsque la vitesse d'écoulement du fluide évolue de façon continue en fonction du temps et de l'espace. De plus, les trajectoires des particules sont confondues avec les lignes de courant qu'elles ne couperont jamais. Aussi, la vitesse d'écoulement est faible.

En revanche, un régime est **turbulent** si les trajectoires des particules du fluide sont chaotiques, nous ne pouvons donc pas déterminer ces trajectoires ni suivre les particules. La taille des particules est suffisament petite pour se confondre avec l'écoulement des molécules. Ainsi, tout se mélange et la vitesse d'écoulement du fluide est élevée. Enfin, le régime **transitoire** est, comme son nom l'indique, situé entre les deux cas décrits précédemment. Cela signifie que les propriétés du gaz découlent de la combinaison des deux autres régimes. Le nombre de Reynolds (Re) représente le rapport entre l'inertie et les forces de viscosité dans le fluide. Ce nombre sans dimension nous permet de déterminer le régime dynamique du fluide étudié. Son expression mathématique est la suivante :

$$\operatorname{Re} = \frac{u_0 \,\rho \,L}{\mu} \tag{C.1}$$

avec :

- L la longueur caractéristique (m);
- μ la viscosité dynamique du fluide (Pa s);
- u_0 la vitesse caractéristique du fluide (m s⁻¹);
- ρ la masse volumique du fluide (kg m⁻²).

Pour un flux entourant la particule submergée dans le fluide, nous avons :

- . $L = D_{\rm p}$ le diamètre de la particule;
- . $u_0=u_\infty$ si le fluide est sans turbulence en amont de la particule.

Ainsi l'équation (C.1) peut s'écrire :

$$Re = \frac{u_{\infty} D_{p} \rho}{\mu} \tag{C.2}$$

Dans le cas où les forces d'inertie sont négligeables face aux forces visqueuses alors les forces visqueuses et les forces de pression s'équilibrent. Il s'agit de l'écoulement de Stokes qui correspond à un très faible nombre de Reynolds. Ensuite, en fonction de la valeur du nombre de Reynolds, nous pouvons dire dans quel régime nous nous situons :

- Re < 2000 : le régime est laminaire ;
- 2000 < Re < 3000 : le régime est transitoire ;

- 3000 < Re : le régime est turbulent.

C.2 Libre parcours moyen

Le libre parcours moyen est le trajet moyen que parcourt une particule ou une molécule entre deux collisions. Dans le cas d'un gaz pur contenant des molécules de l'espèce B, le libre parcours moyen λ_{BB} peut s'écrire :

$$\lambda_{\rm BB} = \frac{\bar{c_{\rm B}}}{Z_{\rm BB}} \tag{C.3}$$

avec $\bar{c_B}$ la vitesse moyenne des molécules composant le gaz pur et Z_{BB} le taux de collision. Soient σ_B la taille de la molécule, M_B la masse molaire, R la constante universelle des gaz parfaits, P_B la pression du gaz et T la température du fluide, tel que :

$$\bar{c_{\rm B}} = \left(\frac{8RT}{\pi M_{\rm B}}\right)^{1/2} \tag{C.4}$$

 \mathbf{et}

$$Z_{\rm BB} = \sqrt{2}\pi\sigma_{\rm B}^2 \bar{c}_{\rm B} N_{\rm B} \tag{C.5}$$

Alors, nous avons :

$$\lambda_{\rm BB} = \frac{1}{\sqrt{2}\pi\sigma_{\rm B}^2 N_{\rm B}} \tag{C.6}$$

En considérant $\mu_{\rm B}$ la viscosité du gaz, alors l'équation (C.3) prend alors la forme :

$$\lambda_{BB} = \frac{2\mu_{\rm B}}{P_{\rm B}(8M_{\rm B}/\pi RT)^{1/2}} \tag{C.7}$$

le libre parcours moyen est ainsi lié aux propriétés microscopiques mesurables du gaz comme par exemple la viscosité dynamique du gaz (μ_B) déterminée par la théorie cinétique des gaz. En revanche, cette expression (C.7)ne prend en compte qu'une seule particule en mouvement, le reste est supposé immobile. Par conséquent, nous surestimons le nombre de collisions.

À présent, si nous nous intéressons à la diffusion d'une molécule gazeuse A dans le gaz environnant B, les équations décrites précédemment prennent une autre forme. Tout d'abord, le libre parcours moyen des distances parcourues par A avant de collisionner A ou B, noté λ_{AB} , est donné par :

$$\lambda_{AB} = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_{\rm A}^2 N_{\rm A} + \pi (1+z)^{1/2} \sigma_{\rm AB}^2 N_{\rm B}}} \tag{C.8}$$

où N_A est le nombre de molécules A, σ_A le diamètre de collision de ces molécules et z le rapport de masse ou masse moléculaire :

$$z = \frac{m_{\rm A}}{m_{\rm B}} = \frac{M_{\rm A}}{M_{\rm B}} \tag{C.9}$$

Pour une collision binaire, la distance entre A et B n'est pas mesurable mais nous utilisons l'expression suivante :

$$\sigma_{\rm AB} = \frac{\sigma_{\rm A} + \sigma_{\rm B}}{2} \tag{C.10}$$

Nous pouvons également noter que si nous avons $N_{\rm A} \ll N_{\rm B}$ alors l'équation (C.8) devient :

$$\lambda_{\rm AB} = \frac{1}{\pi (1+z)^{1/2} \sigma_{\rm AB}^2 N_{\rm B}} \tag{C.11}$$

Le libre parcours moyen d'une particule nous permet de caractériser l'écoulement du fluide d'un point de vue cinétique en déterminant la valeur du nombre de Knudsen.

C.3 Nombre de Knudsen

Le nombre de Knudsen, noté Kn, nous permet d'établir le régime d'écoulement en terme de continuité du fluide étudié. Ce nombre prend en compte le libre parcours moyen λ de la particule que l'on suit dans un gaz pur B :

$$Kn = \frac{2\lambda_{BB}}{D_p} = \frac{\lambda_{BB}}{R_p}$$
(C.12)

avec D_p le diamètre de la particule et R_p le rayon de la particule. La valeur obtenue avec l'équation (C.12) nous permet de déterminer le régime d'étude :

- Kn << 1 : régime visqueux ou régime continue ;

- Kn ~ 1 : régime intermédiaire ;

- Kn >> 1 : régime moléculaire ou régime cinétique.

