

RÉPUBLIQUE FRANÇAISE

INSTITUT NATIONAL  
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE

PARIS

⑪ N° de publication :  
(A n'utiliser que pour les  
commandes de reproduction).

**2 468 300**

A1

## DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

②①

**N° 79 27135**

---

⑤④ Procédé de modification des précipitations atmosphériques ainsi que compositions destinées à mettre en œuvre ce procédé.

⑤① Classification internationale (Int. Cl. <sup>3</sup>). A 01 G 15/00; C 09 K 3/00 // E 01 H 13/00.

②② Date de dépôt..... 2 novembre 1979.

③③ ③② ③① Priorité revendiquée :

④① Date de la mise à la disposition du  
public de la demande..... B.O.P.I. — « Listes » n° 19 du 8-5-1981.

---

⑦① Déposant : Etablissement public dit : AGENCE NATIONALE DE VALORISATION DE LA RECHERCHE, ANVAR, résidant en France.

⑦② Invention de : Robert Montmory.

⑦③ Titulaire : *Idem* ⑦①

⑦④ Mandataire : Michel Nony, conseil en brevets d'invention,  
29, rue Cambacérès, 75008 Paris.

La présente invention a pour objet un procédé de modification artificielle des précipitations atmosphériques, ainsi que des compositions destinées à mettre en oeuvre ce procédé.

Plus précisément, le procédé de modification des précipitations atmosphériques de la présente demande permet d'obtenir localement la stimulation de la pluie, la dissipation des brouillards, et la prévention de la grêle.

Les techniques préconisées jusqu'à présent pour la modification des précipitations atmosphériques sont fondées essentiellement sur l'ensemencement des nuages à l'aide de particules solides de faible dimension d'agents glaçogènes ou d'agents modificateurs des processus de condensation et de coalescence.

On sait que les nuages se forment par ascension de volumes d'air atmosphérique humide dans des régions plus froides où la pression de la vapeur d'eau devient supérieure à la saturation, de sorte que la condensation se produit sous forme de très petites gouttelettes d'eau. Lorsque le nuage est entraîné sous l'effet des mouvements ascendants à des altitudes où la température est inférieure à  $0^{\circ}\text{C}$ , les gouttelettes restent liquides, à l'état surfondu. La phase solide (glace) n'est susceptible d'apparaître qu'à des températures inférieures à  $-15^{\circ}\text{C}$  environ et à la condition que soient présentes certaines particules spécifiques appelées noyaux glaçogènes. Ceux-ci sont peu nombreux, de l'ordre de 1 par litre à  $-15^{\circ}\text{C}$ . Ces cristaux de glace (primaires) se multiplient généralement sous l'influence des courants de convection, soit par fragmentation, soit par collision, souvent suivie d'éclatement par choc thermique avec des gouttes d'eau surfondues. L'ensemble de ces mécanismes conduit à la formation de cristaux (secondaires) dont la concentration est très grande en comparaison avec celle des noyaux glaçogènes naturels.

Pour stimuler artificiellement une précipitation à partir de tels nuages, le procédé utilisé jusqu'à présent consistait à introduire dans la partie froide du nuage des noyaux glaçogènes artificiels, notamment des particules d'iodure d'argent pour augmenter dans une très large proportion le nombre de noyaux glaçogènes.

La grêle, qui peut se former dans les nuages dont le sommet est à température négative, est la conséquence d'une altération des processus de multiplication des cristaux de glace primaires,

et le grêlon est le résultat de l'agrégation autour d'un noyau central soit de gouttes surfondues soit de fragments de glace. Les phénomènes entraînant sa formation sont encore relativement mal connus.

5 Certaines théories de la prévention de la grêle admettent que les gros grêlons ne peuvent croître que si les embryons de glace secondaires sont en nombre suffisamment faible pour ne pas souffrir de compétition mutuelle. Cette hypothèse est à la base de la majorité des techniques de prévention qui consistent à  
10 injecter dans le nuage des noyaux glaçogènes artificiels pour induire une compétition des embryons glaçogènes.

Ceux-ci sont généralement des particules solides d'iodure d'argent ou de plomb ou de certains composés organiques tels que le phloroglucinol et l'urée. Selon cette théorie, la compétition  
15 due à l'augmentation du nombre de noyaux glaçogènes aura pour effet une moindre croissance des grêlons.

Cependant, bien que cette méthode soit appliquée depuis une trentaine d'années, ses résultats sont toujours discutés. Il n'est pas certain que les résultats estimés positifs aient une  
20 valeur significative. Mais surtout, l'expérience a montré que cette technique pouvait dans certains cas conduire à une augmentation des chutes de grêle. Voir par exemple David Atlas "The Paradox of Hail Suppression", Science, 14 Janvier 1977, volume 195, numéro 4274, pages 139-145.

25 En outre, certaines considérations théoriques et certaines observations expérimentales conduisent à mettre en doute la possibilité de lutter contre la grêle par l'insémination de petites particules d'iodure d'argent, indépendamment des techniques d'ensemencement qui font elles aussi l'objet de contro-  
30 verses.

Il faut donc considérer que cette méthode de lutte ne peut, au mieux, donner des résultats favorables que dans certaines conditions particulières.

Toutefois ces incertitudes ou ces échecs n'ont pas conduit  
35 jusqu'à présent à l'élaboration de techniques plus efficaces et de nombreux auteurs continuent encore de préconiser l'utilisation des particules d'iodure d'argent.

Il n'en reste pas moins que tenter de prévenir la grêle par une compétition d'embryons glaçogènes, c'est en fin de compte créer une population supplémentaire de cristaux de glace qui

peuvent eux-mêmes, dans certaines circonstances, devenir des grêlons. Finalement cette méthode n'apparaît pas la plus judicieuse.

Il a aussi été proposé d'utiliser l'effet de la dispersion  
5 de noyaux hygroscopiques, mais ceux-ci sont difficiles à disperser, et l'effet de dilution dû à la croissance des gouttes entraîne une diminution de la concentration en matériau hygroscopique qui ne permet pas d'éviter la congélation ; on a également proposé l'effet combiné de la dispersion de noyaux hygroscopiques suivie de la dispersion de noyaux glaçogènes, mais cette  
10 voie d'approche est très discutable, notamment dans la mesure où elle n'évitera pas les critiques qui viennent d'être exprimées à propos des noyaux hygroscopiques et des noyaux glaçogènes.

Pour stimuler les précipitations dans les "nuages chauds",  
15 c'est à dire les nuages développés à température supérieure à 0 °C, on a surtout préconisé la dispersion de gros noyaux de condensation artificiels sous forme de particules solides de produits hygroscopiques tels que le chlorure de sodium, le chlorure de calcium , etc., ou de certains matériaux hydrophiles  
20 capables d'absorber des quantités importantes de vapeur d'eau, tels des sels de l'acide alginique, notamment l'alginate de sodium.

Toutefois, ces méthodes présentent notamment les inconvénients liés au principe même de l'utilisation de particules  
25 solides, et qui sont notamment les suivants :

- Les particules solides sont plus difficiles à disperser que les particules liquides ;
- Les surfaces solides sont plus sensibles aux effets des contaminations ;
- 30 - L'énergie nécessaire pour adsorber la vapeur d'eau sur une surface solide est bien plus importante que sur une surface liquide ;

Il est difficile d'obtenir, de stocker et de disperser des microparticules solides ayant des dimensions de quelques microns,  
35 et en pratique, les particules solides ont généralement des dimensions plus importantes, de sorte que, à nombre de noyaux de condensation égal, la masse à disperser est plus importante, dans le cas de particules solides, que dans le cas de liquides.

La présente invention a pour objet un procédé qui permet de stimuler artificiellement des précipitations, aussi bien dans les

nuages ou brouillards à température positive que dans les nuages ou brouillards à température négative, et qui constitue en même temps une technique de prévention de la grêle non fondée sur l'hypothèse de la compétition d'embryons glaçogènes.

- 5 Ce procédé vise au contraire, dans le cas de la prévention de la grêle, d'une part à augmenter considérablement dans la zone ou les zones d'accumulation la population de gouttelettes de dimension moyenne (10 à 30 microns environ), et d'autre part à rendre ces gouttelettes stables, c'est-à-dire à minimiser la
- 10 fraction d'entre elles qui serait susceptible de se congeler à des températures comprises entre 0 et -40° C.