Pour le cas d'un gaz binaire contenant des molécules de l'espèce chimique A et de l'espèce B, le nombre de Knudsen s'écrit :

$$Kn = \frac{2\lambda_{AB}}{D_p} = \frac{\lambda_B}{R_p}$$
(C.13)

C.4 Nombre de Reynolds ou nombre de Knudsen?

Un écoulement hydrodynamique est décrit par l'équation dynamique de Navier-Stokes qui décrit des champs locaux de vitesse, de pression, etc. Le nombre de Knudsen nous permet de déterminer la validité de cette équation pour décrire un écoulement. Si ce nombre est grand devant l'unité (Kn > 1) alors l'approche hydrodynamique n'est pas adaptée et il faut prendre en compte la théorie cinétique des gaz.

En revanche, le nombre de Reynolds compare directement les termes de viscosité et d'advection des équations de Navier-Stokes. Ce nombre est donc défini et utilisé dans la description hydrodynamique de l'écoulement.

Bibliographie

- [Airey et al., 2015] Airey, M. W., Mather, T. A., Pyle, D. M., Glaze, L. S., Ghail, R. C., and Wilson, C. F. (2015). Explosive volcanic activity on Venus : The roles of volatile contribution, degassing, and external environment. *Planet. Space Sci.*, 113-114 :33–48.
- [Aplin and Lockwood, 2015] Aplin, K. L. and Lockwood, M. (2015). Further considerations of cosmic ray modulation of infra-red radiation in the atmosphere. *Astropart. Phys.*, 68:52–60.
- [Arnold et al., 2009] Arnold, G., Haus, R., Kappel, D., Drossart, P., and Piccioni, G. (2009). Venus surface data extraction from VIRTIS/Venus express measurements : Estimation of a quantitative approach. J. Geophys. Res. E Planets, 114(5) :1–13.
- [Arrhenius, S. and Fries, 1918] Arrhenius, S. and Fries, J. (1918). The Destinies of the Stars. G.P. Putnam's Sons.
- [Audouze and Israël, 1983] Audouze, J. and Israël, G. (1983). Le grand atlas de l'astronomie. Encyclopae edition.
- [Avduevsky et al., 1973] Avduevsky, M., Marov, M., Moshkin, E., and Ekonomov, A. P. (1973). Venera 8 : Measurements of Solar Illumination Through the Atmosphere of Venus 1. J. Atmos. Sci., 30 :1215–1218.
- [Barnes et al., 2016] Barnes, J. W., Quarles, B., Lissauer, J. J., Chambers, J., and Hedman, M. M. (2016). Obliquity Variability of a Potentially Habitable Early Venus. Astrobiology, 16(7):487–499.
- [Barstow et al., 2012] Barstow, J. K., Tsang, C. C. C., Wilson, C. F., Irwin, P. G. J., Taylor, F. W., Mc-Gouldrick, K., Drossart, P., Piccioni, G., and Tellmann, S. (2012). Models of the global cloud structure on Venus derived from Venus Express observations. *Icarus*, 217(2):542–560.
- [Basilevsky et al., 2012] Basilevsky, A. T., Shalygin, E. V., Titov, D. V., Markiewicz, W. J., Scholten, F., Roatsch, T., Kreslavsky, M. A., Moroz, L. V., Ignatiev, N. I., Fiethe, B., Osterloh, B., and Michalik, H. (2012). Geologic interpretation of the near-infrared images of the surface taken by the Venus Monitoring Camera, Venus Express. *Icarus*, 217(2) :434–450.
- [Battista, 1997] Battista, J. R. (1997). AGAINST ALL ODDS :The Survival Strategies of <i>Deinococcus radiodurans</i>. Annu. Rev. Microbiol., 51(1) :203–224.
- [Belyaev et al., 2012] Belyaev, D. A., Montmessin, F., Bertaux, J. L., Mahieux, A., Fedorova, A. A., Korablev, O. I., Marcq, E., Yung, Y. L., and Zhang, X. (2012). Vertical profiling of SO 2 and SO above Venus' clouds by SPICAV/SOIR solar occultations. *Icarus*, 217(2) :740–751.
- [Bertaux et al., 2016] Bertaux, J. L., Khatuntsev, I. V., Hauchecorne, A., Markiewicz, W. J., Marcq, E., Lebonnois, S., Patsaeva, M., Turin, A., and Fedorova, A. (2016). Influence of Venus topography on the zonal wind and UV albedo at cloud top level : The role of stationary gravity waves. J. Geophys. Res. Planets, 121(6) :1087–1101.
- [Bertaux et al., 2007] Bertaux, J. L., Nevejans, D., Korablev, O., Villard, E., Quémerais, E., Neefs, E., Montmessin, F., Leblanc, F., Dubois, J. P., Dimarellis, E., Hauchecorne, A., Lefèvre, F., Rannou, P., Chaufray, J. Y., Cabane, M., Cernogora, G., Souchon, G., Semelin, F., Reberac, A., Van Ransbeek, E., Berkenbosch, S., Clairquin, R., Muller, C., Forget, F., Hourdin, F., Talagrand, O., Rodin, A., Fedorova, A., Stepanov,

A., Vinogradov, I., Kiselev, A., Kalinnikov, Y., Durry, G., Sandel, B., Stern, A., and Gérard, J. C. (2007). SPICAV on Venus Express : Three spectrometers to study the global structure and composition of the Venus atmosphere. *Planet. Space Sci.*, 55(12) :1673–1700.