L'invention est fondée en outre sur le choix d'un ensemencement à l'aide de particules liquides.

- Il est en effet apparu que l'utilisation d'une dispersion de
- 15 particules solides n'est pas un choix heureux pour diverses raisons d'ordre physique. C'est ainsi que la sensibilité bien connue des surfaces solides, notamment glaçogènes, à toutes sortes de contaminations, fait que, pour l'eau, la transition de la phase vapeur à la phase liquide, de même que la transition de
- 20 la phase liquide surfondue à la phase solide, sur une petite particule solide, présente un certain caractère aléatoire. En outre, il est connu que les particules d'iodure d'argent sont rapidement désactivées par les radiations, notamment ultraviolettes.

- 25 Un intérêt majeur du présent procédé est justement de produire des hydrométéores à l'état liquide, et non solide.

La condensation d'une vapeur sur une surface liquide est infiniment moins sensible aux effets de contamination. Il s'agit là d'un fait connu sur le plan théorique et expérimental.

- 30 De plus, l'énergie à dépenser pour adsorber la vapeur d'eau sur une surface de liquides cryoprotecteurs tels que ceux utilisés dans le présent procédé est quasiment nulle et en tout cas est infiniment plus faible que celle exigée pour créer une phase liquide, et à plus forte raison une phase solide (notamment par
- 35 déposition), sur une particule solide.

Le présent procédé consiste à disperser dans une atmosphère susceptible de donner lieu à des précipitations telles qu'un nuage ou qu'un brouillard, des micro-gouttelettes à la fois très hygroscopiques et cryoprotectrices qui vont grossir très rapidement dès que l'humidité relative de l'air dépasse 40 à 50 % pour

atteindre, à la saturation, par rapport à la glace (au-dessous de 0° C) et par rapport à l'eau (au-dessus de 0° C), des dimensions pouvant aller jusqu'à 50 à 100 microns et même au-delà, tout en restant à l'état liquide, et même surfondu à température négative, malgré l'effet de la dilution.

Ce résultat est obtenu, selon l'invention, en dispersant dans ladite atmosphère des micro-gouttelettes ayant de préférence des diamètres moyens pouvant varier de 1 à 10 microns, notamment de 1 à 6 microns, lesdites micro-gouttelettes étant obtenues à partir d'une composition constituée par le mélange d'au moins un composé cryoprotecteur et d'au moins un matériau hygroscopique, ledit mélange étant à l'état liquide.

Certains composés polaires sont des cryoprotecteurs. On attribue cette propriété à leur aptitude à former des liaisons hydrogènes et donc à modifier la structure de l'eau liquide en la stabilisant.

Ainsi le liquide cryoprotecteur, dans les nuages froids et dans les zones de formation de grêle, agira principalement par sa fonction de "cryoprotecteur" et maintiendra les gouttelettes à l'état surfondu même à des températures très basses.

Les cryoprotecteurs, et les propriétés qui les caractérisent, ont été décrits par H.T. MERYMAN, Cryobiology (1966) Academic Press; E.E. ROSENBAUM, Dimethylsulfoxyde 1 (Basic concepts of DMSO), (1971) M.DEKKER.

Parmi les cryoprotecteurs actuellement préférés, on citera notamment le diméthylsulfoxyde, le glycérol, le pyridine N oxyde, l'hexaméthylènetétramine, l'acétamide, des saccharides.

Parmi les produits hygroscopiques actuellement préférés on peut citer par exemple le chlorure de sodium, les chlorure et iodure de lithium, le chlorure de calcium, etc.

Dans le mélange d'un produit hygroscopique et d'un cryoprotecteur qui constitue la composition de l'invention, la teneur en produit hygroscopique est faible et varie généralement de 0,1 à 15 % en poids, et notamment de 1 à 10 % en poids, par rapport au poids total de la composition.

Le produit hygroscopique sert à stabiliser les micro-gouttelettes du cryoprotecteur qui, sans lui, risqueraient de se volatiliser. En outre, il augmente le pouvoir hydrophile du cryoprotecteur.

Pour mettre en oeuvre le procédé de l'invention on utilise

les appareils classiques permettant de pulvériser des liquides sous forme de micro-gouttelettes. Ces appareils sont notamment des conteneurs munis de moyens générateurs de micro-gouttelettes.

Lesdits moyens générateurs de micro-gouttelettes sont des  
5 appareils associant généralement deux fonctions, l'une consistant à éjecter, à l'aide d'un jet gazeux, le liquide à travers une tuyère de façon à le transformer en un aérosol de fines goutte-  
10 lettes, et l'autre fonction consistant à propulser à une certaine distance (de quelques mètres à une dizaine de mètres) ledit  
aérosol. Le jet gazeux peut être obtenu soit à partir d'un compresseur à gaz, soit à partir de gaz comprimé, ou bien par des turbines qui assurent un débit gazeux très important. Parmi ce dernier type d'appareils, on peut citer l'appareil commercialisé par la Société VOLUMAIR (Ivry sur Seine, France).

15 Pour mettre en oeuvre le procédé de l'invention, on peut effectuer la dispersion des micro-gouttelettes soit à partir du sol (cas des brouillards), soit à partir de moyens aériens tels que fusées, avions ou hélicoptères adaptés pour contenir l'appareillage de dispersion (cas de la stimulation de la pluie ou de  
20 la prévention de la grêle). La procédure d'ensemencement aérien est réalisée selon les techniques connues, soit dans les nuages où à la base de ceux-ci, soit encore dans la zone frontale d'une cellule orageuse.

Pour prévenir la grêle, on disperse généralement la composition de l'invention dans le coeur d'un nuage grêligène, avant  
25 formation des premiers grêlons.

La présente invention a également pour objet les compositions telles que définies ci-dessus, utilisables comme agents de modification des précipitations atmosphériques.

30 Les compositions de l'invention sont notamment constituées par lesdites solutions disposées dans un conteneur associé à un générateur de micro-gouttelettes.

Les compositions de la présente demande sont également des dispersions sous forme de micro-gouttelettes ayant les dimensions  
35 rappelées ci-dessus.

Les quantités de composition à utiliser dépendent de l'effet recherché.

Dans le cas de la dissipation des brouillards, la quantité à dissiper dépendra de l'opacité du brouillard, c'est-à-dire de la population de gouttelettes par  $\text{cm}^3$  et de leur spectre dimensionnel,

du volume de la zone à dissiper et de divers facteurs météorologiques dont la température et l'entraînement de la dispersion sous l'influence des turbulences. A titre indicatif, on peut disperser, à partir d'un ou plusieurs générateurs de microgoutte-  
5 lettes, de 2 à 50kg de composition par  $\text{km}^2$  à traiter. à disperser dépendront du type de nuage considéré, et des paramètres dynamiques et microphysiques qui permettent de le caractériser, tels que courants ascendants (convection), spectre granulométrique, etc...). A titre d'exemple, on peut disperser, à l'aide d'un ou  
10 plusieurs générateurs de microgouttelettes, de 50 à 200 kg de composition.

Pour la prévention de la grêle, on peut par exemple disperser la composition, transportée à l'aide d'une fusée, dans la ou les zones d'accumulation qui sont caractérisées par un fort écho  
15 radar. Les fusées, telles que celles du type Oblako, emportent par exemple 5kg environ de composition à disperser. On procèdera à des tirs espacés dans le temps en fonction de l'évolution observée à l'aide des critères retenus, à partir des échos radar.

Dans un milieu nuageux où la teneur en vapeur est voisine de  
20 100 %, la croissance des micro-gouttelettes de la composition de l'invention en gouttes de 50 à 100 microns ou même au-delà est pratiquement spontanée. Pour des dispersions de particules solides de chlorure de sodium par exemple, la vitesse de croissance des gouttes formées est nettement plus faible. Encore faut-il  
25 tenir compte du temps de latence correspondant au temps nécessaire à la dissolution de la particule solide.