- [Blamont and Ragent, 1979] Blamont, J. and Ragent, B. (1979). Further Results of the Pioneer Venus Nephelometer Experiment. Science (80-.)., (3):67–70.
- [Bryantseva et al., 2000] Bryantseva, I. A., Gorlenko, V. M., Kompantseva, E. I., and Imhoff, J. F. (2000). Thioalkalicoccus limnaeus. pages 2157–2163.
- [Bullock and Grinspoon, 2001] Bullock, M. and Grinspoon, D. H. (2001). The Recent Evolution of Climate on Venus. *Icarus*, 150(1) :19–37.
- [Bullock et al., 1993] Bullock, M. A., Grinspoon, D. H., and Head, J. W. (1993). Venus resurfacing rates : Constraints provided by 3[U+2010] D Monte Carlo simulations. *Geophys. Res. Lett.*, 20(19) :2147–2150.
- [Burgalat, 2012] Burgalat, J. (2012). DÉVELOPPEMENT D'UN MODÈLE MICROPHYSIQUE EN MO-MENTS POUR LES MODÈLES CLIMATIQUES DE TITAN. PhD thesis.
- [Burgalat and Rannou, 2017] Burgalat, J. and Rannou, P. (2017). Brownian coagulation of a bi-modal distribution of both spherical and fractal aerosols. J. Aerosol Sci., 105(September 2016) :151–165.
- [Burgalat et al., 2014] Burgalat, J., Rannou, P., Cours, T., and Rivière, E. D. (2014). Modeling cloud microphysics using a two-moments hybrid bulk/bin scheme for use in Titan's climate models : Application to the annual and diurnal cycles. *Icarus*, 231 :310–322.
- [Campbell et al., 1976] Campbell, D. B., Dyce, R. B., and Pettengill, G. H. (1976). New radar image of venus. Science (80-.)., 193(4258) :1123–1124.
- [Cavicchioli, 2002] Cavicchioli, R. (2002). Extremophiles and the search for extraterrestrial life. Astrobiology, 2(3):281–292.
- [Cimino, 1982] Cimino, J. (1982). The composition and vertical structure of the lower cloud deck on Venus. *Icarus*, 51(2):334–357.
- [Cockell, 1999] Cockell, C. S. (1999). Life on Venus. Planet. Space Sci., 47(12):1487–1501.
- [Correia and Laskar, 2003] Correia, A. C. M. and Laskar, J. (2003). Long-term evolution of the spin of Venus. II. Numerical simulations. *Icarus*, 163 :24–45.
- [Cottini et al., 2015] Cottini, V., Ignatiev, N. I., Piccioni, G., and Drossart, P. (2015). Water vapor near Venus cloud tops from VIRTIS-H/Venus express observations 2006-2011. *Planet. Space Sci.*, 113-114 :219– 225.
- [Cottini et al., 2012] Cottini, V., Ignatiev, N. I., Piccioni, G., Drossart, P., Grassi, D., and Markiewicz, W. J. (2012). Water vapor near the cloud tops of Venus from Venus Express/VIRTIS dayside data. *Icarus*, 217(2):561–569.
- [Dartnell et al., 2015] Dartnell, L. R., Nordheim, T. A., Patel, M. R., Mason, J. P., Coates, A. J., and Jones, G. H. (2015). Constraints on a potential aerial biosphere on Venus : I. Cosmic rays. *Icarus*, 257 :396–405.
- [Donahue, 1999] Donahue, T. (1999). New Analysis of Hydrogen and Deuterium Escape from Venus. *Icarus*, 141(2):226–235.
- [Donahue and Russell, 1997] Donahue, T. M. and Russell, C. T. (1997). The Venus Atmosphere and Ionosphere and Their Interaction with the Solar Wind : an Overview. Tucson, az edition.
- [Ehling-Schulz and Scherer, 1999] Ehling-Schulz, M. and Scherer, S. (1999). UV protection in cyanobacteria. Eur. J. Phycol., 34 :329–338.
- [Encrenaz et al., 2012] Encrenaz, T., Greathouse, T. K., Roe, H., Richter, M., Lacy, J., Bézard, B., Fouchet, T., and Widemann, T. (2012). HDO and SO2 thermal mapping on Venus : evidence for strong SO2 variability. a&a, 543 :A153.