La vitesse de croissance des gouttelettes à partir d'un aérosol de la composition de l'invention (par exemple pour une composition  $\text{LiCl} + \text{DMSO}$  ou  $\text{LiI} + \text{DMSO}$ ) est très rapide. Ainsi la  
30 présence du cryoprotecteur, qui est pourtant le constituant principal de la composition de l'invention, n'a pas sensiblement diminué le pouvoir hydrophile du sel de lithium.

La remarquable stabilité des gouttelettes obtenues après croissance des micro-gouttelettes, même pour des taux de dilution  
35 de l'ordre de 1/500ème ou du 1/1000ème et même davantage, ne peut en aucun cas s'expliquer par un effet cryohydratique (abaissement du point de congélation des solutions), mais résulte assurément d'un changement de structure de cette solution très diluée.

Les exemples suivants illustrent l'invention sans toutefois la limiter.



Exemple 1 : On a réalisé des compositions constituées par des solutions de chlorure et d'iodure de lithium dans le dyméthylsulfoxyde (DMSO).

5 A l'aide d'un générateur de micro-gouttelettes on a obtenu un aérosol stable de micro-gouttelettes ayant un diamètre moyen de 1 à 10 microns environ.

Alors qu'un aérosol comparable de DMSO n'est pas stable, car il s'évapore par suite de l'augmentation de la tension de vapeur liée à la diminution du diamètre des gouttes (loi de Kelvin),  
10 l'aérosol obtenu avec lesdites solutions de chlorure ou d'iodure de lithium dans le DMSO est stable.

Cet aérosol est capable de fournir un grand nombre de noyaux de condensation constitué par les micro-gouttelettes qui le constituent.

15 Par exemple, un aérosol homogène formé par des micro-gouttelettes de diamètre égales à 2 microns fournira environ  $2,5 \cdot 10^{14}$  noyaux de condensation par litre.

Pour étudier le comportement des micro-gouttelettes en simulant les conditions naturelles, on a construit une "chambre  
20 de condensation", sphérique, d'un volume utile de 200 litres, en verre pyrex, dont le refroidissement est assuré par une circulation annulaire homogène périphérique de glycol. La température de cette enceinte est programmable entre + 20° C et - 35° C. La sursaturation en vapeur d'eau est assurée par détente adiabatique.  
25 Le comptage de l'aérosol de gouttelettes est effectué selon la méthode imaginée par J.S. Ryan et Al. (J. Opt. Soc. Amer., Janvier 1979, N° 1, 60-67).

Il s'agit de la méthode appelée "Laser backscattering".

On a trouvé que lorsqu'elles sont placées dans une atmosphère à température comprise entre 0 et - 25° C, et pour une  
30 humidité relative croissante depuis 40 % environ, des micro-gouttelettes de solution à 5 % de chlorure ou d'iodure de lithium dans le DMSO absorbent des quantités importantes de vapeur d'eau, et forment à la saturation par rapport à l'eau surfondue des  
35 gouttelettes dont la taille varie en fonction des conditions initiales, mais se situe généralement dans la gamme de 20 à 40 microns environ. De telles gouttelettes ne se congèlent pas même à -35° C, bien que le rapport de dilution en volume puisse atteindre des valeurs variant entre 1/100ème et plus de 1/1000ème.

La vitesse de croissance des gouttelettes est fonction de la vitesse de variation de l'humidité relative.

Les gouttelettes obtenues restent surfondues malgré les effets de la dilution grace au liquide cryoprotecteur qui modifie la structure des liaisons intermoléculaires. On a pu obtenir une multitude de gouttes de solution de "DMSO + LiCl + H<sub>2</sub>O, ou de DMSO + LiI + H<sub>2</sub>O," de taille de l'ordre de 100 microns à des températures voisines ou inférieures à -40° C sans voir apparaître un seul cristal de glace. On a même atteint des surfusions de -80° C.

EXEMPLE 2.

On a réalisé des compositions constituées par une solution de phosphate tripotassique dans le DMSO, contenant 5 % en poids de chlorure de sodium.

En opérant de manière analogue à celle décrite dans l'exemple précédent, on a obtenu des résultats comparables.

EXEMPLE 3.

Dispersion d'un brouillard.