- [Fiadeiro and Veronis, 1977] Fiadeiro, M. E. and Veronis, G. (1977). On weighted-mean schemes for the finite-difference approximation to the advection-diffusion equation. *Tellus*, 29(6):512–522.
- [Ford and Pettengill, 1992] Ford, P. G. and Pettengill, G. H. (1992). Venus topography and kilometer-scale slopes. J. Geophys. Res., 97(E8) :13103.
- [Friedlander, 2000] Friedlander, S. K. (2000). Smoke, Dust, and Haze : Fundamentals of Aerosol Dynamics.
- [Fuchs, 1964] Fuchs, N. A. (1964). The Mechanics of Aerosols.
- [Fuchs and Sutugin, 1971] Fuchs, N. A. and Sutugin, A. G. (1971). Highly dispersed aerosols. In Topics in Current Aerosol Research. Oxford, pergamon p edition.
- [Fukuhara et al., 2017] Fukuhara, T., Futaguchi, M., Hashimoto, G. L., Horinouchi, T., Imamura, T., Iwagaimi, N., Kouyama, T., Murakami, S.-y., Nakamura, M., Ogohara, K., Sato, M., Sato, T. M., Suzuki, M., Taguchi, M., Takagi, S., Ueno, M., Watanabe, S., Yamada, M., and Yamazaki, A. (2017). Large stationary gravity wave in the atmosphere of Venus. *Nat. Geosci.*, (January) :1–5.
- [Fütterer et al., 2004] Fütterer, O., Angelov, a., Liesegang, H., Gottschalk, G., Schleper, C., Schepers, B., Dock, C., Antranikian, G., and Liebl, W. (2004). Genome sequence of Picrophilus torridus and its implications for life around pH 0. Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A., 101(24) :9091–9096.
- [Gao et al., 2014] Gao, P., Zhang, X., Crisp, D., Bardeen, C. G., and Yung, Y. L. (2014). Bimodal distribution of sulfuric acid aerosols in the upper haze of Venus. *Icarus*, 231 :83–98.
- [Garvin and Williams, 1990] Garvin, J. B. and Williams, R. S. (1990). typical flank slopes of 3 Ø. Plausible lava-. Geophys. Res. Lett., 17(9) :1381–1384.
- [Gehrels et al., 1979] Gehrels, T., Gradie, J. C., Howes, M. L., and Vrba, F. J. (1979). Wavelength dependence of polarization. XXXIV - Observations of Venus. Astrophys. J., 84(5) :671.
- [Gilli et al., 2017] Gilli, G., Lebonnois, S., González-Galindo, F., López-Valverde, M. A., Stolzenbach, A., Lefèvre, F., Chaufray, J. Y., and Lott, F. (2017). Thermal structure of the upper atmosphere of Venus simulated by a ground-to-thermosphere GCM. *Icarus*, 281:55–72.
- [Goldstein, 1964] Goldstein, R. M. (1964). Radar studies of the planets.
- [Grinspoon, 1997] Grinspoon, D. H. (1997). Venus Revealed.
- [Grinspoon and Bullock, 2003] Grinspoon, D. H. and Bullock, M. A. (2003). Did Venus Experience One Great Transition or Two? Am. Astron. Soc. DPS Meet. #35, 35 :1007.
- [Grinspoon et al., 1993] Grinspoon, D. H., Pollack, J. B., Sitton, B. R., Carlson, R. W., Kamp, L. W., Baines, K. H., Encrenaz, T., and Taylor, F. W. (1993). Probing Venus's cloud structure with Galileo NIMS. *Planet. Space Sci.*, 41(7) :515–542.
- [Hamano et al., 2013] Hamano, K., Abe, Y., and Genda, H. (2013). Emergence of two types of terrestrial planet on solidification of magma ocean. *Nature*, 497(7451) :607–610.
- [Hapke and Nelson, 1975] Hapke, B. and Nelson, R. (1975). Evidence for an Elemental Sulfur Component of the Clouds from Venus Spectrophotometry. J. Atmos. Sci., 32 :1212–1218.
- [Hapke et al., 1974] Hapke, B., Nelson, R., Woodman, J. H., and Barker, T. S. (1974). UV Spectroscopy of Venus : Evidence for an Elemental Sulfur Component of the Clouds. Bull. Am. Astron. Soc., 6:368.
- [Harris et al., 2001] Harris, M. J., Wickramasinghe, N. C., Lloyd, D., Narlikar, J. V., Rajaratnam, P., Turner, M. P., Al-Mufti, S., Wallis, M. K., Ramadurai, S., and Hoyle, F. (2001). Detection of living cells in stratospheric samples. *Spie*, 4495(2002) :192–198.
- [Hart, 1979] Hart, M. H. (1979). Habitable zones about main sequence stars. *Icarus*, 37(1):351–357.
- [Hashimoto and Abe, 2001] Hashimoto, G. L. and Abe, Y. (2001). Predictions of a simple cloud model for water vapor cloud albedo feedback on Venus. J. Geophys. Res., 106(E7) :14675.

- [Hashimoto et al., 2008] Hashimoto, G. L., Roos-Serote, M., Sugita, S., Gilmore, M. S., Kamp, L. W., Carlson, R. W., and Baines, K. H. (2008). Felsic highland crust on Venus suggested by Galileo Near-Infrared Mapping Spectrometer data. J. Geophys. Res. E Planets, 114(5) :1–10.
- [Haus et al., 2014] Haus, R., Kappel, D., and Arnold, G. (2014). Atmospheric thermal structure and cloud features in the southern hemisphere of Venus as retrieved from VIRTIS/VEX radiation measurements. *Icarus*, 232 :232–248.
- [Hinson and Jenkins, 1995] Hinson, D. P. and Jenkins, J. M. (1995). Magellan Radio Occultation Measurements of Atmospheric Waves on Venus.
- [Hourdin et al., 1993] Hourdin, F., Le Van, P., Forget, F., and Talagrand, O. (1993). Meteorological Variability and the Annual Surface Pressure Cycle on Mars.
- [Hourdin et al., 2006] Hourdin, F., Musat, I., Bony, S., Braconnot, P., Codron, F., Dufresne, J. L., Fairhead, L., Filiberti, M. A., Friedlingstein, P., Grandpeix, J. Y., Krinner, G., LeVan, P., Li, Z. X., and Lott, F. (2006). The LMDZ4 general circulation model : Climate performance and sensitivity to parametrized physics with emphasis on tropical convection. *Clim. Dyn.*, 27(7-8) :787–813.
- [Imamura and Hashimoto, 2001] Imamura, T. and Hashimoto, G. L. (2001). Microphysics of Venusian Clouds in Rising Tropical Air. J. Atmos. Sci., 58(23) :3597–3612.
- [Jacobson, 2013] Jacobson, M. Z. (2013). Fundamentals of Atmospheric Modeling, volume 53.
- [Jacobson and Turco, 1995] Jacobson, M. Z. and Turco, R. P. (1995). Simulating condensation growth, evaporation, and coagulation of aerosols using a combined moving and stationary size grid. *Aerosol Sci. Technol.*, 22(1):73–92.
- [James et al., 1997] James, E., Toon, O., and Schubert, G. (1997). A Numerical Microphysical Model of the Condensational Venus Cloud. *Icarus*, 129(1) :147–171.
- [Jenkins and Steffes, 1991] Jenkins, J. M. and Steffes, P. G. (1991). Results for 13-cm absorptivity and H2SO4 abundance profiles from the season 10 (1986) Pioneer Venus Orbiter radio occultation experiment. *Icarus*, 90(1) :129–138.
- [Kasten, 1968] Kasten, F. (1968). Falling Speed of Aerosol Particles.
- [Kasting, 1988] Kasting, J. F. (1988). Runaway and moist greenhouse atmospheres and the evolution of Earth and Venus. *Icarus*, 74(3) :472–494.
- [Kasting and Pollack, 1983] Kasting, J. F. and Pollack, J. B. (1983). Loss of water from Venus. I. Hydrodynamic escape of hydrogen. *Icarus*, 53(3) :479–508.
- [Kasting et al., 1984] Kasting, J. F., Pollack, J. B., and Ackerman, T. P. (1984). Response of Earth's atmosphere to increases in solar flux and implications for loss of water from Venus. *Icarus*, 57(3) :335–355.
- [Kawabata et al., 1980] Kawabata, K., Coffeen, D. L., Hansen, J. E., Lane, W. a., Sato, M., and Travis, L. D. (1980). Cloud and haze properties from Pioneer Venus polarimetry. J. Geophys. Res., 85(A13) :8129–8140.
- [Klose et al., 1992] Klose, K. B., Wood, J. A., and Hashimoto, A. (1992). Mineral equilibria and the high radar reflectivity of Venus mountaintops. J. Geophys. Res., 97(E10) :16353–16369.
- [Knollenberg et al., 1980] Knollenberg, R., Travis, L., Tomasko, M., Smith, P., Ragent, B., Esposito, L., Mccleese, D., Martonchik, J., and Beer, R. (1980). The clouds of Venus - A synthesis report. J. Geophys. Res., 85 :8059–8081.
- [Knollenberg, 1984] Knollenberg, R. G. (1984). A Reexamination of the Evidence for Large, Solid Particles in the Clouds of Venus. *Icarus*, 183 :161–183.
- [Knollenberg and Hunten, 1979] Knollenberg, R. G. and Hunten, D. M. (1979). Clouds of Venus : Particle Size Distribution Measurements. Science (80-.)., 203(February) :792–795.
- [Knollenberg and Hunten, 1980] Knollenberg, R. G. and Hunten, D. M. (1980). The microphysics of the clouds of Venus : Results of the Pioneer Venus Particle Size Spectrometer Experiment. J. Geophys. Res., 85(A13) :8039.

- [Krasnopolsky, 2006] Krasnopolsky, V. A. (2006). Chemical composition of Venus atmosphere and clouds : Some unsolved problems. *Planet. Space Sci.*, 54(13-14) :1352–1359.
- [Krasnopolsky, 2012] Krasnopolsky, V. A. (2012). A photochemical model for the Venus atmosphere at 47-112km. *Icarus*, 218(1):230–246.
- [Krasnopolsky, 2016] Krasnopolsky, V. A. (2016). On the iron chloride aerosol in the clouds of Venus. *Icarus*, 286 :134–137.
- [Krasnopolsky and Pollack, 1994] Krasnopolsky, V. A. and Pollack, J. B. (1994). H2O-H2SO4 System in Venus' Clouds and OCS, CO, and H2SO4 Profiles in Venus' Troposphere. *Icarus*, 109 :58–78.
- [Kreslavsky et al., 2015] Kreslavsky, M. A., Ivanov, M. A., and Head, J. W. (2015). The resurfacing history of Venus : Constraints from buffered crater densities. *Icarus*, 250 :438–450.
- [Kreslavsly and Bondarenko, 2016] Kreslavsly, M. A. and Bondarenko, N. V. (2016). Aeolian sand transport and aeolian deposits on Venus : A review. *Aeolian Res.*, 26 :29–46.
- [Ksanfomality, 2012] Ksanfomality, L. V. (2012). Possible detection of life on the planet venus. *Dokl. Phys.*, 57(9) :367–372.
- [Ksanfomality, 2013] Ksanfomality, L. V. (2013). The hypothetic flora of venus. Dokl. Phys., 58(5):196–199.
- [Kumar et al., 1983] Kumar, S., Hunten, D. M., and Pollack, J. B. (1983). Nonthermal escape of hydrogen and deuterium from Venus and implications for loss of water. *Icarus*, 55(3):369–389.
- [Larsen, 2000] Larsen, N. (2000). Danish meteorological institute.
- [Lebonnois et al., 2010] Lebonnois, S., Hourdin, F., Eymet, V., Crespin, A., Fournier, R., and Forget, F. (2010). Superrotation of Venus' atmosphere analyzed with a full general circulation model. J. Geophys. Res. E Planets, 115(6) :1–23.
- [Lebonnois et al., 2016] Lebonnois, S., Sugimoto, N., and Gilli, G. (2016). Wave analysis in the atmosphere of Venus below 100-km altitude, simulated by the LMD Venus GCM. *Icarus*, 278 :38–51.
- [Lee et al., 2010] Lee, C., Lewis, S. R., and Read, P. L. (2010). A bulk cloud parameterization in a Venus General Circulation Model. *Icarus*, 206(2) :662–668.
- [Lee and Chen, 1984] Lee, K. W. and Chen, H. (1984). Coagulation Rate of Polydisperse Particles. Aerosol Sci. Technol., 3(3):327–334.
- [Lee et al., 2015] Lee, Y. J., Imamura, T., Schröder, S. E., and Marcq, E. (2015). Long-term variations of the UV contrast on Venus observed by the Venus Monitoring Camera on board Venus Express. *Icarus*, 253 :1–15.
- [Lefèvre et al., 2017] Lefèvre, M., Spiga, A., and Lebonnois, S. (2017). Three-dimensional turbulenceresolving modeling of the Venusian cloud layer and induced gravity waves. J. Geophys. Res. Planets, 122(1):134–149.
- [Luger and Barnes, 2015] Luger, R. and Barnes, R. (2015). Extreme Water Loss and Abiotic O ₂ Buildup on Planets Throughout the Habitable Zones of M Dwarfs. Astrobiology, 15(2):119–143.
- [Määttänen et al., 2015] Määttänen, A., Guilbon, S., Stolzenbach, A., Bekki, S., and Montmessin, F. (2015). The LATMOS Venus cloud model VenLA : Status report. In *Eur. Planet. Sci. Congr.*, page 636.
- [Määttänen et al., 2017] Määttänen, A., Merikanto, J., Henschel, H., Duplissy, J., Makkonen, R., Ortega, I. K., and Vehkamäki, H. (2017). New parameterizations for neutral and ion-induced sulfuric acid-water particle formation in nucleation and kinetic regimes. J. Geophys. Res. - Atmos.
- [Madeleine, 2011] Madeleine, J.-B. (2011). Nuages et poussières de l'atmosphère martienne : télédétection , modélisation des rétroactions climatiques et application aux paléoclimats. PhD thesis.