Plusieurs essais ont été effectués dans la vallée du Grésivaudan, près d'un plan d'eau. Il s'agissait de brouillards à température voisine de 0°C, mais positive. A l'aide d'un générateur de microgouttelettes on a dispersé environ 4 kg d'une solution à 5% de chlorure de sodium dans le DMSO, l'appareil étant dirigé dans le sens du vent qui avait une vitesse de l'ordre de 1 à 2 m par seconde. La nappe de brouillard, qui avait une hauteur de 50 à 60 mètres, a été dissipée sur une superficie de 40 ha environ. La visibilité, qui était de l'ordre d'une trentaine de mètres, a été portée à 500-600 mètres dans un délai de l'ordre de 15 à 20 minutes après la pulvérisation.

REVENDEICATIONS

1. Procédé de modification des précipitations atmosphériques, caractérisé par le fait que l'on disperse, dans une atmosphère susceptible de donner lieu à des précipitations, telle  
5 qu'un nuage ou un brouillard, des micro-gouttelettes d'une composition liquide constituée d'au moins un composé cryoprotecteur et d'au moins un matériau hygroscopique, ledit mélange étant à l'état liquide.
2. Procédé selon la revendication 1, caractérisé par le  
10 fait que l'on disperse dans ladite atmosphère des micro-gouttelettes ayant des diamètres moyens pouvant varier de 1 à 10 microns.
3. Procédé selon la revendication 2, caractérisé par le fait que les diamètres moyens varient de 1 à 6 microns.
4. Procédé selon l'une quelconque des revendications  
15 précédentes, caractérisé par le fait que le composé cryoprotecteur est choisi dans le groupe constitué par le diméthylsulfoxyde, le glycérol, le pyridine N-oxyde, l'hexaméthylènetétramine, l'acétamide et des saccharides.
5. Procédé selon l'une quelconque des revendications  
20 précédentes, caractérisé par le fait que ledit produit hygroscopique est choisi dans le groupe constitué par le chlorure de sodium, les chlorure et iodure de lithium, et le chlorure de calcium.
6. Procédé selon l'une quelconque des revendications  
25 précédentes, caractérisé par le fait que la teneur en matériau hygroscopique varie de 0,1 à 15 % en poids.
7. Procédé selon la revendication 6, caractérisé par le fait que ladite teneur varie de 1 à 10 % en poids.
8. Procédé selon l'une quelconque des revendications  
30 précédentes, caractérisé par le fait que l'on disperse ladite composition à l'aide d'un appareil constitué par un conteneur muni de moyens générateurs de micro-gouttelettes.
9. Procédé selon l'une quelconque des revendications  
précédentes, caractérisé par le fait que l'on disperse ladite  
35 composition sous forme de micro-gouttelettes dans un nuage, à la base d'un nuage, dans une zone de brouillard, ou dans la zone frontale d'une cellule orageuse.
10. Procédé selon l'une quelconque des revendications précédentes, caractérisé par le fait que l'on disperse ladite composition dans le coeur d'un nuage grêligène, avant formation

des grêlons.

11. Composition pour la modification des précipitations atmosphériques, caractérisée par le fait qu'elle est constituée par le mélange à l'état liquide d'au moins un composé cryoprotecteur et d'au moins un matériau hygroscopique.

12. Composition selon la revendication 11, caractérisée par le fait qu'elle présente les caractéristiques définies dans l'une quelconque des revendications 4 à 7.

13. Composition selon l'une quelconque des revendications 11 et 12, caractérisée par le fait qu'elle est disposée dans un conteneur associé à un générateur de micro-gouttelettes.

14. Composition selon l'une quelconque des revendications 11 et 12, caractérisée par le fait qu'elle se présente sous la forme d'une dispersion sous forme de micro-gouttelettes ayant une dimension pouvant varier de 1 à 10 microns.

15. Composition selon l'une quelconque des revendications 11 à 14, caractérisée par le fait que le cryoprotecteur est le diméthylsulfoxyde .

16. Composition selon l'une quelconque des revendications 11 à 15, caractérisée par le fait que ledit matériau hygroscopique est choisi dans le groupe constitué par le chlorure de lithium, l'iodure de lithium, le chlorure de calcium et le chlorure de sodium.