- [Madeleine et al., 2011] Madeleine, J. B., Forget, F., Millour, E., Montabone, L., and Wolff, M. J. (2011). Revisiting the radiative impact of dust on Mars using the LMD Global Climate Model. J. Geophys. Res. E Planets, 116(11) :1–13.
- [Marcq et al., 2008] Marcq, E., Bézard, B., Drossart, P., Piccioni, G., Reess, J. M., and Henry, F. (2008). A latitudinal survey of CO, OCS, H2O, and SO2 in the lower atmosphere of Venus : Spectroscopic studies using VIRTIS-H. J. Geophys. Res. E Planets, 114(5) :1–9.
- [Markiewicz et al., 2014] Markiewicz, W. J., Petrova, E., Shalygina, O., Almeida, M., Titov, D. V., Limaye, S. S., Ignatiev, N., Roatsch, T., and Matz, K. D. (2014). Glory on Venus cloud tops and the unknown UV absorber. *Icarus*, 234 :200–203.
- [Marov et al., 1980] Marov, M. Y., Lystsev, V. E., Lebedev, V. N., Lukashevich, N. L., and Shari, V. P. (1980). The structure and microphysical properties of the Venus clouds : Venera 9, 10, and 11 data. *Icarus*, 44(3) :608–639.
- [McGill et al., 1983] McGill, G. E., Warner, J. L., Malin, M. C., Arvidson, R. E., Eliason, E., Nozette, S., and Reasenberg, R. D. (1983). Topography, surface properties, and tectonic evolution. Univ. Arizona Press, pages 69–130.
- [McGouldrick and Toon, 2007] McGouldrick, K. and Toon, O. B. (2007). An investigation of possible causes of the holes in the condensational Venus cloud using a microphysical cloud model with a radiative-dynamical feedback. *Icarus*, 191(1) :1–24.
- [Millikan, 1923] Millikan, R. A. (1923). The General law of fall of a small spherical body through a gas, and its bearing upon the nature of molecular reflection from surfaces. *Phys. Rev.*, 22.
- [Mills, 1999] Mills, F. P. (1999). A spectroscopic search for molecular oxygen in the Venus middle atmosphere. 104.
- [Mills et al., 2007] Mills, F. P., Esposito, L. W., and Yung, Y. L. (2007). Atmospheric composition, chemistry, and clouds.
- [Montmessin, 2004] Montmessin, F. (2004). Origin and role of water ice clouds in the Martian water cycle as inferred from a general circulation model. J. Geophys. Res., 109(E10) :E10004.
- [Navarro et al., 2014] Navarro, T., Madeleine, J.-B., Forget, F., Spiga, A., Millour, E., Montmessin, F., and Määttänen, A. (2014). Global climate modeling of the Martianwater cycle with improved microphysics and radiatively activewater ice clouds. J. Geophys. Res. Planets, pages 2522–2547.
- [Nimmo and McKenzie, 1998] Nimmo, F. and McKenzie, D. (1998). Volcanism and Tectonics on Venus. Annu. Rev. Earth Planet. Sci., 26(1):23–51.
- [Ohtake, 1993] Ohtake, T. (1993). Freezing points of H2SO4 aqueous solutions and formation of stratospheric ice clouds.
- [Otto et al., 1999] Otto, E., Fissan, H., Park, S., Lee, K., Otto, E., and Fissan, H. (1999). The log-normal size distribution theory of brownian aerosol coagulation for the entire particle size range. J. Aerosol Sci., 30(1):17–34.
- [Pandis and Seinfeld, 2006] Pandis, S. N. and Seinfeld, J. H. (2006). Atmospheric chemistry and physics : From air pollution to climate change. Wiley edition.
- [Park et al., 1999] Park, S. H., Lee, K. W., Otto, E., and Fissan, H. (1999). S. H. Park, * K. W. Lee, * E. Otto ‡ and H. Fissan ‡ *. 30(1) :3–16.
- [Petrengill et al., 1988] Petrengill, G. H., Ford, P. G., and Chapman, B. D. (1988). Venus' Surface Electromagnetic Properties. J. Geophys. Res., 93892(10) :881–14.
- [Petrova et al., 2015] Petrova, E. V., Shalygina, O. S., and Markiewicz, W. J. (2015). The VMC/VEx photometry at small phase angles : Glory and the physical properties of particles in the upper cloud layer of Venus. *Planet. Space Sci.*, 113-114 :120–134.

- [Plainaki et al., 2016] Plainaki, C., Paschalis, P., Grassi, D., Mavromichalaki, H., and Andriopoulou, M. (2016). Solar energetic particle interactions with the Venusian atmosphere. Ann. Geophys., 34(7):595– 608.
- [Plummer, 1969] Plummer, W. T. (1969). Venus clouds : Test for hydrocarbons. Science (80-.)., 163 :1191– 1192.
- [Pollack et al., 1993] Pollack, J. B., Dalton, J. B., Grinspoon, D., Wattson, R. B., Freedman, R., Crisp, D., Allen, D. a., Bezard, B., Debergh, C., and Giver, L. P. (1993). Near-infrared light from Venus' nightside -A spectroscopic analysis.
- [Pollack et al., 1980] Pollack, J. B., Toon, O. B., Whitten, R. C., Boese, R., Ragent, B., Tomasko, M., Esposito, L., Travis, L., and Wiedman, D. (1980). Distribution and source of the UV absorption in Venus' atmosphere. J. Geophys. Res., 85(A13) :8141–8150.
- [Preston and Dartnell, 2014] Preston, L. J. and Dartnell, L. R. (2014). Planetary habitability : lessons learned from terrestrial analogues. Int. J. Astrobiol., 13(01) :81–98.
- [Prinn, 1975] Prinn, R. G. (1975). Venus : Chemical and Dynamical Processes in the Stratosphere and Mesosphere. J. Atmos. Sci., 32 :1237–1247.
- [Pruppacher et al., 1998] Pruppacher, H. R., Klett, J. D., and Wang, P. K. (1998). Microphysics of Clouds and Precipitation, volume 28.
- [Ragent and Blamont, 1979] Ragent, B. and Blamont, J. (1979). The structure of the clouds of Venus -Results of the Pioneer Venus nephelometer experiment. 85(2):8089–8105.
- [Ross, 1928] Ross, F. E. (1928). Photographs of Venus. Astrophys. J., 68:57.
- [Sajo, 2008] Sajo, E. (2008). Evaluation of the Exact Coagulation Kernel under Simultaneous Brownian Motion and Gravitational Settling. Aerosol Sci. Technol., 42(2):134–139.
- [Sajo, 2010] Sajo, E. (2010). Update and Erratum on the Numerical Evaluation of the Exact Coagulation Cernel for Simultaneous Brownian Motion and Gravitational Settling. Aerosol Sci. Technol., 42(2):134– 139.
- [Sattler et al., 2001] Sattler, B., Puxbaum, H., and Psenner, R. (2001). Bacterial growth in supercooled cloud droplets. *Geophys. Res. Lett.*, 28(2) :239.
- [Schleper et al., 1995] Schleper, C., Puehler, G., Holz, I., Gambacorta, A., Janekovic, D., Santarius, U., Klenk, H. P., and Zillig, W. (1995). Picrophilus gen. nov., fam. nov. : A novel aerobic, heterotrophic, thermoacidophilic genus and family comprising archaea capable of growth around pH 0. J. Bacteriol., 177(24) :7050–7059.
- [Schulze-Makuch et al., 2004] Schulze-Makuch, D., Grinspoon, D. H., Abbas, O., Irwin, L. N., and Bullock, M. a. (2004). A sulfur-based survival strategy for putative phototrophic life in the venusian atmosphere. *Astrobiology*, 4(1) :11–18.
- [Schulze-Makuch and Irwin, 2002] Schulze-Makuch, D. and Irwin, L. N. (2002). Reassessing the Possibility of Life on Venus : Proposal for an Astrobiology Mission. Astrobiology, 2(2):377–395.
- [Schulze-Makuch et al., 2013] Schulze-Makuch, D., Irwin, L. N., and Fairén, A. G. (2013). Drastic environmental change and its effects on a planetary biosphere. *Icarus*, 225(1):775–780.
- [Segerer et al., 1986] Segerer, A., Neuner, A., Kristjansson, I. J. K., and Stetter, K. (1986). Acidianus infernus gen. nov., sp. nov., and Acidianus brierleyi Comb. nov. : Facultatively Aerobic, Extremely Acidophilic Thermophilic Sulfur-Metabolizing Archaebacteria. pages 559–564.
- [Seiff et al., 1985] Seiff, a., Schofield, J. T., Kliore, a. J., Taylor, F. W., and Limaye, S. S. (1985). Models of the structure of the atmosphere of Venus from the surface to 100 kilometers altitude. Adv. Sp. Res., 5(11) :3–58.

- [Shalygin et al., 2015] Shalygin, E. V., Markiewicz, W. J., Basilevsky, A. T., Titov, D. V., Ignatiev, N. I., and Head, J. W. (2015). Active volcanism on Venus in the Ganiki Chasma rift zone. *Geophys. Res. Lett.*, 42 :4762–4769.
- [Simons, 1986] Simons, S. (1986). A kernel for combined Brownian and Gravitational Coagulation. J. Aerosol Sci., 17(5):789–793.
- [Simpson et al., 2009] Simpson, R. A., Leonard Tyler, G., Häusler, B., Mattei, R., and Pätzold, M. (2009). Venus express bistatie radar : High-elevation anomalous reflectivity. J. Geophys. Res. E Planets, 114(6).
- [Smith et al., 2010] Smith, D. J., Griffin, D. W., and Schuerger, A. C. (2010). Stratospheric microbiology at 20 km over the Pacific Ocean. *Aerobiologia (Bologna).*, 26(1):35–46.
- [Spear and Adams, 1965] Spear, W. E. and Adams, A. R. (1965). *Elemental Sulfur.* B. meyer, edition.
- [Steele and Hamill, 1981] Steele, H. M. and Hamill, P. (1981). Effects of Temperature and Humidity on the Acid-Water Droplets in the Stratosphere. J. Aerosol Sci., 12(6) :517–528.
- [Stolzenbach, 2016] Stolzenbach, A. (2016). Étude de la photochimie de Vénus à l'aide d'un modèle de circulation générale. *PhD*, page 252.
- [Strom et al., 1994] Strom, R. G., Schaber, G. G., and Dawsow, D. D. (1994). The global resurfacing of Venus. J. Geophys. Res., 99(E5) :10,899–10,926.
- [Taylor and Grinspoon, 2009] Taylor, F. and Grinspoon, D. (2009). Climate evolution of Venus. J. Geophys. Res., 114(March) :E00B40.
- [Taylor et al., 1979] Taylor, F. W., McCleese, D. J., and Diner, D. J. (1979). Polar clearing in the Venus clouds observed from the Pioneer Orbiter.
- [Tellmann et al., 2009] Tellmann, S., Pätzold, M., Häusler, B., Bird, M. K., and Leonard Tyler, G. (2009). Structure of the Venus neutral atmosphere as observed by the Radio Science experiment VeRa on Venus Express. J. Geophys. Res. E Planets, 114(4) :1–19.
- [Thürmer et al., 2011] Thürmer, A., Voigt, B., Angelov, A., Albrecht, D., Hecker, M., and Liebl, W. (2011). Proteomic analysis of the extremely thermoacidophilic archaeon Picrophilus torridus at pH and temperature values close to its growth limit. *Proteomics*, 11(23):4559–4568.
- [Toon et al., 1984] Toon, O. B., Ragent, B., Colburn, D., Blamont, J., and Cot, C. (1984). Large, solid particles in the clouds of Venus : Do they exist? *Icarus*, 57(2) :143–160.
- [Toon et al., 1982] Toon, O. B., Turco, R. P., and Pollack, J. B. (1982). The Ultraviolet Absorber on Venus : A m o r p h o u s Sulfur 1. *Icarus*, 51 :358–373.
- [Toon et al., 1988] Toon, O. B., Turco, R. P., Westphal, D., Malone, R., and Liu, M. S. (1988). A multidimensional model for aerosols : description of computational analogs.
- [Toon et al., 1979] Toon, O. B., Turco, R. P., and Whitten, R. C. (1979). A Physical-Chemical Model of the Venus Clouds. Bull. Am. Astron. Soc., 11:544.
- [Turco et al., 1979] Turco, R. P., Hamill, P., Toon, O. B., Whitten, R. C., and Kiang, C. S. (1979). A One-Dimensional Model Describing Aerosol Formation and Evolution in the Stratosphere : I. Physical Processes and Mathematical Analogs. Am. Meteorol. Soc., 36 :699–717.
- [Turco et al., 1983] Turco, R. P., Toon, O. B., Whitten, R. C., and Keesee, R. G. (1983). Venus : Mesospheric hazes of ice, dust, and acid aerosols. *Icarus*, 53(1) :18–25.
- [Vehkamäki, 2002] Vehkamäki, H. (2002). An improved parameterization for sulfuric acid-water nucleation rates for tropospheric and stratospheric conditions. J. Geophys. Res., 107(D22) :4622.
- [Vethanayagam, 1991] Vethanayagam, R. R. (1991). Purple photosynthetic bacteria from a tropical mangrove environment. *Mar. Biol.*, 110(1):161–163.
- [Vignati et al., 2004] Vignati, E., Wilson, J., and Stier, P. (2004). M7 : An efficient size-resolved aerosol microphysics module for large-scale aerosol transport models. J. Geophys. Res. D Atmos., 109(22) :1–17.

- [Wainwright et al., 2003] Wainwright, M., Wickramasinghe, N. C., Narlikar, J. V., and Rajaratnam, P. (2003). Microorganisms cultured from stratospheric air samples obtained at 41 km. *FEMS Microbiol. Lett.*, 218(1) :161–165.
- [Walker, 1982] Walker, J. C. G. (1982). Evolution of the Atmosphere.
- [Way et al., 2016] Way, M. J., Del Genio, A. D., Kiang, N. Y., Sohl, L. E., Grinspoon, D. H., Aleinov, I., Kelley, M., and Clune, T. (2016). Was Venus the first habitable world of our solar system? *Geophys. Res. Lett.*, 43(16) :8376–8383.
- [Whitby and McMurry, 1997] Whitby, E. R. and McMurry, P. H. (1997). Modal Aerosol Dynamics Modeling. Aerosol Sci. Technol., 27(6) :673–688.
- [Wilquet et al., 2009] Wilquet, V., Fedorova, A., Montmessin, F., Drummond, R., Mahieux, A., Vandaele, a. C., Villard, E., Korablev, O., and Bertaux, J.-L. (2009). Preliminary characterization of the upper haze by SPICAV/SOIR solar occultation in UV to mid-IR onboard Venus Express. J. Geophys. Res., 114 :1–13.
- [Wilson et al., 2008] Wilson, C. F., Guerlet, S., Irwin, P. G. J., Tsang, C. C. C., Taylor, F. W., Carlson, R. W., Drossart, P., and Piccioni, G. (2008). Evidence for anomalous cloud particles at the poles of Venus. J. Geophys. Res. E Planets, 113(E9) :1–12.
- [Winick and Stewart, 1980] Winick, J. and Stewart, A. (1980). Photochemistry of SO2 in Venus ' Upper Cloud Layers. J. Geophys. Res., 85(A13) :7849–7860.
- [Womack et al., 2010] Womack, A. M., Bohannan, B. J., and Green, J. L. (2010). Biodiversity and biogeography of the atmosphere. *Philos. Trans. R. Soc. London B Biol. Sci.*, 365(1558) :3645–3653.
- [Wright, 1927] Wright, W. H. (1927). Photographs of Venus Made by Infra-Red and by Violet Light. Astron. Soc. Pacific, 39(230) :220-221.
- [Yamamoto and Takahashi, 2006] Yamamoto, M. and Takahashi, M. (2006). An aerosol transport model based on a two-moment microphysical parameterization in the Venus middle atmosphere : Model description and preliminary experiments. J. Geophys. Res. E Planets, 111(8) :1–12.
- [Yamamoto and Tanaka, 1998] Yamamoto, M. and Tanaka, H. (1998). The Venusian Y-Shaped Cloud Pattern Based on an Aerosol-Transport Model. J. Atmos. Sci., 55 :1400–1416.
- [Yang and Iwasaki, 2014] Yang, C. C. and Iwasaki, W. (2014). MetaMetaDB : A database and analytic system for investigating microbial habitability. *PLoS One*, 9(1).
- [Young, 1973] Young, A. T. (1973). Are the clouds of venus sulfuric acid? *Icarus*, 18(4):564–582.
- [Young, 1983] Young, A. T. (1983). Venus cloud microphysics. *Icarus*, 56(3):568–577.
- [Zasova et al., 2007] Zasova, L. V., Ignatiev, N., Khatuntsev, I., and Linkin, V. (2007). Structure of the Venus atmosphere. *Planet. Space Sci.*, 55(12) :1712–1728.
- [Zhang et al., 2012] Zhang, X., Liang, M. C., Mills, F. P., Belyaev, D. A., and Yung, Y. L. (2012). Sulfur chemistry in the middle atmosphere of Venus. *Icarus*, 217(2) :714–739.
- [Zhang et al., 2010] Zhang, X., Liang, M.-C., Montmessin, F., Bertaux, J.-L., Parkinson, C., and Yung, Y. L. (2010). Photolysis of sulphuric acid as the source of sulphur oxides in the mesosphere of Venus. *Nat. Geosci.*, 3(12):834–837.

[Zillig, 1996] Zillig, W. (1996). Picrophilus oshimae. (July) :814–816.